



HAL
open science

Dimensionnement de sources térahertz produites par des plasmas d'air

Alexandre Stathopoulos

► **To cite this version:**

Alexandre Stathopoulos. Dimensionnement de sources térahertz produites par des plasmas d'air. Optique [physics.optics]. Université Paris-Saclay, 2023. Français. NNT : 2023UPASP132 . tel-04315130

HAL Id: tel-04315130

<https://theses.hal.science/tel-04315130>

Submitted on 30 Nov 2023

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.

Dimensionnement de sources térahertz produites par des plasmas d'air

Scaling of terahertz sources produced by air plasmas

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n° 572 Ondes et Matière (EDOM)
Spécialité de doctorat : Physique

Graduate School : Physique. Référent : Faculté des Sciences d'Orsay

Thèse préparée au **Laboratoire Matière sous Conditions Extrêmes (université Paris-Saclay, CEA)**, sous la direction de **Luc BERGÉ**, directeur de recherche

Thèse soutenue à Paris-Saclay, le 19 octobre 2023, par

Alexandre STATHOPOULOS

Composition du jury

Membres du jury avec voix délibérative

Danielle DOWEK Directrice de recherche, Université Paris-Saclay	Présidente
Jean-Pierre WOLF Professeur des universités, Université de Genève	Rapporteur & Examineur
Ihar BABUSHKIN Professeur assistant (équi. HDR), Institute for Quantum Optics, Leibniz University of Hannover	Rapporteur & Examineur
Peter Uhd JEPSEN Professeur des universités, Technical University of Denmark	Examineur
Stefan SKUPIN Chargé de recherche, Université Claude Bernard Lyon 1, Institut Lumière-Matière	Examineur
Caterina RICONDA Professeur des universités, Sorbonne Université, Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses (LULI)	Examinatrice
Juliette MANGENEY Directrice de recherche, Ecole Normale Supérieure de Paris, Département de Physique	Examinatrice

Titre : Dimensionnement de sources térahertz produites par des plasmas d'air

Mots clés : Sources Térahertz, Plasma d'Air, Laser Ultracourt, ALTESSE, Laser à deux couleurs

Résumé : Cette thèse se situe dans le cadre du projet ANR/MATURATION ALTESSE2 dont l'objectif était de fiabiliser la spectroscopie THz résolue en temps de matériaux énergétiques ou biologiques. Le rayonnement THz (1-100 THz) appartient au domaine infrarouge lointain. Sa période est semblable aux temps caractéristiques des mouvements ro-vibrationnels des macro-molécules (tissus organiques, explosifs ou drogues). Il est donc capable d'exciter ces transitions pour présenter un spectre de raies permettant l'identification du matériau analysé par spectroscopie. La méthode de production d'ondes THz étudiée consiste à focaliser une impulsion laser femtoseconde à deux harmoniques dans un gaz, ici l'air ambiant. Au régime d'intensités d'intérêt (10^{13-15} W/cm²), le faisceau laser ionise l'air par effet tunnel et engendre un plasma électronique parcouru par des courants, nommés « photo-courants », qui contiennent un terme THz provenant d'un mélange de fréquences entre le champ laser et la hausse de densité électronique. Celui-ci est alors rayonné typiquement sous la forme d'un cône d'angle d'ouverture $\approx 3^\circ$. Cette méthode est particulièrement adaptée à la spectroscopie car elle permet de générer des impulsions THz intenses ($> 0,1$ GV/m) et large-bande (< 100 THz), ce qui se différencie des sources usuelles présentant un spectre très piqué. Mon objectif a été d'optimiser ce procédé et d'améliorer la compréhension de ces mécanismes. Le rayonnement THz a été estimé à l'aide de deux modèles : le modèle Local Current qui néglige les effets

de propagation laser pour donner une estimation 0D + t de l'amplitude THz générée, et l'équation 3D de propagation laser unidirectionnelle, qui est intégrée par le code de simulation CUP3D. Nous avons montré d'une part que polariser circulairement (état dit CP-S) les harmoniques laser permet d'augmenter l'énergie THz produite d'un facteur 4-5 par rapport au cas classique où ces fréquences sont polarisées linéairement (état dit LP-P), et d'autre part que l'état CP-S optimise le rendement de conversion parmi l'ensemble des polarisations laser elliptiques. De précédents travaux montrent que l'ajout d'harmoniques laser permet d'augmenter le rendement de conversion laser-THz d'un facteur allant jusqu'à 20 pour un faisceau LP-P. Nous rapportons que cette augmentation est moindre en polarisation CP-S, et que le cas LP-P devient plus efficace que CP-S au-delà de 5-6 harmoniques laser. Ensuite, l'intégration d'un modèle classique (plasma cylindrique homogène) permis de retrouver la distribution conique de l'émission THz mesurée lors d'une expérience. Nous proposons également un modèle d'émission conique plus complet prenant en compte les variations transverses du plasma et les aberrations optiques perturbant la propagation du faisceau laser. Ce modèle a été validé à l'aide de simulations 3D. Enfin, des estimations CUP3D ont montré que les aberrations optiques courantes (sphéricité, astigmatisme et coma) dégradent le spectre THz généré, qui est alors plus faible, plus fin et asymétrique dans l'espace.

Title : Scaling of terahertz sources produced by air plasmas

Keywords : Terahertz Sources, Air plasma, Ultrashort Laser, ALTESSE, Two-color Laser

Abstract : This thesis is part of the ANR/MATURATION ALTESSE2 project, the objective of which was to make time-resolved THz spectroscopy of energetic or biological materials more reliable. THz radiation (1-100 THz) belongs to the far infrared range. Its period is similar to the characteristic times of the ro-vibrational movements of macro-molecules (organic tissues, explosives or drugs). It is therefore able to excite these transitions to present an absorption spectrum allowing the identification of the material analyzed by spectroscopy. The studied THz wave production method consists in focusing a two-harmonic femtosecond laser pulse in a gas, here ambient air. At the intensities of interest (10^{13-15} W/cm²), the laser beam ionizes the air by tunnel effect and generates an electronic plasma containing currents, called "photo-currents", which present a THz term generated by frequency-mixing between the laser field and the increase in electron density. The THz emission is then typically radiated as a cone with an opening angle of $\approx 3^\circ$. This method is particularly suitable for spectroscopy as it generates intense (> 0.1 GV/m) and broadband (< 100 THz) THz pulses, which differs from usual sources that provide a very thin spectrum. My objective was to optimize this process and improve the understanding of these mechanisms. The THz radiation was estimated using two models : the Local Current model which neglects laser propagation effects to give a 0D + t estimate of the genera-

ted THz amplitude, and the 3D unidirectional laser propagation equation, which is integrated by the CUP3D simulation code. We showed on the one hand that circularly polarizing (state called CP-S) the laser harmonics makes it possible to increase the THz energy produced by a factor of 4-5 compared to the classic case where these frequencies are linearly polarized (state called LP-P), and on the other hand that the CP-S state optimizes the conversion efficiency among all the elliptical laser polarizations. Previous work shows that the addition of laser harmonics can increase the laser to THz conversion efficiency by a factor of up to 20 for an LP-P beam. We report that this increase is less important in the CP-S configuration, and that the LP-P case becomes more efficient than CP-S beyond 5-6 laser harmonics. The integration of a classical model (homogeneous cylindrical plasma) allowed to find the conical distribution of the THz emission measured during an experiment. We also propose a more complete conical emission model taking into account the transverse variations of the plasma and the optical aberrations distorting the propagation of the laser beam. This model was validated using 3D simulations. Finally, CUP3D estimates showed that common optical aberrations (sphericity, astigmatism and coma) degrade the generated THz spectrum, which is then weaker, thinner and spatially asymmetrical.

Remerciements

On dit qu'un voyage de mille lieues commence par un pas. Aujourd'hui ce voyage touche à sa fin. Le chemin a été long mais s'achève avec un travail duquel je peux être satisfait. Merci.

Merci à Luc, sans qui ce manuscrit n'aurait jamais pu voir le jour. Vous avez pendant plus de trois ans su gérer l'étudiant perturbateur que j'ai toujours été, et su répondre à toutes mes questions scientifiques, aussi farfelues pouvaient-elles être. Cette patience et cette fiabilité dont vous avez su faire preuve, vous les partagez avec Stefan, que je tiens également à remercier chaleureusement pour son soutien tout au long de ma thèse.

Merci à toutes les personnes fantastiques que j'ai pu rencontrer au CEA. Tout d'abord, à Xavier et Laurent qui ont toujours été de bon conseil, autant pour mes recherches que pour ma soutenance, et ce pendant plus de trois ans. Léo, pour le courage dont tu fais preuve au quotidien pour affronter la maladie et les affres d'un travail de doctorat. Quentin L., toujours disponible pour perdre pendant des soirées entières à des jeux de son choix. Thomas, qui a le pouvoir rare, précieux mais mystérieux d'en quelque sorte régner sur les moments de gêne survenant lors de nos conversations. Rodolphe et Quentin C., pour nos soirées consacrées aux jeux de société, où je finissais régulièrement noyé dans la bière. Émilien, pour ses petites anecdotes quotidiennes à chaque fois que je lui passais le bonjour le matin. Mélanie, pour m'avoir supporté pendant plus de trois ans au sein du même bureau. Merci en particulier à toi pour avoir arrêté de siffler de manière aléatoire. Colomban, pour m'avoir accompagné pendant mes deux premières années de thèse, ainsi que pour nos McDo mensuels après les PSG Meetings. Jérémy, pour ta gentillesse malgré tes opinions culinaires douteuses. Sylvain, que je n'ai jamais entendu dire "non" à une proposition débile (par exemple construire un banc avec des planches trouvées par hasard en

bas du bâtiment K). Kévin, pour ton anecdote sur la bouteille de vin poissonneuse que tu as achetée en Italie, et dont tu nous a parlé tant de fois. Et enfin Serge, un des vieillards les plus intelligents, drôles et stylés que j'ai jamais rencontré au cours de ma vie.

Merci à ma famille, qui a toujours été la source de ma motivation à aller plus loin, réussir toujours plus afin de les rendre fiers. A ma mère, j'espère que tout ce que tu t'acharnes à construire sera couronné de succès. A mon père, je te souhaite de continuer à t'éclater dans ce que tu fais aujourd'hui, après toutes ces années difficiles passées dans l'armée. Emmanuel, même si, à l'heure où j'écris ces lignes, nous ne sommes pas en de très bons termes, tu seras toujours mon petit frère, et je serai toujours là pour toi quand tu en auras besoin. Adrien, qui aura peut-être également le plaisir d'écrire des remerciements dans son manuscrit de thèse dans quelques années. Tu as ce petit quelque chose de plus, qui fera de toi quelqu'un de grand. Valentin, reste aussi ambitieux que tu l'es aujourd'hui, c'est ce qui te permettra d'accomplir, j'en suis sûr, les projets fous auxquels tu aspires. Mes grands-parents, que je considère eux aussi comme des parents, car ils m'ont tant appris. Papinoux, tu peux reposer en paix car je continuerai de te faire honneur. Maminoux, je serai toujours là lorsque la solitude te regardera au loin, et même lorsqu'elle ne sera pas là d'ailleurs. Juju, mon quatrième frère. Nous ne nous voyons pas si souvent, mais personne ne pourra remplacer qui tu es pour moi. Orly, comme une sœur. Je ne te l'ai jamais dit, mais j'ai toujours un immense respect pour toi quant à ce que tu as pu traverser au cours de ta vie. Laurine, qui s'est mariée il y a quelques semaines à l'heure où j'écris ces mots. Encore félicitations. Parrain et marraine, pour avoir veillé sur moi pendant mon enfance. J'ai partagé, et je continuerai de partager avec vous des souvenirs inoubliables.

Formulaire

Constantes physiques

Symbole	Description	Valeur (S.I.)
c	vitesse de la lumière dans le vide	$2.99792458 \times 10^8 \text{ m.s}^{-1}$
e	charge élémentaire	$1.602176565 \times 10^{-19} \text{ C}$
m_e	masse de l'électron	$9.10938291 \times 10^{-31} \text{ kg}$
ϵ_0	permittivité électrique du vide	$8.854187817620391 \times 10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$
μ_0	perméabilité magnétique du vide	$1.256637061435917 \times 10^{-6} \text{ V.s.A}^{-1}\text{m}^{-1}$
h	constante de Planck	$6.62606957 \times 10^{-34} \text{ J.s}$
$\hbar = h/2\pi$	constante de Planck réduite	$1.05457173 \times 10^{-34} \text{ J.s}$
k_B	constante de Boltzmann	$1.3806488 \times 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$

Nous rappelons la relation $c^2 = \frac{1}{\mu_0 \epsilon_0}$.

Unités atomiques

Symbole	Description	Valeur (S.I.)
E_{au}	champ de liaison	$5.14220674763 \times 10^{11} \text{ V.m}^{-1}$
U_{au}	hartree (unité atomique d'énergie)	$27.21 \text{ eV} = 4.3597441775 \times 10^{-18} \text{ J}$
ν_{au}	fréquence atomique	$4.13380513 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$

En unités atomiques, la convention $\hbar = e = m_e = 1/4\pi\epsilon_0 = 1$ s'applique.

Identités vectorielles Soient ϕ un champ scalaire, \vec{u} , \vec{v} et \vec{w} des champs vectoriels, $\vec{\nabla}$ l'opérateur nabla, \cdot le produit scalaire, \times le produit vectoriel et \otimes le produit tensoriel, vérifiant $(\vec{u} \otimes \vec{v})_{i,j} = u_i v_j$. Nous rappelons les identités vectorielles suivantes :

$$\vec{\nabla} \cdot (\phi \vec{u}) = \vec{u} \cdot \vec{\nabla} \phi + \phi (\vec{\nabla} \cdot \vec{u}) \quad (1)$$

$$\vec{\nabla} \times (\phi \vec{u}) = \phi (\vec{\nabla} \times \vec{u}) + (\vec{\nabla} \phi) \times \vec{u} \quad (2)$$

$$\vec{\nabla} \cdot (\vec{u} \times \vec{v}) = \vec{v} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{u}) - \vec{u} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{v}) \quad (3)$$

$$\vec{\nabla} \cdot (\vec{u} \otimes \vec{v}) = (\vec{\nabla} \cdot \vec{v}) \vec{u} + (\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{u} = (\vec{\nabla} \cdot \vec{v}) \vec{u} + {}^t(\vec{\nabla} \otimes \vec{u}) \vec{v} \quad (4)$$

$$(\vec{u} \times \vec{v}) \cdot \vec{w} = (\vec{w} \times \vec{u}) \cdot \vec{v} = (\vec{v} \times \vec{w}) \cdot \vec{u} \quad (5)$$

Transformations intégrales

Nom	Transformée directe	Transformée inverse
Fourier temporelle	$\hat{f}(\omega) = \mathcal{F}[f(t)] = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)e^{i\omega t} dt$	$f(t) = \mathcal{F}^{-1}[\hat{f}(\omega)] = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \hat{f}(\omega)e^{-i\omega t} d\omega$
Fourier spatiale ($\vec{r} = (x, y, z)$)	$\hat{f}(\vec{k}) = \mathcal{F}[f(\vec{r})] = \int_{-\infty}^{+\infty} f(\vec{r})e^{-i\vec{k}\cdot\vec{r}} d\vec{r}$	$f(\vec{r}) = \mathcal{F}^{-1}[\hat{f}(\vec{k})] = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{+\infty} \hat{f}(\vec{k})e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} d\vec{k}$

Produit de convolution

$$(f * g)(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(u)g(x - u)du \quad (6)$$

Fonctions intégrales

Intégrale de Gauss

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\alpha x^2} dx = \sqrt{\frac{\pi}{\alpha}} \quad (7)$$

Fonction d'erreur

$$\operatorname{erf}(t) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^t e^{-x^2} dx \quad (8)$$

\Leftrightarrow

$$\frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi}{\alpha}} \operatorname{erf}(\sqrt{\alpha}y) = \int_0^y e^{-\alpha x^2} dx \quad (9)$$

Table des matières

Remerciements	i
Formulaire	iii
1 Introduction	1
1.1 Le rayonnement térahertz	2
1.1.1 Description	2
1.1.2 Sources de rayonnement térahertz	3
1.1.3 Applications du rayonnement térahertz	11
1.2 Le projet ALTESSE	19
1.2.1 Résultats du projet ALTESSE1	19
1.2.2 Objectifs du projet ALTESSE2	21
1.2.3 Méthode de détection du rayonnement THz	22
1.2.4 Mieux comprendre les dynamiques spectrales	24
1.2.5 Spectroscopie THz résolue en temps à longue distance	28
1.3 Structure du manuscrit	36
1.3.1 Sujet de la thèse	36
1.3.2 Traitement des problématiques	37
1.3.3 Moyens financiers et numériques mis à disposition	38
2 Mécanismes de production de rayonnement térahertz et modèles	41
2.1 Équations décrivant la production de rayonnement THz	42
2.1.1 Impulsion laser initiale	42
2.1.2 Equations de Maxwell	45
2.1.3 Réponse non-linéaire des électrons liés	49
2.1.4 Photo-ionisation de l'air	59

2.1.5	Interactions laser-plasma : Equation de Vlasov	72
2.1.6	Courants de pertes	77
2.2	Modèles physiques	78
2.2.1	Génération de rayonnement THz par photo-courants	78
2.2.2	Modèle de courant local (ou "Local Current")	79
2.2.3	Comparaison des spectres THz issu des photo-courants et des effets Kerr et Raman	84
2.2.4	Modèle UPPE	89
2.3	Code de simulation CUP3D	93
2.3.1	Pré-processeur de propagation linéaire	94
2.3.2	Intégration numérique du modèle UPPE	97
3	Optimisation du rendement de conversion laser-THz	101
3.1	Influence de la polarisation laser sur l'onde THz	102
3.1.1	Configurations des polarisations laser étudiées	102
3.1.2	Optimisation de la production d'impulsions THz par un faisceau LP-P	104
3.1.3	Développements analytiques	105
3.1.4	Intégration numérique du modèle LC	110
3.1.5	Simulations UPPE	114
3.1.6	Confirmation expérimentale	116
3.2	Ajout d'harmoniques laser	119
3.2.1	Dérivation du champ laser Sawtooth LP-P	119
3.2.2	Caractérisation du champ laser Sawtooth CP-S	123
3.2.3	Simulations CUP3D de production de rayonnement THz par des impul- sions Sawtooth	126
3.2.4	Expériences de génération de rayonnement THz par une impulsion laser à 3 couleurs	130
3.3	Impact de la diffusion Raman stimulée sur la propagation d'une impulsion laser vectorielle	135
3.3.1	SRRS pour une impulsion laser de polarisation arbitraire	135
3.3.2	Implémentation dans CUP3D	140

3.3.3	Impact de la diffusion Raman sur la génération d'ondes THz	141
3.4	Résumé du chapitre	144
4	Emission conique	147
4.1	Emission conique par un plasma cylindrique homogène	148
4.1.1	Modèle de You, Oh et Kim (2012)	148
4.1.2	Comparaison à des données expérimentales	152
4.2	Généralisation du modèle de You et <i>al.</i>	160
4.2.1	Commentaires préliminaires	161
4.2.2	Emission conique pour des impulsions laser gaussiennes	165
4.2.3	Intégration du modèle généralisé	177
4.3	Résumé du chapitre	188
5	Influence des aberrations optiques sur le rayonnement THz	191
5.1	Introduction aux aberrations optiques	192
5.1.1	Principe d'aberration optique	192
5.1.2	Le miroir déformable	196
5.1.3	Application du modèle d'émission conique	198
5.2	Influence des aberrations optiques en régime focalisé	198
5.2.1	Polarisation LP-P	199
5.2.2	Polarisation CP-S	206
5.3	Influence des aberrations optiques en régime de filamentation laser	212
5.4	Résumé du chapitre	217
6	Conclusion	221
Annexes		231
A	Théorie Fonctionnelle de la Densité	233
B	Calcul des t_n et $\vec{v}_f(t_n)$ en configurations LP-P, LP-O, CP-S et CP-C à deux couleurs	236
B.1	Calcul des instants d'ionisation t_n	236
B.2	Calcul des grandeurs $\vec{v}_f(t_n)$	238
C	Calcul des t_n pour un champ laser Sawtooth LP-P à N couleurs	240
D	Calcul de la polarisation Raman LP-P	243

Bibliographie

249

Chapitre 1

Introduction

Sommaire

1.1	Le rayonnement térahertz	2
1.1.1	Description	2
1.1.2	Sources de rayonnement térahertz	3
1.1.3	Applications du rayonnement térahertz	11
1.2	Le projet ALTESSE	19
1.2.1	Résultats du projet ALTESSE1	19
1.2.2	Objectifs du projet ALTESSE2	21
1.2.3	Méthode de détection du rayonnement THz	22
1.2.4	Mieux comprendre les dynamiques spectrales	24
1.2.5	Spectroscopie THz résolue en temps à longue distance	28
1.3	Structure du manuscrit	36
1.3.1	Sujet de la thèse	36
1.3.2	Traitement des problématiques	37
1.3.3	Moyens financiers et numériques mis à disposition	38

Les progrès technologiques actuels reposent en partie sur la maîtrise des applications liées aux rayonnements électromagnétiques. Les pères fondateurs de cette branche de la physique sont Ørsted qui observa en 1820 qu'un courant électrique engendre un champ magnétique [1], Faraday qui remarqua à son tour en 1831 qu'un champ magnétique crée un champ électrique [2], Maxwell qui unifia en 1864 les équations régissant l'électromagnétisme [3] et Hertz qui les vérifia expérimentalement entre 1887 et 1888 [4]. Juchés sur ces épaules de géants, c'est désormais notre tour de contribuer, autant que faire se peut, au domaine toujours en évolution

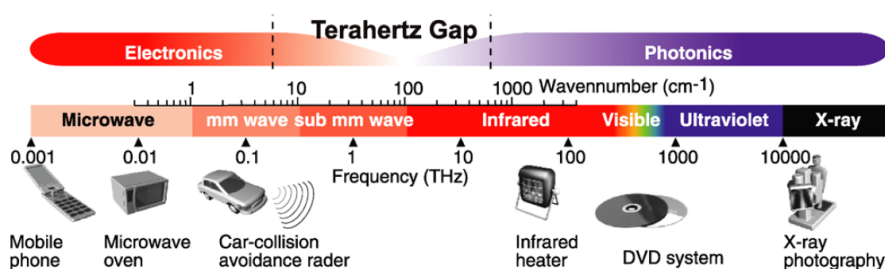


FIGURE 1.1: Spectre électromagnétique comprenant la lacune technologique THz. Source : Fukunaga [6]

de l'électromagnétisme. L'exploitation de chaque partie du spectre électromagnétique a permis à notre société de se développer à travers l'invention de la télécommunication, de procédés générant de la chaleur, de moteurs électriques ou encore de méthodes d'imagerie. Toutefois, une certaine bande de fréquences reste encore difficile d'accès par les méthodes de production conventionnelles : il s'agit des fréquences associées aux ondes térahertz.

Le présent travail vise à étudier la génération de rayonnements "térahertz" (10^{12} Hz, abrégé THz), qui sont situés dans la partie infrarouge lointaine du spectre électromagnétique. Les bornes de ce domaine sont souvent fixées entre 0.1 et 30 THz, comme illustré par la figure 1.1, mais l'évolution récente de la technologie, en particulier grâce à l'essor des lasers ultrabrefs, permet désormais de l'élargir jusqu'à 100 THz. Dans un premier temps seront discutées l'identité et les caractéristiques de ce type de rayonnement. Par la suite, l'état de l'art des sources térahertz existantes à ce jour sera rappelé, puis différentes applications technologiques possibles de ce type de rayonnement seront mentionnées. Par la suite seront approfondis les résultats obtenus dans le cadre des projets ALTESSE [5] et ALTESSE2 dans lesquels cette thèse s'inscrit. Ces projets visent à mettre au point et à optimiser une génération d'ondes THz intenses (0.1 - 1 GV/m) et larges spectralement (1-100 THz) par des plasmas atmosphériques créés par laser femtoseconde afin de pouvoir réaliser une spectroscopie THz efficace.

1.1 Le rayonnement térahertz

1.1.1 Description

Au cours de cette thèse, les ondes térahertz seront attribuées à la bande fréquentielle infrarouge lointaine se situant entre 0.1 et 100 THz. Ce choix se démarque de la bibliographie qui limite gé-

néralement ce domaine à 30 THz. Toutefois les applications en rapport avec le présent travail, en particulier la spectroscopie THz, concernent également une partie du spectre infrarouge moyen. En dessous de 0.1 THz se situent les micro-ondes, souvent produites au moyen de dispositifs basés sur des semi-conducteurs (diodes et transistors) ou électromagnétiques solides (magnétrons). Au-delà de 100 THz, on parle de rayonnement proche infrarouge, généré en excitant des photons de faible énergie. Il y a donc une différence fondamentale entre les sources de rayonnement bornant le spectre THz. C'est pourquoi le rayonnement THz est resté difficile d'accès technologiquement jusqu'à récemment [7], de sorte que l'on parle parfois de "technological THz gap" dans la bibliographie, traduit ici par "lacune technologique THz".

Le temps de variation caractéristique des ondes THz est lié à leur fréquence ν_{THz} et leur longueur d'onde λ_{THz} par $T_{\text{THz}} = 1/\nu_{\text{THz}} = \lambda_{\text{THz}}/c$, où c est la célérité de la lumière dans le vide. Numériquement, ces temps sont compris entre $T_{100 \text{ THz}} = 10 \text{ fs}$ et $T_{0.1 \text{ THz}} = 10 \text{ ps}$. Les longueurs d'onde en jeu sont donc comprises entre $\lambda_{100 \text{ THz}} = 3 \text{ }\mu\text{m}$ et $\lambda_{0.1 \text{ THz}} = 3 \text{ mm}$. Ces dernières sont liées à l'énergie des photons générés \mathcal{E}_{THz} par la relation de Planck $\mathcal{E}_{\text{THz}} = h\nu_{\text{THz}}$, avec $h \approx 6.626 \times 10^{-34} \text{ J.s}$ la constante de Planck. Le spectre THz correspond donc à des photons d'énergies bornées entre $\mathcal{E}_{0.1 \text{ THz}} = 4 \text{ meV}$ et $\mathcal{E}_{100 \text{ THz}} = 0.4 \text{ eV}$. A titre de comparaison, le potentiel d'ionisation du dioxygène O_2 présent dans l'air ambiant est de 12.1 eV. On considère alors que le rayonnement THz est peu énergétique et non-ionisant. Cette propriété peut être particulièrement utile lors du traitement de tissus vivants ou l'inspection de matériaux énergétiques.

1.1.2 Sources de rayonnement térahertz

Cette partie a pour objectif de détailler les sources communes d'ondes THz. Le spectre étudié est situé entre le domaine millimétrique, couvert par des dispositifs électroniques, et l'infrarouge, associé aux photons optiques. Nous pouvons ainsi classer les différents émetteurs en deux familles. Les sources générant une onde THz à partir de mouvements électroniques ultrarapides seront dites "électroniques" : leur domaine de fonctionnement se situe généralement à la frontière entre les spectres millimétrique (1-100 GHz) et THz. Les émetteurs formant les ondes THz en créant un photon à basse énergie seront classées comme "photoniques" (ou "optiques").

Sources électroniques

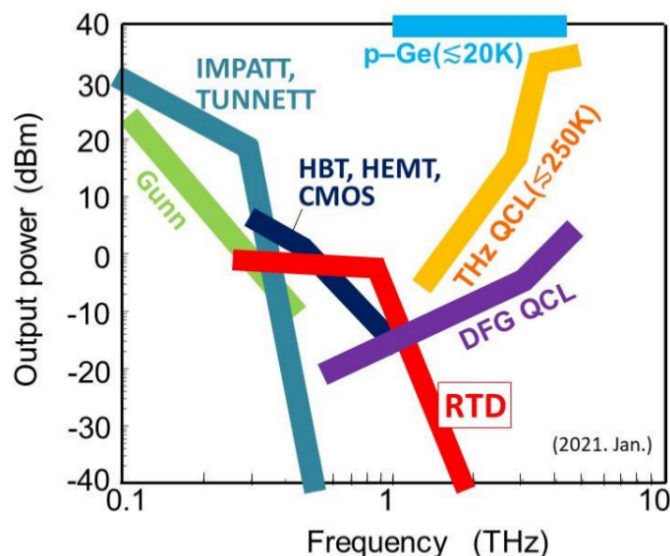


FIGURE 1.2: État de l'art des sources THz électroniques à semi-conducteurs et quelques méthodes de génération optique. Cette figure illustre la puissance de sortie en fonction de la fréquence générée. Les instruments sans indication de température fonctionnent à température ambiante. HBT, HEMT, CMOS : Transistors. DFG QCL : Laser à cascade quantique utilisant la génération par différence de fréquences. THz QCL : Laser à cascade quantique avec fondamental dans le spectre THz. p-Ge : Laser au germanium dopé p. Source : Asada [8]

Le principe de fonctionnement des sources à composante électronique est de générer du rayonnement THz à partir de mouvements électroniques rapides. Les solutions techniques pour exploiter une telle dynamique électronique consistent par exemple à utiliser des diodes de puissance à temps de commutation très court (< 10 ps). Les appareils les plus couramment employés sont les diodes Shottky [9], Gunn [10], IMPATT (IMPAct ionization Transit Time) [11], TUNNETT (Tunneling Transit Time) [12] et RTD (Resonant Tunneling Diode) [8]. Il est également possible de produire une onde THz à partir de transistors. Le plupart de ces oscillateurs fonctionnent jusqu'à 200 GHz, où leur rendement diminue généralement de 20 à -20 dB entre 200 et 400 GHz [13]. Ces diodes sont limitées en fréquence par le temps de diffusion des électrons au sein du semi-conducteur, ainsi que par les effets de résistance et de capacitance du matériau qui ralentissent le mouvement électronique. Ces défauts matériels les rendent globalement moins performantes que les solutions optiques au-delà de 1 THz [14], comme montré par La figure 1.2. Il existe également des sources induisant un mouvement d'oscillation rapide à partir d'électrons libres. Par exemple, le rayonnement synchrotron est produit par un électron libre baigné dans

un champ magnétique lorsqu'il subit une variation de vitesse. La bibliographie indique que ce type de rayonnement fournit une source stable de rayonnement THz [15]. A titre illustratif, l'installation SOLEIL établie à Saclay est l'instrument de nombreuses études et permet, à travers ce principe, de réaliser sur place une radiographie dans l'infrarouge lointain et le domaine THz en des temps de moins en moins contraignants et avec des résolutions inférieures au MHz [16]. Une autre source existante est le laser à électrons libres (dit FEL, pour "Free Electron Laser"), dans lequel les porteurs de charge sont accélérés dans un onduleur magnétique. Le champ magnétique subi par les électrons y change de polarité périodiquement dans l'espace : leur trajectoire prend alors une forme ondulée qui rayonne une émission de type bêatron pouvant se situer aussi bien dans le domaine THz que dans le spectre X (on nomme alors le dispositif respectivement un THz-FEL ou XFEL) [17]. A l'instar des diodes, ces sources n'ont généralement pas la capacité à produire un rayonnement THz aussi intense que les sources optiques au-delà de 1 THz.

Sources photoniques

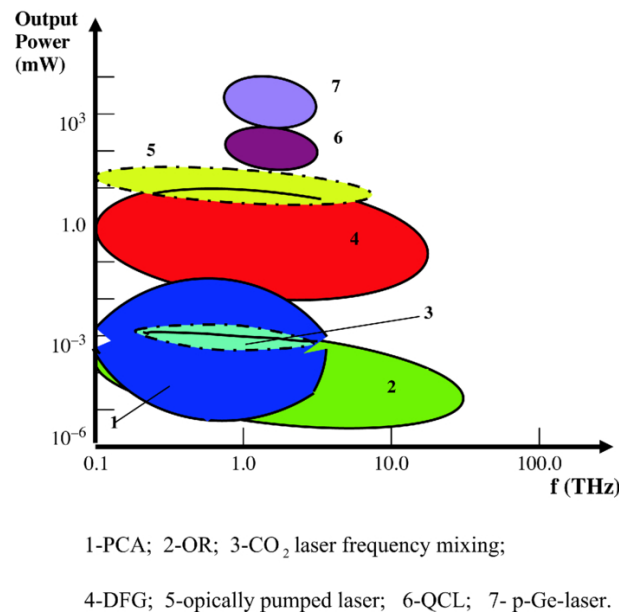


FIGURE 1.3: Puissance typique des différentes sources THz "optiques" en fonction de leur fréquence de fonctionnement. 1 : Antennes photoconductrices. 2 : Rectification optique. 3 : Lasers à faisceau THz continu. 4 : Rectification optique à deux impulsions laser. 5 : Lasers avec fondamental opérant dans le spectre THz. 6 : Lasers à cascade quantique. 7 : Lasers p-Ge. Source : Shumyatsky [18]

Les sources photoniques, ou optiques, génèrent un rayonnement THz à partir de l'émission de photons à très basse énergie. Leurs domaines spectraux de fonctionnement et leurs performances

en puissance sont résumées par la figure 1.3. Nous les commentons ci-dessous dans l'ordre croissant des puissances THz délivrées.

La solution la plus classique à ce jour est l'antenne photo-conductrice (abrégée PCA, pour "PhotoConductive Antenna"), dont la paternité peut être attribuée à Auston et al. (1975 - 1984) [19,20] puis à Mourou et al. (1981) [21]. Son principe est d'injecter une fréquence optique via une impulsion laser au sein d'un dipôle métallique photoconducteur traversé par un courant électrique constant. Comme rappelé par la figure 1.4, les porteurs de charge générés par l'absorption de l'impulsion sont accélérés par le courant DC et forment à leur tour un courant, nommé "photo-courant". Ces derniers dépendent de la variation du nombre d'électrons générés par l'absorption de l'impulsion, et oscillent dans le domaine THz [22]. Le choix du meilleur matériau photoconducteur à employer fait encore l'objet de recherches, mais les plus usités sont le GaAs ainsi que le InGaAs. Ils peuvent générer des spectres pouvant s'étendre jusqu'à 10 THz, associés à des puissance moyennes rayonnées de l'ordre de 10 μ W. Un enjeu critique dans le domaine de l'optimisation des PCA est la réalisation de matériaux améliorant l'absorption laser afin d'augmenter la production du rayonnement THz [23,24].

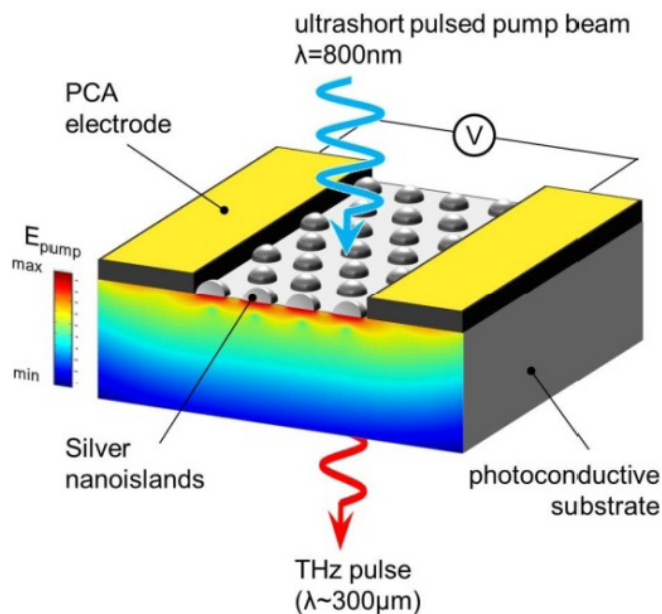


FIGURE 1.4: Schéma de fonctionnement d'une antenne photoconductrice. Source : Park [25]

Une deuxième méthode est d'exploiter la rectification optique dans un cristal électro-optique [26] ou organique [27]. Cet effet a été caractérisé pour la première fois par Bass et al. en 1962 [28]. La susceptibilité électrique d'un milieu détermine la polarisation des charges liées aux

noyaux \vec{P} en réponse à une excitation électrique externe \vec{E} . En particulier, une perturbation laser suffisamment intense excite les ordres n non-linéaires de la susceptibilité électrique, alors notés $\chi^{(n \geq 2)}$, entraînant ainsi une non-linéarité dans la polarisation du matériau irradié [29]. Pour un milieu non-centrosymétrique - un cristal asymétrique par exemple - la polarisation d'ordre 2, proportionnelle à $\chi^{(2)} E^2$, domine sur les ordres supérieurs et crée de l'harmonique deux à partir de l'impulsion laser incidente. Pour des impulsions optiques ultrabrèves, donc à large bande, le mélange des fréquences entre deux photons du fondamental (ω_0) et un photon d'harmonique deux ($2\omega_0$) génère un terme basse-fréquence ($\approx 2\omega_0 - 2 \times \omega_0$) situé dans le domaine THz. Ce processus permet de générer des impulsions lumineuses THz avec des rendements de l'ordre de 0.1% pour des énergies allant jusqu'à 100 μJ [30]. Il est également possible de faire interagir deux impulsions laser de fréquences fondamentales proches dans ce type de cristaux (β -BBO par exemple) pour générer une onde dont la fréquence dépend de la différence des fondamentaux utilisés [31]. Cette méthode, nommée DFG (pour "Difference-Frequency Generation"), permet de créer du rayonnement avec une puissance proche du mW [32], voire plusieurs dizaines de mW [33], avec un spectre toujours très piqué autour de la fréquence produite (de largeur ≈ 50 MHz).

Un troisième moyen de générer des photons THz est d'employer une source laser capable de les produire par émission stimulée. Un "laser THz" à faisceau continu a été réalisé par Crocker et al. en 1964 [34] en provoquant une décharge électrique dans un tube de verre de 5 mètres rempli de vapeur d'eau, générant ainsi un faisceau EM opérant entre 3.8 et 10.7 THz. Depuis, des sources plus performantes ont été construites, exploitant les transitions rotationnelles de différents gaz carbonés (CO_2 , CH_3OH , CH_3OD , entre autres) [35]. A l'heure actuelle, la solution la plus performante est le laser CH_3OH opérant à 2.52 THz. L'avantage de ce type de sources est son haut rendement infrarouge à THz pouvant atteindre 1% [36] et des énergies de l'ordre de plusieurs centaines de μJ [37], au prix d'un manque de versatilité dans la fréquence THz produite.

Il est possible d'augmenter la puissance de sortie d'une source THz laser en remplaçant artificiellement les niveaux de transition d'une molécule par une structure physique adaptée. Ce type de dispositif, nommé "laser à cascade quantique" (abrégé QCL, pour "Quantum Cascade Laser"), a d'abord été mis au point par Faist et al. dans le domaine infrarouge en 1994 [39], puis adapté au domaine THz par Kohler et al. en 2002 [40]. Il est composé de couches de semi-conducteurs

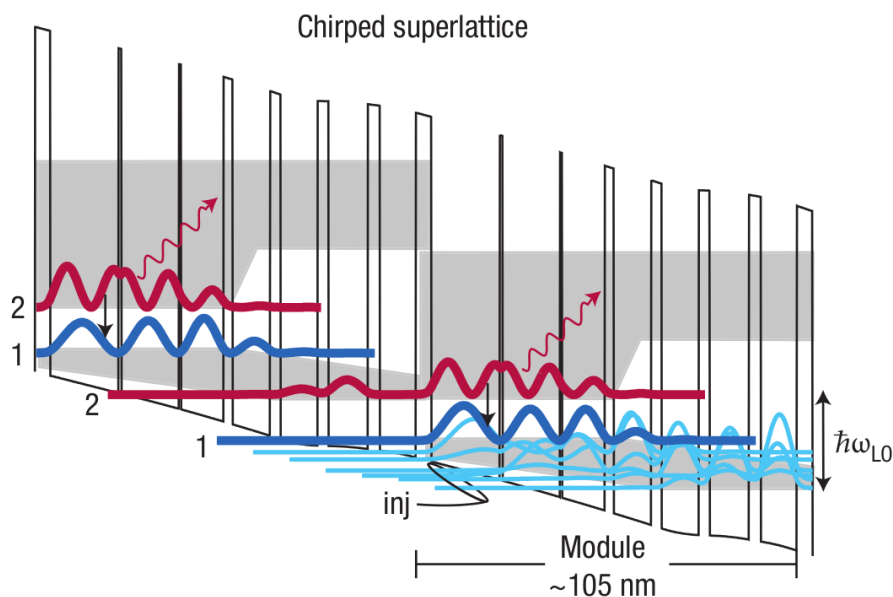


FIGURE 1.5: Schéma des bandes de conduction dans un laser à cascade quantique THz. Les courbes rouges et bleues représentent le carré des modules des fonctions d'ondes électroniques dans les différentes sous-couches. Les zones grises montrent les états électroniques atteignables dans chacune des mini-bandes. Source : Williams [38]

soumis à différents potentiels électriques confinant quantiquement les électrons. La figure 1.5 illustre une telle structure ainsi que les modules au carré des fonctions d'onde des électrons. Les différences de potentiel entre ces bandes étant très faibles, les photons émis lors de leurs transitions entre les différentes bandes sont de très basse énergie et leur fréquence appartient au spectre THz (ω_{LO} sur la figure). Le terme "cascade" provient de la capacité des électrons à effectuer des transitions supplémentaires par effet tunnel après une première transition au sein du réseau de confinement. Les lasers à cascade quantique sont usuellement capables de générer des spectres THz de l'ordre de la centaine de mW, voire du watt, très piqués autour d'une fréquence comprise entre 1 et 5 THz [38, 41].

La seule source actuellement capable de générer un rayonnement THz de plusieurs watts est le laser à germanium dopé, dit laser p-Ge ou laser à états résonants (RSL, pour "Resonant States Laser"). Le germanium (Ge) est un semi-conducteur à quatre électrons de valence : le doper avec un élément trivalent (généralement du gallium) permet de créer une population de trous dits "lourds" dans le matériau. Ces trous sont accélérés par un champ électrique externe jusqu'à exciter un mode de phonon optique, qui produit un trou dit "léger" car de moindre inertie face au champ externe. Celui-ci subit à son tour cette accélération jusqu'à exciter un mode de phonon

similaire et générer un trou lourd. Pour que ce processus soit cyclique, un champ magnétique permet de limiter le gain d'énergie des trous légers [42, 43]. Les photons formés par ce mécanisme ont une fréquence située dans l'infrarouge lointain, entre 1 et 5 THz. La première proposition de ce principe date de 1958 [44], mais son application pour produire un rayonnement THz a été réalisée pour la première fois par les chercheurs soviétiques entre 1983 [45] et 1984 [46].

Rayonnement THz par des plasmas de gaz

Ce travail de doctorat est associé au projet ALTESSE détaillé en section 1.2, dont un objectif principal est de développer la technologie de la spectroscopie THz résolue en temps de matériaux organiques ou explosifs. Comme rappelé précédemment, la plupart des sources de rayonnement THz actuelles produisent des ondes à spectre étroit (quelques THz au plus) ou à basse énergie, peu adaptées à sonder les nombreux modes d'excitation des molécules complexes. La méthode étudiée dans le cadre de cette thèse offre toutefois un compromis entre amplitude (~ 1 GV/m) et largeur spectrale (< 100 THz). Elle consiste à focaliser dans un gaz une impulsion laser (généralement de fondamental entre 0.8 et 2 μm), assez énergétique (de l'ordre du mJ) et ultracourte (typiquement 50 fs). Le milieu de propagation étudié lors du projet ALTESSE est l'air ambiant. A l'aide d'un cristal doubleur (généralement BBO), on forme sa deuxième harmonique (on parle également de "couleurs"). Par photo-ionisation, la superposition des deux couleurs génère un plasma d'électrons, dans lequel les porteurs de charge sont accélérés et dont le mouvement induit un photo-courant. Le spectre de ces courants est constitué d'un mélange fréquentiel entre les variations temporelles rapides de la densité électronique et du champ laser. En fonction des caractéristiques de l'impulsion incidente (asymétrie du profil temporel, polarisation, ratio d'énergie entre les deux couleurs, phase relative entre les harmoniques ...), les photo-courants contiennent un terme basse-fréquence associé à une onde THz qui est alors rayonnée dans l'espace, couramment sous la forme d'un champ électrique se propageant à un angle non-nul (généralement inférieur à 10° [47–49]) par rapport à l'axe optique [50, 51]. Cette "émission conique", dont les détails physiques seront discutés dans le chapitre 4, provient d'interférences constructives et destructives entre les impulsions THz générées en différents points du plasma d'air. Après la production de l'onde basse-fréquence par le plasma, le champ électrique total se présente comme la somme d'un rayonnement intense sur l'axe (l'onde de pompe) accompagnée d'un rayonnement de plus faible amplitude associé à l'émission THz générée. Les expérimentateurs peuvent

donc filtrer l'onde de pompe, puis récupérer le cône THz afin d'opérer une spectroscopie large bande [5], dont le principe est précisé dans la partie suivante. L'étendue du paysage spectral couvert par le rayonnement THz généré est assurée par le caractère femtoseconde de l'impulsion laser : ses harmoniques et donc leurs mélanges fréquentiels sont larges spectralement. La figure 1.6 montre le schéma de principe de la production de rayonnement THz par un plasma créé par une impulsion laser à deux couleurs.

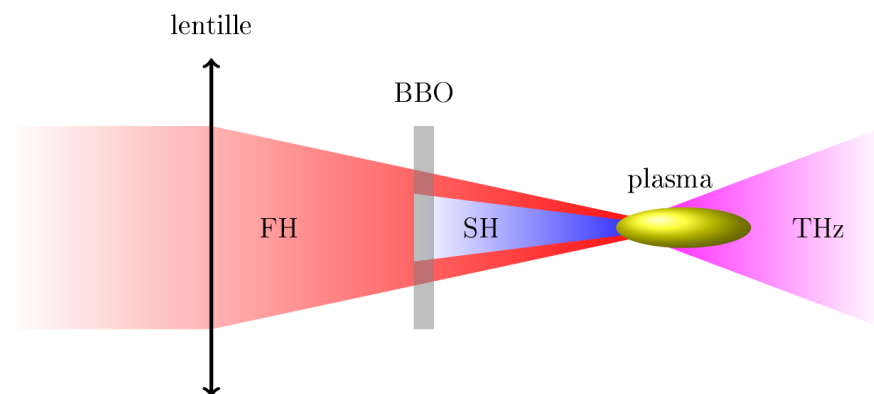


FIGURE 1.6: Schéma de fonctionnement de la méthode de production de rayonnement THz employée dans le cadre du projet ALTESSE.

En plus des propriétés prometteuses des impulsions THz générées, un avantage considérable dans l'utilisation d'un plasma est l'absence de dommages causés dans l'émetteur des ondes basse-fréquence, qui est un gaz ionisé. Dans la plupart des méthodes évoquées lors de la partie précédente, le rayonnement est généré à partir d'un semi-conducteur ou d'un cristal soumis à une excitation externe intense, provoquant une détérioration de la source au fil de l'usage. Ces matériaux peuvent être rares et onéreux, compliquant l'industrialisation de ces procédés. Ici, l'antenne génératrice de rayonnement THz est composée uniquement d'air ionisé qui se régénère par recombinaison électronique entre chaque répétition laser. Ce processus est donc reproductible à souhait.

Historiquement, cette technique est inspirée des travaux théoriques [52] et expérimentaux [53] de Hamster et al. portant sur la génération d'ondes THz à l'aide d'une impulsion laser monochromatique à ultra-haute intensité ($> 10^{18}$ W/cm²). Celle-ci forme un plasma dans lequel les électrons sont soumis à une force pondéromotrice importante, qui tend à repousser les porteurs de charge vers les zones de faible intensité laser. Cette déshomogénéisation de la densité induit des fluctuations de courant électronique caractérisées par un champ électrostatique oscillant dans

le domaine THz, et récupérable après le passage de l'impulsion. Cette même force est également à l'œuvre dans des filaments plasma créés avec une seule harmonique laser [54]. La première étude se situant dans le domaine d'intensités plus modérées, proches du seuil d'ionisation d'un gaz ($10^{13} - 10^{15} \text{ W/cm}^2$), remonte à 2000 par Cook et Hochstrasser [55], qui ont privilégié les non-linéarités optiques associées à l'effet Kerr pour justifier l'oscillation basse-fréquence mesurée expérimentalement. L'exploitation de courants plasma induits par le processus de photo-ionisation pour produire des impulsions THz est due à Kim et al. [56]. La figure 1.7 schématise les procédés de génération d'ondes THz par les photo-courants pour deux harmoniques laser et par la force pondéromotrice laser pour uniquement l'impulsion fondamentale [54].

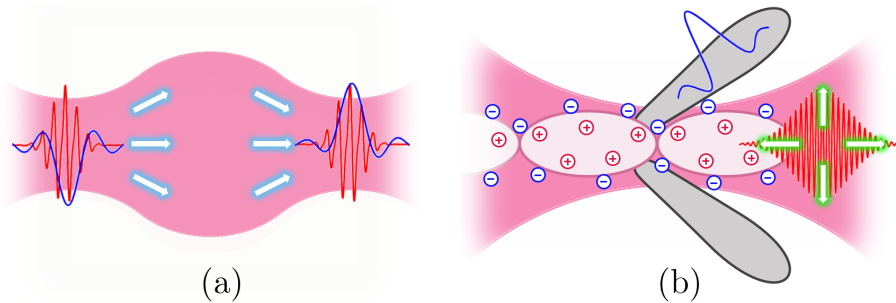


FIGURE 1.7: Schémas représentant (a) la production d'ondes THz par photo-courants excités par une impulsion laser à deux couleurs d'intensité modérée ($\approx 10^{13-15} \text{ W/cm}^2$) et (b) la génération de ce rayonnement par la force pondéromotrice induite par un faisceau laser monochromatique intense ($> 10^{15} \text{ W/cm}^2$). Dans ce second cas, l'émission basse-fréquence provient de la hétérogénéité de la répartition des charges dans le plasma, provoquée par la force pondéromotrice. L'onde THz est rayonnée avec un fort angle en comparaison de l'axe optique. Source : Tailliez [57]

1.1.3 Applications du rayonnement térahertz

L'une des applications du rayonnement THz les plus répandues est la spectroscopie résolue en temps (dite "THz-TDS", pour THz-Time Domain Spectroscopy). Ce procédé permet d'obtenir le spectre d'absorption THz transmis par un matériau [58]. Il a été initialement imaginé en 1988 par Fattinger et al. [59] puis testé sur de la vapeur d'eau en 1989 [60]. Ce procédé a depuis été largement étudié, en particulier dans le cadre des projets ALTESSE [5] et ALTESSE2 que nous détaillerons en section 1.2. La plupart des macro-molécules sont le siège de mouvements rotationnels et vibrationnels à temps caractéristique relativement lent ($\sim 1 \text{ ps}$), correspondant à la période d'une onde appartenant au domaine THz. Un tel rayonnement peut donc interagir avec une molécule en excitant ses modes de transition propres, délivrant ainsi son spectre d'absorption

par réflexion (en amont...) ou par transmission (...ou en aval de l'échantillon). En pratique, on mesure l'évolution temporelle du champ électrique THz transmis par l'échantillon, puis on calcule le spectre basse-fréquence associé par transformation de Fourier (TF). La possibilité de mesurer le profil temporel du champ électrique transmis, en amplitude et en phase, est la spécificité d'une spectroscopie cohérente, résolue en temps. En comparant les spectres de transmission mesurés en présence et en l'absence du matériau à analyser (qui est alors dit "de référence"), on obtient le spectre d'absorption de l'échantillon à l'aide de la relation :

$$\widehat{E}_{\text{ech}}(\omega) = \widehat{E}_{\text{ref}}(\omega) \times T(\omega) e^{-\alpha(\omega)d/2} e^{i(n(\omega)-1)\omega d/c} \quad (1.1)$$

où $\widehat{E}_{\text{ech}}(\omega)$ et $\widehat{E}_{\text{ref}}(\omega)$ désignent respectivement les TF des champs électriques THz mesurés en présence et en l'absence d'échantillon. $T(\omega)$ et $\alpha(\omega)$ représentent respectivement les coefficients de transmission et d'absorption de l'échantillon, d son épaisseur et $n(\omega)$ son indice de réfraction à la pulsation (THz) ω .

Chaque molécule est caractérisée par un spectre d'absorption unique, contenant de facto plusieurs "signatures spectrales", représentées par des pics d'absorption propres à l'espèce étudiée. En mesurant le spectre d'absorption THz d'une macro-molécule, il est donc possible dans la majorité des cas d'en déduire son identité. Le spectre d'absorption d'un échantillon de méthamphetamine obtenu par THz-TDS est représenté dans la figure 1.8. On y distingue en figure 1.8(b) les fréquences absorbées par ce matériau (courbe rouge).

Les efforts pour réaliser une spectroscopie THz-TDS sont croissants compte tenu de la diversité des applications en découlant. Les macro-molécules répondant favorablement à une spectroscopie THz sont présentes partout : dans les médicaments [62], la peinture [6], les êtres vivants [63] et dans les explosifs [64], entre autres. Un atout de la spectroscopie THz résolue en temps est sa capacité à sonder en profondeur un objet, pouvant être composé de plusieurs couches de matières différentes [65, 66]. Dans ce cas, les bandes d'absorption associées à une couche supérieure apparaîtront avant celles induites par une couche plus profonde, ce qui permet de distinguer la structure de l'objet ainsi que l'épaisseur de ces couches. Cette propriété permet d'analyser un matériau situé sous une couche occultante [67].

Une limitation toutefois est la forte absorption du rayonnement THz par l'eau [68, 69]. Celle-ci provient des interactions intermoléculaires dues aux moments dipolaires dans le réseau de liaisons

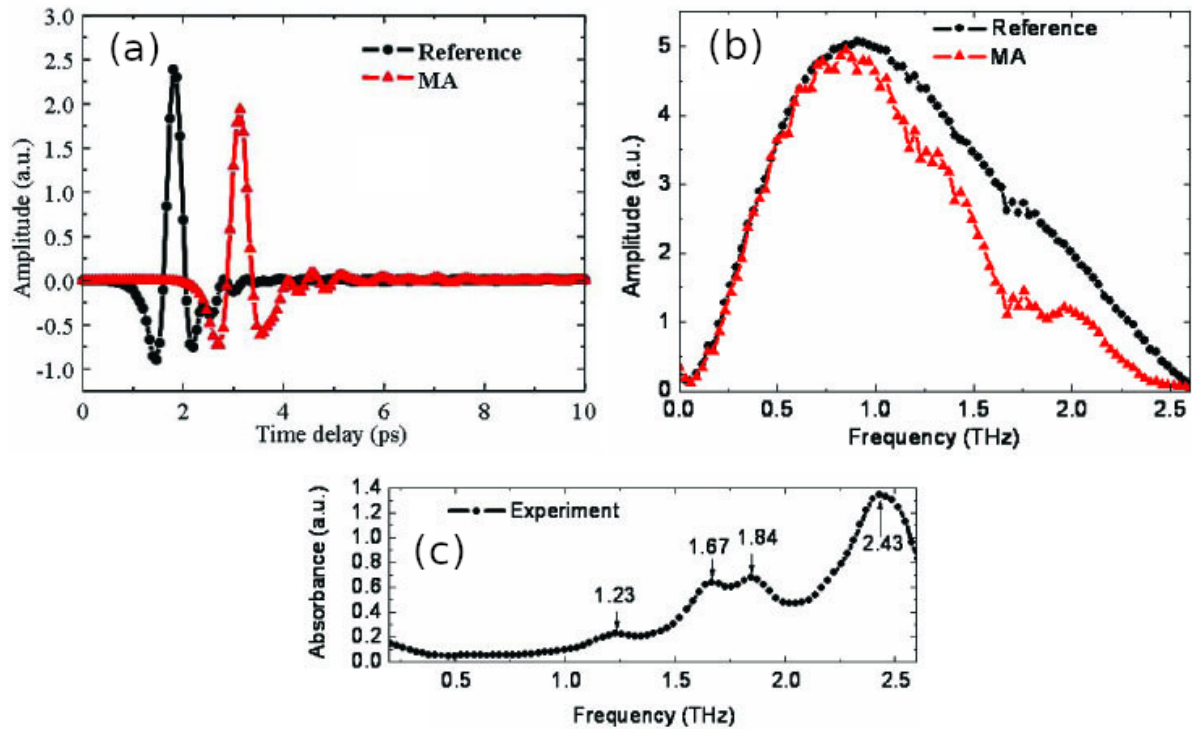


FIGURE 1.8: (a) Champs électriques mesurés en présence (courbe rouge) et en l'absence (courbe noire) d'un échantillon de méthamphétamine. (b) Spectres de transmission correspondants calculés par transformée de Fourier. (c) Spectre d'absorption de l'échantillon déduit des mesures de la figure (b). : Ning [61]

hydrogènes entre les molécules d'eau. Elle est également due à la géométrie de la molécule d' H_2O , qui présente un centre de masse excentré par rapport à l'axe formé par les deux atomes H, la rendant électriquement non-neutre. Elle est ainsi très sensible aux impulsions THz générées à cause de leur caractère monocyclique. Cet effet limite la capacité des ondes THz à se propager loin dans des milieux contenant de l'eau, comme l'air ambiant ou les êtres vivants [70].

Déterminer avec précision la composition d'un objet représente une motivation à développer cette technologie dans de nombreux domaines. Voici quelques exemples :

Imagerie THz pour la sécurité

Un premier enjeu invitant à l'amélioration des sources THz est celui de la sécurité nationale, dans les aéroports par exemple. Dans ce contexte, il est nécessaire d'être en mesure de détecter et de contrôler le trafic illégal de drogues, de matériaux explosifs, d'armes ou d'agents chimiques dangereux. Les narcotiques comportent une signature spectrale dans le domaine THz de par certains de leurs groupements chimiques fonctionnels, comme la structure NH de la méthamphétamine

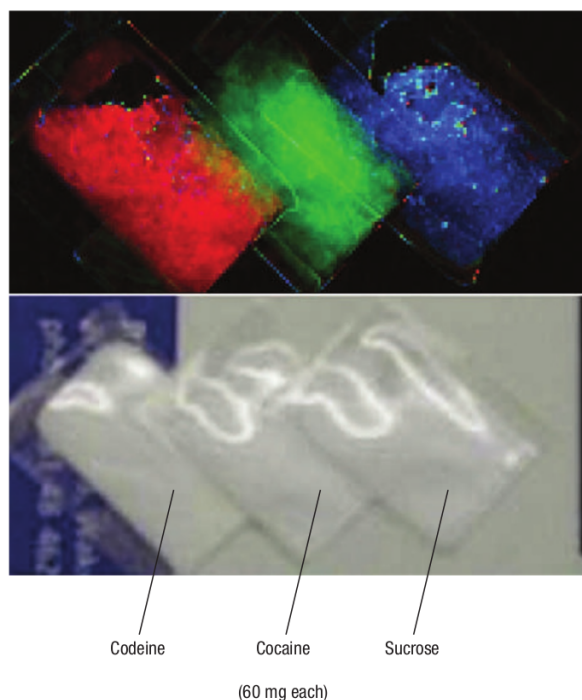


FIGURE 1.9: (Bas) Photographie de pochons de 60 mg de codéine, de cocaïne et de sucrose et (Haut) imagerie THz correspondante. Les narcotiques sont aisément différenciables du sucrose. Source : Tonouchi [71]

par exemple. Leurs mouvements intrinsèques permettent ainsi de différencier ces molécules par la spectroscopie THz. Un exemple est montré en figure 1.9 sur la discrimination de cocaïne par rapport au saccharose et à la codéine, non accessible par une imagerie standard.

L'imagerie de la chaleur par ondes millimétriques (30 - 300 GHz) employée dans les portiques d'aéroports permet de visualiser les objets potentiellement dangereux qu'un voyageur peut posséder lors de son entrée en salle d'embarquement [72]. Le principe est ici de cartographier la chaleur émise par la personne analysée : un objet placé entre le détecteur et la personne agit comme un cache thermique, et sa silhouette devient ainsi visible à l'image. Cette technologie comporte un intérêt et un niveau de perfectionnement croissant depuis plus de 20 ans, et l'utilisation des ondes THz vient compléter l'imagerie par ondes millimétriques [73]. Les longueurs d'onde THz (< 0.1 mm) étant plus petites que leur équivalent millimétrique, elles offrent une meilleure résolution spatiale en comparaison de l'imagerie millimétrique classique.

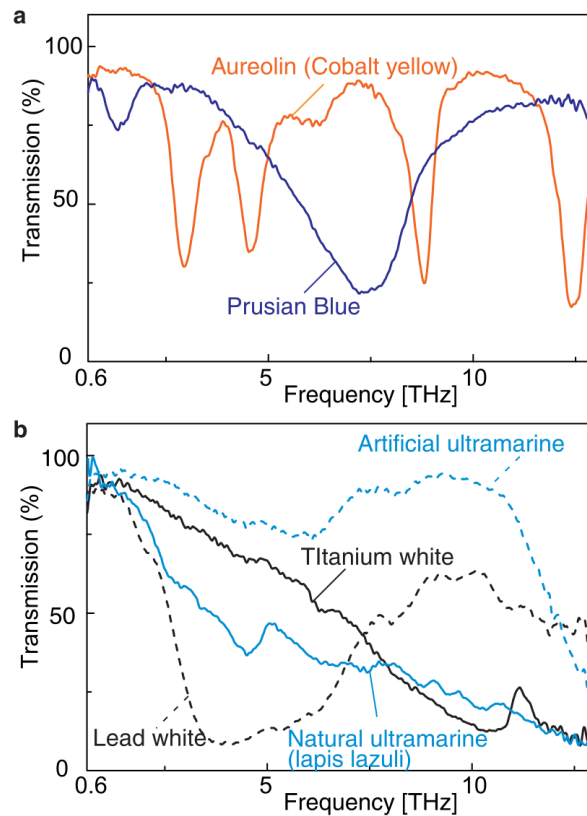


FIGURE 1.10: Exemples de spectres de transmission de pigments mesurés par THz-TDS. (a) Empreinte spectrale de jaune cobalt et de bleu de Prusse. (b) Spectres de pigments de couleurs similaires. Bleu outremer naturel et artificiel pour la couleur bleue. Titane et plomb pour la couleur blanche. Source : Fukunaga [74]

Imagerie THz pour la conservation de l'art et l'archéologie

Dans le domaine artistique, les ondes THz peuvent aussi aider à la préservation de l'héritage culturel. Les conservateurs de musée ont en effet besoin de moyens permettant d'identifier efficacement les matériaux composant une œuvre, à des fins de connaissances historiques sur l'objet, de préservation et de restauration. Les pigments composant les peintures, par exemple, ont un spectre THz riche, permettant ainsi leur identification par la spectroscopie d'absorption. La figure 1.10 montre à ce propos des spectres de transmission mesurés par THz-TDS sur des échantillons de différents pigments : on remarque aisément les spécificités des spectres associés au différents pigments. A contrario, les pics d'absorption de ces matériaux dans le domaine millimétrique (< 0.3 THz) se superposent, ce qui complexifie une identification fiable de la matière. L'imagerie THz est donc une technique de choix pour cette application [74]. En différenciant les différents pigments composant une œuvre par la mesure de leur spectre d'absorption THz,

il est alors possible de déterminer, sans contact et sans dégradation, de précieuses informations concernant le contexte historique et artistique de l'ouvrage.

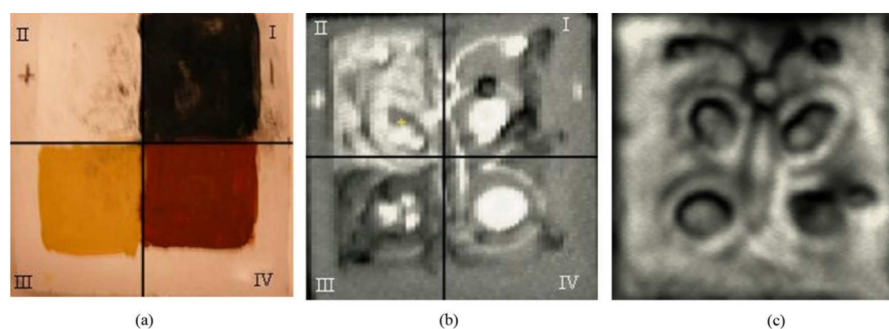


FIGURE 1.11: (a) Photographie optique de la surface d'une peinture à plusieurs couches. (b) Intégration spectrale de l'imagerie THz de l'objet. (c) Intégration temporelle de l'imagerie THz de l'objet. Source : Bianca Jackson [65]

La spectroscopie THz résolue en temps permet également de sonder en profondeur un échantillon, en comparant les instants auxquels le signal pénétrant la cible revient vers le dispositif d'imagerie. Dans le cas de peintures, l'objet peut être constitué d'une série de couches fines contenant différents pigments. Ce type d'imagerie permet alors de connaître le nombre de couches de peintures ainsi que leur composition en pigments [67, 75]. Cette méthode renseigne également sur le niveau de préservation de l'œuvre : un ouvrage vieilli tend à présenter des bulles d'air entre les différentes couches de peinture, qui peuvent provoquer des craquelures à la surface du tableau. En archéologie, certains objets sont recouverts par des couches de salissures tenaces et occultantes pour l'œil humain, mais transparentes par imagerie THz, comme mis en évidence par la figure 1.11. Certains contenants peuvent également receler des substances inconnues et potentiellement précieuses ou dangereuses. La spectroscopie THz résolue en temps permet ainsi de discerner la matière contenue dans une œuvre ancienne sans risque de détérioration [65, 66].

Imagerie THz pour le diagnostic médical

Une autre utilisation de l'imagerie THz se situe dans le domaine médical. Le rayonnement THz étant peu énergétique et non-ionisant, il est inoffensif envers l'ADN et donc sans danger pour un être vivant [76]. Il peut pénétrer les tissus organiques sur une faible profondeur (quelques millimètres) avant d'être absorbé par l'eau qui y est contenue [70]. La THz-TDS en réflexion d'un tissu biologique permet de cartographier son absorbance dans le domaine THz. Cette absorbance étant liée à la quantité d'eau ayant interagi avec l'impulsion THz, il est possible d'utiliser ce

procédé comme un diagnostic tomographique de la concentration en eau d'un être vivant [77,78]. Les carcinomes basocellulaires sont les cellules cancéreuses (de la peau) les plus communément répandues. Ils présentent des similitudes avec les autres cancers de la peau, du sein et du colon, et peuvent donc servir de base d'étude pour ces maladies. Ils comportent une concentration en eau différente des cellules saines, ce qui permet de déterminer avec précision la taille et la forme d'une tumeur grâce à l'imagerie THz [79,80]. A ce propos, la figure 1.12 montre l'imagerie THz d'un tissu sain (entouré par des pointillés) et d'un carcinome basocellulaire (entouré par une courbe pleine). Un objectif dans ce domaine est d'être en mesure de diagnostiquer un cancer (du sein notamment) à l'aide d'une imagerie THz *in vivo* [81].

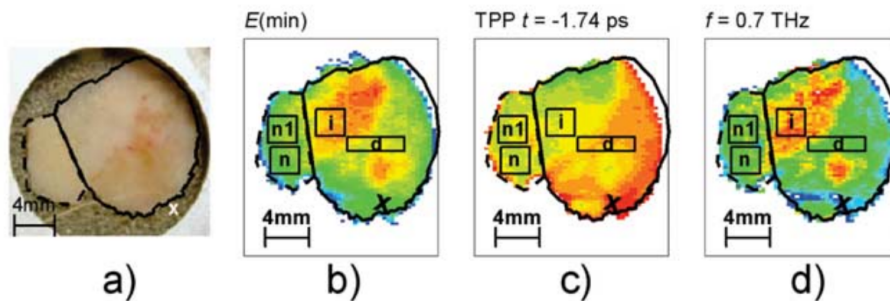


FIGURE 1.12: (a) Photographie d'une cellule saine (entourée par des pointillés) et d'un carcinome basocellulaire (cancer de la peau) (entouré par un trait plein). (b, c, d) Imagerie THz *in vitro* de ce tissu révélant les zones cancéreuses par des zones rouges. n, n1 : Zones saines. i : Zone inflammée. d : Zone malade. Source : Woodward [82]

La spectroscopie THz peut également être employée à des fins d'identification de biomolécules [83]. Certaines espèces chimiquement proches ont des effets différents sur l'organisme. C'est le cas, par exemple, des isomères du rétinol, une forme de la vitamine A responsable de la captation de la lumière par l'œil humain. En présence de lumière dans le spectre visible, le rétinol s'isomériserise et informe alors le cerveau qu'un photon a été absorbé par l'œil [84]. La THz-TDS est en mesure de différencier ces isomères à température ambiante, démontrant la capacité de cette technique à identifier de manière fiable les isomères de biomolécules [85].

Dans le domaine de la médication, la nécessité de valider le contenu chimique de cachets a motivé de nombreux groupes de recherche à développer des méthodes de contrôle de produits pharmaceutiques. De précédentes études ont montré que la THz-TDS permet aussi de déterminer la composition d'un médicament [62,86,87], sa porosité [88], l'épaisseur et la composition de son pelliculage [89,90] ou sa composition en plusieurs couches [91], et de lutter contre les médicaments

contrefaits [92].

Imagerie THz pour la surveillance végétale

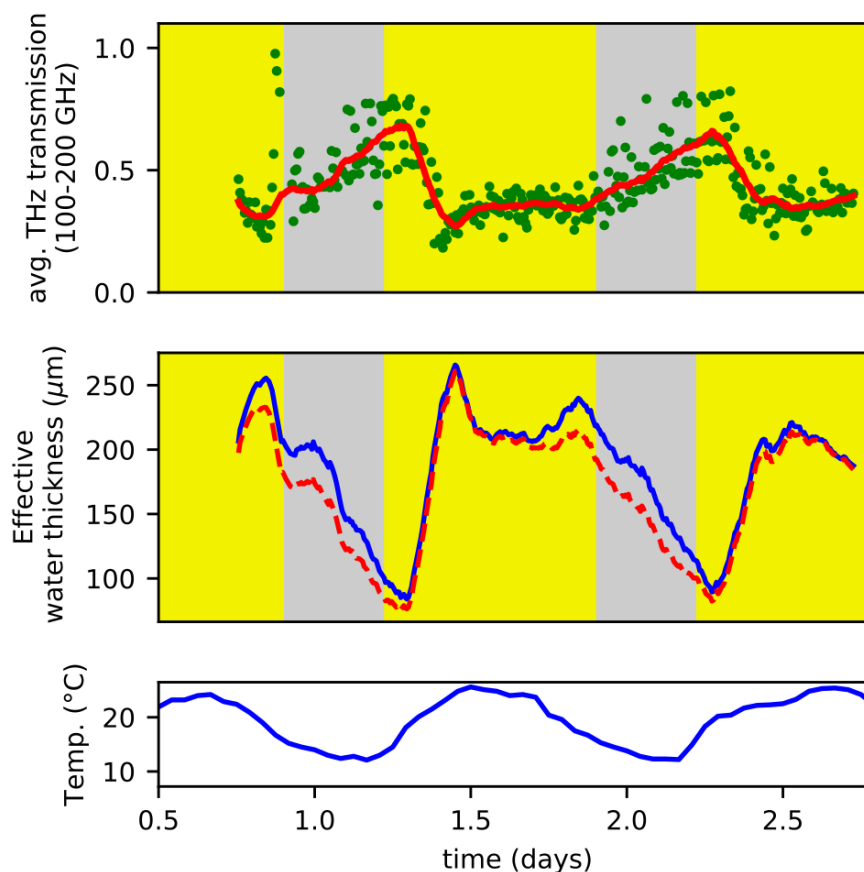


FIGURE 1.13: (Haut) Evolution temporelle de la transmittivité THz d’une feuille de maïs mesurée durant deux jours. Les points verts représentent les mesures du signal THz et sont interpolés pour obtenir la courbe rouge. Les parties jaunes et grises représentent respectivement le jour et la nuit. (Milieu) Evolution de la distribution effective d’eau dans l’échantillon végétal calculée à l’aide de la transmittivité THz mesurée et de la température externe (courbe bleue) ou en posant que la température était constante à 26 °C (courbe rouge). (Bas) Mesure de la température extérieure durant l’expérience. Source : Gente [93]

Dans le domaine de la surveillance de la flore, un enjeu est de contrôler la quantité et la composition de l’eau présente dans les feuilles d’un végétal afin de veiller à la santé de la plante. Un procédé semblable au diagnostic tomographique de la concentration en eau d’un tissu biologique, mentionné plus haut, permet de mesurer la quantité d’eau que contient un échantillon végétal, une feuille par exemple. Une méthode éprouvée par l’expérience [93] consiste à mesurer la transmittivité de l’échantillon dans le domaine THz en comparant l’intensité d’une impulsion THz ayant traversé le tissu avec son intensité initiale. On en déduit la quantité d’eau contenue

dans le tissu à l'aide du modèle de Landau-Lifschitz-Looyenga [94, 95]. L'absorbance THz de l'eau dépendant de la température [96, 97], cette dernière doit aussi être mesurée pour obtenir un résultat précis. Les résultats d'une telle expérience sont illustrés par la figure 1.13. La composition de l'eau contenue dans un échantillon végétal peut également être déduite à partir des spectres d'absorption obtenus par THz-TDS [98].

1.2 Le projet ALTESSE

Le projet ANR/ASTRID ALTESSE (signifiant "Air-Laser based TERAhertz SpectroScopy of Explosives"), porté par le CEA DAM-DIF, s'est développé à partir de deux financements distincts : ALTESSE1 entre novembre 2015 à novembre 2018, puis ALTESSE2 qui s'est déroulé entre février 2020 et juin 2023. L'objectif de ce projet est de démontrer la faisabilité d'une spectroscopie THz-TDS efficace à partir d'un plasma d'air formé par une impulsion laser femtoseconde à deux harmoniques en régime de propagation focalisée sur de courtes distances (quelques dizaines de cm) ou en régime dit de filamentation [99] sur de larges distances (supérieures au mètre). Il vise à cerner les limites de cette technologie et à proposer des solutions techniques pour construire un démonstrateur pour des applications de sécurité.

1.2.1 Résultats du projet ALTESSE1

Le projet ALTESSE1 est issu initialement d'une collaboration entre le CEA DAM-DIF¹, l'ISL², le CELIA³ et DTU/Fotonik⁴. Il a été financé par l'Agence Innovation Défense (AID) et l'Agence Nationale de Recherche (ANR) dans la cadre de son Accompagnement Spécifique des Travaux de Recherches et d'Innovation Défense (ASTRID). Ce projet avait pour objectif la mise en place d'expériences de spectroscopie THz-TDS de matériaux biologiques et explosifs en utilisant la méthode de production de rayonnement THz par un plasma d'air [cf. figure 1.6]. La détection a été effectuée à l'aide du système de mesure ABCD, qui sera expliqué plus loin.

En parallèle de ces manipulations, le code de calcul CASTEP [100] (Cambridge Serial Total Energy Package), publié en 2002 par Segall et al. et basé sur la théorie fonctionnelle de la

1. Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives, Direction des Applications Militaires, Direction Ile-de-France, Arpajon, France

2. Institut Saint-Louis, Saint-Louis, France

3. Centre Laser Intenses et Applications, Talence, France

4. Danish Technical University, Lyngby, Danemark

densité (dite DFT), a permis lors de la première version de ce projet de réaliser des calculs numériques ab initio de spectres THz. Le principe du code est de trouver les fréquences, intensités et vecteurs d'ondes des modes de phonons dans un cristal moléculaire de température 0 K en phase gazeuse afin de déterminer le spectre d'absorption de la molécule.

Au cours du projet ALTESSE1, plusieurs avancées technologiques majeures ont été réalisées :

- Des spectres THz résolus en temps s'étendant jusqu'à 60 THz ont pu être mesurés. Les matériaux étudiés étaient énergétiques (TATB, PETN) ou biologiques (thymine). La position des pics d'absorption mesurés comportaient un bon accord avec les signatures spectrales prédites par CASTEP. Ces résultats sont rappelés par la figure 1.14.

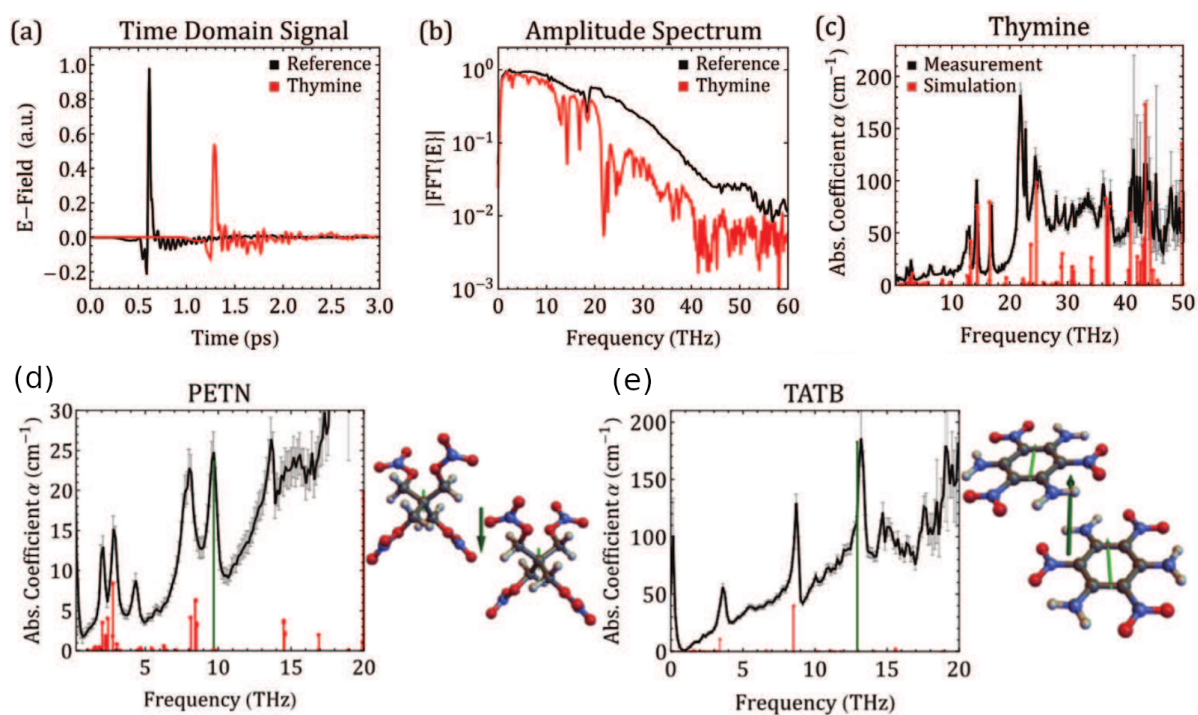


FIGURE 1.14: (a) Evolutions temporelles du champ électrique THz mesuré en présence (courbe rouge) et en l'absence (courbe noire) d'un échantillon de thymine. (b) Spectres de transmission THz correspondants calculés par transformée de Fourier. (c) Spectre d'absorption THz de l'échantillon de thymine mesuré (courbe noire) et prédit numériquement par CASTEP (traits verticaux rouges). Spectres d'absorption THz obtenus de manière similaire pour un échantillon de (d) PETN et de (e) TATB associés aux molécules dont la structure est détaillée sur la droite. Source : Bergé [5]

- L'énergie THz produite par des plasmas d'air a été augmentée d'un facteur 10 en utilisant des longueurs d'onde laser fondamentales opérant dans le moyen infrarouge ($\sim 1.3 - 2.5 \mu\text{m}$) [101].
- Pour la première fois, des spectres d'absorption d'explosifs ont été mesurés en régime de foca-

lisation linéaire avec une source laser éloignée de 15 m de la table optique recevant le plasma, l'échantillon et le système de détection.

- Des spectres THz mesurés en réflexion et en transmission ont pu être comparés avec succès.
- Le code de calcul tridimensionnel CUP3D, utilisé pour simuler les expériences de production de rayonnement THz et que nous utiliserons à notre tour tout au long de cette thèse, a été amélioré (architecture plus ergonomique, parallélisation OpenMP/MPI, amélioration des modèles d'indices de réfraction et d'absorption de l'air).

Ces nombreux résultats importants ont toutefois laissé deux problématiques ouvertes :

- La compréhension des spectres d'absorption mesurés restait incomplète. Le code de simulation *ab initio* employé calcule en effet des modes de phonons à partir d'un nombre fini de molécules du cristal sondé. Il ne fournit que la signature des mouvements du centre de masse de la molécule à une fréquence THz donnée, et ne précise pas le dipôle dominant associé à tel ou tel groupe chimique fonctionnel. Il est donc impossible à partir de telles simulations d'attribuer à un pic d'absorption un mouvement intra-moléculaire précis.
- Comme nous le verrons ultérieurement, le régime de filamentation permet de générer des plasmas étendus sur plusieurs mètres : il est dû à un équilibre local entre l'auto-focalisation optique du faisceau laser par effet Kerr et sa défocalisation par création de plasma électronique le long de l'axe optique. Ce processus peut être d'une efficacité probante pour former des sources THz étendues, loin d'un dispositif optique et il mérite donc d'être examiné pour un futur démonstrateur.

La nécessité de répondre à ces questions a aussi justifié la mise en place du projet de maturation AID-ANR ALTESSE2 dans lequel mes travaux ont principalement consisté à éclaircir des points de modèles et à interpréter les données expérimentales par des calculs analytiques et numériques.

1.2.2 Objectifs du projet ALTESSE2

Le projet ANR/MATURATION ALTESSE2, débuté en février 2020, a eu pour but de répondre aux questions ouvertes et points durs précédents. Il est le fruit d'une collaboration du CEA DAM-DIF, de l'ILM⁵, de l'ISL, de DTU/Fotonik, de la société Amplitude et de la PME Imagine Optic. Les missions principales du projet ALTESSE2 ont été les suivantes :

5. Institut Lumière-Matière, Université Lyon 1, Villeurbanne, France

- Améliorer la compréhension de l'émissivité THz d'un plasma d'air et du régime de filamentation laser. En régime focalisé, il est nécessaire d'optimiser les performances de production d'ondes THz d'une impulsion laser à deux harmoniques (ou plus), le fondamental devant se situer autour de 1 μm . L'état de polarisation du champ laser devait aussi être examiné. La relation entre la concentration du matériau analysé et son absorbance au rayonnement THz devait également être étudié afin de déterminer les limites de cette technologie. En régime de filamentation, les expérimentateurs devaient être capable de contrôler le retard temporel (dit "effet de walk-off temporel") entre les deux harmoniques laser de façon à produire un plasma émissif nominal. A cause de la dispersion optique de l'air, les deux fréquences ne se propagent pas à la même vitesse, et sur de longues distances, leurs enveloppes tendent à se séparer. Or, ces deux harmoniques doivent être superposées lorsque le plasma est généré afin d'émettre un rayonnement THz significatif.

- Comprendre l'origine des pics d'absorption mesurés à l'aide de simulations ab initio/DFT plus précises que celles réalisées lors du projet ALTESSE1. Un objectif majeur assigné au projet ALTESSE2 était en effet de pouvoir démontrer que l'on pouvait associer à chaque bande d'absorption un mouvement rotationnel ou vibrationnel intramoléculaire précis.

- Réaliser des expériences de détection d'explosifs à longue distance de la source laser (entre 3 et 20 m) à l'aide d'une source laser fournie par la société Amplitude et d'un miroir déformable livré par Imagine Optic. Ces manipulations avaient pour but de confirmer la faisabilité d'une spectroscopie à distance par filamentation laser en retrouvant les mesures réalisées plus tôt à DTU/Fotonik. Les matériaux constituant les échantillons analysés étaient des similis de biomolécules (thymine, D- et DL-phénylalanine) et des explosifs (PETN, TATB, ANTA et TBN). Il s'agissait de tester la fiabilité d'une spectroscopie THz en régime de filamentation comparé au schéma standard, où deux harmoniques laser sont focalisées sur quelques dizaines de cm et d'évaluer, à puissance TW donnée, la capacité de transmission du rayonnement THz modifié par un échantillon.

1.2.3 Méthode de détection du rayonnement THz

La détection d'impulsions THz s'effectue généralement à l'aide d'un mélange de fréquences entre le rayonnement basse-fréquence et une partie sonde de l'impulsion laser prélevée au préalable. Cette méthode a été expérimentée pour la première fois dans un cristal ZnTe par Karpowicz et

al. en 2005 [102], puis dans l'air ambiant par Dai et al. en 2006 [103]. C'est ce deuxième procédé qui a été repris au cours des expériences de spectroscopie THz tout au long du projet ALTESSE. Appelée ABCD ("Air-Biased Coherent Detection"), cette technique permet de mesurer l'amplitude et la phase du champ électrique THz émis par le plasma d'air.

On place sur le chemin de l'onde THz un module de champ alternatif à haut voltage ($E_{\text{bias}} = \pm 10$ kV/cm), où s'opère un mélange à trois ondes entre le rayonnement THz, noté E_{THz} , le courant alternatif E_{bias} et l'onde sonde retardée $E_{\omega}(\tau)$, τ étant le décalage temporel entre la sonde et l'onde THz. Dans la zone de détection où se superposent les trois champs électriques, l'excitation apportée par la sonde est suffisamment intense (> 1 TW/cm²) pour induire une polarisation non-linéaire dans le milieu, liée à l'effet Kerr. Elle s'exprime formellement comme $\chi^{(3)}E^3$, avec $\chi^{(3)}$ désignant la susceptibilité électrique d'ordre 3 du milieu de propagation. Un mélange des fréquences entre la pompe retardée $E_{\omega}(\tau)$ et le champ THz E_{THz} transmis produit entre autres une composante 2ω d'expression :

$$S_{2\omega}(\tau) \propto I_{\omega}^2 [E_{\text{THz}}(\tau)^2 + 2E_{\text{bias}}E_{\text{THz}}(\tau) + E_{\text{bias}}^2] \quad (1.2)$$

avec $I_{\omega} = c\epsilon_0 E_{\omega}^2/2$ l'intensité moyenne de l'impulsion laser fondamentale.

Pour extraire le signal THz dont l'information est contenue dans $S_{2\omega}$, deux mesures successives sont effectuées (nommées $S_{2\omega}^+$ et $S_{2\omega}^-$) lorsque le signe du voltage alternatif E_{bias} change. La différence de ces deux mesures est proportionnelle au signal THz :

$$S_{\text{THz}}(\tau) = S_{2\omega}^+(\tau) - S_{2\omega}^-(\tau) \propto I_{\omega}^2 E_{\text{THz}}(\tau) |E_{\text{bias}}|. \quad (1.3)$$

La ligne à retard contrôle le décalage temporel τ entre la pompe et le champ THz, et permet ainsi de sonder les valeurs de $S_{\text{THz}}(\tau)$ pour enfin remonter au profil temporel de $E_{\text{THz}}(\tau)$, dont un exemple typique a été rappelé en figure 1.8(a). On obtient alors le spectre de transmission de l'échantillon en prenant la transformée de Fourier du profil temporel THz mesuré [104, 105]. Une comparaison peut être effectuée entre les signaux captés par la photo-diode en présence et en l'absence de voltage statique. La différence d'amplitudes mesurées est liée au champ THz généré par l'expression (1.2).

1.2.4 Mieux comprendre les dynamiques spectrales

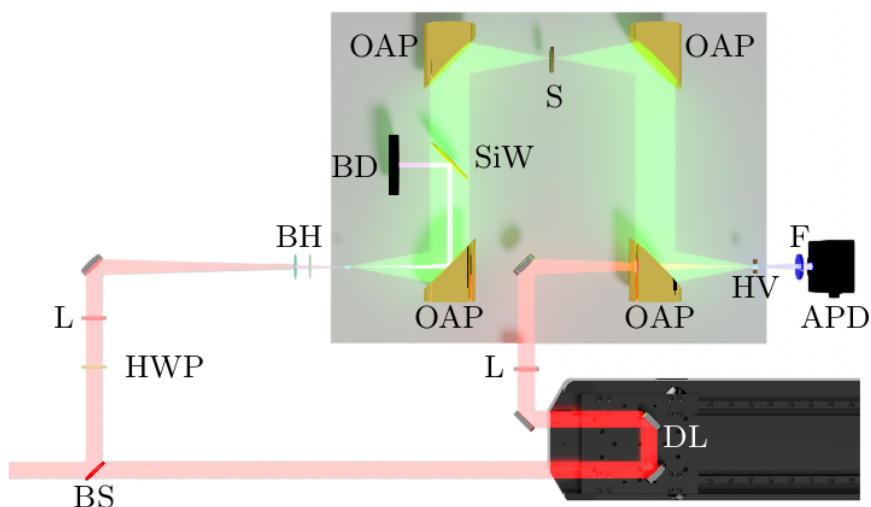


FIGURE 1.15: Schéma expérimental de la plate-forme THz exploitée à l'ILM (projet ALTESSE2) [104, 105]. La première harmonique est polarisée linéairement par une lame demi-onde (HWP), puis focalisée dans l'air par une lentille (L). Elle passe ensuite à travers un cristal BBO (BH) pour former sa deuxième harmonique. Le rayonnement THz (en vert) émis par le plasma d'air est filtré du reste de l'onde de pompe par une lame de silicium (SiW) puis guidée par une série de miroirs paraboliques (OAP) vers l'échantillon à analyser (S). Une ligne à retard (DL) permet de contrôler le décalage temporel entre l'émission THz et la sonde laser transmise par le polariseur (BS). Le couplage entre la sonde laser, l'impulsion THz et un fort voltage alternatif (HV) crée une composante 2ω dans l'air, qui est filtrée (F) puis détectée par une photo-diode à avalanche (APD). L'étude de l'amplitude du signal détecté en fonction du retard imposé par DL permet de remonter au profil temporel du champ THz produit.

Une des missions du projet ALTESSE2 a été de réaliser la spectroscopie THz résolue en temps d'échantillons de matériaux biologiques ou explosifs à partir du rayonnement THz généré par la méthode décrite plus haut. Pour ce faire, les expérimentateurs de l'ILM ont conçu une plate-forme de génération d'ondes THz par plasma d'air en exploitant le dispositif décrit dans la figure 1.15. Une source laser Ti:Saphir opérant à 800 nm produit des impulsions ultracourtes (30 fs) de 350 μJ en énergie avec un taux de répétition de 5 kHz. La pompe laser (74 % de l'énergie laser disponible) orientée par un polariseur traverse un cristal doubleur BBO générant la deuxième harmonique. Le champ électrique en sortie du plasma d'air est une superposition des harmoniques laser (incluant le fondamental) et de l'émission THz générée. On filtre ensuite la pompe résiduelle à l'aide d'une lame de silicium pour ne garder que le rayonnement basse-fréquence (50% de transmittivité). Le rayonnement THz est ensuite guidé via un système de quatre miroirs paraboliques vers l'échantillon à analyser, puis vers le système de détection

cohérente.

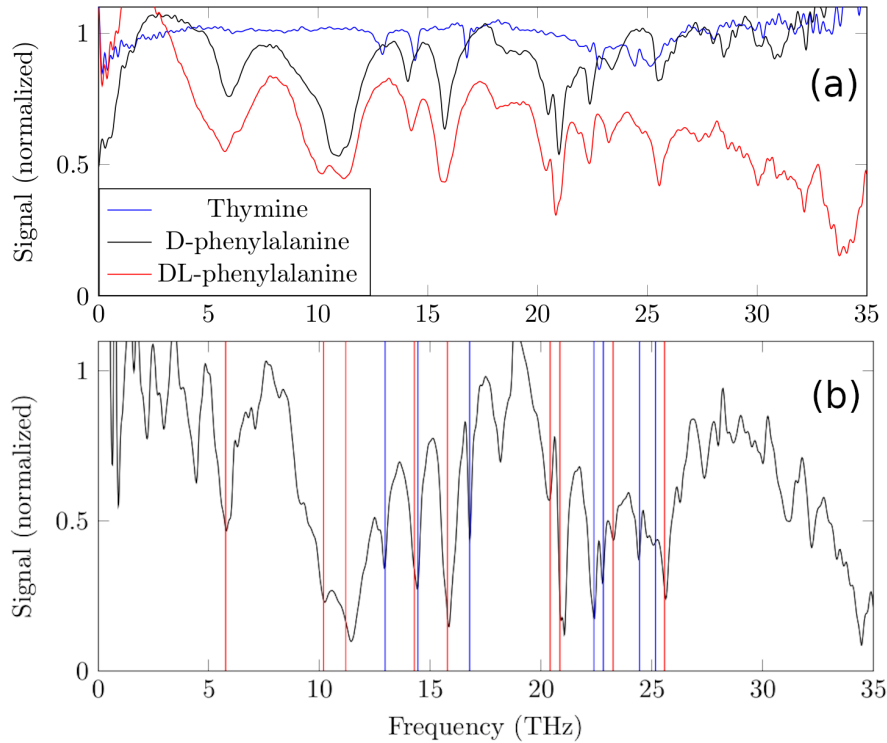


FIGURE 1.16: (a) Spectres de transmission mesurés de la thymine (courbe bleue), de la D-phénylalanine (courbe noire) et de la DL-phénylalanine (courbe rouge). (b) Spectre de transmission mesuré sur un mélange de thymine et de DL-phénylalanine (courbe noire). Les lignes bleues (resp. rouge) représentent les fréquences des pics d'absorption mesurés de la thymine (resp. DL-phénylalanine).

La sonde laser (26 % de l'énergie laser) est envoyée vers le système de détection ABCD, afin de mesurer les champs électriques transmis par des échantillons de thymine, de D-phénylalanine et de DL-phénylalanine (biomolécules). Les spectres de transmission obtenus sont illustrés sur la figure 1.16(a). L'amplitude du rayonnement THz produit est suffisamment intense et large bande en fréquence pour pouvoir différencier clairement les pics d'absorption de ces matériaux jusqu'à 35 THz.

L'objectif de l'étude menée à l'ILM était de mieux comprendre les spectres THz mesurés par rapport aux données fournies par les simulations CASTEP. Il s'agissait d'être en mesure de dissocier la composition d'un matériau composite à partir de sa signature spectrale, et de pouvoir attribuer un certain nombre de bandes d'absorption observées à un mouvement inter- ou intra-moléculaire précis. Afin de répondre à la première demande, une seconde campagne de spectroscopie a été réalisée sur un mélange de thymine et de DL-phénylalanine. Le spectre en

transmission est illustré en figure 1.16(b). En analysant les pics d'absorption contenus dans le spectre du mélange, c'est-à-dire les creux du spectre de transmission, on remarque la présence des signatures spectrales mesurées individuellement sur la thymine et la DL-phénylalanine. Le spectre mesuré contient donc des informations sur chacun de ses composants, indiquant qu'il est possible d'identifier la composition d'un tel mélange par la THz-TDS. Toutefois, la corrélation entre l'intensité des pics d'absorption et la concentration d'un matériau reste non-linéaire et difficile à traiter. Une limitation actuelle est donc l'incapacité à déduire le pourcentage des matériaux composant un échantillon analysé à partir de son spectre de transmission.

Simulations DFT

Afin de mieux comprendre les signatures spectrales mesurées lors des expériences menées à l'ILM, des simulations dites DFT ont été effectuées en parallèle. La théorie fonctionnelle de la densité (abrégée DFT) permet de déduire à partir de la structure atomique ou moléculaire d'une espèce ses caractéristiques chimiques et spectrales. Son fondement mathématique ainsi que les terminologies concernant les fonctionnelles utilisées par la suite sont précisées en annexe A. Au cours de ce travail, l'objectif était de retrouver les bandes d'absorption de la thymine et du TATB et d'affiner les spectres numériques pour en extraire une information sur les dipôles majeurs excités au sein de ces molécules.

Une première étape dans le calcul DFT était de retrouver numériquement les résultats des simulations en phase gazeuse obtenus à l'aide de CASTEP dans le cadre de ALTESSE1. Les simulations réalisées à l'ILM ont employé le code de simulation CP2K [106]. Ce logiciel, publié en 2014 par Hutter et al., permet à l'instar de CASTEP de réaliser des simulations ab-initio/DFT de matières condensées. Cependant, il est également capable de prendre en compte des structures cristallines comprenant des liaisons de Van-der-Walls, ce que CASTEP ne permettait pas. En premier lieu a été vérifiée la correspondance entre les simulations CP2K et le spectre de thymine en phase gazeuse obtenu pendant le projet ALTESSE1, assurant la fiabilité de la méthode numérique employée. Or, un cristal de thymine est stabilisé en partie par ses liaisons intermoléculaires de Van-der-Walls. Il a donc été nécessaire de réaliser des simulations DFT en phase solide, justifiant l'utilisation d'une fonctionnelle hybride et la prise en compte de corrections dispersives pour intégrer la structure cristalline de la thymine. Les résultats numériques obtenus se sont révélés bien meilleurs et plus précis, jusqu'à 20 THz, que le spectre CASTEP, et ont permis

de reproduire une partie des mesures réalisées lors des expériences de THz-TDS de thymine du projet ALTESSE1. La figure 1.17 compare ces résultats numériques avec la mesure en question.

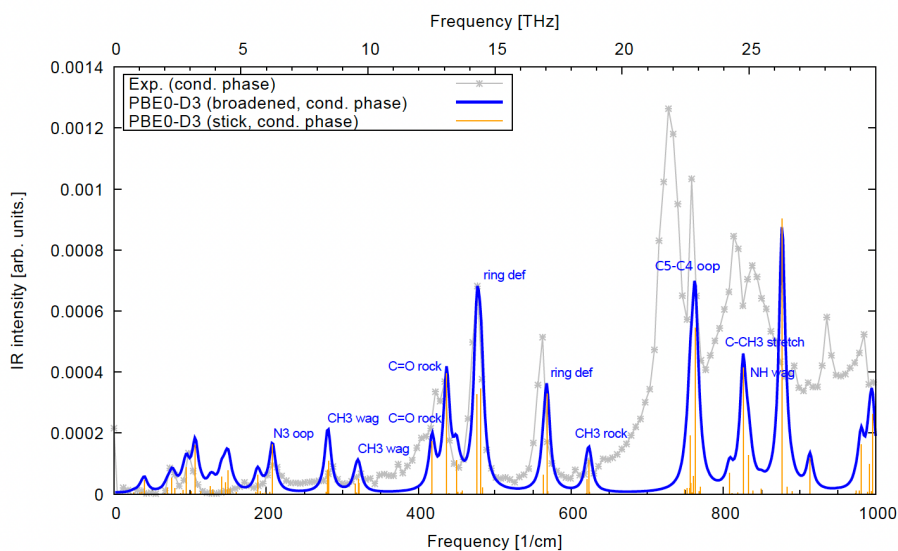


FIGURE 1.17: Spectre d'absorption THz de la thymine mesuré lors d'ALTESSE1 (courbe grise). Résultats des simulations DFT en phase solide par le code CP2K en utilisant une fonctionnelle hybride prenant en compte des corrections de type Van-der-Walls (courbe bleue). Les barres verticales oranges correspondent aux prédictions de CASTEP.

Les différences observées dans la partie haute du spectre sont attribuées à une forte diffusion subie par l'impulsion THz dans l'échantillon de thymine lors de l'expérience. Contrairement aux résultats numériques CASTEP obtenus lors d'ALTESSE1, les simulations CP2K menées à l'ILM ont été capables de reproduire fidèlement le profil de raies de la thymine. Ce résultat permet de déduire les mouvements majeurs induits dans les groupements chimiques de cette molécule lors du passage de l'impulsion THz (oscillation du CH₃, basculement du C=O, etc...). Le domaine de validité estimé de ces résultats est borné entre 5 et 25 THz.

Des simulations CP2K de molécules de TATB en phase gazeuse et en phase solide ont ensuite été réalisées. Les résultats de ces calculs ont été comparés à un spectre mesuré et publié par le ministère de la Défense américain, comme illustré par la figure 1.18.

Les simulations ont permis d'identifier trois pics intenses du spectre d'absorption, à savoir la torsion du groupe C-NO₂ à 750 cm⁻¹ (3.5 THz), l'étirement du cycle de benzène à 1200 cm⁻¹ (8.5 THz) et l'effet de ciseau des groupes NH₂ à 1500 cm⁻¹ (13 THz). Les simulations en phase gazeuse (courbes orange et rouge) reproduisent assez bien la position des pics de la courbe expérimentale américaine en-dessous de 25 THz. Ces résultats sont complétés par la simulation

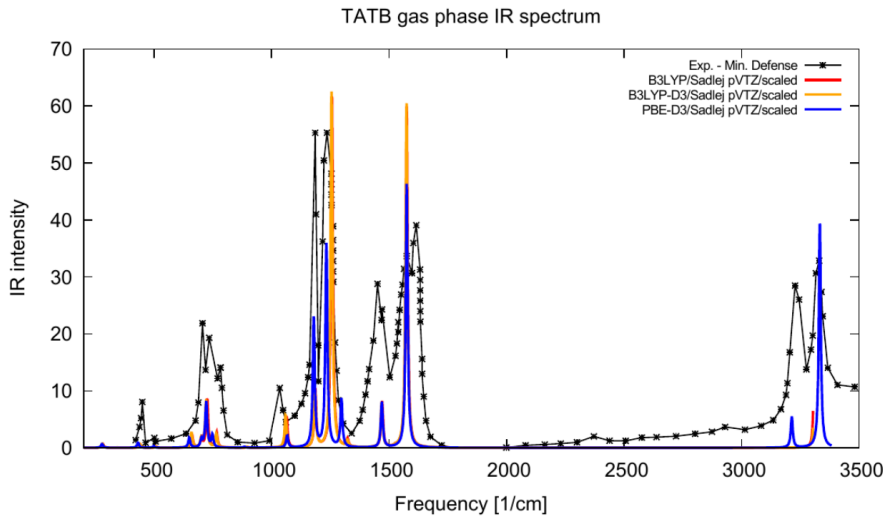


FIGURE 1.18: Spectre d'absorption THz d'un cristal de TATB mesuré par le ministère de la Défense américain (courbe noire). Résultats des simulations CP2K de TATB en phase gazeuse (courbes rouge et orange) et en phase solide (courbe bleue).

en phase cristalline (courbe bleue) qui décrit les pics mesurés au-delà de 3000 cm^{-1} (90 THz). En conclusion, les simulations réalisées par l'ILM ont été capables de retrouver les spectres mesurés de la thymine et du TATB, et d'identifier l'origine intra-moléculaire de certains pics observés. Cela représente une avancée importante en comparaison des simulations réalisées lors d'ALTESSE1, et satisfait un des objectifs principaux du projet ALTESSE2.

1.2.5 Spectroscopie THz résolue en temps à longue distance

La spectroscopie THz résolue en temps de matériaux énergétiques doit prendre en compte des contraintes de sécurité qui sont primordiales lors du déroulement de l'analyse. La solution proposée par le projet ALTESSE2 prévoit qu'une telle spectroscopie s'effectue à longue distance de l'échantillon explosif ($\sim 10 \text{ m}$) et exploite pour ce faire le régime de filamentation laser. Ce phénomène apparaît lors de la propagation non-linéaire d'un faisceau laser intense dans l'air. L'indice de réfraction du milieu $n(\omega)$ inclut une contribution proportionnelle à l'intensité laser :

$$n(\omega) = n_{\text{opt}}(\omega) + n_2 I \quad (1.4)$$

avec $n_{\text{opt}}(\omega)$ l'indice de réfraction linéaire du milieu de propagation, ω la pulsation de l'onde propagée, I son intensité et n_2 l'indice non-linéaire du milieu.

La propagation de l'impulsion laser femtoseconde, de puissance crête suffisamment élevée, induit

alors une croissance axiale de l'indice de l'air, qui a pour effet de renforcer la focalisation du faisceau par effet loupe et de comprimer spatialement l'impulsion laser : on parle alors d'effet d'auto-focalisation Kerr. La puissance minimale nécessaire pour déclencher cet effet est nommée "puissance critique d'auto-focalisation", et est associée à l'indice non-linéaire du milieu et à la longueur d'onde laser fondamentale par [107] :

$$P_{\text{cr}} \approx \frac{3.72\lambda_0^2}{8\pi n_0 n_2} \quad (1.5)$$

n_0 étant l'indice du milieu à la fréquence du fondamental laser.

Numériquement, ce seuil de puissance est compris généralement entre 5 et 10 GW à 0.8 μm pour l'air [107]. La puissance pic de l'impulsion laser correspond au rapport entre l'énergie laser et sa durée, c'est pourquoi une onde ultracourte (quelques dizaines de femtosecondes), même d'énergie modérée, est particulièrement adaptée pour déclencher le mécanisme de l'auto-focalisation Kerr.

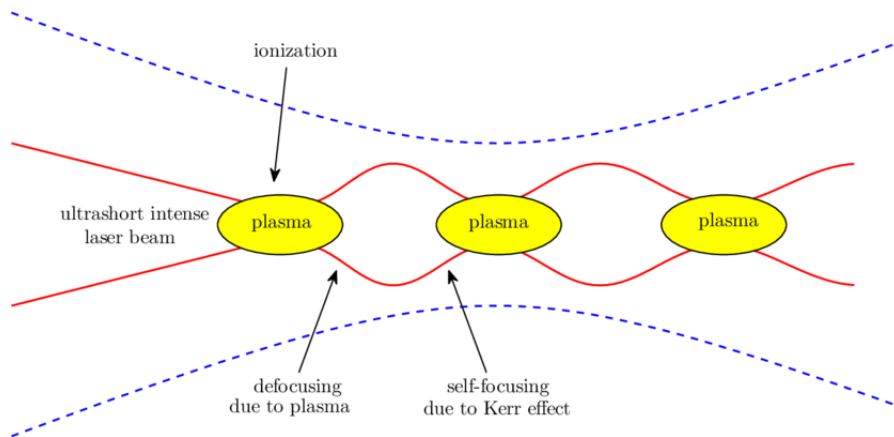


FIGURE 1.19: Schéma du principe de filamentation laser pour une impulsion ultracourte. Pour des puissances pics suffisamment hautes, l'auto-focalisation Kerr et la défocalisation plasma s'équilibrent pour générer de longs canaux plasma au cours de plusieurs séquences d'auto-focalisation/défocalisation plasma.

Une fois que l'impulsion laser est suffisamment intense pour ioniser l'air ambiant, l'augmentation de la densité électronique induit à son tour une variation de l'indice de réfraction du milieu, de signe contraire à la contribution portée par l'effet Kerr : c'est la défocalisation plasma. Aux puissances sur-critiques, l'auto-focalisation Kerr et la défocalisation plasma peuvent s'équilibrer localement : le faisceau laser se propage alors à intensité élevée ($> 10^{13}$ W/cm²) sous forme collimatée tout en ionisant le milieu. C'est le processus de filamentation laser, qui permet à

l'impulsion optique de former des canaux plasmas très longs, pouvant atteindre plus d'un mètre chacun [99, 107]. Ce mécanisme est illustré par la figure 1.19. Lorsque l'impulsion ne contient plus assez d'énergie pour ioniser l'air, l'équilibre décrit ci-dessus est rompu. Le faisceau laser est alors défocalisé et le plasma s'arrête. Comme indiqué précédemment, les molécules d'eau absorbent fortement les émissions basse-fréquence, ce qui limite la capacité du rayonnement THz à se propager librement dans l'air. Le régime de filamentation permet alors de former des plasmas d'air générateurs de rayonnement THz loin de la source laser et proche du système de détection. Il est donc exploité ici afin de réduire la distance de propagation des ondes THz, et donc leur absorption par la vapeur d'eau atmosphérique.

Campagne expérimentale à l'ISL

Une collaboration entre DTU/Fotonik et l'ISL a eu pour but de réaliser une expérience concluante de THz-TDS à longue distance en exploitant le régime de filamentation laser. Cette campagne expérimentale s'est déroulée entre mai et juin 2022 en deux parties : tout d'abord dans les locaux de l'ISL où de longs canaux plasma ont pu être produits et l'énergie THz mesurée, puis à DTU, où des expériences de spectroscopie sur de longues distances de propagation dans l'air ont eu lieu à partir de filaments laser à deux couleurs.



FIGURE 1.20: Canaux plasma observés lors du test préliminaire à DTU (Haut) sans et (Bas) avec la correction du front d'onde laser par un miroir déformable.

Lors de l'expérience opérée à l'ISL, la source optique utilisée était un laser Ti:Saphir délivrant des impulsions femtosecondes (35 fs) centrées sur 800 nm à un taux de répétition de 100 Hz et d'énergie élevée (12 mJ) permettant de produire un long filament laser. L'harmonique deux a été créée à l'aide d'un cristal doubleur BBO et les couleurs furent guidées vers un système de focalisation. Une tentative d'amélioration du dispositif expérimental usuel a consisté en l'utili-

sation d'un miroir déformable. C'est un instrument optique (ici fourni par Imagine Optic) doté de 19 actionneurs permettant de contrôler sa surface par ordinateur. Ce dispositif d'optique adaptative est ainsi en mesure de modifier la phase spatiale du faisceau laser afin de supprimer toute aberration optique indésirée (astigmatisme, sphéricité, coma, ...), stabilisant de facto la propagation de l'impulsion. L'impact de ces effets optiques sur le plasma et la génération THz sera étudiée dans le chapitre 5.

Pour les expériences d'ALTESSE2, le miroir déformable a été testé au préalable à DTU à partir d'une impulsion laser de fondamental opérant à $0.8 \mu\text{m}$ et de taux de répétition 1 kHz . Il a permis de stabiliser un canal plasma d'environ 1 cm en réduisant les aberrations optiques, comme montré par la figure 1.20. Cependant, l'utilisation de cet instrument lors de la campagne réalisée à l'ISL a réduit la puissance THz mesurée d'un facteur de l'ordre de 3. Il n'a donc pas été utilisé dans les expériences suivantes.

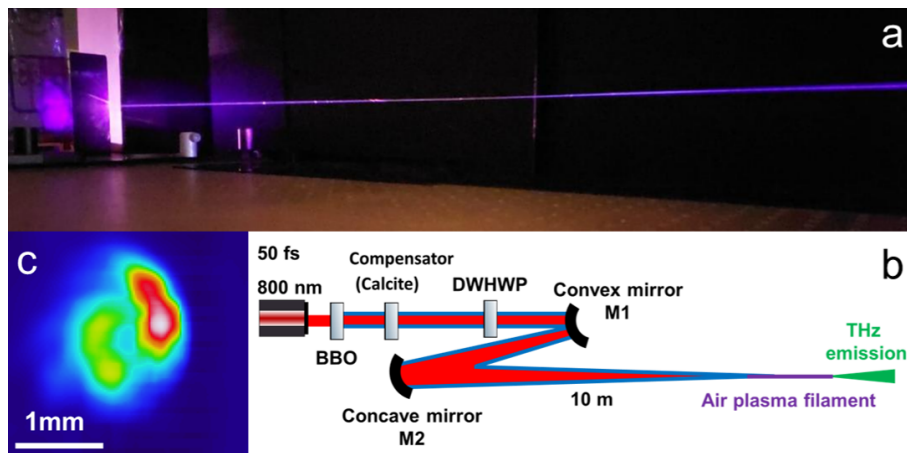


FIGURE 1.21: (a) Photographie d'un filament laser générant un plasma d'un mètre de long créé à une distance de focalisation de 10 m lors de l'expérience menée à l'ISL. (b) Dispositif expérimental et (c) faisceau THz mesuré en amont du filament laser.

Celles-ci se sont essentiellement concentrées sur le potentiel émissif d'un long canal plasma induit par filamentation à deux couleurs. Pour déclencher un régime de filamentation laser loin de la source optique, un télescope composé de deux miroirs (un divergent et un convergent) a été utilisé comme une focale longue distance (10 m). Les deux fréquences laser se propageant à des vitesses différentes à cause de la dispersion de l'air ambiant, leurs enveloppes se décalent dans le temps au cours de la propagation à environ 80 fs par mètre parcouru [108]. Il est donc nécessaire de contrôler le retard initial entre les deux couleurs afin que les deux impulsions se superposent lorsque le plasma d'air est formé à une dizaine de mètres du système laser. A cette

fin, un verre de calcite a été utilisé pour agir comme retardateur en temps afin de s'assurer de la superposition des deux harmoniques dans la zone plasma. La figure 1.21(b) résume le dispositif expérimental exploité.

Au cours de cette expérience, des rayonnements THz d'au plus 100 μ W en puissance ont été mesurés après la formation d'un canal plasma d'environ 1 m de long à une distance de 10 m de la source laser, comme montré par les figures 1.21(a, c). Cependant, les conditions expérimentales n'ont pas donné lieu à une spectroscopie THz. Cette première expérience a toutefois montré la faisabilité de la production d'un rayonnement THz intense à plusieurs mètres de la source laser.

Campagne de spectroscopie à DTU/Fotonik

L'expérience a donc été poursuivie à DTU/Fotonik pour réaliser des essais en spectroscopie THz. La source laser employée fournissait des impulsions similaires (35 fs, 800 nm de fondamental) avec une énergie plus faible (4.4 mJ) et un taux de répétition plus élevé de 1 kHz. Ici, le faisceau était focalisé par un télescope comparable à celui employé lors de l'expérience menée à l'ISL. Les miroirs formant le télescope avaient des distances focales de -100 mm et 300 mm et étaient espacés de 233 mm, équivalant ainsi à une focale de 3 m de longueur. Le cristal BBO a converti 22 à 25% de l'énergie laser en second harmonique. Le dispositif de détection de rayonnement THz utilisait la méthode ABCD. Lors de l'expérience, un canal plasma d'environ 15 cm a été formé à une distance de 3 m de la source optique. La plateforme utilisée est détaillée en figure 1.22.

Afin de valider la faisabilité d'une THz-TDS à de telles distances, des expériences de spectroscopie ont été menées, où les spectres mesurés en formant un plasma à longue distance (3 mètres) ont été comparés avec les résultats obtenus pour un canal plasma plus court (2.5 cm) et situé plus proche (30 cm) de la source laser. Une première manipulation a consisté à collecter les spectres THz mesurés par le dispositif ABCD en l'absence d'échantillon (spectres et champs de référence, comme montrés en figure 1.23 pour les deux dispositifs). En comparant les spectres THz rayonnés par le plasma situé à 30 cm et celui à 3 m de la source laser, une certaine instabilité de ce dernier a pu être observée. Elle indique qu'une détection lointaine de matériau par le biais de filaments laser peut être moins précise qu'une détection à courte distance.

Une fois les spectres THz de référence mesurés, les expérimentateurs ont ajouté au dispositif ABCD des échantillons de thymine, de TATB ($C_6H_6N_6O_6$), d'ANTA ($C_2H_3N_5O_2$) et de TNB

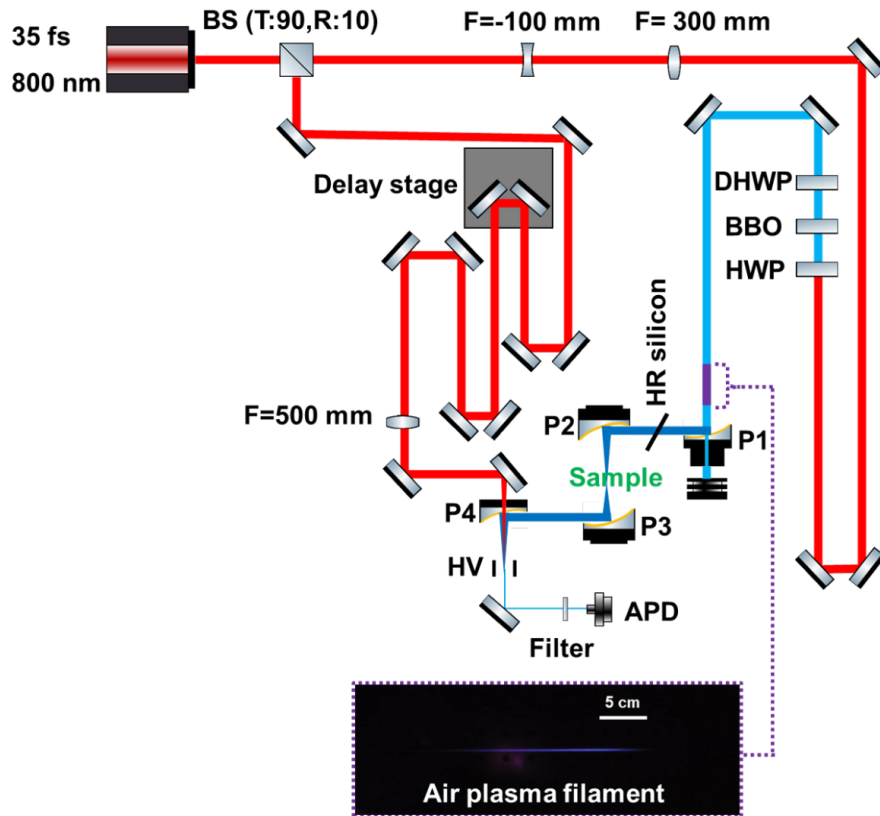


FIGURE 1.22: Schéma de la plateforme de spectroscopie THz-TDS construite à DTU.

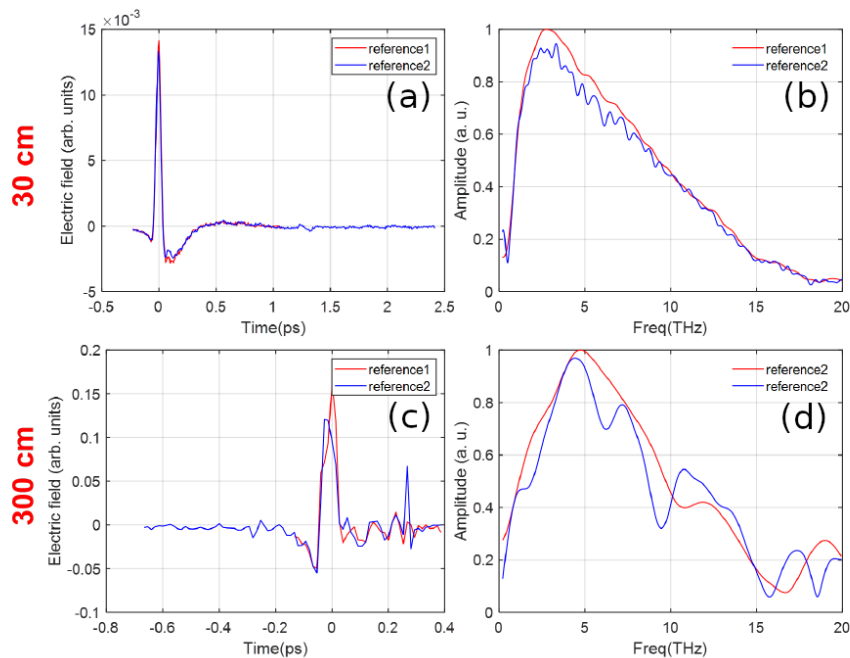


FIGURE 1.23: (a,c) Deux mesures consécutives de champs THz détectés par le système ABCD à partir d'un plasma d'air situé à (a) 30 cm et (c) 300 cm du système laser. (b,d) Spectres de transmission correspondants aux figures de gauche.

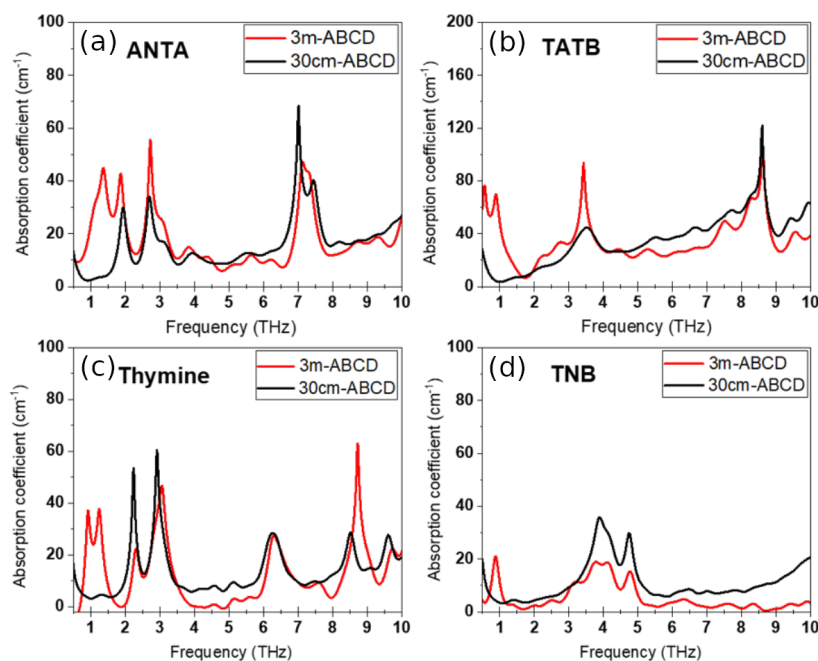


FIGURE 1.24: Spectres d'absorption THz mesurés (a) de l'ANTA, (b) du TATB, (c) de la thymine et (d) du TNB. Les spectres en noir ont été obtenus à l'aide d'une impulsion THz émise par un plasma d'air formé à 30 cm de la source laser, et ceux en rouge sont mesurés à l'aide d'un canal plasma généré à 300 cm de la source.

($C_6H_3N_3O_6$) afin de comparer les mesures de leurs signatures spectrales à courte (30 cm) et longue distance (3 m). Ces échantillons se présentent sous la forme d'une pastille constituée d'un mélange compressé de poudres de l'espèce à analyser et de polyéthylène (PE), de 1 mm d'épaisseur et de 1 cm de diamètre et dont la concentration massique en PE est en général 9 fois supérieure à la concentration du matériau d'intérêt. Les résultats expérimentaux sont illustrés sur la figure 1.24.

Les spectres mesurés de l'ANTA à l'aide des deux configurations plasma montrent des pics à 1.94, 2.7 et 7 THz, correspondant aux absorptions principales de cet explosif [5]. Ceux du TATB montrent les torsions intermoléculaires correspondant au pic à 3.52 THz et les oscillations intramoléculaires représentées par la bande à 8.6 THz, en accord avec la référence précédente. Les mesures du spectre d'absorption du TNB comportent deux pics à 3.86 et 4.74 THz et rejoignent les résultats d'Engelbrecht et al. [109]. Enfin, les pics d'absorption mesurés de la thymine sont situés à 2.23, 2.92, 6.27 et 8.51 THz. La bibliographie récente [110] rapporte des bandes à 2.27, 2.93, 6.30 et 8.51 THz, assurant un accord très satisfaisant. Cet ensemble de résultats prouve la fiabilité du dispositif de THz-TDS à longue distance conçu par DTU/Fotonik en dépit de l'instabilité mentionnée ci-dessus. Ces résultats constituent une avancée importante dans le domaine

de la détection d'explosifs par imagerie THz.

Cette étude expérimentale a également cherché à caractériser l'influence des dimensions de l'échantillon et de sa concentration en matériau à analyser sur l'amplitude et la largeur spectrale du rayonnement collecté. Pour ce faire, une série de spectroscopies THz a été réalisée sur différents échantillons de nitroguanidine (NGu, de formule chimique $\text{CH}_4\text{N}_4\text{O}_2$) à l'aide du dispositif expérimental longue distance décrit plus haut. Dans un premier temps, les expérimentateurs ont réalisé des spectres de référence sur un échantillon de mêmes dimensions que précédemment et dont les rapports de concentrations massiques vérifient $\text{NGu}/\text{PE} = 1/9$. Les plasmas utilisés sont, une nouvelle fois, formés à 30 cm et à 3 m de la source laser. La figure 1.25(b) indique le bon accord entre les deux mesures, montrant à nouveau la fiabilité de la THz-TDS basée sur des filaments. Elle indique également des pics d'absorption (correspondant aux creux dans les spectres de transmission) à 1.34, 2.37 et 2.79 THz, en accord avec la bibliographie [111], qui rapporte des bandes d'absorption à 1.53, 2.06 et 2.58 THz.

Dans un second temps, l'expérience a été réitérée sur des échantillons de concentrations différentes ($\text{NGu}/\text{PE} = 1/3$ et $\text{NGu}/\text{PE} = 1/2$) et d'épaisseurs variables ($\text{NGu}/\text{PE} = 1/9$ avec 0.51 et 1.35 mm d'épaisseur). La figure 1.25(c) [respectivement 1.25(d)] représente les spectres de transmission mesurés pour un plasma formé à 30 cm de la source laser [respectivement 3 m]. Les résultats montrent que lorsque l'épaisseur de la cible augmente, l'amplitude du signal mesuré diminue, ce qui amoindrit la visibilité des pics d'absorption et réduit la largeur spectrale exploitable du spectre de transmission obtenu. Un comportement similaire est retrouvé lorsque la concentration en NGu de l'échantillon est augmentée. Cet effet s'explique facilement par le principe associé à la loi de Beer-Lambert, selon lequel l'absorbance du milieu croît avec sa concentration et son épaisseur. Cependant, cette relation de proportionnalité n'a pas été vérifiée sur des spectres aussi larges, ce que nous attribuons à une non-homogénéité de l'échantillon provoquant de forts effets de diffusion au sein de la cible. La géométrie et la concentration de l'échantillon ont donc une forte influence sur la qualité du spectre mesuré, et représente une problématique à résoudre lors d'une expérience de THz-TDS. Bien qu'un critère permettant de choisir un échantillon "optimal" ne puisse pas être dégagé des mesures réalisées à DTU, ces expériences ont permis de mieux comprendre l'impact des caractéristiques de la cible sur les mesures, en plus de prouver la faisabilité d'une spectroscopie THz résolue en temps par des canaux plasmas de filaments laser.

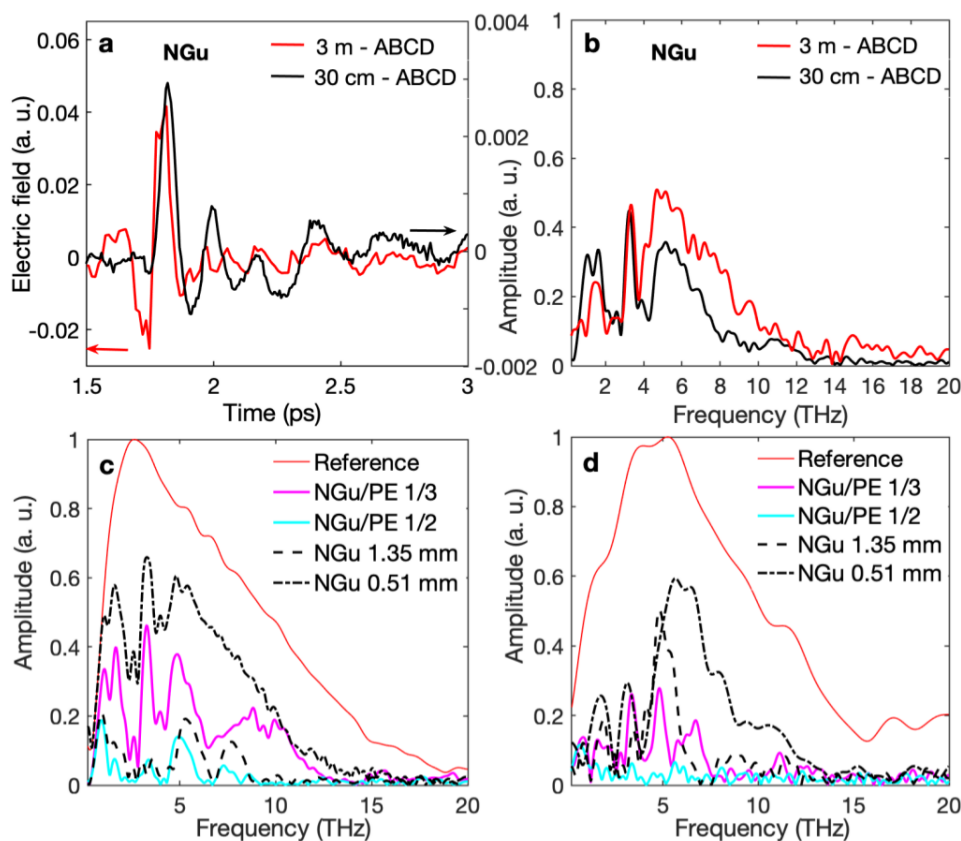


FIGURE 1.25: (a) Champs THz et (b) spectres de transmission de référence, mesurés à partir d'un plasma d'air formé à 30 cm (noir) et 3 m (rouge) de la source laser pour un échantillon d'épaisseur 1 mm et de concentration massique NGu/PE = 1/9. (c) Spectres de transmission THz mesurés pour différentes concentrations et épaisseurs à l'aide d'un plasma à 30 cm. (d) Mesures similaires par un plasma à 3 m.

1.3 Structure du manuscrit

1.3.1 Sujet de la thèse

Cette thèse a eu pour cadre le projet ALTESSE2 visant à fiabiliser une spectroscopie THz résolue en temps de matériaux divers, basée sur des plasmas d'air excités par des impulsions laser à plusieurs composantes spectrales. De multiples résultats expérimentaux obtenus durant ce projet ont démontré la faisabilité de cette technique, et la réalisation d'une telle spectroscopie à longue distance (>3 m) sur des matériaux explosifs a été effectuée avec succès. Une campagne de simulations DFT en lien avec ces expériences a également permis d'attribuer certaines signatures spectrales mesurées à des transitions moléculaires précises. L'objectif du projet a été d'améliorer la qualité des spectres THz collectés en optimisant le processus de production du rayonnement THz. En particulier, la qualité des mesures est liée à deux caractéristiques de l'impulsion THz :

son intensité (ou son énergie), donnant lieu à des pics d'absorption mieux contrastés, et la largeur de son spectre, permettant de visualiser les bandes d'absorption d'une structure moléculaire sur un plus vaste paysage fréquentiel. Mon travail de doctorat a eu pour but de satisfaire ce besoin à travers la dérivation de résultats analytiques et numériques allant en ce sens, ainsi que de proposer et développer de nouvelles pistes pour accroître le rendement de conversion énergétique laser - THz sur une large étendue spectrale.

1.3.2 Traitement des problématiques

Outre cette introduction, mon mémoire de thèse s'articule en 5 chapitres supplémentaires.

Le chapitre 2 a pour objectif d'exposer les lois physiques gouvernant la génération d'impulsions THz par un plasma d'air. Ce chapitre commence par décrire les caractéristiques d'une impulsion laser à deux couleurs en polarisation linéaire, puis l'équation d'onde par laquelle elle est gouvernée. Il développe ensuite les propriétés de la réponse non-linéaire des électrons liés aux atomes du milieu provoquée par la propagation du faisceau laser. Le plasma d'air formé par la suite est généré par photo-ionisation en régime tunnel, dont on expose différents modèles. La cinétique du plasma ainsi créé est gouvernée par l'équation de Vlasov et ses moments, qui sont alors dérivés. Je décris ensuite le modèle de courant local, qui néglige les effets propagatifs et spatiaux pour pouvoir comparer aisément les rayonnements THz générés par différentes configurations laser. La présentation de ce modèle est suivie d'une description du modèle UPPE (pour "Unidirectional Pulse Propagation Equation"), plus précis car plus riche en physique, mais également plus complexe. Le chapitre 2 s'achève sur une présentation du code de calcul employé pour intégrer le modèle UPPE, ainsi que les améliorations qui ont dû lui être apportées pour mener à bien ce projet.

Le chapitre 3 traite diverses pistes pour améliorer le rendement de conversion laser - THz. Un premier travail concerne l'optimisation des paramètres laser d'une impulsion à deux couleurs cette fois-ci polarisée de manière quelconque pour maximiser l'énergie THz produite. Celui-ci montre qu'une polarisation circulaire permet d'augmenter le rendement d'un facteur 4-5 par rapport à un état de polarisation linéaire classique. Une seconde partie est consacrée à l'amélioration du rendement délivrée par l'ajout de couleurs à l'impulsion laser. De précédents résultats analytiques et numériques [112] ont montré que cette méthode, appliquée à un faisceau polarisé linéairement, permet d'augmenter le rendement de conversion par un facteur pouvant croître

jusqu'à 15-20. J'ai approfondi cette étude en considérant une impulsion polarisée circulairement au vu des résultats présentés lors de la partie précédente. Ce chapitre se conclut sur l'étude du rôle de la diffusion Raman stimulée par les rotations moléculaires du milieu lors de la propagation laser. Je propose une modélisation de la polarisation associée à cet effet pour des impulsions à deux couleurs et à polarisation arbitraire, avant de présenter une étude numérique décrivant son influence sur la production d'ondes THz.

Le chapitre 4 vise à décrire de manière approfondie le caractère conique de l'émission basse-fréquence, typique du procédé de génération THz étudié. Un premier modèle disponible et robuste est le modèle de You [47, 48], qui explique l'origine de l'émission conique et la décrit pour un plasma cylindrique et de densité homogène. Je présente ici une intégration plus complète de ce modèle, prenant en compte les variations fréquentielles du spectre THz généré, dans le cadre d'une collaboration entre le CEA DAM-DIF et DTU/Fotonik menée lors d'ALTESSE2. L'objectif était de caractériser expérimentalement et numériquement la dynamique radiale de l'émission conique associée au rayonnement THz généré. Enfin, je propose un nouveau modèle plus généraliste, prenant en compte les inhomogénéités transverses du plasma ainsi que les effets d'enveloppe des deux harmoniques laser pouvant intervenir lors de leur propagation sur de longues distances. En particulier, ce modèle peut inclure l'impact d'aberrations optiques sur le plasma afin d'en déduire leur influence sur le profil transverse de l'émission THz en champ lointain. Ainsi, le chapitre 5 décrit l'effet que peuvent avoir trois aberrations optiques communes (astigmatisme, coma et sphéricité) sur la propagation du faisceau, la formation du plasma et sur la génération du rayonnement THz. L'impact de ces aberrations sur l'émission conique est également discuté à l'aide de l'intégration du nouveau modèle proposé au chapitre 4 et de simulations numériques tridimensionnelles réalisées avec un solveur unidirectionnel (CUP3D). Ce travail porte aussi bien sur le régime de propagation focalisée que sur la filamentation laser. Le chapitre 6 conclut ce travail et présente des pistes afin d'approfondir, dans le futur, l'étude de la génération de rayonnement THz par interaction laser-plasma.

1.3.3 Moyens financiers et numériques mis à disposition

Cette thèse a été réalisée au Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives, Département des Applications Militaires, Direction Ile-De-France (CEA DAM-DIF). Elle a été financée à hauteur de 67 % par le CEA et de 33 % par l'École Doctorale Ondes et Matière

(EDOM). Elle constitue le volet numérique du projet ALTESSE2 financé par l'Agence Innovation Défense (AID) en partenariat avec l'Agence Nationale de la Recherche (ANR) dans le cadre de son programme MATURATION. Les ressources numériques ont été fournies par le Très Grand Centre de Calcul (TGCC) du CEA et par le CINES dans le cadre du projet n°A0120507594 du Grand Equipement National de Calcul Intensif (GENCI).

Chapitre 2

Mécanismes de production de rayonnement térahertz et modèles

Sommaire

2.1	Équations décrivant la production de rayonnement THz	42
2.1.1	Impulsion laser initiale	42
2.1.2	Equations de Maxwell	45
2.1.3	Réponse non-linéaire des électrons liés	49
2.1.4	Photo-ionisation de l'air	59
2.1.5	Interactions laser-plasma : Equation de Vlasov	72
2.1.6	Courants de pertes	77
2.2	Modèles physiques	78
2.2.1	Génération de rayonnement THz par photo-courants	78
2.2.2	Modèle de courant local (ou "Local Current")	79
2.2.3	Comparaison des spectres THz issu des photo-courants et des effets Kerr et Raman	84
2.2.4	Modèle UPPE	89
2.3	Code de simulation CUP3D	93
2.3.1	Pré-processeur de propagation linéaire	94
2.3.2	Intégration numérique du modèle UPPE	97

Ce chapitre expose les mécanismes entrant en jeu lors de la production de rayonnement THz par un plasma d'air formé par une impulsion laser femtoseconde à plusieurs harmoniques. Il commence par préciser les caractéristiques de l'impulsion laser étudiée,

puis rappelle les équations de Maxwell ainsi que les effets non-linéaires qui gouvernent le comportement propagatif du faisceau. Par la suite, il présente différents modèles de taux d'ionisation décrivant la croissance de la densité électronique, consécutive à la photo-ionisation de l'air par effet tunnel et menant à la formation d'un plasma. Un traitement classique de l'équation de Vlasov permet d'établir ses moments, qui déterminent la dynamique électronique du plasma généré. Cette première partie regroupe donc toutes les équations à intégrer afin d'estimer le rayonnement THz produit par un plasma atmosphérique.

La seconde partie de ce chapitre explicite deux modèles physiques permettant de résoudre ces équations. Tout d'abord, elle présente le modèle non-propagatif de courant local (abrégé modèle "LC", pour "Local Current"), qui permet d'obtenir une évaluation rapide des variations de l'amplitude de l'onde THz émise en fonction de la configuration laser employée. Elle détaille ensuite le modèle UPPE (pour "Unidirectional Pulse Propagation Equation"), plus complet en processus physiques mais également plus laborieux à intégrer numériquement.

Ce chapitre se conclut en présentant le code CUP3D qui intègre le modèle UPPE utilisé lors de mon travail de doctorat, et compare quelques résultats acquis à l'aide du modèle LC et ceux de simulations UPPE tridimensionnelles.

2.1 Équations décrivant la production de rayonnement THz

La première partie de ce chapitre consiste à établir le système d'équations régissant la propagation de l'impulsion laser et la formation du plasma.

2.1.1 Impulsion laser initiale

Pour produire des ondes THz, l'impulsion laser doit satisfaire plusieurs conditions. Tout d'abord, elle doit se situer dans une gamme d'intensités élevée ($10^{13} - 10^{15}$ W/cm²), permettant d'ioniser le milieu de propagation - ici un gaz -, pour lequel la source principale de rayonnement THz est le courant interne induit par la dynamique des particules chargées libres, et nommé "photocourant" [56]. Pour des intensités plus modérées, les ondes THz sont plutôt obtenues à l'aide d'un mélange à quatre ondes induit par l'effet Kerr [55], qui sera explicité plus loin. Aux intensités plus fortes ($> 10^{15}$ W/cm²) et pour des impulsions monochromatiques, l'émission THz est due majoritairement à la force pondéromotrice qu'exerce l'impulsion sur les porteurs de charge. Cette

force correspond à la pression électromagnétique induite par un faisceau comportant un gradient radial d'intensité du fait de son enveloppe. La force pondéromotrice a pour effet d'expulser les électrons des zones de plus forte intensité laser, causant ainsi une hétérogénéité dans la répartition des charges au sein du plasma. Cette dernière induit à son tour un champ de rappel, qui attire les électrons vers les zones majoritairement peuplées par les ions (qui sont supposés immobiles aux échelles de temps considérées à cause de leur masse élevée). L'association de la force pondéromotrice et de ce champ de rappel génère une oscillation des électrons, induisant alors une onde plasma électronique [113] et des fluctuations de courants qui perdurent après le passage de l'impulsion laser. Ces fluctuations peuvent être sources de rayonnement THz [51, 54, 114, 115]. La figure 2.1 résume les sources principales de rayonnement THz en fonction de l'intensité laser.

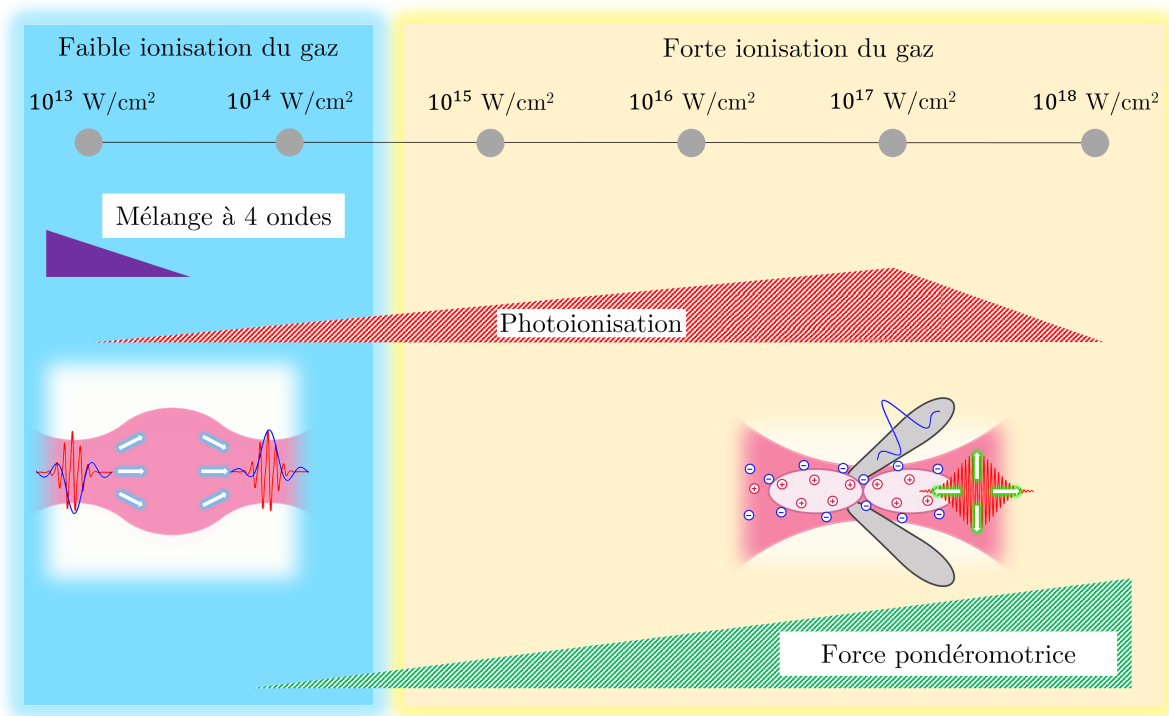


FIGURE 2.1: Schéma représentant les sources principales de rayonnement THz lors de la propagation non-linéaire d'une impulsion laser dans l'air en fonction de son intensité pic. Le mélange à quatre ondes (induit par la réponse Kerr du milieu) et les photo-courants nécessitent une impulsion laser comportant au moins deux harmoniques pour produire une onde basse-fréquence intense. Source : Tailliez [57]

L'impulsion laser utilisée est également ultracourte (quelques dizaines de fs). Ses harmoniques sont donc larges spectralement, ce qui favorise la production d'oscillations basse-fréquence à

spectre étendu lors des mélanges de fréquences engendrés par l'effet Kerr et les interactions laser-plasma [115].

Enfin, l'impulsion laser contient plusieurs harmoniques (ou "couleurs"). Leur nombre est généralement limité à deux pour des contraintes expérimentales. Ce travail de doctorat admet cependant des impulsions à spectre plus riche, qui seront étudiées au chapitre 3. La composante fondamentale laser, parfois abrégée "FH" pour "First/Fondamental Harmonic", est généralement comprise entre 0.8 et 2 μm . En pratique, la seconde couleur (abrégée "SH" pour "Second Harmonic") est produite à l'aide d'un cristal doubleur BBO (pour " β -borate baryum") et contient généralement entre 10% et 30% de l'énergie laser totale. Le décalage en temps entre leurs profils temporels peut être contrôlé à l'aide d'un matériau dispersif, par exemple un verre de calcite, afin qu'ils se superposent lorsque le plasma est formé (voir section 1.2.5). Par souci de simplicité, les couleurs seront ici considérées comme préparées indépendamment l'une de l'autre, par exemple à l'aide de deux bras séparés. Nous les supposerons de même durée et de même diamètre transverse, et elles seront initialement superposées dans ce qui suit.

On note \vec{E}_L le champ électrique associé à l'impulsion laser. Les deux couleurs sont supposées toujours polarisées dans le plan (\vec{e}_x, \vec{e}_y) orthogonal à l'axe de propagation \vec{e}_z . Leurs enveloppes temporelle et spatiale sont initialement gaussiennes, de rayons en $1/e^2$ notés respectivement τ_0 et w_0 . On note t la variable temporelle et (x, y) les variables spatiales transverses, toutes centrées sur les maxima des profils temporels et spatiaux de l'impulsion. La seconde couleur est l'harmonique deux, de fréquence double par rapport à celle du fondamental laser de pulsation notée ω_0 . En posant \vec{E}_1 et \vec{E}_2 les champs laser associés respectivement au fondamental et à l'harmonique deux, l'expression de l'impulsion incidente s'écrit :

$$\vec{E}_L(t, x, y) = e^{-\frac{t^2}{\tau_0^2}} e^{-\frac{x^2+y^2}{w_0^2}} \left(\vec{E}_1(t) + \vec{E}_2(t) \right). \quad (2.1)$$

Il est parfois d'usage d'employer la durée t_{FWHM} et le diamètre transverse w_{FWHM} à mi-hauteur (ou FWHM, pour "Full Width Half-Max"), respectivement définis par $t_{\text{FWHM}} = \sqrt{2\ln 2}\tau_0$ et $w_{\text{FWHM}} = \sqrt{2\ln 2}w_0$.

L'intensité instantanée de l'impulsion laser est définie par

$$I(t, x, y) = \epsilon_0 c n_0 |E_L(t, x, y)|^2 \quad (2.2)$$

avec n_0 l'indice optique du milieu de propagation à la fréquence du fondamental laser.

Pour une impulsion laser monochromatique, l'intensité moyenne s'écrit sous la forme simple $I_0 = \epsilon_0 c n_0 E_0^2 / 2$. La puissance incidente de l'impulsion laser est alors :

$$P_{\text{in}}(t) = \epsilon_0 c n_0 \iint_{x,y} |E_L(t, x, y)|^2 dx dy. \quad (2.3)$$

Pour un faisceau laser d'enveloppe spatiale gaussienne, la puissance moyenne incidente se note $P_{\text{in}} = \epsilon_0 c n_0 \pi w_0^2 E_0^2 / 2$. Enfin, l'énergie de l'impulsion laser est donnée par

$$\mathcal{E} = \epsilon_0 c n_0 \iiint_{t,x,y} |E_L(t, x, y)|^2 dt dx dy. \quad (2.4)$$

Pour une enveloppe temporelle gaussienne, cette expression se réduit à $\mathcal{E} = \epsilon_0 c n_0 \pi^{3/2} w_0^2 \tau_0 E_0^2 / 2$.

2.1.2 Equations de Maxwell

Les ondes électromagnétiques sont gouvernées par les équations de Maxwell [3]. On note \vec{E} le champ électrique et \vec{H} le champ magnétique associés à une telle onde se propageant dans un milieu donné. Son induction électrique \vec{D} et son induction magnétique \vec{B} sont définies à l'aide de la polarisation électrique \vec{P} et de l'aimantation \vec{M} du milieu par

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}, \quad (2.5)$$

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} + \vec{M}, \quad (2.6)$$

où ϵ_0 et μ_0 sont respectivement la constante diélectrique et la perméabilité magnétique du vide (voir Formulaire). Les grandeurs \vec{P} et \vec{M} sont définies par

$$-\vec{\nabla} \cdot \vec{P} = \rho_b, \quad (2.7)$$

$$\frac{1}{\mu_0} \vec{\nabla} \times \vec{M} = \partial_t \vec{P} - \vec{J}_b, \quad (2.8)$$

où ρ_b et \vec{J}_b représentent les densités de charge et de courant des particules liées.

Dans ce qui suit, l'aimantation de l'air \vec{M} sera toujours considérée nulle. L'induction magnétique

\vec{B} et le champ magnétique \vec{H} étant égaux à une constante μ_0 près, nous noterons \vec{B} le champ magnétique par abus de langage. De plus, aux échelles de temps concernées ici, les noyaux sont supposés immobiles en vertu de leur masse environ 1800 fois plus élevée que celle des électrons. La dynamique des ions est donc ignorée et leur densité de courant est supposée nulle. Les équations de Maxwell se réécrivent donc :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho_e, \quad (2.9)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\partial_t \vec{B}, \quad (2.10)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0, \quad (2.11)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu_0 \vec{J}_e + \mu_0 \partial_t \vec{D}, \quad (2.12)$$

avec ρ_e et \vec{J}_e les densités de charge et de courant liées aux électrons libres.

Equation d'onde

Les équations de Maxwell sont utilisées pour établir la relation régissant la propagation d'un faisceau optique. On rappelle que la vitesse de la lumière dans le vide, notée c (voir Formulaire), vérifie la relation $\epsilon_0 \mu_0 = 1/c^2$. En combinant (2.5), (2.6), (2.10) et (2.12), nous obtenons facilement

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) = -\mu_0 \partial_t \vec{J}_e - \frac{1}{c^2} \partial_t^2 \vec{E} - \mu_0 \partial_t^2 \vec{P}. \quad (2.13)$$

Cette équation se simplifie à l'aide de l'identité vectorielle :

$$\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) = \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \vec{\nabla}^2 \vec{E} \quad (2.14)$$

pour aboutir à l'équation d'onde :

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \frac{1}{c^2} \partial_t^2 \vec{E} = \mu_0 (\partial_t \vec{J}_e + \partial_t^2 \vec{P}). \quad (2.15)$$

Pour toute grandeur dépendant du temps $X(t)$, nous notons $\hat{X}(\omega)$ sa transformée de Fourier temporelle, comme définie dans le formulaire. Cette transformation appliquée à la relation pré-

cédente donne l'équation de Helmholtz non-linéaire :

$$\vec{\nabla}^2 \hat{\vec{E}} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \hat{\vec{E}}) + \frac{\omega^2}{c^2} \hat{\vec{E}} = -\mu_0 \omega \left(i \hat{\vec{J}}_e + \omega \hat{\vec{P}} \right). \quad (2.16)$$

L'action de la densité de charges électriques sur la propagation du champ électrique est obtenue en développant l'équation (2.9) à l'aide de (2.5) :

$$\vec{\nabla} \cdot \hat{\vec{E}} = \frac{\hat{\rho}_e - \vec{\nabla} \cdot \hat{\vec{P}}}{\epsilon_0}. \quad (2.17)$$

Afin de simplifier les relations (2.16) et (2.17), il est nécessaire de caractériser la polarisation \vec{P} , qui contient entre autres la dispersion optique du faisceau laser.

Polarisation linéaire due à la réponse des électrons liés

Pour commencer, nous supposons que l'air est homogène et isotrope. Ses propriétés spatiales sont donc inchangées en tout lieu et selon toute direction dans l'espace. Lorsque ce milieu est soumis à une excitation électrique $\vec{E}(\vec{r}, t)$, comme lors du passage de l'impulsion laser, les électrons liés aux espèces neutres subissent une contrainte qui produit une polarisation électrique $\vec{P}(\vec{r}, t)$ affectant la propagation de l'impulsion optique.

En régime linéaire, l'excitation externe $\vec{E}(\vec{r}, t)$ induit la polarisation des charges liées $\vec{P}_L(\vec{r}, t)$ [116] :

$$\vec{P}_L(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} \chi^{(1)}(t - t') \vec{E}(\vec{r}, t') dt', \quad (2.18)$$

où $\chi^{(1)}$ est un tenseur d'ordre 2, nommé susceptibilité électrique linéaire. La polarisation indicée par L fait référence à un régime linéaire, caractérisé par une simple relation de proportionnalité entre $\vec{P}_L(\vec{r}, t)$ et $\vec{E}(\vec{r}, t)$. $\vec{P}_L(\vec{r}, t)$ est ainsi la polarisation linéaire du milieu.

Le caractère isotrope de l'air assure que $\chi^{(1)}$ est diagonal et que ses coefficients non-nuls sont tous égaux. La susceptibilité linéaire peut donc être assimilée à une fonction constante en espace et ne dépendant que de ω . Nous obtenons donc par transformée de Fourier :

$$\hat{\vec{P}}_L(\vec{r}, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \hat{\vec{E}}(\vec{r}, \omega), \quad (2.19)$$

où $\chi^{(1)}(\omega)$ est liée à la permittivité diélectrique du milieu $\epsilon(\omega)$ par

$$\epsilon(\omega) = 1 + \chi^{(1)}(\omega) \quad (2.20)$$

et à l'indice optique linéaire du milieu $n_{\text{opt}}(\omega) = \sqrt{\epsilon(\omega)}$ par

$$n_{\text{opt}}(\omega) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)}. \quad (2.21)$$

Ici $n_{\text{opt}}(\omega)$ vérifie

$$k(\omega) = n_{\text{opt}}(\omega) \frac{\omega}{c} \quad (2.22)$$

avec $k(\omega)$ le nombre d'onde du champ $\widehat{\vec{E}}(\vec{r}, \omega)$.

En général, $\chi^{(1)}(\omega)$ est une quantité complexe : sa partie réelle est liée à la dispersion optique du milieu, et sa partie imaginaire décrit l'absorption linéaire de l'énergie laser par ce dernier. Le modèle de Reeder et Peck [117] sera ici employé pour représenter la dispersion de l'air ambiant associée aux variations en ω de l'indice optique linéaire $n_{\text{opt}}(\omega)$. L'absorption, quant à elle, sera supposée négligeable.

Equation de Helmholtz généralisée

Revenons désormais à l'équation (2.16). Il est maintenant nécessaire de détailler les réponses non-linéaires incluses dans le membre de droite de cette équation de Helmholtz. La polarisation électrique est habituellement séparée en une partie linéaire notée \vec{P}_L [cf. équation (2.19)], et une partie non-linéaire notée \vec{P}_{NL} associée à la réponse des électrons liés aux ordres $i > 1$ ($\propto \vec{E}^{i>1}$) [29]. En introduisant $\vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{\text{NL}}$, les équations (2.16) et (2.17) s'expriment donc comme suit :

$$\vec{\nabla}^2 \widehat{\vec{E}} + \frac{\omega^2}{c^2} (1 + \chi^{(1)}) \widehat{\vec{E}} = -\mu_0 \omega \left(i \vec{J}_e + \omega \vec{P}_{\text{NL}} \right) + \frac{\vec{\nabla} \cdot \widehat{\rho}_e - \vec{\nabla}^2 \widehat{P}_{\text{NL}}}{\epsilon_0 (1 + \chi^{(1)})} \quad (2.23)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \widehat{\vec{E}} = \frac{\widehat{\rho}_e - \vec{\nabla} \cdot \widehat{P}_{\text{NL}}}{\epsilon_0 (1 + \chi^{(1)})}. \quad (2.24)$$

L'équation de conservation de la charge électrique

$$\partial_t \rho_e + \vec{\nabla} \cdot \vec{J}_e = 0 \quad (2.25)$$

est donnée dans le domaine fréquentiel par

$$\vec{\nabla} \cdot \widehat{\vec{J}}_e = i\omega \widehat{\rho}_e. \quad (2.26)$$

Les relations (2.23), (2.24) et (2.26) nous permettent alors de simplifier l'équation d'onde pour finalement obtenir l'équation de Helmholtz généralisée :

$$\vec{\nabla}^2 \widehat{\vec{E}} + k^2(\omega) \widehat{\vec{E}} = -\mu_0 \omega^2 \left(\widehat{\vec{F}}_{\text{NL}} + \frac{1}{k^2(\omega)} \vec{\nabla} \left(\vec{\nabla} \cdot \widehat{\vec{F}}_{\text{NL}} \right) \right) \quad (2.27)$$

incluant $\widehat{\vec{F}}_{\text{NL}}$ la réponse non-linéaire du milieu à l'excitation laser :

$$\widehat{\vec{F}}_{\text{NL}} = \frac{i}{\omega} \widehat{\vec{J}}_e + \widehat{\vec{P}}_{\text{NL}}. \quad (2.28)$$

Le terme \vec{J}_e représente la densité de courant des électrons libérés lors du passage de l'impulsion. Il est donc associé aux photo-courants, source principale de rayonnement THz ici, ainsi qu'aux courants de pertes (voir section 2.1.6). La grandeur $\widehat{\vec{P}}_{\text{NL}}$ est associée à la réponse non-linéaire des électrons liés, constituée de l'effet Kerr et de la diffusion Raman rotationnelle stimulée [118].

2.1.3 Réponse non-linéaire des électrons liés

Comme introduit précédemment, la polarisation électrique admet également une partie non-linéaire $\vec{P}_{\text{NL}}(\vec{r}, t)$ lorsque l'excitation $\vec{E}(\vec{r}, t)$ est suffisamment intense. Celle-ci est toutefois généralement faible devant la polarisation linéaire [29]. Il est possible de décomposer cette réponse non-linéaire des électrons liés en une série de puissances de $\vec{E}(\vec{r}, t)$. La polarisation reliée à $\vec{E}^i(\vec{r}, t)$ est appelée "polarisation d'ordre i" et fait intervenir la susceptibilité non-linéaire d'ordre i, notée $\chi^{(i)}$. Pour une excitation scalaire monochromatique et en supposant un milieu non-dispersif, i.e., $\chi^{(i)} \approx \chi^{(i)}(\omega_0)$, l'expression liant ces grandeurs s'écrit simplement :

$$P(\vec{r}, t) = \sum_i P^{(i)}(\vec{r}, t) \quad (2.29)$$

$$= \underbrace{\epsilon_0 \chi^{(1)} E(\vec{r}, t)}_{P_L(\vec{r}, t)} + \underbrace{\epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(\vec{r}, t) + \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3(\vec{r}, t) + \dots}_{P_{NL}(\vec{r}, t)} \quad (2.30)$$

Pour une impulsion laser vectorielle à plusieurs harmoniques, cette expression se complexifie car la susceptibilité d'ordre i est à la base un tenseur d'ordre $i + 1$. L'analyse nécessite de décrire séparément les différentes oscillations composant l'excitation $\vec{E}(\vec{r}, t)$ et la polarisation $\vec{P}(\vec{r}, t)$:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{E}(\omega_n) e^{-i\omega_n t}, \quad (2.31)$$

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \sum_n \vec{P}(\omega_n) e^{-i\omega_n t}, \quad (2.32)$$

où $\vec{E}(\omega_n)$ et $\vec{P}(\omega_n)$ sont les amplitudes du terme oscillant à la pulsation ω_n .

L'air, qui sera le milieu d'interaction privilégié tout au long de ce travail, est un milieu majoritairement composé de molécules de diazote N_2 ($\approx 80\%$) et de dioxygène O_2 ($\approx 20\%$). Sa nature gazeuse nous conduit à le considérer comme un milieu centrosymétrique. Cette géométrie particulière assure que les polarisations d'ordre pair sont toujours nulles par symétrie des vecteurs d'onde [29]. Parmi les ordres impairs de la susceptibilité non-linéaire, c'est $\chi^{(3)}$ qui est largement dominant devant les autres [119]. La polarisation non-linéaire de l'air est donc assimilable à la polarisation d'ordre 3, qui s'écrit formellement [29] :

$$P_{NL,i}(\omega_m + \omega_n + \omega_o) = \epsilon_0 \sum_{jkl} \sum_{mno} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_m + \omega_n + \omega_o, \omega_m, \omega_n, \omega_o) \times E_j(\omega_o) E_k(\omega_n) E_l(\omega_m) \quad (2.33)$$

où i, j, k et l sont les indices du tenseur $\chi^{(3)}$, et m, n et o des indices décrivant les fréquences d'oscillation de l'excitation $\vec{E}(\vec{r}, \omega)$.

L'hypothèse d'isotropie permet de ramener le tenseur $\chi^{(3)}$ à un scalaire, noté $\chi^{(3)}(\omega)$. Pour

rappel, la susceptibilité d'ordre 3 est supposée non-dispersive par commodité technique, c'est-à-dire qu'elle est supposée ici indépendante de la fréquence de l'excitation $\widehat{E}(\vec{r}, \omega)$, d'où $\chi^{(3)}(\omega) = \chi^{(3)}(\omega_0)$ avec ω_0 la pulsation fondamentale du champ laser. Ces considérations permettent de grandement simplifier l'expression (2.33) qui se réduit à :

$$\vec{P}_{\text{NL}}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \chi^{(3)}(\omega_0) \vec{E}^3(\vec{r}, t). \quad (2.34)$$

Effet Kerr

La polarisation non-linéaire d'ordre 3 excitée par un champ laser monochromatique écrit sous la forme $\vec{E}(t) = E_0 \cos(\omega_0 t) \vec{e}_x$ se développe à partir de la relation (2.34) comme :

$$\vec{P}_{\text{NL}}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3 \left(\frac{3}{4} \cos(\omega_0 t) + \frac{1}{4} \cos(3\omega_0 t) \right) \vec{e}_x. \quad (2.35)$$

Cette équation montre que la réponse non-linéaire des électrons liés génère une onde de pulsation $3\omega_0$ par mélange de fréquences, en plus d'un terme oscillant à la fréquence fondamentale ω_0 . En regroupant les expressions (2.19) et (2.35), nous obtenons la partie oscillant à ω_0 de la polarisation totale (en omettant le terme généré à $3\omega_0$) :

$$\vec{P}(t) = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)}(\omega_0) + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2 \right) \vec{E}(t). \quad (2.36)$$

Cette équation indique que la polarisation non-linéaire apporte une correction à l'indice de réfraction de l'air proportionnelle au carré de l'amplitude laser (donc à l'intensité pic) :

$$n^2(\omega) = n_{\text{opt}}^2(\omega) + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2. \quad (2.37)$$

Il est usuel en optique non-linéaire d'utiliser l'indice non-linéaire du milieu n_2 [29, 116], aussi nommé indice Kerr, défini tel que :

$$n_2 = \frac{3}{4} \frac{\chi^{(3)}}{c \epsilon_0 n_0^2} \quad (2.38)$$

avec $n_0 = n_{\text{opt}}(\omega_0) \approx 1$.

En supposant $3\chi^{(3)} E_0^2/4 \ll n_{\text{opt}}^2(\omega)$, l'indice optique corrigé prend alors la forme :

$$n(\omega) = n_{\text{opt}}(\omega) + n_2 I_0, \quad (2.39)$$

avec $I_0 = c\epsilon_0 n_0 E_0^2 / 2$ l'intensité maximale de l'impulsion laser. Pour l'air, n_2 prend la valeur $3.8 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$ [120] souvent proposée dans la littérature.

Au cours de la propagation du faisceau, l'accroissement de l'intensité pic consécutive à cette dépendance provoque ainsi une augmentation sur l'axe de l'indice optique de l'air. ce qui a pour effet de réfracter le faisceau vers l'axe optique. L'effet Kerr impose donc une focalisation supplémentaire à l'impulsion laser : c'est le phénomène d'auto-focalisation [121, 122], illustré en figure 2.2.

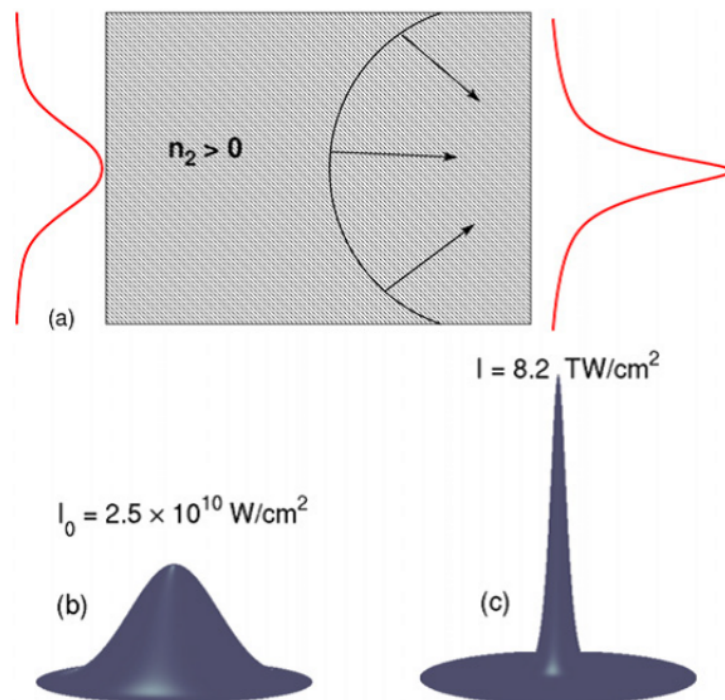


FIGURE 2.2: (a) L'augmentation axiale de l'intensité pic du faisceau provoque un accroissement de l'indice du milieu, qui induit un effet focalisant l'impulsion laser. Intensités (b) avant et (c) après l'auto-focalisation. Source : Bergé [107]

Pour déclencher l'effet d'auto-focalisation Kerr, l'impulsion laser nécessite une puissance pic suffisamment élevée pour rendre la réponse non-linéaire de l'air prédominante sur la diffraction transverse du faisceau. Comme mentionné en section 1.2.5, la puissance minimale requise pour engendrer ce phénomène est nommée "puissance critique", et est approchée par [107]

$$P_{\text{cr}} \approx \frac{3.72\lambda_0^2}{8\pi n_0 n_2}. \quad (2.40)$$

Dans l'air, ce seuil en puissance vaut entre 5 et 10 GW pour $\lambda_0 = 0.8 - 1 \mu\text{m}$. La compression spatiale de l'impulsion laser induite par ce phénomène implique une modification du foyer, alors situé à une distance z_c de la lentille de focale f , ou du point d'entrée du faisceau dans le milieu non-linéaire si l'impulsion est collimatée. Le modèle semi-empirique proposé par Marburger et al. [123] permet de décrire cette grandeur, nommée distance focale (ou foyer) non-linéaire :

$$z_c = \frac{0.367z_0}{\sqrt{\left(\sqrt{P_{\text{in}}/P_{\text{cr}}} - 0.852\right)^2 - 0.0219 + 0.367z_0/f}} \quad (2.41)$$

avec $z_0 = \pi w_0^2/\lambda_0$ la longueur de Rayleigh de l'impulsion, P_{in} la puissance du faisceau incident en $z = 0$ et f la longueur focale de la lentille (facultative) initialement appliquée au faisceau.

Pour une impulsion à deux harmoniques, le mélange en fréquence causé par l'effet Kerr génère des composantes spectrales en harmoniques multiples de ω_0 , ainsi qu'un terme basse-fréquence situé dans le domaine THz. La figure 2.3 illustre le spectre associé à la polarisation non-linéaire (2.34) pour un champ laser à deux couleurs de fondamental $0.8 \mu\text{m}$, de durée 34 fs et d'amplitude égale à 30 GV/m, où 20 % de l'énergie laser est contenue dans l'harmonique deux et où le déphasage entre les couleurs est de $\pi/4$. Dans cette configuration, le spectre de la polarisation Kerr contient six composantes optiques ainsi qu'une contribution THz à basse fréquence ($\omega \ll \omega_0$), qui sera caractérisée dans la section 2.2.3.

Diffusion Raman stimulée

Une réponse supplémentaire des charges liées de l'air au passage de l'impulsion laser est la diffusion Raman stimulée. Dans l'air (ou dans le diazote) à pression atmosphérique, cet effet provient majoritairement de l'excitation des transitions rotationnelles du diazote N_2 par des photons intenses [124, 125]. Par souci de simplicité, nous négligeons la diffusion vibrationnelle Raman ainsi que la diffusion rotationnelle associée aux molécules de dioxygène. La diffusion Raman se résume donc ici à la diffusion Raman rotationnelle stimulée du diazote, abrégée SRRS.

Le diazote étant un gaz diatomique, les transitions rotationnelles permises correspondent à

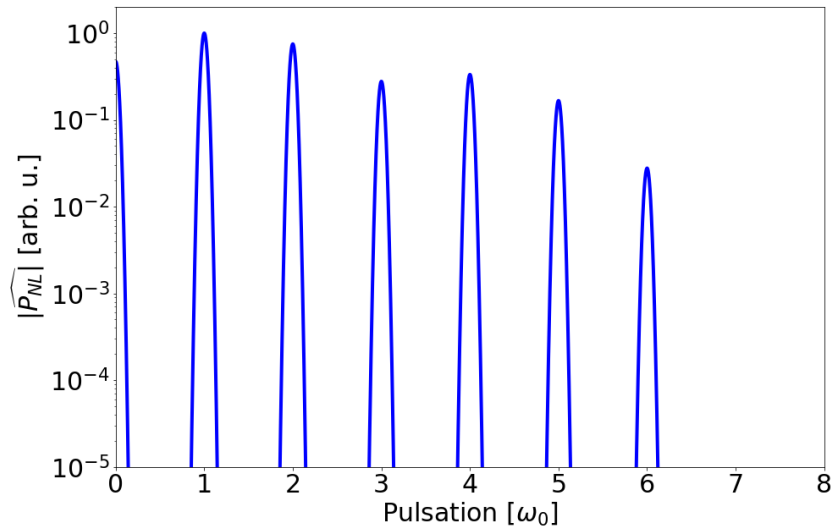


FIGURE 2.3: Spectre de la polarisation Kerr $|\widehat{P}_{\text{NL}}(\omega)|$ associée à une impulsion laser polarisée linéairement d'amplitude 30 GV/m, de longueur d'onde fondamentale $\lambda_0 = 0.8 \mu\text{m}$, et de durée $\tau_0 = 34 \text{ fs}$. La seconde couleur contient 20 % de l'énergie laser et est déphasée de $\pi/4$ par rapport au fondamental.

une variation du nombre quantique rotationnel j de ± 2 . Les transitions liées à $\Delta j = +2$ sont nommées émissions Stokes, et celles associées à $\Delta j = -2$ sont appelées émissions anti-Stokes. Leur schéma de principe est illustré par la figure 2.4. Une émission Stokes est la production d'un photon lié à la transition d'un état rotationnel 1 à un état d'énergie supérieure 2, en passant par un état virtuel situé en-dessous d'un état électronique 3 supposé suffisamment élevé pour ne pas être excité. Une émission anti-Stokes correspond à la transition de l'état 2 à l'état 1 en respectant le même processus. Nous supposons ici que seul l'état 1 est initialement peuplé. Les émissions anti-Stokes sont donc négligées.

Les énergies des niveaux rotationnels des molécules d'azote sont réparties en fonction de j selon l'expression

$$E_j = j(j+1)B_0hc \quad (2.42)$$

où h est la constante de Planck (voir Formulaire) et $B_0 = 2 \text{ cm}^{-1}$ est la constante rotationnelle du diazote [127].

Une première formulation pour la polarisation macroscopique associée à la SRRS induite par une impulsion laser unidirectionnelle $E(t)$ polarisée linéairement s'écrit [128] :

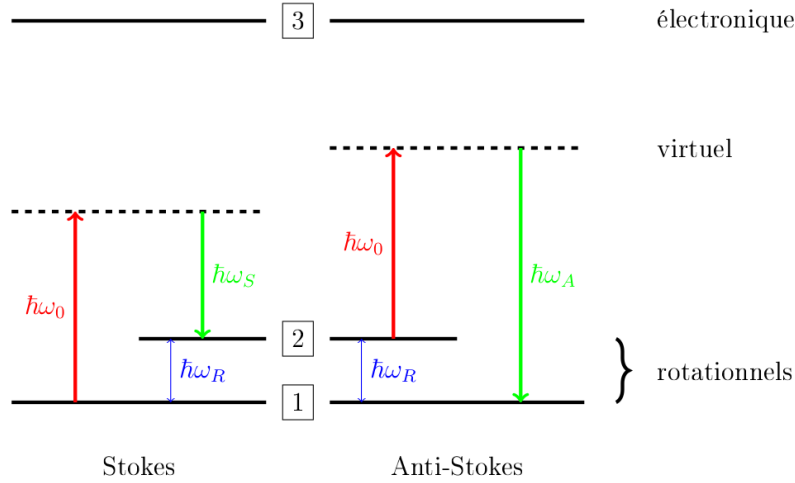


FIGURE 2.4: Schéma de principe des émissions Stokes (Gauche) et anti-Stokes (Droite). Source : Nguyen [126]

$$P_{\text{NL,R}}(t) = \frac{3}{2} x_K \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t) \tau_1 (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}) \int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-\tau}{\tau_2}} \sin\left(\frac{t-\tau}{\tau_1}\right) E^2(\tau) d\tau \quad (2.43)$$

où x_K est la proportion de polarisation non-linéaire due à la SRRS valant environ 0.8 dans l'air [120], $\tau_1 \approx 62.5$ fs est le temps moyen entre deux transitions Stokes et $\tau_2 \approx 77$ fs est le temps caractéristique de dépopulation de l'état 2 [129, 130].

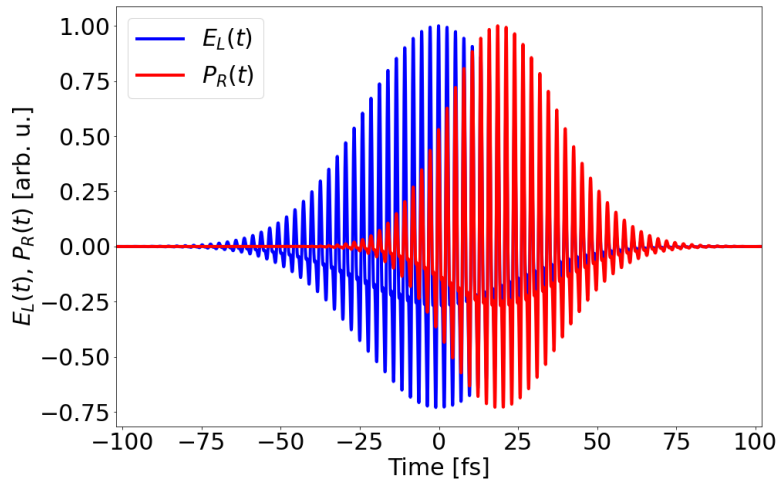


FIGURE 2.5: Evolutions temporelles du champ laser (courbe bleue) et de la polarisation Raman associée (courbe rouge) résultant de l'intégration de l'équation (2.43) pour l'impulsion laser décrite en légende de la figure 2.3.

La généralisation de cette expression pour les impulsions laser vectorielles sera présentée au

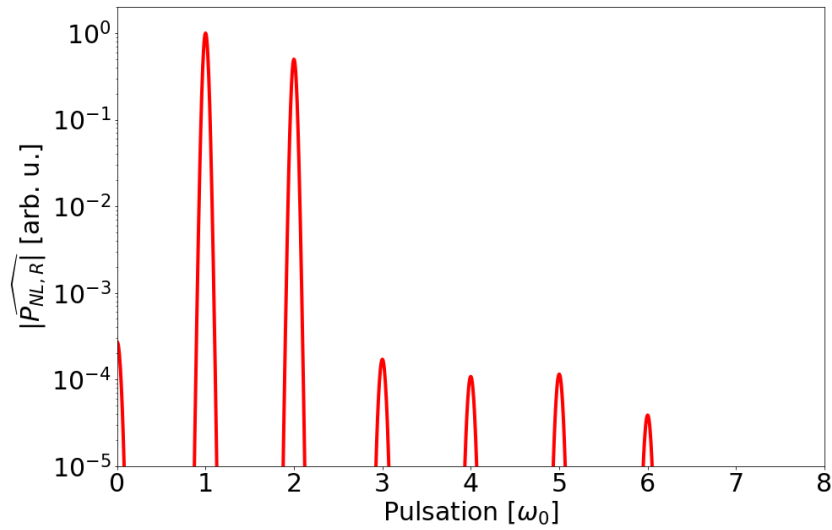


FIGURE 2.6: Spectre de la polarisation Raman dont le profil temporel est illustré sur la figure 2.5. Le champ laser utilisé est similaire à celui décrit en figure 2.3.

chapitre 3. L'expression (2.43) montre que la polarisation Raman dépend de E^3 à l'instar de la polarisation Kerr (2.34). Elle indique cependant que la SRRS agit de manière retardée par rapport à l'effet Kerr à cause du temps nécessaire pour provoquer une émission Stokes. Ce retard est illustré par la figure 2.5 qui présente les profils temporels de la polarisation Raman (courbe rouge) associée au champ laser à deux couleurs (courbe bleue) de mêmes paramètres que pour la figure 2.3. De manière analogue à l'effet Kerr, la polarisation Raman génère une contribution THz ainsi que des fréquences optiques allant, dans notre configuration, jusqu'à $6\omega_0$ pour une impulsion à deux harmoniques, comme illustré sur la figure 2.6. Cependant, les termes fréquentiels ainsi générés sont d'amplitude très négligeable face au fondamental (ω_0) et au second harmonique ($2\omega_0$).

Pour comprendre cet effet, nous établissons une approximation analytique du spectre de la polarisation Raman. Pour commencer, définissons la fonction

$$f(t, \tau) = E^2(\tau) \sin(\Omega_{21}(t - \tau)) \exp(-(t - \tau)/\tau_2) \quad (2.44)$$

qui décrit l'intégrande dans la formule (2.43), où l'on a posé $\Omega_{21} = \tau_1^{-1}$.

Numériquement, le rayon en $1/e^2$ de l'enveloppe temporelle de l'impulsion laser vaut typiquement ≈ 34 fs, comme montré par la figure 2.5. La durée de l'enveloppe de $E^2(\tau)$ est donc considérée faible devant le temps de décroissance $\tau_2 \approx 77$ fs. En omettant les variations du

facteur exponentiel de la relation précédente, nous obtenons l'approximation

$$f(t, \tau) \approx E^2(\tau) \sin(\Omega_{21}(t - \tau)). \quad (2.45)$$

Le champ laser $E(\tau)$ contenant deux harmoniques s'écrit alors à partir d'amplitudes notées a_1 et a_2 telles que

$$E(\tau) \approx \sum_{j=1}^2 a_j \cos(j\omega_0\tau), \quad (2.46)$$

où tout déphasage éventuel entre les deux couleurs a été omis par commodité technique. Les variations temporelles associées à l'enveloppe de l'impulsion laser ont également été négligées. Le terme $E^2(\tau)$ est donc a priori une somme d'oscillations battant à $j\omega_0|_{j=\{0,1,\dots,4\}}$ d'amplitudes b_j , où le terme $j = 0$ décrit par abus de langage un terme "basse-fréquence" (par rapport aux fréquences optiques) :

$$E^2(\tau) \approx \sum_{j=0}^4 b_j \cos(j\omega_0\tau). \quad (2.47)$$

Avec ce formalisme, la transformée de Fourier de la fonction $f(t, \tau)$, notée $\mathcal{F}_\tau[f(t, \tau)](\omega)$, peut être approchée par :

$$\mathcal{F}_\tau[f(t, \tau)](\omega) \approx \sum_{j=0}^4 \frac{c_j}{2} (\mathcal{F}_\tau[\sin((j\omega_0 + \Omega_{21})\tau)](\omega) - \mathcal{F}_\tau[\sin((j\omega_0 - \Omega_{21})\tau)](\omega)) + c.c. \quad (2.48)$$

avec \mathcal{F}_τ l'opérateur de transformation de Fourier par rapport à la variable τ , c_j défini à partir de b_j et de t_0 , et *c.c.* signifiant le complexe conjugué.

Numériquement, $\Omega_{21} = \tau_1^{-1} \approx 16$ THz. Les fréquences d'oscillation de la polarisation Raman sont donc légèrement décalées par rapport à celles de l'impulsion laser incidente. Par souci de simplicité, nous poserons par la suite $\omega_j \gg \Omega_{21}$, et assimilerons ainsi les oscillations battant à $j\omega_0 \pm \Omega_{21}$ à des vibrations de pulsation $j\omega_0$. Nous considérons aussi que les oscillations $\approx 0\omega_0 \pm \Omega_{21}$ (appartenant à la composante basse-fréquence du spectre) restent lentes devant les fréquences optiques. L'expression précédente se simplifie alors comme :

$$\mathcal{F}_\tau[f(t, \tau)](\omega) \approx \sum_{j=0}^4 c_j \mathcal{F}_\tau[\sin(j\omega_0\tau)](\omega) + c.c. \quad (2.49)$$

Nous en déduisons directement le spectre du facteur intégral de la relation (2.43) :

$$\mathcal{F}_t \left[\int_{-\infty}^t f(t, \tau) d\tau \right] (\omega) \approx \sum_{j=0}^4 i \frac{c_j}{\omega} \mathcal{F}_t[\sin(j\omega_0 t)](\omega) + c.c. \quad (2.50)$$

où la transformée de Fourier s'applique maintenant à la variable t .

Cette expression décrit un spectre comportant quatre fréquences optiques $j\omega_0$, avec j allant de 1 à 4, d'amplitudes très faibles devant une contribution basse-fréquence majoritaire $\omega \sim 0$ (car les c_j sont tous a priori du même ordre de grandeur). On peut donc réécrire le terme intégral dans le domaine temporel tel que :

$$\int_{-\infty}^t f(t, \tau) d\tau \approx \sum_{j=0}^4 d_j \cos(j\omega_0 t) \quad (2.51)$$

avec $d_{j \in \{0, \dots, 4\}}$ vérifiant $d_0 \gg d_{j \geq 1}$. Les décalages temporels entre les différentes composantes fréquentielles ont été négligés pour alléger les calculs.

La polarisation Raman étant proportionnelle au produit de $E(t)$ et de $\int_{-\infty}^t f(t, \tau) d\tau$, les relations (2.46) et (2.51) nous permettent de développer :

$$P_{\text{NL,R}}(t) \propto E(t) \int_{-\infty}^t f(t, \tau) d\tau \quad (2.52)$$

$$\propto \left(\sum_{j=0}^4 d_j \cos(j\omega_0 t) \right) \left(\sum_{k=1}^2 a_k \cos(k\omega_0 t) \right) \quad (2.53)$$

$$\sim \sum_{j=0}^4 d_j \left(\sum_{k=1}^2 a_k [\cos((j+k)\omega_0 t) + \cos((j-k)\omega_0 t)] \right). \quad (2.54)$$

Cette expression met en évidence une génération d'harmoniques allant jusqu'à $6\omega_0$ à travers la SRRS. Les amplitudes de ses composantes spectrales sont toutes du même ordre de grandeur, exceptées celles associées à d_0 , (soit a_1 et a_2), qui représentent la partie dominante du spectre. Les fréquences associées à ce terme privilégié sont ω_0 et $2\omega_0$, ce qui justifie le spectre illustré par la figure 2.6. Notons que cette propriété provient de l'intégration en temps incluant le retard

entre l'excitation des états rotationnels par le champ laser et l'émission de photons Stokes qui en résulte.

Remarquons pour conclure que les plus fortes bandes associées à la SRRS correspondent aux niveaux rotationnels $j = 8$ et $j = 10$ [124]. La relation (2.42) indique que les transitions Stokes concernées par ce processus impliquent des photons de fréquence 2.2 THz (9 meV). Ces derniers ne représentent cependant pas une source efficace de rayonnement THz car ils sont produits de manière incohérente et omnidirectionnelle dans l'espace.

2.1.4 Photo-ionisation de l'air

Cette section est consacrée à la production d'électrons libres formant un plasma de gaz. Nous supposons qu'avant le passage de l'impulsion laser, tous les électrons du milieu sont liés aux noyaux. Le potentiel coulombien décrivant leur interaction s'écrit

$$\phi(\vec{r}) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0|r|} \quad (2.55)$$

avec Z le nombre d'électrons liés à chaque noyau.

En présence d'une perturbation électrique intense notée $\vec{E}(\vec{r}, t)$, $\phi(\vec{r})$ admet une correction correspondant à un abaissement de la barrière de potentiel atomique :

$$\phi(\vec{r}) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0|r|} - eE(\vec{r}, t)r. \quad (2.56)$$

Pour des intensités laser relativement faibles ($I_0 < 10^{13}$ W/cm²), le seul moyen pour que les électrons outrepassent cette barrière est d'absorber suffisamment de photons pour que leur énergie devienne supérieure au potentiel d'ionisation de l'atome : c'est l'ionisation multi-photonique. Pour des intensités plus élevées ($I_0 = 10^{13} - 10^{15}$ W/cm²), la barrière de potentiel est suffisamment abaissée par le champ laser pour que les électrons puissent la franchir par effet tunnel [131]. Pour des champs laser de plus haute énergie, l'énergie des électrons peut devenir supérieure au potentiel coulombien : c'est l'ionisation par abaissement de barrière ou "over-barrier ionization" [132, 133]. Ces différents régimes d'ionisation sont illustrés en figure 2.7.

Afin de quantifier ces régimes d'ionisation, Keldysh [136] a établi en 1965 un paramètre noté γ_K , correspondant au rapport de la fréquence fondamentale laser et de la fréquence caractéristique de l'effet tunnel, $\omega_t = E_0/\sqrt{2U_i}$, avec U_i le potentiel d'ionisation de l'atome considéré :

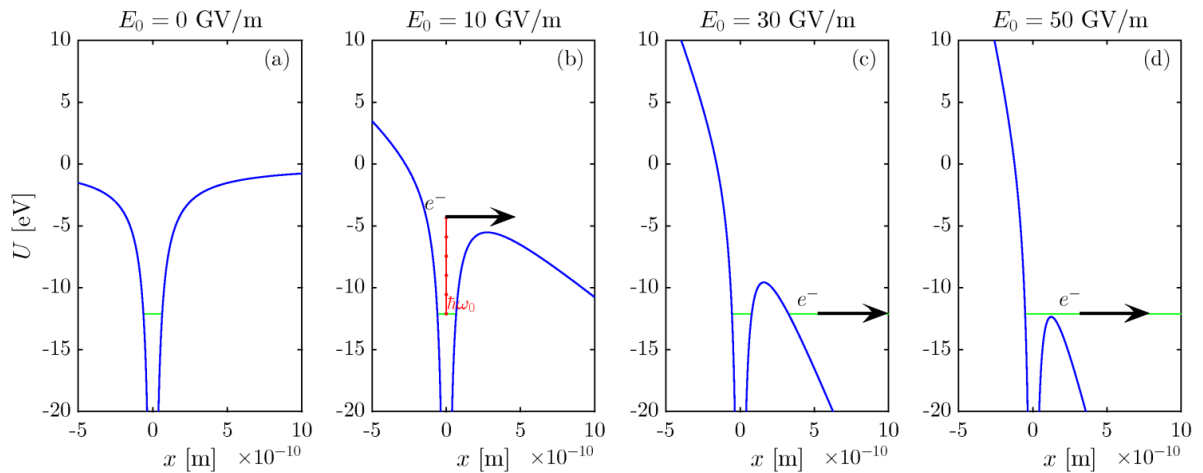


FIGURE 2.7: Illustration du potentiel coulombien unidimensionnel du dioxygène O_2 (charge effective $Z^* = 0.53$ [134, 135]) (a) sans champ extérieur, et avec une excitation électrique d'amplitude (b) 10, (c) 30 et (d) 50 GV/m. (b) Ionisation multi-photonique. (c) Ionisation par effet tunnel. (d) Ionisation par abaissement de barrière. Les niveaux verts correspondent au premier potentiel d'ionisation du dioxygène (énergie d'ionisation $U_i = 12.1$ eV). Source : Nguyen [126].

$$\gamma_K = \frac{\omega_0 \sqrt{2U_i}}{E_0}. \quad (2.57)$$

Lorsque $\gamma_K \rightarrow +\infty$, le régime dominant est l'ionisation multi-photonique. Lorsque $\gamma_K \rightarrow 0$, la photo-ionisation se produit par effet tunnel [137]. Dans les configurations laser étudiées au cours de cette thèse, c'est dans ce régime que se produit préférentiellement l'ionisation de l'air. Ci-dessous, nous présentons différents modèles rendant compte de ce mécanisme. Par souci de simplicité, l'amplitude laser, les fréquences et les énergies seront exprimées dans leurs unités atomiques correspondantes, valant $E_{au} = 514$ GV/m, $\nu_{au} = 41.3$ PHz et $U_{au} = 27.25$ eV.

Modèle quasi-statique (QST)

Historiquement, le premier modèle analytique de taux d'ionisation par effet tunnel a été dérivé par Landau et Lifschitz al. [138] en 1965. Il a été conçu pour un milieu composé d'atomes neutres d'hydrogène, donc pour l'atome le plus élémentaire, et une perturbation électrique constante E_0 . Ce taux, qui donne une probabilité d'ionisation par unité de temps, s'exprime sous la forme :

$$W_{\text{QST}}(E_0) = 4U_i \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0} e^{-\frac{1}{3} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0}}. \quad (2.58)$$

C'est le modèle QST, pour "Quasi-Static Tunneling". Son avantage principal est sa relative sim-

plicité, qui permet une intégration numérique rapide du taux d'ionisation.

La formule ci-dessus révèle que le taux d'ionisation est très fortement non-linéaire selon l'amplitude du champ laser, de sorte que pour une excitation sinusoïdale, l'ionisation peut être considérée exclusivement produite par les extrema de $E(t)$. Le profil temporel du taux d'ionisation $W_{\text{QST}}(t)$ est donc composé d'une série de pics de très courte durée, chacun pouvant être associé à un champ électrique constant très bref et d'amplitude $\max_t |E(t)|$. On peut donc généraliser l'expression précédente à des champs oscillants :

$$W_{\text{QST}}(t) = 4U_i \frac{2(2U_i)^{3/2}}{|E(t)|} e^{-\frac{1}{3} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{|E(t)|}}. \quad (2.59)$$

Afin de simplifier les développements analytiques lors d'estimations de l'ionisation produite par une impulsion laser d'intensité modérée ($E_0 = 10 - 50$ GV/m), cette expression est parfois approchée pour des valeurs de $E_0 \geq 30$ GV/m proches du seuil d'ionisation par [57, 126, 139] :

$$W_{\text{QST}}(t) \propto E^2(t). \quad (2.60)$$

Ce choix est justifié graphiquement par la figure 2.8, où la croissance du taux d'ionisation a été approchée par une fonction du type $f(E_0) = \alpha(E_0/E_{\text{au}} - \beta)^2$. En supposant que $E_0/E_{\text{au}} \gg \beta$ lors de la croissance de $W_{\text{QST}}(E_0)$ au-delà de 30 GV/m, la relation ci-dessus est bien vérifiée. Bien que l'accord reste approximatif, nous admettons qu'il est suffisamment représentatif pour pouvoir appliquer cette simplification dans les chapitres suivants au besoin.

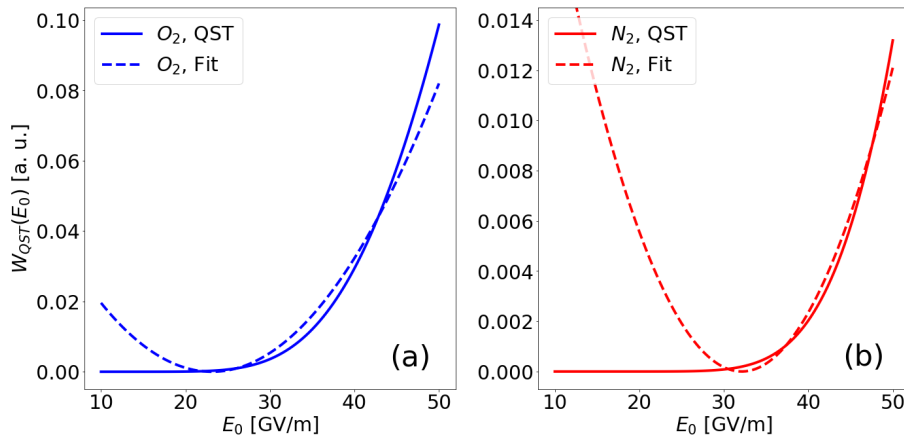


FIGURE 2.8: Tracé de $W_{\text{QST}}(E_0)$ (courbes pleines) et d'une fonction du type $f(E_0) = \alpha(E_0/E_{\text{au}} - \beta)^2$ (courbe pointillées) (a) dans l' O_2 ($U_i = 12.1$ eV) et (b) dans le N_2 ($U_i = 15.6$ eV). Dans la région d'intérêt, les courbes pointillées reproduisent relativement bien la croissance du taux d'ionisation. Dans l' O_2 , $\alpha = 30$ et $\beta = 4.5 \times 10^{-2}$. Dans le N_2 , $\alpha = 10$ et $\beta = 6.25 \times 10^{-2}$.

Modèle général PPT

Un des modèles les plus complets à ce jour rendant compte de l'ionisation d'atomes de gaz pour des intensités allant jusqu'à 10^{15} W/cm² a été travail publié par Popov, Perelomov et Terent'ev en 1966 [140]. Ce modèle suppose que l'excitation électrique prend une forme sinusoïdale :

$$E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t) \quad (2.61)$$

et unifie les régimes d'ionisation multi-photonique et d'ionisation par effet tunnel pour un milieu composé d'atomes hydrogénéoïdes. Ce modèle, appelé PPT en référence à ses auteurs, donne la formule générale du taux d'ionisation :

$$W_{\text{PPT}}(E_0, \omega_0) = \frac{4\sqrt{2}}{\pi} C_{n^*, l^*, l, m} A_m(\gamma_K) H_{n^*, m}(E_0, \omega_0) \quad (2.62)$$

avec $n^* = Z/\sqrt{2U_i}$ le nombre quantique principal effectif, $l^* = n^* - 1$ le nombre secondaire effectif, l le nombre secondaire azimutal et m le nombre quantique magnétique de l'état dans lequel se trouve le milieu. γ_K est le paramètre de Keldysh donné par l'équation (2.57).

Le nombre $C_{n^*, l^*, l, m}$ est représenté par l'état des atomes du milieu avant le passage de l'impulsion laser :

$$C_{n^*, l^*, l, m} = \frac{2^{2n^*} (2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|} (l-|m|)! n^* \Gamma(n^* + l^* + 1) \Gamma(n^* - l^*)}, \quad (2.63)$$

$\Gamma(x) = \int_0^{+\infty} t^{x-1} e^{-t} dt$ étant la fonction gamma d'Euler.

A cause de la symétrie des molécules diatomiques homonucléaires comme l'O₂ et le N₂, les électrons situés dans certaines orbitales de valence actives ne peuvent pas être libérés par ionisation comme pour les atomes simples. Talebpour et al. ont proposé en référence [135] de modéliser cet effet en introduisant le nombre de charge effectif Z^* , estimé à $Z^* = 0.53$ pour l'O₂ et à $Z^* = 0.9$ pour le N₂, données que nous utiliserons parfois par la suite. Remarquons que d'autres références [141, 142] proposent également d'adapter les coefficients $C_{n^*, l^*, l, m}$ au milieu étudié afin de modéliser ce phénomène.

$A_m(\gamma_K)$ décrit le régime d'ionisation considéré (multi-ionisation et/ou effet tunnel) en sommant les contributions de chaque photon absorbé par l'électron pour son passage à travers la barrière de potentiel :

$$A_m(\gamma_K) = \frac{\gamma_K}{1 + \gamma_K^2} \sum_{\kappa=[\nu+1]}^{+\infty} \phi_m \left(\sqrt{\frac{2\gamma_K(\kappa - \nu)}{\sqrt{1 + \gamma_K^2}}} \right) e^{(\kappa - \nu) \left(\frac{2\gamma_K}{\sqrt{1 + \gamma_K^2}} - \sinh^{-1}(\gamma_K) \right)} \quad (2.64)$$

avec $\sinh^{-1}(x) = \ln(x + \sqrt{1 + x^2})$, $[\cdot]$ la partie entière, ν le nombre minimal de photons devant être absorbés par l'électron pour ioniser l'atome :

$$\nu = \frac{U_i}{\omega_0} \left(1 + \frac{1}{2\gamma_K^2} \right) \quad (2.65)$$

et $\phi_m(z)$ la fonction pondérant l'influence de l'absorption de chaque photon pour l'ionisation :

$$\phi_m(z) = \frac{e^{-z^2}}{|m|!} \int_0^z (z^2 - \xi^2)^{|m|} e^{\xi^2} d\xi. \quad (2.66)$$

Aux intensités et fréquences laser étudiées ici, chaque électron doit absorber $\kappa = [\nu + 1] = 8$ photons pour provoquer une ionisation dans l'air.

Enfin, la fonction $H_{n^*,m}(E_0, \omega_0)$ intègre la déformation du potentiel coulombien lors de la perturbation imposée par le passage du faisceau laser monochromatique :

$$H_{n^*,m}(E_0, \omega_0) = U_i \left(\frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0 \sqrt{1 + \gamma_K^2}} \right)^{2n^* - \frac{3}{2} - |m|} e^{-2\nu \left(\sinh^{-1}(\gamma_K) - \frac{\gamma_K \sqrt{1 + \gamma_K^2}}{1 + 2\gamma_K^2} \right)}. \quad (2.67)$$

Etant donné que la seconde couleur contient généralement une faible portion de l'énergie laser en comparaison du fondamental, on peut considérer que ce modèle reste valable pour une impulsion laser à deux harmoniques.

Grâce à son caractère général, il est possible de simplifier le modèle PPT en se plaçant dans les limites des régimes d'ionisation multi-photonique ($\gamma_K \rightarrow +\infty$) ou tunnel ($\gamma_K \rightarrow 0$).

Taux d'ionisation multi-photonique

Le régime d'ionisation multi-photonique correspond aux faibles amplitudes laser et donc à $\gamma_K \rightarrow +\infty$ [143]. Il est alors possible de simplifier $\nu \approx U_i/\omega_0$ ainsi que les facteurs dépendant de γ_K dans les expressions de $A_m(\gamma_K)$ et $H_{n^*,m}(E_0, \omega_0)$:

$$\frac{2\gamma_K}{\sqrt{1+\gamma_K^2}} \approx 2, \quad (2.68)$$

$$\frac{\gamma_K \sqrt{1+\gamma_K^2}}{1+2\gamma_K^2} \approx \frac{1}{2}, \quad (2.69)$$

$$\sinh^{-1}(\gamma_K) \sim \ln(2\gamma_K). \quad (2.70)$$

Ces simplifications permettent également de privilégier le terme $\kappa = \lfloor \nu + 1 \rfloor$ dans la série entière de $A_m(\gamma_K)$ comme seule contribution non-négligeable à l'ionisation. Par souci de simplicité, on pose $m = 0$. Les fonctions $A_0(\gamma_K)$ et $H_{n^*,0}(E_0, \omega_0)$ prennent alors la forme :

$$A_0(\gamma_K) \sim \phi_0 \left(\sqrt{2(\lfloor \nu + 1 \rfloor - \nu)} \right) e^{2(\lfloor \nu + 1 \rfloor - \nu)} (2\gamma_K)^{-2(\lfloor \nu + 1 \rfloor - \nu)} \quad (2.71)$$

$$H_{n^*,0}(E_0, \omega_0) \sim U_i \left(\frac{4U_i}{\omega_0} \right)^{2n^* - \frac{3}{2}} \left(\frac{E_0}{2\omega_0 \sqrt{U_i}} \right)^{2\nu} e^\nu. \quad (2.72)$$

En injectant ces simplifications dans (2.62), nous trouvons le taux d'ionisation en régime multiphotonique [136, 144] :

$$W_{MPI}(E_0, \omega_0) = \sigma_K E_0^{2\lfloor \nu + 1 \rfloor} \quad (2.73)$$

avec σ_K défini par :

$$\sigma_K = \frac{8\sqrt{2}}{\pi} C_{n^*,l^*,l,m=0} \frac{2^{-3\lfloor \nu + 1 \rfloor} U_i^{-\lfloor \nu + 1 \rfloor + \frac{3}{2}}}{\omega_0^{2\lfloor \nu + 1 \rfloor + \frac{1}{2}}} e^{2\lfloor \nu + 1 \rfloor - \nu} \phi_0 \left(\sqrt{2(\lfloor \nu + 1 \rfloor - \nu)} \right). \quad (2.74)$$

Taux d'ionisation par effet tunnel

Dans la limite $\gamma_K \rightarrow 0$ (fortes amplitudes laser), la photo-ionisation de l'air se produit par effet tunnel. Ce régime a été étudié plus particulièrement pour des atomes plus complexes par Ammosov, Delone et Krainov en 1986 [145], d'où le nom de modèle de taux d'ionisation ADK. Sa dérivation a consisté à employer des fonctions d'onde électroniques incluant l'effet du potentiel coulombien (états de Volkov [146, 147]) connectés aux états du continuum à grande distance ($r \gg 1/\sqrt{2U_i}$) [107, 144]. Dans ce cas le nombre de photons à absorber pour ioniser un atome

est approché par $\nu \approx U_i/(2\omega_0\gamma_K^2)$. Il est possible par ailleurs de montrer que

$$\lim_{\gamma_K \rightarrow 0} A_m(\gamma_K) = \frac{\sqrt{3\pi}}{4}. \quad (2.75)$$

De plus, les facteurs dépendant du paramètre de Keldysh dans l'expression de $H_{n^*,m}(E_0, \omega_0)$ se simplifient comme

$$\sqrt{1 + \gamma_K^2} \sim 1, \quad (2.76)$$

$$\sinh^{-1}(\gamma_K) \sim \gamma_K - \frac{1}{6}\gamma_K^3, \quad (2.77)$$

$$\frac{\gamma_K \sqrt{1 + \gamma_K^2}}{1 + 2\gamma_K^2} \sim \gamma_K - \frac{3}{2}\gamma_K^3. \quad (2.78)$$

Nous trouvons alors la limite :

$$H_{n^*,m}(E_0, \omega_0) \sim U_i \left(\frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0} \right)^{2n^* - \frac{3}{2} - |m|} e^{-\frac{1}{3} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0}}. \quad (2.79)$$

Le taux d'ionisation en régime tunnel s'écrit donc :

$$W_{\text{ADK}}(E_0, \omega_0) = C_{n^*,l^*,l,m} \sqrt{\frac{6}{\pi}} U_i \left(\frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0} \right)^{2n^* - \frac{3}{2} - |m|} e^{-\frac{1}{3} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0}}. \quad (2.80)$$

La figure 2.9 compare les taux d'ionisation QST (2.59), ADK (2.80) et PPT (2.62) de l'O₂ et du N₂. Pour une perturbation E_0 intense (typiquement > 30 GV/m, ou en termes d'intensité > 120 TW/cm²), le taux QST tend à surestimer l'ionisation prédite par le modèle PPT en régime tunnel, alors que le taux d'ionisation ADK le sous-estime, en particulier dans le régime multiphotonique. Un résultat caractéristique de ce dernier est la croissance en une série d'échelons du taux d'ionisation aux faibles valeurs de E_0 . Chaque échelon correspond à l'amplitude à partir de laquelle l'électron libéré absorbe un photon supplémentaire.

Taux d'ionisation par effet tunnel instantané

Le modèle ADK présenté plus haut a été dérivé en moyennant la contribution à la photoionisation du champ laser monochromatique sur une période complète. Afin de décrire sur les temps courts l'ionisation $W_{\text{ADK}}(t)$ de manière instantanée, c'est-à-dire sur des fractions d'oscil-

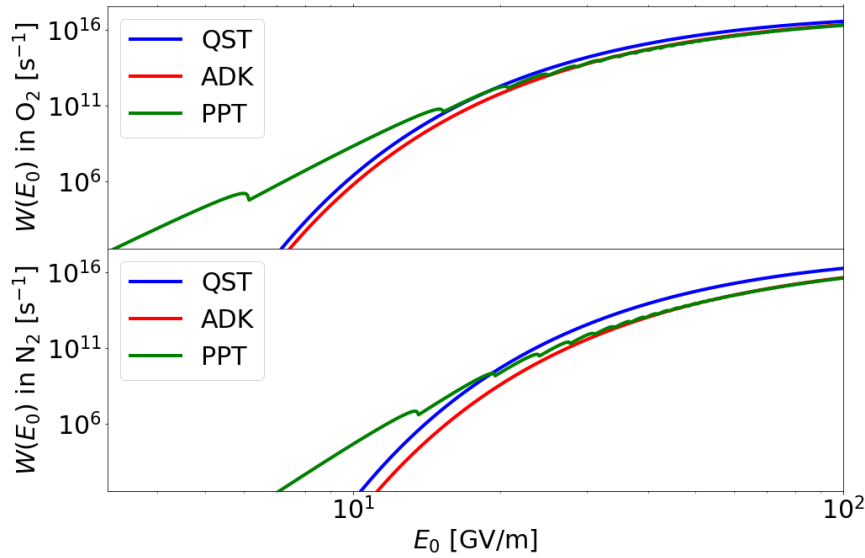


FIGURE 2.9: Taux d'ionisation des modèles QST (courbe bleue), ADK (courbe rouge) et PPT (courbe verte) en fonction de l'excitation électrique externe E_0 dans le dioxygène (Haut) et le diazote (Bas) pour un champ laser monochromatique de fréquence $\lambda_0 = 0.8 \mu\text{m}$.

lation laser, Yudin et Ivanov [148] ont proposé en 2001 la dérivation d'un modèle comportant les mêmes hypothèses que le taux d'ionisation ADK et dont la moyenne sur une période optique correspond au taux défini par (2.80). En d'autres termes, la relation entre le taux d'ionisation recherché $W_{ADK}(t)$ et celui du modèle ADK (2.80) s'écrit :

$$W_{ADK}(E_0, \omega_0) = \frac{2}{T} \int_{-\frac{T}{4}}^{\frac{T}{4}} W_{ADK}(t) dt \quad (2.81)$$

avec $T = 2\pi/\omega_0$ la période de la perturbation monochromatique. La moyenne s'effectue sur $T/2$ et non sur T car le taux d'ionisation dépend de $|E(t)|$ de période $T/2$.

Dans la limite tunnel $\gamma_K \rightarrow 0$, les facteurs $C_{n^*,l^*,l,m}$ et $A_m(\gamma_K)$ convergent vers des constantes. Par continuité avec le modèle ADK moyenné, la partie dépendante du champ laser (2.79) prend alors la forme instantanée :

$$H_{n^*,m}(t) = C_{te} U_i \left(\frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0 |\cos(\omega_0 t)|} \right)^{2n^* - \frac{3}{2} - |m|} e^{-\frac{1}{3} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0 |\cos(\omega_0 t)|}} \quad (2.82)$$

avec C_{te} une constante dépendant de $C_{n^*,l^*,l,m}$ et de $A_m(\gamma_K \rightarrow 0)$.

On en déduit donc :

$$H_{n^*,m}(E_0, \omega_0) = \frac{2}{T} \int_{-\frac{T}{4}}^{\frac{T}{4}} H_{n^*,m}(t) dt. \quad (2.83)$$

Par souci de simplicité, nous noterons par la suite $\langle H_{n^*,m}(t) \rangle$ la moyenne de $H_{n^*,m}(t)$ sur une demi-période laser. Afin de calculer cette grandeur, il est nécessaire de simplifier l'expression (2.82). Comme évoqué lors de la présentation du modèle QST, le comportement des taux d'ionisation par effet tunnel est fortement non-linéaire par rapport à l'amplitude de la perturbation électrique. On suppose donc que le seul instant où $H_{n^*,m}(t)$ est non-négligeable est celui où $E_0 |\cos(\omega_0 t)|$ atteint son maximum dans l'intervalle $[-T/4, T/4]$, c'est-à-dire en $t = 0$. L'expression de $H_{n^*,m}(t)$ est donc approchée au voisinage de $t = 0$ par le développement limité $1/\cos(\omega_0 t) \sim 1 + \omega_0^2 t^2/2$. Cette simplification n'est appliquée qu'au terme exponentiel, car il est le terme dominant des non-linéarités permettant d'effectuer cette hypothèse. On réduit le champ électrique dans l'autre facteur par $E_0 |\cos(\omega_0 t)| \sim E_0$. Le facteur $H_{n^*,m}(t)$ se simplifie donc :

$$H_{n^*,m}(t) \sim C_{te} U_i \left(\frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0} \right)^{2n^* - \frac{3}{2} - |m|} e^{-\frac{1}{3} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0} (1 + \omega_0^2 t^2/2)}. \quad (2.84)$$

Nous pouvons désormais calculer sa moyenne afin de la comparer à l'expression $H_{n^*,m}(E_0, \omega_0)$:

$$\begin{aligned} \langle H_{n^*,m}(t) \rangle &= C_{te} U_i \left(\frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0} \right)^{2n^* - \frac{3}{2} - |m|} e^{-\frac{1}{3} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0}} \frac{2}{T} \int_{-\frac{T}{4}}^{\frac{T}{4}} e^{-\frac{1}{3} \frac{(2U_i)^{3/2}}{E_0} \omega_0^2 t^2} dt \quad (2.85) \\ &= C_{te} \sqrt{\frac{6}{\pi} \frac{E_0}{2(2U_i)^{3/2}}} U_i \left(\frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0} \right)^{2n^* - \frac{3}{2} - |m|} e^{-\frac{1}{3} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0}} \operatorname{erf} \left(\frac{\pi}{2} \sqrt{\frac{(2U_i)^{3/2}}{3E_0}} \right) \end{aligned} \quad (2.86)$$

avec la fonction d'erreur définie par $\operatorname{erf}(x) = 2/\sqrt{\pi} \int_0^x e^{-t^2} dt$ (voir Formulaire).

Aux intensités propres à l'ionisation en régime tunnel, les premiers potentiels d'ionisation U_i du diazote ($U_i = 0.58 U_{\text{au}}$) et du dioxygène ($U_i = 0.44 U_{\text{au}}$) sont, en unités atomiques, très supérieurs à l'amplitude du champ laser ($E_0 \approx 0.01 - 0.05 E_{\text{au}}$) [149]. On effectue de facto la simplification $\operatorname{erf}(\pi/2 \sqrt{\frac{(2U_i)^{3/2}}{3E_0}} \pi) \approx 1$. Nous pouvons alors identifier la constante C_{te} à partir des relations (2.79) et (2.86) :

$$C_{te} = \sqrt{\frac{\pi}{6} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0}}. \quad (2.87)$$

La fonction $H_{n^*,m}(t)$ s'écrit donc :

$$H_{n^*,m}(t) = \sqrt{\frac{\pi}{6}} U_i \left(\frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0 |\cos(\omega_0 t)|} \right)^{2n^*-1-|m|} e^{-\frac{1}{3} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0 |\cos(\omega_0 t)|}}. \quad (2.88)$$

Nous reconstruisons finalement le taux d'ionisation instantané par effet tunnel à partir de l'équation (2.62) avec $A_m(\gamma_K \rightarrow 0) = \sqrt{3\pi}/4$ [cf. equation (2.75)] et l'expression ci-dessus :

$$W_{\text{ADK}}(t) = C_{n^*,l^*,l,m} U_i \left(\frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0 |\cos(\omega_0 t)|} \right)^{2n^*-1-|m|} e^{-\frac{1}{3} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0 |\cos(\omega_0 t)|}} \quad (2.89)$$

Pour toute valeur entière de m , la relation précédente permet d'établir le rapport :

$$\frac{W_{\text{ADK}}^{|m|+1}(t)}{W_{\text{ADK}}^{|m|}(t)} = \frac{E_0}{2(2U_i)^{3/2}} \frac{(l-|m|)(l+|m|+1)}{2(|m|+1)} |\cos(\omega_0 t)|. \quad (2.90)$$

Or, comme mentionné plus haut, $E_0 \ll U_i$ (en unités atomiques) de sorte que $W_{\text{ADK}}^{|m|+1}(t) \ll W_{\text{ADK}}^{|m|}(t)$ pour tout $|m|$ entier. La majorité de l'ionisation est donc due à la sous-couche $m = 0$, ce qui permet de simplifier la relation (2.89) pour obtenir finalement :

$$W_{\text{ADK}}(t) = C_{n^*,l^*,l,m=0} U_i \left(\frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0 |\cos(\omega_0 t)|} \right)^{2n^*-1} e^{-\frac{1}{3} \frac{2(2U_i)^{3/2}}{E_0 |\cos(\omega_0 t)|}}. \quad (2.91)$$

Remarquons que pour un atome hydrogénoïde ($n^* = 1, l = 0$), cette expression recouvre la forme instantanée du modèle QST (2.59).

Modèle d'ionisation multiple

Pour des champs de plus forte amplitude, il est possible de libérer par effet tunnel des électrons provenant de sous-couches plus profondes des atomes et des molécules composant le milieu. Afin de modéliser ce phénomène, il est nécessaire de comptabiliser les ions selon leur degré d'ionisation [150]. Ainsi, nous notons $N_j(t)$ la densité d'ions ionisés j fois, U_i^j le potentiel d'ionisation associé à la sous-couche j et $W_{\text{MI}}^j(t)$ le taux d'ionisation d'un ion ionisé $j - 1$ fois. Nous définissons également N_a la densité initiale d'espèces neutres. La neutralité du milieu avant le passage de l'impulsion laser assure les conditions initiales $N_0(t \rightarrow -\infty) = N_a$ et $N_{j \geq 1}(t \rightarrow -\infty) = 0$, et

la conservation de la matière donne $\sum_{j=0}^Z N_j(t) = N_a$. Les densités ioniques vérifient alors le système d'équations :

$$\frac{\partial N_j}{\partial t} = -W_{\text{MI}}^{j+1}(t)N_j(t) + W_{\text{MI}}^j(t)N_{j-1}(t), \quad (2.92)$$

où l'on pose par extrapolation $W_{\text{MI}}^0(t) = W_{\text{MI}}^{Z+1}(t) = 0$ pour alléger les notations.

Par conservation du nombre d'électrons, la densité d'électrons libres s'écrit :

$$N_e(t) = \sum_{j=1}^Z jN_j(t). \quad (2.93)$$

Nous introduisons également le degré d'ionisation du milieu Z^* , qui correspond à la proportion d'électrons libres par rapport à la densité de neutres initiale :

$$Z^* = \frac{N_e(t \rightarrow +\infty)}{N_a}. \quad (2.94)$$

L'ionisation multiple peut être décrite en appliquant le taux d'ionisation instantané (2.91) aux sous-couches des ions en effectuant la substitution $n^* \rightarrow n_j^* = j/\sqrt{2U_i^j}$ [151, 152]. Les différents taux d'ionisation $W_{\text{MI}}^j(t)$ ont ainsi pour expression :

$$W_{\text{MI}}^j(t) = \frac{2^{8/5}(n_j^* - 1)}{n_j^* \Gamma(2n_j^*)} (2l_j + 1) \frac{(4(2U_i)^{5/2})^{\frac{6n_j^*-1}{5}}}{|E(t)|^{2n_j^*-1}} e^{-\frac{2(2U_i)^{3/2}}{3|E(t)|}}. \quad (2.95)$$

Numériquement, les deux premiers potentiels d'ionisation de l'O₂ sont $U_i^1 = 12.1$ eV et $U_i^2 = 35.1$ eV [149]. Provoquer une ionisation multiple dans l'air nécessite donc des impulsions laser présentant des intensités pics situées dans la tranche haute du régime concerné par ce travail de doctorat.

La caractéristique principale du phénomène d'ionisation multiple est la présence de paliers lors de l'évolution de la densité électronique en fonction de l'intensité du champ laser et du nombre d'électrons libérés (état de charge). Cette particularité est montrée par la figure 2.10 à l'aide de calculs réalisés dans des gaz monoatomiques d'hydrogène, d'argon et d'hélium [150], dont les premiers potentiels d'ionisation sont décrits dans le tableau 2.1. Les différences de seuils d'ionisation sont dues aux forts écarts entre les potentiels d'ionisation des milieux étudiés.

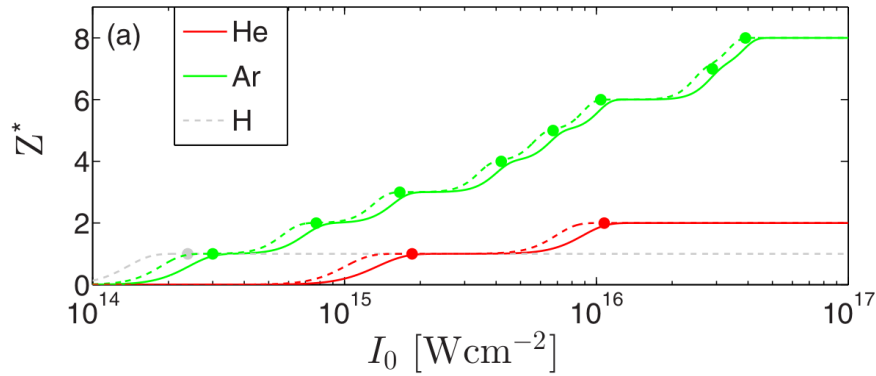


FIGURE 2.10: Evolutions avec l'intensité laser des degrés d'ionisation Z^* de gaz d'hydrogène (courbes grises), d'argon (courbes vertes) et d'hélium (courbes rouges) pour une impulsion laser gaussienne monochromatique de longueur d'onde $1 \mu\text{m}$ et de durée 10 fs (courbes pleines) ou 40 fs (courbes pointillées). Les points représentent des prédictions analytiques des seuils d'ionisation pour une impulsion de durée 10 fs. Source : Debayle [150]

	H	He	Ar
$U_{i,1}$	13.6	24.6	15.8
$U_{i,2}$		54.4	27.6
$U_{i,3}$			40.7
$U_{i,4}$			59.8

TABLE 2.1: Premières énergies d'ionisation (en électronvolts) pour l'hydrogène, l'hélium et l'argon.

Ionisation par avalanche

L'ionisation par avalanche correspond à l'ionisation provoquée par les collisions entre les atomes neutres et les électrons libres lorsque la densité électronique du milieu est suffisamment élevée. Elle est relevante dans les solides, où le temps caractéristique entre deux collisions est de l'ordre de la femtoseconde. Dans les gaz, ce processus est généralement très lent (~ 1 ps) devant la photo-ionisation (~ 1 fs), mais peut devenir important pour des impulsions à longue durée et d'intensité relativement forte ou de longueur d'onde élevée. Sa section efficace prend pour expression [56, 108, 126] :

$$\sigma(\omega) = \frac{\mu_0 c e^2 \nu_c}{m_e (\nu_c^2 + \omega^2)} \quad (2.96)$$

avec ν_c la fréquence de collisions entre les neutres et les électrons.

Etablissons la variation de densité électronique causée par l'ionisation par avalanche. D'une part, la perte en densité d'énergie laser due à ce phénomène, $d_t E_e|_{av}$, correspond à la quantité

d'énergie transmise au milieu pour l'ioniser via les collisions par unité de temps, à savoir $\sigma I N_e$:

$$\left. \frac{dE_e}{dt} \right|_{av} = \sigma I N_e(t). \quad (2.97)$$

D'autre part, chaque ionisation requiert par définition une énergie U_i correspondant au potentiel d'ionisation. Soit $\partial_t N_e|_{av}$ le nombre d'ionisations par avalanche par unité de volume et de temps. Ce nombre est relié à la densité d'énergie laser dépensée par :

$$\left. \frac{dE_e}{dt} \right|_{av} = U_i \left. \frac{\partial N_e}{\partial t} \right|_{av}. \quad (2.98)$$

Les relations (2.97) et (2.98) mènent finalement à l'expression de la hausse de densité électronique par avalanche :

$$\left. \frac{\partial N_e}{\partial t} \right|_{av} = \frac{\sigma I}{U_i} N_e. \quad (2.99)$$

Afin d'estimer la contribution de ce phénomène à l'ionisation totale, nous nous proposons de la comparer avec celle due à la photo-ionisation. Dans le cadre de notre étude, la fréquence laser satisfait toujours $\omega_0 \gg \nu_c$. De plus, le milieu étudié étant l'air, $n_0 \approx 1$ et la relation (2.99) se simplifie donc en

$$\left. \frac{\partial N_e}{\partial t} \right|_{av} \approx \frac{\nu_{au} (\nu_c \nu_{au}^{-1}) (E(t) E_{au}^{-1})^2}{2 (\omega_0 \nu_{au}^{-1})^2 (U_i U_{au}^{-1})} N_e. \quad (2.100)$$

Pour rappel, la photo-ionisation dans le régime quasi-statique mène à une hausse de densité électronique décrite par :

$$\left. \frac{\partial N_e}{\partial t} \right|_{PI} = \frac{2^{9/2} (U_i U_{au}^{-1})^{5/2} \nu_{au}}{|E(t) E_{au}^{-1}|} e^{-\frac{2^{5/2}}{3} \frac{(U_i U_{au}^{-1})^{3/2}}{|E(t) E_{au}^{-1}|}} (N_a - N_e). \quad (2.101)$$

Le rapport de ces deux termes s'écrit :

$$\frac{\partial_t N_e|_{av}}{\partial_t N_e|_{PI}} = \frac{1}{2} \frac{(\nu_c \nu_{au}^{-1}) |E(t) E_{au}^{-1}|^3}{(\omega_0 \nu_{au}^{-1})^2 (U_i U_{au}^{-1})^{7/2}} e^{\frac{2^{5/2}}{3} \frac{(U_i U_{au}^{-1})^{3/2}}{|E(t) E_{au}^{-1}|}} \frac{N_e}{N_a - N_e}. \quad (2.102)$$

Numériquement, $\nu_c \nu_{au}^{-1} \approx 10^{-4}$ (pour ν_c valant typiquement 2.86 THz pour les plasmas d'air étudiés [108]), $E_0 E_{au}^{-1} \approx 10^{-1}$, $\omega_0 \nu_{au}^{-1} \approx 10^{-1}$ et $U_i U_{au}^{-1} \approx 1$. Ce quotient se simplifie donc en

$$\frac{\partial_t N_e|_{av}}{\partial_t N_e|_{PI}} \approx 10^{-3} \frac{N_e}{N_a - N_e}. \quad (2.103)$$

Le terme d'ionisation par avalanche est donc relevant lorsque $\frac{N_e}{N_a - N_e} \approx 10^3$, c'est-à-dire lorsque $N_e \approx N_a$. ce qui ne sera pas le cas dans la plupart de nos configurations laser-gaz. Cependant, le solveur tridimensionnel CUP3D, utilisé pour réaliser les simulations de propagation non-linéaires présentées dans cette thèse, pourra inclure cette source d'ionisation. Nous avons employé ce module lorsque des faisceaux laser de forte intensité pic ont été simulés.

2.1.5 Interactions laser-plasma : Equation de Vlasov

La photo-ionisation causée par l'impulsion optique donne lieu à une génération de charges libres, et l'air entre donc dans un état plasma, où les mouvements fluides du gaz ionisé sont couplés aux mouvements des charges libres et aux champs électromagnétiques locaux. Cet état de la matière est composé d'atomes neutres, d'électrons libres et d'ions, que l'on représente par des fonctions de distribution $f_s(t, \vec{r}, \vec{p})$, où $f_s(t, \vec{r}, \vec{p}) d\vec{r} d\vec{p}$ est le nombre d'espèces s dans le volume infinitésimal $d\vec{r} d\vec{p}$ de l'espace des phases (\vec{r}, \vec{p}) , avec \vec{r} la position et \vec{p} l'impulsion. Cette section a pour but de caractériser le comportement du plasma d'air.

Afin de simplifier les développements, nous supposons que les espèces en mouvement sont non-relativistes. De plus, aux échelles de temps concernées par le passage de l'impulsion laser (quelques dizaines de fs), les atomes neutres et les ions sont supposés immobiles en comparaison aux électrons.

Le comportement du plasma peut donc être décrit uniquement à partir de la dynamique des électrons libres, de fonction de distribution notée $f_e(t, \vec{r}, \vec{p})$, qui vérifie la propriété :

$$\lim_{p \rightarrow \pm\infty} p^\alpha f_e(t, \vec{r}, \vec{p}) = 0 \quad (2.104)$$

pour tout $\alpha > 0$.

Ses moments sont reliés à la densité électronique du plasma $N_e(t, \vec{r})$, à la densité de courant électronique $\vec{J}_e(t, \vec{r})$ et à la densité d'énergie électronique $E_e(t, \vec{r})$, respectivement définis pour un plasma non-relativiste par

$$N_e(t, \vec{r}) = \iiint f_e(t, \vec{r}, \vec{p}) d\vec{p}, \quad (2.105)$$

$$\vec{J}_e(t, \vec{r}) = -e \iiint \vec{v} f_e(t, \vec{r}, \vec{p}) d\vec{p} = -e \langle N_e(t, \vec{r}) \vec{v} \rangle, \quad (2.106)$$

$$E_e(t, \vec{r}) = \frac{1}{2} m_e \iiint v^2 f_e(t, \vec{r}, \vec{p}) d\vec{p} = \frac{\langle N_e(t, \vec{r}) p^2 \rangle}{2m_e}. \quad (2.107)$$

Nous supposons ici que les électrons libres sont créés uniquement par photo-ionisation, dont le terme source est noté $S_e(t, \vec{r}, \vec{p})$. Aux échelles de temps associées au passage de l'impulsion laser (< 100 fs), il n'y a pas de diminution du nombre d'électrons libres, pouvant être causée par recombinaison à trois corps ou par attachement par exemple, car le temps caractéristique de ces mécanismes est de l'ordre de la nanoseconde [128, 153]. La conservation locale du nombre d'électrons libres dans le plasma s'écrit alors

$$\frac{df_e(t, \vec{r}, \vec{p})}{dt} = S_e(t, \vec{r}, \vec{p}) \quad (2.108)$$

où d/dt est la dérivée totale définie par :

$$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \frac{d\vec{r}}{dt} \cdot \frac{\partial}{\partial \vec{r}} + \frac{d\vec{p}}{dt} \cdot \frac{\partial}{\partial \vec{p}}. \quad (2.109)$$

Les deux relations précédentes donnent donc la première forme de l'équation différentielle régissant l'évolution de $f_e(t, \vec{r}, \vec{p})$:

$$\frac{\partial f_e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial t} + \frac{d\vec{r}}{dt} \cdot \frac{\partial f_e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial \vec{r}} + \frac{d\vec{p}}{dt} \cdot \frac{\partial f_e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial \vec{p}} = S_e(t, \vec{r}, \vec{p}). \quad (2.110)$$

Le vecteur vitesse de l'électron i , notée $\vec{v}_{e,i}$, est associé à sa position $\vec{r}_{e,i}$ par $\vec{v}_{e,i} = d_t \vec{r}_{e,i}$. Cet électron est soumis uniquement à la force de Lorentz provoquée par un champ électromagnétique (\vec{E}_i, \vec{B}_i) supposé a priori quelconque dans l'espace. Le principe fondamental de la dynamique appliqué à cet électron s'écrit ainsi :

$$\frac{d\vec{p}_i}{dt} = -e \left(\vec{E}_i + \vec{v}_{e,i} \times \vec{B}_i \right). \quad (2.111)$$

Nous effectuons dans un premier temps l'approximation de Vlasov, qui consiste à supposer que

chaque particule chargée n'est sensible qu'au champ électromagnétique moyen présent dans le plasma, de composantes notées $(\vec{E}(t, \vec{r}), \vec{B}(t, \vec{r}))$. Nous pouvons donc négliger les fluctuations de champ locales dues à l'inhomogénéité des particules chargées. Cette approximation implique que le mouvement individuel d'un électron libre isolé permet de déterminer la dynamique électronique du plasma dans son ensemble. En injectant (2.111) dans l'équation (2.110), nous obtenons alors la forme non-perturbée de l'équation de Vlasov :

$$\frac{\partial f_e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial t} + \vec{v} \cdot \frac{\partial f_e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial \vec{r}} - e \left(\vec{E}(t, \vec{r}) + \vec{v} \times \vec{B}(t, \vec{r}) \right) \cdot \frac{\partial f_e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial \vec{p}} = S_e(t, \vec{r}, \vec{p}). \quad (2.112)$$

Lorsque le champ électrique est suffisamment intense, le champ électromagnétique local causé par la répartition des charges ne peut cependant plus être négligé. Afin de l'intégrer à l'équation de Vlasov, nous le traitons comme un champ perturbatif de composantes (\vec{E}^p, \vec{B}^p) . Nous ajoutons ainsi à la fonction de distribution moyenne $f_e(t, \vec{r}, \vec{p})$ un terme perturbatif noté $f_e^p(t, \vec{r}, \vec{p})$. La fonction de distribution électronique totale f_e^e s'écrit alors $f_e^e = f_e + f_e^p$.

Un développement analogue à celui réalisé précédemment permet d'obtenir l'équation différentielle vérifiée par $f_e^e(t, \vec{r}, \vec{p})$:

$$\frac{\partial f_e^e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial t} + \frac{d\vec{r}}{dt} \cdot \frac{\partial f_e^e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial \vec{r}} + \frac{d\vec{p}^e}{dt} \cdot \frac{\partial f_e^e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial \vec{p}} = S_e(t, \vec{r}, \vec{p}). \quad (2.113)$$

Afin de simplifier cette relation, chaque terme est moyenné sur l'espace des impulsions \vec{p} . Pour une grandeur $X(t, \vec{r}, \vec{p})$, la moyenne notée $\langle X(t, \vec{r}) \rangle$ est définie par

$$\langle X(t, \vec{r}) \rangle = \frac{\iiint X(t, \vec{r}, \vec{p}) f_e(t, \vec{r}, \vec{p}) d\vec{p}}{\iiint f_e(t, \vec{r}, \vec{p}) d\vec{p}}. \quad (2.114)$$

Par définition, les moyennes des termes perturbatifs sont nulles : $\langle f_e^p \rangle = \langle \vec{E}^p \rangle = \langle \vec{B}^p \rangle = 0$. Après simplifications, l'équation (2.112) s'écrit :

$$\frac{\partial f_e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial t} + \frac{d\vec{r}}{dt} \cdot \frac{\partial f_e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial \vec{r}} + \left\langle \frac{d\vec{p}^e}{dt} \cdot \frac{\partial f_e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial \vec{p}} \right\rangle = S_e(t, \vec{r}, \vec{p}). \quad (2.115)$$

Le terme restant entre crochets est donné par

$$\left\langle \frac{d\vec{p}^e}{dt} \cdot \frac{\partial f_e^e(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial \vec{p}} \right\rangle = \left\langle -e \left(\vec{E}^p(t, \vec{r}) + \vec{v} \times \vec{B}^p(t, \vec{r}) \right) \frac{\partial f_e^p(t, \vec{r}, \vec{p})}{\partial \vec{p}} \right\rangle \quad (2.116)$$

et contient toute la contribution des perturbations à la fonction de distribution électronique. En particulier, il provient des collisions entre les électrons et les neutres dans le plasma. Nous adoptons alors la notation $[\partial_t f_e(t, \vec{r}, \vec{p})]_{coll}$ pour décrire ce terme. Ces collisions sont élastiques car la photo-ionisation est le seul phénomène pouvant modifier le nombre d'électrons libres dans les hypothèses du problème étudié. Les collisions électrons-ions sont ici négligeables car le plasma est en général faiblement ionisé. Ce sont donc les collisions électrons-neutres qui sont supposées prévaloir. Leur ordre de grandeur varie dans la littérature entre 2.5 et 10 ps⁻¹ selon les gaz considérés (à pression atmosphérique) [108].

La dynamique des collisions électrons-neutres consiste, en l'absence de toute action extérieure, en une relaxation des électrons d'un état perturbé vers l'équilibre, dans lequel leur fonction de distribution est notée f_e^0 . En notant ν_c la fréquence des collisions électron-neutre, ce terme s'écrit donc :

$$[\partial_t f_e(t, \vec{r}, \vec{p})]_{coll} = -\nu_c (f_e(t, \vec{r}, \vec{p}) - f_e^0(\vec{r}, \vec{p})). \quad (2.117)$$

En injectant cette formulation dans la relation (2.115), l'équation de Vlasov prend en compte les perturbations locales de champ électromagnétique dues aux collisions :

$$\frac{\partial f_e}{\partial t} + \vec{v} \cdot \frac{\partial f_e}{\partial \vec{r}} - e \left(\vec{E}(t, \vec{r}) + \vec{v} \times \vec{B}(t, \vec{r}) \right) \cdot \frac{\partial f_e}{\partial \vec{p}} = S_e(t, \vec{r}, \vec{p}) + [\partial_t f_e(t, \vec{r}, \vec{p})]_{coll}. \quad (2.118)$$

Nous supposons que les électrons libérés par la photo-ionisation ont une vitesse initiale nulle, d'où :

$$S_e(t, \vec{r}, \vec{p}) = S_e(t, \vec{r}) \delta(\vec{p} = \vec{0}) \quad (2.119)$$

avec δ la distribution de Dirac définie pour toute fonction $g(\vec{p})$ par la propriété $\iiint g(\vec{r}) \delta(\vec{p} - \vec{p}_0) d\vec{p} = g(\vec{p}_0)$.

Les moments électroniques de l'équation de Vlasov permettent de déduire les évolutions des grandeurs régissant la dynamique électronique d'un plasma [57, 154, 155].

Le moment d'ordre 0 de l'équation de Vlasov correspond à la conservation du nombre d'électrons

libres :

$$\frac{\partial N_e(t, \vec{r})}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (N_e(t, \vec{r})\vec{v}) = W(E) (N_a - N_e(t, \vec{r})) \quad (2.120)$$

où le terme source $S_e(t, \vec{r}) = W(E)(N_a - N_e)$ inclut le taux de photo-ionisation $W(E)$ et la densité initiale d'espèces neutres N_a .

Aux intensités laser étudiées, les électrons sont non-relativistes ($|\vec{v}| \ll c$) : nous pouvons donc négliger le terme convectif $\vec{\nabla} \cdot (N_e(t, \vec{r})\vec{v})$ pour obtenir l'équation différentielle vérifiée par la densité électronique :

$$\frac{\partial N_e(t, \vec{r})}{\partial t} = W(E) (N_a - N_e(t, \vec{r})). \quad (2.121)$$

En présence d'ionisation pour avalanche, l'équation précédente s'exprime :

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = W(E)(N_a - N_e) + \frac{\sigma I}{U_i} N_e. \quad (2.122)$$

Le moment d'ordre 1 représente la conservation de l'impulsion :

$$m_e \frac{\partial N_e(t, \vec{r})\vec{v}}{\partial t} + m_e \vec{\nabla} \cdot \langle N_e(t, \vec{r})\vec{v} \otimes \vec{v} \rangle = -e N_e(t, \vec{r}) (\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) - \nu_c m_e N_e(t, \vec{r})\vec{v} \quad (2.123)$$

où \otimes est le produit tensoriel.

En régime non-relativiste, le terme quadratique en vitesse $\vec{\nabla} \cdot \langle N_e(t, \vec{r})\vec{v} \otimes \vec{v} \rangle$ et la partie magnétique de la force de Lorentz $\vec{v} \times \vec{B}$ sont négligeables devant les autres termes. Ces simplifications mènent à l'équation régissant les courants électroniques au sein du plasma :

$$\frac{\partial \vec{J}_e(t, \vec{r})}{\partial t} + \nu_c \vec{J}_e(t, \vec{r}) = \frac{e^2}{m_e} N_e(t, \vec{r}) \vec{E}(t, \vec{r}). \quad (2.124)$$

Cette équation est parfois résolue dans le domaine de Fourier fréquentiel, pour lequel elle s'écrit :

$$\widehat{\vec{J}}_e(\omega, \vec{r}) = \frac{e^2}{m_e} \frac{1 - i\nu_c/\omega}{1 + \nu_c^2/\omega^2} \widehat{N_e \vec{E}}. \quad (2.125)$$

Le moment d'ordre 2 décrit quant à lui la conservation de la densité d'énergie des électrons libres, notée $E_e(t, \vec{r})$:

$$\frac{\partial E_e(t, \vec{r})}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{p^2}{2m_e} N_e(t, \vec{r}) \vec{v} \right) = \vec{J}_e(t, \vec{r}) \cdot \vec{E}(t, \vec{r}). \quad (2.126)$$

Les électrons étant non-relativistes, le terme convectif $\vec{\nabla} \cdot \left(\frac{p^2}{2m_e} N_e(t, \vec{r}) \vec{v} \right)$ est négligeable devant les autres. La conservation de l'énergie s'écrit donc sous la forme :

$$\frac{\partial E_e(t, \vec{r})}{\partial t} = \vec{J}_e(t, \vec{r}) \cdot \vec{E}(t, \vec{r}). \quad (2.127)$$

En dérivant les moments de l'équation de Vlasov vers les ordres croissants, il est possible d'obtenir une infinité d'équations donnant chacune une information sur l'interaction entre l'impulsion laser et le plasma [154]. Cependant, les moments d'ordre 0 et 1 suffisent pour caractériser efficacement le rayonnement THz émis par les photo-courants. Ces moments seront intégrés afin de résoudre les différents modèles qui seront explicités par la suite.

2.1.6 Courants de pertes

L'ionisation de l'air consomme une partie de l'énergie laser pour que les électrons liés puissent franchir la barrière de potentiel. Il est possible d'écrire cette perte sous la forme d'un courant, nommé "courant de perte", lié à la production d'électrons libres par unités de volume et de temps.

Les courants de pertes, notés $\vec{J}_p(t, \vec{r})$, sont caractérisés à partir du moment d'ordre 2 de l'équation de Vlasov (2.127), en supposant qu'ils sont la seule source de perte d'énergie laser :

$$\frac{\partial E_e(t, \vec{r})}{\partial t} = \vec{J}_p(t, \vec{r}) \cdot \vec{E}(t, \vec{r}) \quad (2.128)$$

Remarquons que cette équation correspond au théorème de Poynting appliqué aux électrons libérés par ionisation.

Nous traitons ici séparément les pertes dues à la photo-ionisation (nous y attribuerons l'indice PI) et à l'ionisation par avalanche (respectivement d'indice *av*). La densité d'énergie transmise par unité de temps au milieu par l'impulsion à travers ces deux effets s'écrit :

$$\left. \frac{\partial E_e(t, \vec{r})}{\partial t} \right|_{PI} = U_i W(E) (N_a - N_e(t, \vec{r})), \quad (2.129)$$

$$\left. \frac{\partial E_e(t, \vec{r})}{\partial t} \right|_{av} = \sigma I(t, \vec{r}) N_e(t, \vec{r}). \quad (2.130)$$

Nous en déduisons l'expression des courants de pertes associés à la photo-ionisation et à l'ionisation par avalanche :

$$\vec{J}_p(t, \vec{r}) \Big|_{PI} = \frac{\vec{E}(t, \vec{r})}{|\vec{E}(t, \vec{r})|^2} U_i W(E) (N_a - N_e(t, \vec{r})), \quad (2.131)$$

$$\vec{J}_p(t, \vec{r}) \Big|_{av} = c \epsilon_0 n_0 \sigma N_e(t, \vec{r}) \vec{E}(t, \vec{r}), \quad (2.132)$$

où pour rappel, $I(t, \vec{r}) = c \epsilon_0 n_0 |\vec{E}_L(t, \vec{r})|^2$.

Ces pertes seront systématiquement incluses dans le code de simulations tridimensionnelles CUP3D utilisé pour intégrer le modèle UPPE présenté en section 2.2.4.

2.2 Modèles physiques

2.2.1 Génération de rayonnement THz par photo-courants

Comme nous le démontrerons plus tard, la source principale de rayonnement THz est ici les courants induits dans le plasma par interaction entre le champ laser et les électrons libres créés par la photo-ionisation de l'air. On les nomme donc "photo-courants" et cette partie est dédiée à la dérivation de leur expression. Pour ce faire, nous résolvons les équations de la densité (2.121) et du courant (2.124) obtenus à partir de l'équation de Vlasov, dont les solutions générales s'écrivent :

$$N_e(t) = N_e(t \rightarrow -\infty) + N_a \left[1 - \exp \left(- \int_{-\infty}^t W(t) dt \right) \right], \quad (2.133)$$

$$\vec{J}_e(t) = \vec{J}_e(t \rightarrow -\infty) + \frac{e^2}{m_e} e^{-\nu_e t} \int_{-\infty}^t N_e(t') \vec{E}(t') e^{\nu_e t'} dt'. \quad (2.134)$$

Avant le passage de l'impulsion laser, le plasma n'existe pas, et il n'y a donc pas de photo-

courants, d'où $N_e(t \rightarrow -\infty) = 0$ et $\vec{J}_e(t \rightarrow -\infty) = 0$.

Afin de simplifier les notations, nous introduisons le vecteur $\vec{v}_f(t)$, représentant la vitesse des électrons libres au temps t , antérieurement créés en $t = -\infty$:

$$\vec{v}_f(t) = -\frac{e}{m_e} e^{-\nu_c t} \int_{-\infty}^t \vec{E}(t') e^{\nu_c t'} dt'. \quad (2.135)$$

Une intégration par parties de l'expression des photo-courants donne :

$$\vec{J}_e(t) = \underbrace{-e N_e(t) \vec{v}_f(t)}_{\vec{J}_A(t)} + e \underbrace{\int_{-\infty}^t \frac{\partial N_e}{\partial t}(t') \vec{v}_f(t') e^{-\nu_c(t-t')} dt'}_{\vec{J}_B(t)}. \quad (2.136)$$

Le premier terme de l'expression précédente, noté \vec{J}_A , correspond à l'interaction entre les variations rapides de la densité électronique et du champ laser. Comme nous le verrons dans la section suivante, c'est le second terme, noté \vec{J}_B , qui contient la composante basse-fréquence majoritaire des photo-courants.

Ces photo-courants, issus de l'accélération des électrons libres par le champ laser, sont à différencier des courants de pertes décrits en équations (2.131) et (2.132), qui proviennent de la perte d'énergie due à l'ionisation du milieu.

Nous comparerons par la suite la contribution au rayonnement THz des photo-courants, de l'effet Kerr et de la SRRS. Pour ce faire, nous avons besoin d'un modèle liant de manière simple le champ THz et ces différentes sources.

2.2.2 Modèle de courant local (ou "Local Current")

Le plasma d'air se comporte comme une antenne génératrice de rayonnement THz, dont la source sont les photo-courants \vec{J}_e . La caractérisation de cette émission fait appel à la théorie de Jefimenko [156], qui donne l'expression du champ électrique produit par une source plasma volumique :

$$\vec{E}(t, \vec{r}) = -\frac{1}{4\pi c^2 \epsilon_0} \int_V \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r}'|} \partial_t \vec{J}_e \left(t - \frac{|\vec{r} - \vec{r}'|}{c}, \vec{r}' \right) d\vec{r}', \quad (2.137)$$

où V représente le volume du plasma émetteur.

La complexité de cette équation rend son intégration laborieuse. Afin de contourner ce problème,

il est d'usage de dériver une approximation du champ émis à partir du modèle de courant local, dit modèle LC (pour "Local Current"), proposé par Kim et al. entre 2007 et 2008 [56, 157] puis approfondi par Babushkin et al en 2011 [158]. Ce modèle simple néglige les effets propagatifs et ignore toute dépendance spatiale afin de relier simplement le champ électrique émis par le plasma aux photo-courants [159] :

$$\vec{E}(t) = g \frac{\partial \vec{J}_e(t)}{\partial t} \quad (2.138)$$

avec g un facteur dépendant de la géométrie du problème.

Pour un plasma de dimensions faibles devant la distance plasma-observateur $d_{p \rightarrow o}$, la théorie de Jefimenko [156, 158] définit :

$$g = \frac{V}{4\pi\epsilon_0 c^2 d_{p \rightarrow o}} e^{i\omega d_{p \rightarrow o}/c}. \quad (2.139)$$

En raison des définitions non-quantitatives de V et $d_{p \rightarrow o}$, le modèle LC ne permet pas de prédire la valeur numérique exacte du champ émis par le plasma. Cependant, il donne des résultats raisonnables lorsqu'il s'agit de comparer les émissions THz produites par différentes impulsions laser, par exemple par rapport à une configuration laser de référence. A la suite de [160], nous pouvons modifier l'expression de g en redéfinissant cette quantité comme un simple facteur dimensionnant entre le champ électrique rayonné et les photo-courants, à condition que les volumes des plasmas et les distances plasma-observateur soient supposées identiques entre les différentes configurations étudiées :

$$g \approx -\frac{m_e}{e^2 N_a}. \quad (2.140)$$

Le modèle LC est particulièrement utile en pratique grâce à sa simplicité d'intégration numérique, ce qui limite les ressources informatiques nécessaires pour étudier les relations entre les paramètres laser (fondamental, amplitude, durée, polarisation, ...) et le rendement de conversion laser-THz.

Dans la référence [158], le modèle LC a été revisité au niveau "microscopique" pour son traitement analytique complet, que nous présentons ici. Celui-ci consiste à décrire de manière simplifiée les comportements temporels du taux d'ionisation $W(t)$, de la densité électronique $N_e(t)$ puis

des photo-courants $\vec{J}_e(t)$ afin d'en déduire une évaluation du champ électrique rayonné par le plasma $\vec{E}(t)$ dans les basses-fréquences. Intégré numériquement, le modèle LC calcule $\partial_t \vec{J}_e$ le long du profil temporel laser et en filtre la composante THz par transformée de Fourier inverse dans un intervalle en fréquences $\nu \leq \nu_{co}$. Afin de simplifier la lecture des prochains calculs, la figure 2.11 montre les profils temporels caractéristiques de $E_L(t)$, $W(t)$, $N_e(t)$ et $J_e(t)$, résultant de la résolution numérique du système d'équations composé de (2.62), (2.121) et (2.124) pour une impulsion laser à deux couleurs dont les paramètres sont précisés dans la légende.

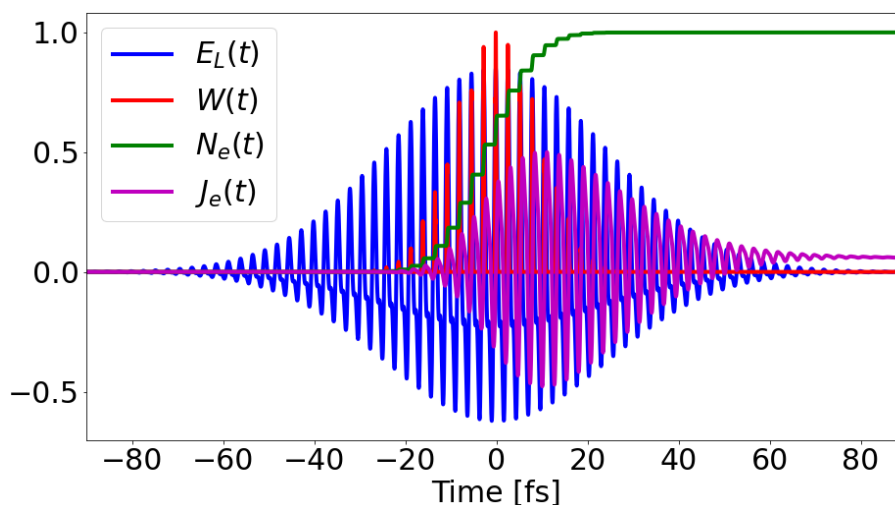


FIGURE 2.11: Profils temporels caractéristiques du champ laser $E_L(t)$ (courbe bleue), du taux d'ionisation $W(t)$ (courbe rouge), de la densité électronique $N_e(t)$ (courbe verte) et des photo-courants $J_e(t)$ (magenta). L'impulsion d'amplitude $E_0 = 30$ GV/m, de durée $\tau_0 = 34$ fs, et de fondamental $\lambda_0 = 0.8$ μm est polarisée linéairement. La seconde couleur comporte un rapport SH/FH $r = 20\%$ de l'énergie laser et est déphasée de $\phi = \pi/4$ par rapport au fondamental. Le taux d'ionisation PPT a été utilisé dans l'air composé de 80% de N_2 ($U_i = 15.5$ eV) et de 20% de O_2 ($U_i = 12.1$ eV).

Nous commençons par supposer que les instants d'ionisation du milieu sont localisés en des temps distincts notés t_n , chacun correspondant à un maximum de $|E_L(t)|$. Selon cette approximation, le taux d'ionisation correspond à une série de pics d'ionisation très courts notés $W_n(t)$, chacun centré autour de l'instant t_n correspondant :

$$W(t) = \sum_n W_n(t). \quad (2.141)$$

Soit τ_n la durée du n^{eme} pic d'ionisation, supposée très courte devant une période laser ($\tau_n \ll 2\pi/\omega_0$). Pour caractériser cette quantité, nous effectuons un développement de Taylor à l'ordre 2 du champ laser autour de t_n :

$$|\vec{E}_L(t_n + \Delta t)| \approx |\vec{E}_L(t_n)| - \frac{1}{2} |\partial_t^2 \vec{E}_L(t_n)| \Delta t^2. \quad (2.142)$$

En injectant ce développement dans le modèle de taux d'ionisation QST (2.59), choisi pour sa simplicité, nous obtenons une approximation du profil temporel des pics d'ionisation $W_n(t)$:

$$W_n(t) = W[E(t_n)] \exp\left(-\left(\frac{t - t_n}{\tau_n}\right)^2\right). \quad (2.143)$$

Cette relation, couplée à l'expression simplifiée de $W(E)$ (2.8), permet d'identifier les largeurs d'ionisation τ_n :

$$\tau_n = \sqrt{\frac{3|\vec{E}_L(t_n)|^2}{(2U_i)^{\frac{3}{2}} |\partial_t^2 \vec{E}_L(t_n)|}}. \quad (2.144)$$

Numériquement, la durée des pas d'ionisation est de l'ordre de 0.1 fs. Il est donc raisonnable de supposer que les croissances de densité sont instantanées, c'est-à-dire de poser $\tau_n \rightarrow 0$.

Chaque pic d'ionisation est associé à une hausse de densité électronique, nommée "pas d'ionisation", de hauteur δN_e^n . la densité électronique $N_e(t)$ peut donc être approchée par une fonction du type :

$$N_e(t) \approx N_a \sum_n \delta N_e^n H_n(t - t_n). \quad (2.145)$$

où $H_n(t)$ décrit le profil temporel du n^{eme} pas d'ionisation.

En supposant que $N_e \ll N_a$, c'est-à-dire pour un milieu faiblement ionisé, l'équation (2.133) se simplifie comme $N_e(t) = N_a \int_{-\infty}^t W(t') dt'$. De fait, les hausses de densité plasma suivent un profil temporel en $H_n(t) = (1 + \text{erf}(t/\tau_n))/2$, où la fonction erf est la fonction erreur (voir Formulaire). Puisque $H_n(t)$ tend vers la fonction de Heaviside $H(t)$ lorsque $\tau_n \rightarrow 0$, nous pouvons simplifier l'expression de $N_e(t)$:

$$N_e(t) = \sum_n \delta N_e^n H(t - t_n) \quad (2.146)$$

avec $H(t)$ valant 0 pour $t < 0$ et 1 pour $t \geq 0$.

L'expression (2.146) permet de simplifier significativement l'expression des photo-courants (2.136).

A l'aide de l'approximation LC (2.138), le développement du terme $\vec{J}_A(t)$ donne la contribution

suivante au champ électrique rayonné par le plasma, notée $\vec{E}_A(t)$:

$$\vec{J}_A(t) = -e \sum_n \delta N_e^n \vec{v}_f(t) H(t - t_n), \quad (2.147)$$

$$\hat{\vec{E}}_A(\omega) = egi\omega \sum_n \delta N_e^n \int_{-\infty}^{t_n} \vec{v}_f(t) dt. \quad (2.148)$$

Dans la limite $\omega \sim 0$, la contribution de $\vec{E}_A(t)$ tend vers 0 et est donc marginale pour produire un rayonnement basse-fréquence.

On développe désormais le terme $\vec{J}_B(t)$:

$$\vec{J}_B(t) = e \int_{-\infty}^t \sum_n \delta N_e^n \vec{v}_f(t') \frac{\partial H}{\partial t'}(t' - t_n) e^{-\nu_c(t-t')} dt'. \quad (2.149)$$

Puisque $\partial_t H(t) = \delta(t)$, avec $\delta(t)$ la distribution de Dirac vérifiant pour toute fonction f : $\int_{-\infty}^{+\infty} f(t) \delta(t - t_0) dt = f(t_0)$, il est facile d'obtenir l'expression simplifiée de $\vec{J}_B(t)$:

$$\vec{J}_B(t) = e \sum_n \delta N_e^n \vec{v}_f(t_n) e^{-\nu_c(t-t_n)}. \quad (2.150)$$

Le modèle LC (2.138) permet alors d'estimer $\hat{\vec{E}}_B(\omega)$:

$$\hat{\vec{E}}_B(\omega) = eg \frac{\omega}{\omega + i\nu_c} \sum_n \delta N_e^n \vec{v}_f(t_n) e^{i\omega t_n}. \quad (2.151)$$

Lorsque $\vec{v}_f(t_n) \neq \vec{0}$, la contribution $\hat{\vec{E}}_B(\omega)$ est non-nulle aux basses-fréquences : elle correspond à une composante quasi-DC et contient donc le rayonnement THz généré. Remarquons que pour un champ monochromatique de type $E_0 \cos(\omega_0 t)$, nous avons donc toujours $\vec{v}_f(t_n) \approx \vec{0}$ étant donné que $t_n = n\pi$, et que $\vec{v}_f(t)$ [cf. équation (2.135)] est proportionnelle à la primitive du champ laser pour un plasma peu collisionnel ($\nu_c \ll \omega$). Cette observation justifie la nécessité d'une deuxième couleur laser pour produire l'émission désirée. En regroupant (2.148) et (2.151), on obtient alors l'estimation LC du rayonnement basse-fréquence produit au sein du plasma d'air :

$$\hat{\vec{E}}(\omega \ll \omega_0) \sim eg \sum_n \delta N_e^n \vec{v}_f(t_n) \quad (2.152)$$

pour un plasma non-collisionnel.

Cette relation montre que le rayonnement THz est produit par bouffées de champs électromagnétiques successives produites aux instants d'ionisation t_n , chacune d'amplitude liée à la grandeur $\delta N_e^n \vec{v}_f(t_n)$. Afin d'optimiser le rendement de conversion laser-THz, il sera donc nécessaire d'accroître ce produit :

- en maximisant les pas d'ionisation δN_e^n .
- en maximisant les extrema de $|\vec{v}_f(t)|$.
- en synchronisant t_n avec les maxima de $|\vec{v}_f(t)|$.

2.2.3 Comparaison des spectres THz issu des photo-courants et des effets Kerr et Raman

A l'aide du modèle LC, il est possible de comparer les productions de rayonnement THz associées aux photo-courants, à l'effet Kerr et à l'effet Raman. Pour ce faire, il est nécessaire de généraliser la relation (2.138) pour qu'elle puisse prendre en compte la contribution des électrons liés au rayonnement THz. L'équation de Helmholtz (2.27) indique que la réponse non-linéaire du milieu (2.28) dépend des courants et de la dérivée de la polarisation non-linéaire. En supposant que le volume générateur d'ondes THz des photo-courants est assimilable à ceux des effets Kerr et Raman, le coefficient g est le même pour ces trois effets. Le modèle LC peut donc se réécrire :

$$\vec{E}(t) = g \left(\frac{\partial \vec{J}_e(t)}{\partial t} + \underbrace{\frac{\partial^2 \vec{P}_{\text{Kerr}}(t)}{\partial t^2} + \frac{\partial^2 \vec{P}_{\text{Raman}}(t)}{\partial t^2}}_{\partial_t^2 \vec{P}_{\text{NL}}(t)} \right). \quad (2.153)$$

Puisque nous considérons l'action de la SRRS sur la réponse des électrons liés, il est nécessaire d'adapter l'expression de la polarisation Kerr instantanée. En effet, cette dernière n'engage que les électrons liés qui ne réalisent pas la transition rotationnelle impliquée dans la diffusion Raman. Leur proportion est estimée à $1 - x_K \approx 20\%$ [120]. En considérant une impulsion laser polarisée linéairement, la polarisation non-linéaire totale, incluant les expressions (2.34) et (2.43) prend donc pour expression :

$$P_{\text{NL}}(t) = \underbrace{(1 - x_K)\epsilon_0\chi^{(3)}E_L^3(t)}_{\text{Kerr}} + \underbrace{x_K\epsilon_0\chi^{(3)}C_R E_L(t) \int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-\tau}{\tau_2}} \sin\left(\frac{t-\tau}{\tau_1}\right)^2(\tau) d\tau}_{\text{Raman}} \quad (2.154)$$

avec $C_R = 3\tau_1(\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2})/2$.

Afin d'estimer analytiquement les différentes contributions de chaque effet au champ électrique total, nous posons que l'impulsion laser comporte deux couleurs polarisées linéairement selon le même axe. Suivant les définitions et notations de Meng et al. [161], un tel état de polarisation se rapporte à une impulsion dite LP-P (pour "Linear Polarization - Parallel"), et représente la configuration la plus classique pour produire un rayonnement THz avec un plasma d'air. Son champ électrique associé s'écrit :

$$\vec{E}_L^{\text{LP-P}}(t) = E_0 (\sqrt{1-r} \cos(\omega_0 t) + \sqrt{r} \cos(2\omega_0 t + \phi)) \vec{e}_x \quad (2.155)$$

avec E_0 l'amplitude du champ laser, r la portion d'énergie laser allouée à la deuxième harmonique et ϕ le déphasage entre les deux couleurs.

Pour une telle impulsion laser, les grandeurs t_n et $v_f(t_n)$, établies en annexe B, s'écrivent [139] :

$$t_n^{\text{LP-P}} = \omega_0^{-1} \left(n\pi - (-1)^n 2\sqrt{\frac{r}{1-r}} \sin(\phi) \right), \quad (2.156)$$

$$v_f^{\text{LP-P}}(t_n) = \frac{3eE_0}{2m_e\omega_0} \sqrt{r} \sin(\phi). \quad (2.157)$$

Les équations (2.138) et (2.152) nous permettent de trouver la contribution des photo-courants au spectre THz en supposant que tous les pas d'ionisation δN_e^n ont des hauteurs similaires, assimilées à la grandeur δN_e :

$$\hat{E}_{\text{J,THz}}(\omega) = \frac{3ge^2 N \delta N_e E_0}{2\sqrt{2\pi} m_e \omega_0} \sqrt{r} \cos\left(2\sqrt{\frac{r}{1-r}} \sin\phi \frac{\omega}{\omega_0}\right) \text{sinc}\left(\frac{N\pi\omega}{2\omega_0}\right) \sin\phi \quad (2.158)$$

avec N le nombre d'évènements d'ionisation.

La figure 2.11 justifie l'approximation faite sur la densité. En effet, bien que tous les échelons n'aient pas exactement la même hauteur à cause de l'enveloppe temporelle de l'impulsion, ceux

associés aux bouffées de champs THz les plus intenses (autour de $t = 0$) vérifient bien cette hypothèse.

Calculons désormais la contribution de l'effet Kerr à l'émission THz. Le premier terme de l'expression (2.154) se développe comme :

$$P_{\text{Kerr}}(t) = (1 - x_K)\epsilon_0\chi^{(3)}\frac{E_0^3}{4} \left| \begin{array}{l} 3\sqrt{r}(1-r)\cos\phi \\ + \sqrt{1-r}(2+3r)\cos(\omega_0 t) \\ + \sqrt{r}(5-3r)\cos(2\omega_0 t + \phi) \\ + (1-r)^{3/2}\cos(3\omega_0 t) + 3r\sqrt{1-r}\cos(3\omega_0 t + 2\phi) \\ + 3\sqrt{r}(1-r)\cos(4\omega_0 t + \phi) \\ + 3r\sqrt{1-r}\cos(5\omega_0 t + 2\phi) \\ + r^{3/2}\cos(6\omega_0 t + 3\phi) \end{array} \right. \quad (2.159)$$

où nous avons séparé les différents termes selon leur fréquence d'oscillation pour plus de lisibilité. Cette expression, en accord avec la figure 2.3, montre la présence d'un terme basse-fréquence (constant ou quasi-DC dans la limite $\omega \rightarrow 0$) associé au spectre THz, ainsi que la création d'harmoniques supérieures allant jusqu'à $6\omega_0$.

Nous souhaitons comparer les spectres THz associés aux photo-courants et à l'effet Kerr. Cependant, le terme basse-fréquence de l'équation (2.159) ne dépend pas du temps car nous avons traité le champ laser comme une onde plane lors de la dérivation de $P_{\text{Kerr}}(t)$. Le calcul de la transformée de Fourier de ce terme est donc impossible en l'état. Pour contourner ce problème, nous lui affectons un profil temporel fini, que nous choisissons être une enveloppe gaussienne de largeur $\tau_K \approx \tau_0/\sqrt{3}$ étant donné que la polarisation Kerr dépend du cube de l'enveloppe laser. Nous verrons plus loin que cet terme influe peu sur le spectre THz et pourra être négligé lors des estimations numériques. La polarisation Kerr se réécrit :

$$P_{\text{Kerr,THz}}(t) = \frac{3}{4}(1 - x_K)\epsilon_0\chi^{(3)}E_0^3\sqrt{r}(1-r)\cos\phi e^{-t^2/\tau_K^2}. \quad (2.160)$$

La transformée de Fourier d'une gaussienne est donnée, dans notre formalisme, par :

$$\mathcal{F}\left[e^{-t^2/\tau_K^2}\right](\omega) = \sqrt{\pi}\tau_K e^{-\tau_K^2\omega^2/4}. \quad (2.161)$$

Le modèle LC (2.138) permet alors de trouver la contribution de l'effet Kerr au spectre THz, notée $\widehat{E}_{\text{Kerr,THz}}(\omega)$:

$$\widehat{E}_{\text{Kerr,THz}}(\omega) = -\frac{3}{4}g(1-x_K)\epsilon_0\chi^{(3)}E_0^3\sqrt{r}(1-r)\cos\phi\sqrt{\pi}\tau_K\omega^2e^{-\tau_K^2\omega^2/4}. \quad (2.162)$$

Il est intéressant de remarquer que cette grandeur est proportionnelle à $\cos\phi$, là où la contribution des photo-courants dépend de $\sin\phi$. Selon le déphasage entre les deux harmoniques laser, les photo-courants sont donc maximaux lorsque la contribution Kerr est minimale et vice-versa. Afin de ne privilégier aucun de ces effets, nous posons $\phi = \pi/4$ lors des développements à suivre. Le rapport entre les spectres THz dus à l'effet Kerr et aux photo-courants s'écrit :

$$\frac{\widehat{E}_{\text{Kerr,THz}}(\omega)}{\widehat{E}_{\text{J,THz}}(\omega)} = -\frac{1}{2}\frac{(1-x_K)\epsilon_0\chi^{(3)}E_0^2(1-r)\tau_K\omega^2e^{-\tau_K^2\omega^2/4}}{\frac{e^2N\delta N_e}{\sqrt{2\pi m_e\omega_0}}\cos\left(2\sqrt{\frac{r}{1-r}}\sin\phi\frac{\omega}{\omega_0}\right)\text{sinc}\left(\frac{N\pi\omega}{2\omega_0}\right)}. \quad (2.163)$$

Ce quotient, que nous pouvons simplifier en appliquant $\omega/\omega_0 \ll 1$ dans le domaine THz, se réécrit :

$$\frac{\widehat{E}_{\text{Kerr,THz}}(\omega)}{\widehat{E}_{\text{J,THz}}(\omega)} \approx -\frac{1}{2}\frac{(1-x_K)\epsilon_0\chi^{(3)}E_0^2(1-r)\tau_K\omega^2e^{-\tau_K^2\omega^2/4}}{e^2N\delta N_e/(\sqrt{2\pi m_e\omega_0})}. \quad (2.164)$$

Pour les valeurs numériques courantes, $x_K = 0.8$, $\chi^{(3)} \approx 1.3 \times 10^{-25}$ SI, $E_0 \approx 30$ GV/m, $r \approx 0.2$, $\tau_K \approx 10$ fs, $\omega \approx 2\pi \times 10$ THz, $N\delta N_e \approx 10^{24}$ m⁻³ et $\lambda_0 = 0.8$ μm , nous obtenons donc :

$$\frac{\widehat{E}_{\text{Kerr,THz}}(\omega)}{\widehat{E}_{\text{J,THz}}(\omega)} \approx -6.2 \times 10^{-4}. \quad (2.165)$$

Le rayonnement THz induit par l'effet Kerr est donc plus faible que celui généré par les photo-courants d'environ 4 ordres de grandeur. Remarquons que pour les valeurs numériques choisies, le terme d'enveloppe gaussienne vérifie $e^{-\tau_K^2\omega^2/4} \approx 1$.

Passons enfin au cas de la SRRS. Le calcul de l'expression de la polarisation Raman étant relativement laborieux, il est présenté en annexe D. Les développements indiquent que cette grandeur peut être séparée en deux termes : un d'amplitude dominante noté $P_{\text{Raman}}^{\text{p}}(t)$ oscillant à ω_0 et $2\omega_0$, et un de plus faible ampleur, noté $P_{\text{Raman}}^{\text{m}}(t)$, qui contient le terme THz et les mélanges de fréquences jusqu'à $6\omega_0$ observés en figure 2.6, comme prédit en section 2.1.3 :

$$P_{\text{Raman}}(t) = P_{\text{Raman}}^{\text{p}}(t) + P_{\text{Raman}}^{\text{m}}(t). \quad (2.166)$$

Ces deux composantes vérifient :

$$P_{\text{Raman}}^{\text{p}}(t) = \frac{3}{4} x_K \epsilon_0 \chi^{(3)} E_0^2 E_L^{LP-P}(t), \quad (2.167)$$

$$P_{\text{Raman,THz}}^{\text{m}} = -\frac{27}{32} x_K \epsilon_0 \chi^{(3)} \frac{\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}}{\omega_0^2} E_0^3 \sqrt{r} (1-r) \cos \phi. \quad (2.168)$$

Nous avons seulement écrit la composante basse fréquence de $P_{\text{Raman}}^{\text{m}}(t)$ car seul ce terme nous intéresse ici.

Comparons maintenant les contributions au rayonnement THz issus de l'effet Kerr (2.160) et de la SRRS (2.168). Par continuité avec les développements précédents, nous assignons l'enveloppe temporelle gaussienne e^{-t^2/τ_K^2} au terme quasi-DC de la polarisation Raman. Nous obtenons directement :

$$\frac{P_{\text{Raman,THz}}(\omega)}{P_{\text{Kerr,THz}}(\omega)} = -\frac{9}{8} \frac{x_K}{1-x_K} \frac{\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}}{\omega_0^2} = -2.1 \times 10^{-5} \quad (2.169)$$

pour $x_K = 0.8$ [120] et en reprenant les paramètres utilisés dans l'équation (2.165).

La contribution au spectre THz portée par la SRRS est donc à son tour plus faible de 5 ordres de grandeurs par rapport à celle générée par l'effet Kerr, et peut alors être aisément négligée. Notons que le quotient calculé ci-dessus est indépendant de ω , ce qui indique que les spectres THz fournis par les effets Kerr et Raman prennent des formes similaires.

Afin de confirmer ces prédictions analytiques, une intégration numérique de l'équation (2.153) est réalisée. Elle consiste à calculer, dans le domaine THz, les différents termes composant le membre de droite de cette relation pour obtenir les estimations LC du spectre THz associé à chacune de ces sources. L'impulsion laser, d'amplitude 30 GV/m, de durée 34 fs et de longueur d'onde fondamentale 0.8 μm , est polarisée linéairement, et comporte deux couleurs. L'harmonique deux contient 20 % de l'énergie laser et est déphasée de $\pi/4$ par rapport au fondamental. Le milieu choisi est l'air composé à 80 % de N_2 ($U_i = 15.5$ eV) et à 20 % de O_2 ($U_i = 12.1$ eV), dont l'ionisation est modélisée par le taux PPT. Les résultats obtenus sont illustrés dans le domaine fréquentiel sur la figure 2.12.

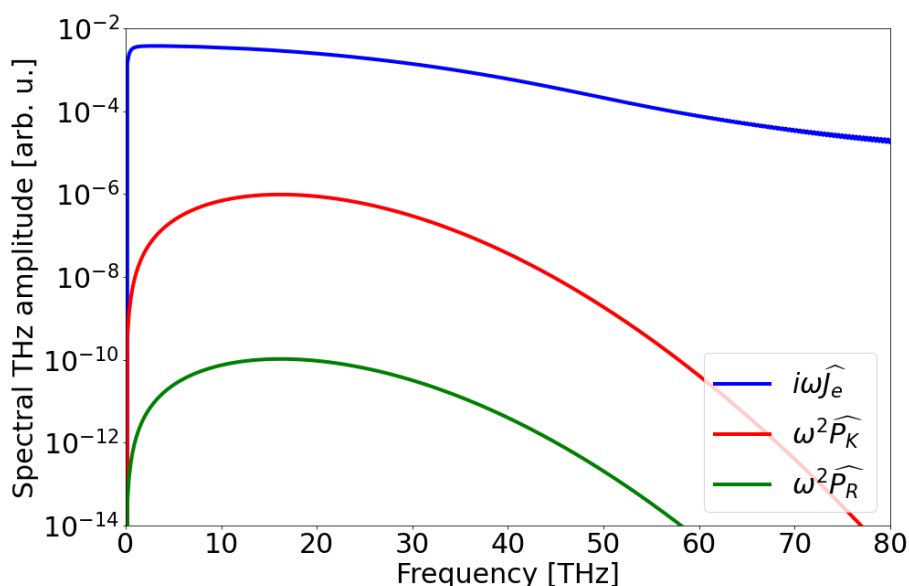


FIGURE 2.12: Spectres THz associés aux photo-courants (courbe bleue), à l'effet Kerr (courbe rouge) et à l'effet Raman (courbe verte). L'impulsion laser et le modèle d'ionisation utilisés sont les mêmes que pour la figure 2.11. La portion d'effet Raman dans la polarisation non-linéaire d'ordre 3 est de $x_K = 0.8$ d'après la référence [120].

En accord avec les prédictions analytiques précédentes, le spectre THz généré par les photo-courants est plus intense entre 3 à 5 ordres de grandeur comparé au rayonnement induit par l'effet Kerr. Nous attribuons les différences observées par rapport à nos évaluations analytiques aux effets d'enveloppe, qui incluent la différence de traitements analytiques de J_e (approche LC microscopique) et de P_{NL} (ondes planes complétées par une enveloppe gaussienne). Le spectre THz émis par la diffusion Raman suit des variations fréquentielles semblables à la contribution Kerr, et est plus faible que ce dernier de 5 ordres de grandeur, conformément à la prédiction analytique (2.169). Pour un champ laser d'amplitude $E_0 = 30$ GV/m, donc légèrement au-dessus du seuil d'ionisation de l'air, les photo-courants sont donc bien la source de rayonnement THz dominante ici.

2.2.4 Modèle UPPE

Afin de simuler de manière précise une expérience d'émission THz par plasma d'air et de confirmer ou infirmer les résultats prédits par le modèle LC, nous devons faire appel à un modèle plus complet. Le modèle UPPE (pour "Unidirectional Pulse Propagation Equation"), proposé par Kolesik et al. entre 2002 et 2004 [162, 163], simplifie l'équation de Helmholtz (2.27) en admettant que la propagation de l'impulsion se produit majoritairement vers l'avant selon l'axe de propa-

gation privilégié \vec{e}_z . Pour rappel, l'équation de Helmholtz, qui régit la propagation non-linéaire de l'impulsion s'écrit :

$$\vec{\nabla}^2 \widehat{\vec{E}} + k^2(\omega) \widehat{\vec{E}} = -\mu_0 \omega^2 \left(\widehat{\vec{\mathcal{F}}}_{\text{NL}} + \frac{1}{k^2(\omega)} \vec{\nabla} \left(\vec{\nabla} \cdot \widehat{\vec{\mathcal{F}}}_{\text{NL}} \right) \right), \quad (2.170)$$

où $\widehat{X}(\omega)$ décrit la transformée de Fourier temporelle d'une grandeur $X(t)$ et $\widehat{\vec{\mathcal{F}}}_{\text{NL}}$ correspond à la réponse non-linéaire du milieu donnée par

$$\widehat{\vec{\mathcal{F}}}_{\text{NL}} = \frac{i}{\omega} \widehat{\vec{\mathcal{J}}}_e + \widehat{\vec{P}}_{\text{NL}}. \quad (2.171)$$

Nous allons commencer par montrer que la composante selon \vec{e}_z de $\widehat{\vec{F}}_{\text{NL}}$ est négligeable devant les autres. L'équation de Maxwell-Gauss, s'écrit :

$$\vec{\nabla} \cdot \widehat{\vec{E}} = -\frac{\vec{\nabla} \cdot \widehat{\vec{F}}_{\text{NL}}}{\epsilon_0 \epsilon(\omega)}. \quad (2.172)$$

Nous notons $\overline{X}(\vec{k}, \omega)$ la transformée de Fourier spatiale transverse et en temps d'une grandeur $X(\vec{r}, t)$. La relation précédente s'exprime comme

$$k_{\perp} \overline{E_{\perp}} + k_z \overline{E_z} = -\frac{1}{\epsilon_0 \epsilon(\omega)} (k_{\perp} \overline{F_{\text{NL},\perp}} + k_z \overline{F_{\text{NL},z}}). \quad (2.173)$$

Nous supposons que le champ laser est principalement polarisé dans le plan transverse. Les composantes E_{\perp} et E_z sont donc respectivement d'ordres $\mathcal{O}(1)$ et $\mathcal{O}(E_{\perp} k_{\perp}/k_z) = \mathcal{O}(k_{\perp}/k_z)$. De plus, si nous considérons que l'onde laser et les champs secondaires émis se propagent essentiellement proche de l'axe de propagation, alors :

$$k_{\perp} \ll k, \quad k \approx k_z \quad (2.174)$$

avec $k_{\perp} \equiv \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$.

Sous ces conditions, E_z , d'ordre $\mathcal{O}(k_{\perp}/k_z)$, est négligeable devant E_{\perp} , ce qui mène à la simplification :

$$\overline{F_{\text{NL},z}} \approx -\frac{k_{\perp}}{k_z} (\epsilon_0 \epsilon(\omega) \overline{E_{\perp}} + \overline{F_{\text{NL},\perp}}) = \mathcal{O}\left(\frac{k_{\perp}}{k}\right). \quad (2.175)$$

Nous avons donc montré que $\overline{F_{\text{NL},z}} \ll \overline{F_{\text{NL},x}}, \overline{F_{\text{NL},y}}$ pour des non-linéarités transverses a priori

d'ordre $\mathcal{O}(1)$.

Simplifions désormais l'équation de Helmholtz (2.27). Son membre de gauche s'écrit dans le domaine de Fourier spatial :

$$\widehat{\vec{\mathcal{F}}_{\text{NL}}} + \frac{1}{k^2(\omega)} \vec{\nabla} \left(\vec{\nabla} \cdot \widehat{\vec{\mathcal{F}}_{\text{NL}}} \right) \rightarrow \begin{pmatrix} \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^x} \\ \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^y} \\ \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^z} \end{pmatrix} - \frac{1}{k^2} \begin{pmatrix} \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^x} k_x^2 + \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^y} k_x k_y + \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^z} k_x k_z \\ \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^x} k_x k_y + \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^y} k_y^2 + \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^z} k_y k_z \\ \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^x} k_x k_z + \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^y} k_y k_z + \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^z} k_z^2 \end{pmatrix}. \quad (2.176)$$

En négligeant les termes en $\mathcal{O}(k_{\perp}^2/k^2)$, l'expression précédente se réduit à :

$$\widehat{\vec{\mathcal{F}}_{\text{NL}}} + \frac{1}{k^2(\omega)} \vec{\nabla} \left(\vec{\nabla} \cdot \widehat{\vec{\mathcal{F}}_{\text{NL}}} \right) \rightarrow \begin{pmatrix} \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^x} - \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^z} k_x k_z / k^2 \\ \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^y} - \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^z} k_y k_z / k^2 \\ -\overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^x} k_x k_z / k^2 - \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^y} k_y k_z / k^2 \end{pmatrix}. \quad (2.177)$$

L'équation (2.175) nous permet de continuer les simplifications en négligeant les termes en $\overline{\mathcal{F}_{\text{NL},z}}$:

$$\widehat{\vec{\mathcal{F}}_{\text{NL}}} + \frac{1}{k^2(\omega)} \vec{\nabla} \left(\vec{\nabla} \cdot \widehat{\vec{\mathcal{F}}_{\text{NL}}} \right) \rightarrow \begin{pmatrix} \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^x} \\ \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^y} \\ -\overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^x} k_x k_z / k^2 - \overline{\mathcal{F}_{\text{NL}}^y} k_y k_z / k^2 \end{pmatrix}. \quad (2.178)$$

Dans le plan de polarisation laser (\vec{e}_x, \vec{e}_y) , l'équation de Helmholtz se réduit donc finalement à :

$$\left(\nabla_{\perp}^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} + k^2 \right) \widehat{\vec{E}} = -\mu_0 \omega^2 \widehat{\vec{F}}_{\text{NL}}. \quad (2.179)$$

Introduisons alors les opérateurs de propagation vers l'avant D_+ et vers l'arrière D_- :

$$D_{\pm}(\omega) = \frac{\partial}{\partial z} \mp i \sqrt{k^2 + \nabla_{\perp}^2}. \quad (2.180)$$

En variables de Fourier (k_x, k_y, ω) , ces opérateurs s'écrivent :

$$D_{\pm}(\omega) = \frac{\partial}{\partial z} \mp i k_z \quad (2.181)$$

et l'équation (2.179) est ainsi reformulée à l'aide de $D_-(\omega)$ et $D_+(\omega)$:

$$D_+(\omega)D_-(\omega)\vec{E} = -\mu_0\omega^2\vec{F}_{\text{NL}}. \quad (2.182)$$

Pour simplifier cette équation, nous allons poser que le champ électrique \vec{E} est la somme d'une onde se propageant vers l'avant (terme en $e^{+ik_z z}$) et d'une onde se propageant vers l'arrière (terme en $e^{-ik_z z}$) :

$$\vec{E} = \vec{U}_+ e^{ik_z z} + \vec{U}_- e^{-ik_z z}. \quad (2.183)$$

Le modèle originel UPPE ne considère que la composante avant de ce champ, et son approximation fondamentale consiste à négliger les évolutions longitudinales de l'enveloppe laser dans sa propagation vers l'arrière :

$$D_-(\omega)\vec{E} = \frac{\partial \vec{U}_+}{\partial z} e^{ik_z z} + 2ik_z \vec{E} \approx 2ik_z \vec{E}. \quad (2.184)$$

Le membre de gauche de l'équation (2.182) se simplifie donc :

$$D_+(\omega)D_-(\omega)\vec{E} \approx 2ik_z \left(\frac{\partial \vec{E}}{\partial z} - ik_z \vec{E} \right). \quad (2.185)$$

En injectant cette expression dans la relation (2.182), on obtient finalement l'équation-maîtresse du modèle UPPE :

$$\frac{\partial \vec{E}}{\partial z} = i\sqrt{k^2(\omega) - k_x^2 - k_y^2} \vec{E} + \frac{i}{2k(\omega)} \mu_0 \omega^2 \left[\frac{i}{\omega} \left(\vec{J}_e + \vec{J}_{\text{loss}} \right) + \vec{F}_{\text{NL}} \right]. \quad (2.186)$$

Dans l'approximation UPPE (champ électrique se propageant essentiellement vers l'avant), la dérivée seconde de l'équation de Helmholtz (2.27) est devenue une dérivée première dans l'équation ci-dessus, ce qui facilite l'intégration de ce modèle.

Afin de le valider expérimentalement, des comparaisons ont été effectuées entre des mesures et des simulations UPPE de spectres THz générés par des plasmas d'argon pour différentes valeurs de pression [164]. Les résultats sont illustrés sur la figure 2.13. Cette étude a montré des correspondances satisfaisantes entre les mesures et les simulations, ce qui a permis de valider le modèle UPPE ainsi que le code de calcul l'intégrant, que nous présentons ci-dessous.

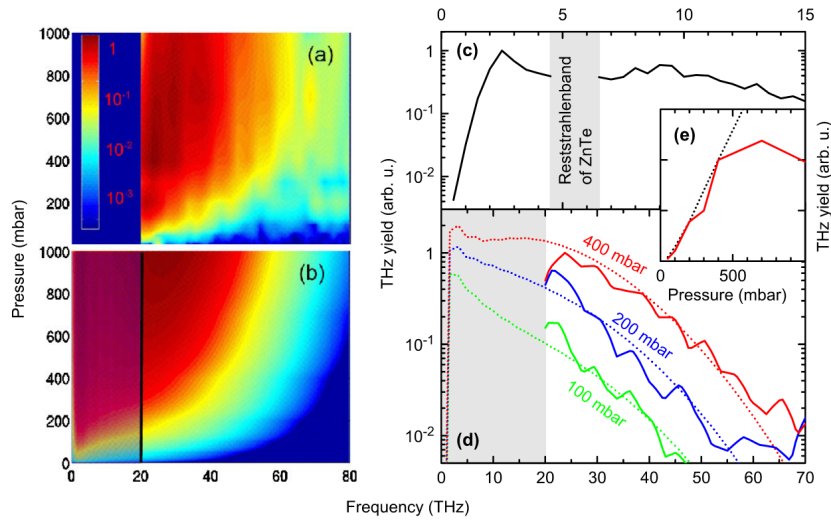


FIGURE 2.13: Spectres THz générés par des plasmas d'argon de pression allant de 1 à 1000 mbar (a) mesuré et (b) prédit par le modèle UPPE. (c) Spectre THz mesuré à l'aide d'un matériau électro-optique (ZnTe) pour un plasma à 1000 mbar. La bande grisée représente le domaine de non-fonctionnement du capteur. (d) Spectres expérimentaux mesurés (courbes pleines) et prédits par le modèle UPPE (courbes pointillées) générés par des plasmas de 100 mbar (courbes vertes), 200 mbar (courbes bleues) et 400 mbar (courbes rouges). (e) Rendement de conversion laser-THz en fonction de la pression du plasma tracé à l'aide des mesures (courbe pleine) et des simulations UPPE (courbe pointillée). Source : Babushkin [164].

2.3 Code de simulation CUP3D

Afin de simuler la production de rayonnement THz décrite par les phénomènes rappelés dans ce chapitre, nous avons utilisé le code appelé CUP3D (pour "Code for Ultrashort Pulses 3D"), qui intègre le modèle UPPE (2.186) à partir d'une impulsion laser d'entrée donnée. Il a été initialement écrit en Fortran90 par Stefan Skupin en 2005 [165]. Ce code peut prendre en compte différents taux d'ionisation, y compris les taux QST, ADK et PPT (ce dernier étant préférablement choisi car plus complet). Il décrit aussi l'ionisation de milieux à plusieurs espèces, ce qui permet de simuler la génération d'un plasma d'air composé de 80% de N₂ ($U_i = 15.5$ eV) et de 20% de O₂ ($U_i = 12.1$ eV). De nombreuses améliorations y ont été apportées depuis. Entre autres, ce code a été parallélisé en OpenMP/MPI ("Open Multi-Processing/Multi-Processing Interface") durant le projet ALTESSE1. Dans le cadre d'ALTESSE2, son programme a également été élargi afin de simuler des impulsions vectorielles et de traiter l'ionisation multiple du milieu.

2.3.1 Pré-processeur de propagation linéaire

La résolution numérique du modèle UPPE est particulièrement coûteuse en ressources informatiques, car un maillage en espace et en temps très fin est nécessaire pour décrire de manière précise les non-linéarités entrant en jeu dans les simulations.

Pour simuler correctement le rayonnement THz large bande généré, la résolution fréquentielle de la simulation doit être de l'ordre de ≈ 1 THz, et sa résolution temporelle doit être inférieure à un dixième de période laser. A cet effet, nous utilisons 16384 points en temps, et la largeur de la fenêtre temporelle correspond à ≥ 20 fois la durée de l'impulsion, ce qui assure des résolutions temporelle et fréquentielle satisfaisant ces critères.

De plus, les plasmas étudiés ont un diamètre de l'ordre de $10 \mu\text{m}$. Il est donc nécessaire que la résolution transverse dans le plan (\vec{e}_x, \vec{e}_y) de la simulation CUP3D soit inférieure à $1\text{-}2 \mu\text{m}$ pour les faisceaux de rayon initialement submillimétrique, jusqu'à tolérer une résolution transverse de $5\text{-}6 \mu\text{m}$ pour des faisceaux centimétriques. La largeur de la fenêtre transverse de la simulation doit toujours être supérieure à environ 8 fois le rayon en $1/e^2$ de l'impulsion en propagation collimatée (parallèle) ou 6 fois en propagation focalisée pour que la simulation du faisceau soit correctement réalisée. La limite supérieure admissible par CUP3D en nombre de points par dimension transverse est fixée à 1024 pour des raisons de limitations de temps de calcul et de mémoire. Il est possible de simuler des faisceaux de petit rayon initial ou des impulsions initialement focalisées en relaxant ces contraintes. Cependant, pour calculer la propagation non-linéaire d'un faisceau de rayon initialement large ($w_0 \approx 1 \text{ cm}$), environ 1300 points pour chaque dimension transverse sont nécessaires afin de modéliser correctement le problème. Leur traitement est donc fastidieux en l'état.

Pour résoudre ce problème, j'ai écrit un pré-processeur en langage Python ayant pour but de simuler la partie linéaire de la propagation d'un faisceau laser focalisé jusqu'à atteindre un régime d'intensités propice aux non-linéarités. Ce processus exploite ensuite la réduction du rayon du faisceau pour adapter la fenêtre spatiale afin d'alléger les données que CUP3D doit traiter. Ce programme peut notablement aider à modéliser des aberrations optiques qui se manifestent par une modification de la phase spatiale initiale du front d'onde, qui seront étudiées au chapitre 5. Nous décrivons ici le principe de ce pré-processeur. L'équation régissant la propagation linéaire d'une impulsion laser s'écrit à l'aide de (2.186), où le terme non-linéaire en $\widehat{\mathcal{F}}_{\text{NL}}^\perp$ est négligé :

$$\frac{\partial \overline{\vec{E}}_{\perp}}{\partial z} = i\sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2} \overline{\vec{E}}_{\perp}. \quad (2.187)$$

La solution générale de cette équation donne la relation de propagation linéaire :

$$\overline{\vec{E}}_{\perp}(\omega, \vec{k}_{\perp}, z + \Delta z) = \overline{\vec{E}}_{\perp}(\omega, \vec{k}_{\perp}, z) \exp\left(i\Delta z \sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2}\right). \quad (2.188)$$

Lors de la propagation d'une impulsion laser contenant deux harmoniques, la dispersion optique tend à décaler temporellement les deux enveloppes selon l'inverse de la différence des vitesses de groupe :

$$\Delta v_g^{-1} = \frac{1}{c} |n_g^{-1}(\omega_0) - n_g^{-1}(2\omega_0)|^{-1} \approx 80 \text{ fs/m} \quad (2.189)$$

pour un fondamental opérant à 0.8-1 μm . $n_g(\omega)$ désigne l'indice de groupe du milieu parcouru par une onde de pulsation ω , défini par

$$n_g(\omega) = c \left. \frac{\partial k(\omega')}{\partial \omega'} \right|_{\omega}, \quad (2.190)$$

avec $k(\omega)$ calculé ici à partir du modèle de Peck et Reeder [117].

Nous nous plaçons donc dans le référentiel du fondamental laser ($\overline{\vec{E}}_{\perp}(z - \omega_0 n_g(\omega_0)/c) \rightarrow \overline{\vec{E}}_{\perp}(z, \omega)$), dans lequel l'équation (2.188) se réécrit :

$$\overline{\vec{E}}_{\perp}(\omega, z + \Delta z) = \overline{\vec{E}}_{\perp}(\omega, z) \exp\left(i\Delta z \left[\sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2} - n_g(\omega_0) \frac{\omega}{c} \right]\right), \quad (2.191)$$

de façon à contrôler l'écart de l'harmonique deux par rapport au référentiel du fondamental.

La vérification du programme de propagation linéaire s'effectue en comparant les résultats numériques avec des solutions analytiques standards [29] décrivant la propagation d'une impulsion gaussienne monochromatique de fondamental ω_0 focalisée par une lentille convergente de longueur focale f . La lentille se situe en $z = 0$, distance à laquelle le champ laser a pour expression :

$$E(t, z = 0, r_{\perp}) = E_0 \cos(\omega_0 t) \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_0^2}\right) \exp\left(-\frac{r_{\perp}^2}{w_0^2}\right) \exp\left(i\frac{k_0 r_{\perp}^2}{2f}\right). \quad (2.192)$$

En calculant la transformée de Fourier inverse de (2.191), on peut montrer analytiquement que le rayon en $1/e^2$ du faisceau $w(z)$ suit la loi :

$$w(z) = w_f \sqrt{\left(1 - \frac{z}{f}\right)^2 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2}, \quad (2.193)$$

avec w_f le rayon de l'impulsion laser au point focal (aussi appelé "waist") et $z_0 = w_0^2 \pi / \lambda_0$ la longueur de Rayleigh.

L'évolution avec z de l'amplitude pic est donnée par :

$$E_0(z) = \frac{E_0}{\sqrt{\left(1 - \frac{z}{f}\right)^2 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2}}. \quad (2.194)$$

La figure 2.14 illustre la comparaison entre les propagations linéaires numérique et théorique.

Elle valide les résultats de notre pré-processeur.

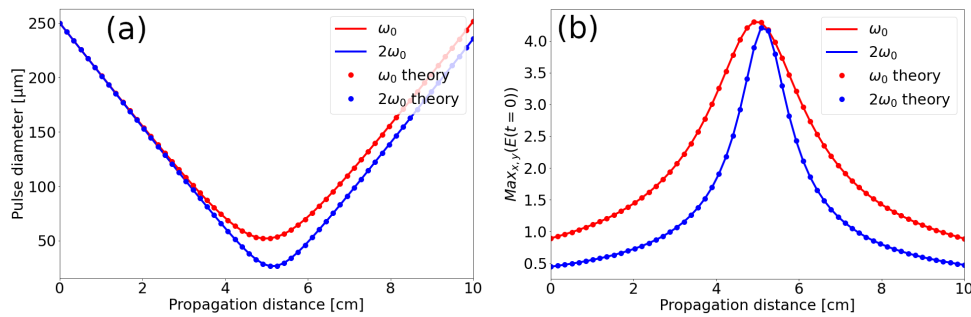


FIGURE 2.14: Comparaison des évolutions axiales (a) du rayon $w(z)$ et (b) de la valeur maximale de l'amplitude du champ laser, calculés par le pré-processeur de propagation linéaire (courbes pleines) et à l'aide de la théorie (points).

En propageant linéairement une impulsion laser gaussienne (focalisée ou non) jusqu'à l'apparition des premières non-linéarités ($I_0 \sim 10^{12}$ W/cm²), nous obtenons une impulsion de plus petit rayon, noté $w(z_l) < w_0$. Nous réduisons alors la fenêtre spatiale en y enlevant des points en partant de ses bords, où l'amplitude laser est quasi-nulle. Typiquement, la nouvelle fenêtre est large de 6 à 8 $w(z_l) < w_0$ par dimension transverse et fournit toujours la même résolution transverse que l'ancienne. Afin de raffiner celle-ci, nous effectuons une interpolation de Fourier (interpolation spectrale). Cette méthode consiste à interpoler une fonction contenue dans une fenêtre spatiale donnée à l'aide d'une transformée de Fourier $(x, y) \rightarrow (k_x, k_y)$. En élargissant la fenêtre en k_x et k_y avec des 0 puis en calculant la transformée de Fourier inverse, nous réduisons la résolution spatiale de l'impulsion propagée linéairement tout en gardant inchangées les limites de la fenêtre spatiale. Ce jeu de données est alors transmis au code CUP3D, qui peut

calculer la propagation ultérieure des faisceaux en y incorporant les non-linéarités, ce qui comprend entre autres la génération de rayonnement THz. Notons que l'utilisation de transformées de Fourier rapides implique que ce processus est optimisé lorsque les différentes fenêtres utilisées contiennent un nombre de points de la forme $2^n - 1$, avec n entier.

Enfin, l'impulsion interpolée est introduite comme condition d'entrée dans le code CUP3D sous la forme d'un fichier de données encodé au format HDF5. Celui-ci contient les profils spatiaux de son amplitude et de sa phase à chaque fréquence séparément. Puisque le propagateur linéaire ne peut traiter qu'une composante spectrale à la fois, nous séparons chaque couleur en 25 fréquences voisines afin de reproduire correctement leur caractère pulsé.

2.3.2 Intégration numérique du modèle UPPE

Le schéma numérique servant à intégrer le modèle UPPE traite le champ électrique $\vec{E}(t)$ en séparant ses fréquences positives [contenues dans $\vec{\mathcal{E}}(t)$] et négatives [contenues dans $\vec{\mathcal{E}}^*(t)$] :

$$\vec{E}(t) = \sqrt{c_1} \left(\vec{\mathcal{E}}(t) + \vec{\mathcal{E}}^*(t) \right), \quad (2.195)$$

avec $c_1 = \mu_0 \omega_0 / (2k(\omega_0))$ ayant l'unité d'une intensité physique en W/cm^2 et $\vec{\mathcal{E}}(t)$ donné par

$$\vec{\mathcal{E}}(t) = \frac{1}{\sqrt{c_1}} \int_{-\infty}^{+\infty} \widehat{\vec{E}}(\omega) e^{-i\omega t} H(\omega) d\omega, \quad (2.196)$$

où $H(\omega)$ représente la fonction de Heaviside [107].

La première étape pour calculer la propagation non-linéaire du faisceau est d'adimensionner les variables afin d'alléger les contraintes de calcul. Les variables spatiales transverses x et y sont normalisées par w_0 , la distance de propagation z par $4z_0$ et le temps t par τ_0 . Le champ électrique $\vec{\mathcal{E}}(t)$ est normalisé par $\sqrt{c_2}$, avec $c_2 = P_{\text{cr}} / (4\pi w_0^2)$ où P_{cr} est la puissance critique d'auto-focalisation du milieu de propagation définie par l'équation (2.40).

Soit N_c la densité critique plasma, au-delà de laquelle le plasma est opaque à l'impulsion laser de pulsation ω_0 , et qui est définie par :

$$N_c = \frac{\omega_0^2 m_e \epsilon_0}{e^2}. \quad (2.197)$$

La densité électronique est adimensionnée à l'aide de $n_0 N_c / (2z_0 k_0)$. Enfin, les courants sont

normalisés à partir des coefficients d'adimensionnement du champ et de la densité. Nous normalisons finalement l'équation du modèle UPPE (2.186), qui s'écrit alors dans le domaine de Fourier (k_x, k_y, ω) :

$$\frac{\partial \bar{\mathcal{E}}}{\partial z} = i \underbrace{\sqrt{k^2(\omega) - k_{\perp}^2} \left(\frac{4z_0}{w_0}\right)^2}_{\text{Dispersion optique}} \bar{\mathcal{E}} + \underbrace{i(1 - x_K) \bar{\mathcal{E}}^3}_{\text{Kerr}} + i \underbrace{\left(\bar{R} |\bar{\mathcal{E}}|^2\right) * \bar{\mathcal{E}}}_{\text{Raman}} - \underbrace{H(\omega) \left(\bar{\vec{J}}_e + \bar{\vec{J}}_{\text{loss}}\right)}_{\text{Courants}}, \quad (2.198)$$

avec l'opérateur $*$ désignant le produit de convolution (voir Formulaire) et $R(t)$ une fonction décrivant la proportion de non-linéarités dues aux effets Kerr et Raman :

$$R(t) = (1 - x_K) \delta(t) + x_K H(t) \tau_1 (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}) \sin\left(\frac{t}{\tau_1}\right) e^{-t/\tau_2}. \quad (2.199)$$

L'intégration numérique des courants \vec{J}_e et \vec{J}_{loss} est réalisée en deux parties. D'une part, le code CUP3D calcule :

$$\overline{\mu_0 \partial_t \vec{J}_e} + \overline{\mu_0 \partial_t \vec{J}_p}|_{\text{av}} = \left(\underbrace{\frac{\omega_0^2 (1 - i\nu_c/\omega)}{c^2 N_c (1 + \nu_c^2/\omega^2)}}_{\text{Photo-courants}} - \underbrace{\frac{i\omega n_0 \sigma(\omega)}{c}}_{\text{Avalanche}} \right) \overline{N_e E}, \quad (2.200)$$

où les photo-courants $\overline{\partial_t \vec{J}_e}$ et les courants de pertes associés à l'ionisation par avalanche $\overline{\partial_t \vec{J}_p}|_{\text{av}}$ sont respectivement donnés par les équations (2.125) et (2.132). D'autre part, les courants de pertes dus à la photo-ionisation $\overline{\vec{J}_p}|_{\text{PI}}$ sont intégrés à partir de la relation (2.131). Dans les cas où l'ionisation par avalanche est négligée, la section efficace $\sigma(\omega)$ est simplement fixée à 0.

La résolution de l'équation (2.198) s'effectue à l'aide d'un schéma numérique de type "split-step spectral", qui consiste à différencier la manière dont on traite les termes linéaires et non-linéaires.

On réécrit l'équation à résoudre telle que :

$$\frac{\partial \bar{\mathcal{E}}}{\partial z} = (D + N) \bar{\mathcal{E}}, \quad (2.201)$$

avec D l'opérateur linéaire prenant en compte la dispersion optique et la diffraction, et N l'opérateur non-linéaire qui comprend les effets Kerr et Raman, les photo-courants et les courants de pertes.

Le schéma split-step spectral impose de séparer le traitement d'un pas allant de z à $z + \Delta z$ en trois parties. Dans un premier temps, on résout l'équation (2.198) entre z et $z + \Delta z/2$ dans le domaine fréquentiel en omettant les termes non-linéaires, que l'on inclut ensuite en $z + \Delta z/2$ dans le domaine temporel. Enfin, on résout une nouvelle fois l'équation comportant uniquement les effets linéaires entre $z + \Delta z/2$ et $z + \Delta z$ dans le domaine fréquentiel, comme illustré par la figure 2.15.

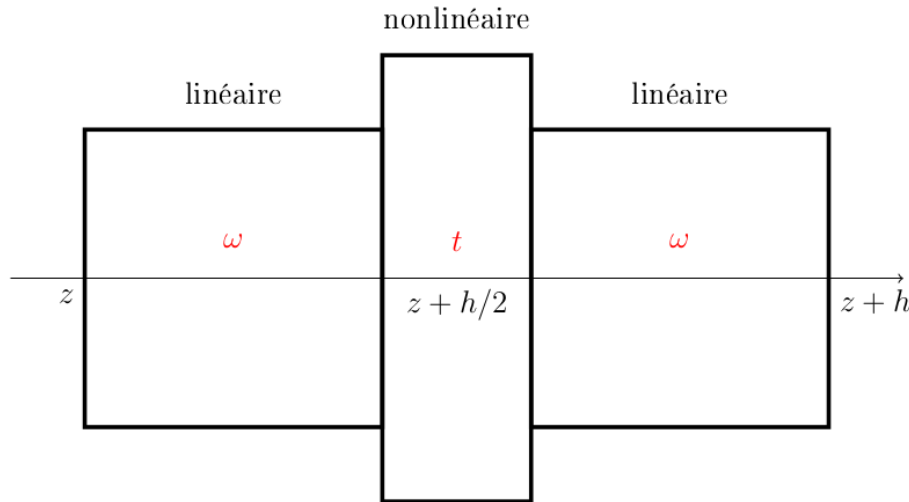


FIGURE 2.15: Représentation du schéma numérique implémenté dans le code CUP3D. Source : Nguyen [126].

De manière formelle, la solution générale de l'équation (2.201) s'écrit :

$$\bar{\mathcal{E}}(z + \Delta z, t) = \underbrace{\bar{\mathcal{E}}(z, t) \exp\left(\frac{\Delta z}{2} D\right)}_{\text{Etape 1}} \underbrace{\exp\left(\int_z^{z+\Delta z} N(z') dz'\right)}_{\text{Etape 2}} \underbrace{\exp\left(\frac{\Delta z}{2} D\right)}_{\text{Etape 3}}. \quad (2.202)$$

L'intégrale comprenant les non-linéarités est calculée à l'aide d'une méthode de Runge-Kutta d'ordre 2. De plus, le pas Δz est adaptatif en fonction des variations de phase du champ électrique associées à l'auto-focalisation Kerr. Lorsque ces variations sont fortes, au voisinage d'un pic d'amplitude laser par exemple, le pas est réduit afin de mieux résoudre la propagation non-linéaire du faisceau.

Nous avons réalisé les simulations CUP3D sur les super-ordinateurs du TGCC ou du CINES, capables de solliciter plusieurs centaines de nœuds en parallèle (typiquement 512 nœuds à 6 cœurs chacun).

Chapitre 3

Optimisation du rendement de conversion laser-THz

Sommaire

3.1	Influence de la polarisation laser sur l'onde THz	102
3.1.1	Configurations des polarisations laser étudiées	102
3.1.2	Optimisation de la production d'impulsions THz par un faisceau LP-P	104
3.1.3	Développements analytiques	105
3.1.4	Intégration numérique du modèle LC	110
3.1.5	Simulations UPPE	114
3.1.6	Confirmation expérimentale	116
3.2	Ajout d'harmoniques laser	119
3.2.1	Dérivation du champ laser Sawtooth LP-P	119
3.2.2	Caractérisation du champ laser Sawtooth CP-S	123
3.2.3	Simulations CUP3D de production de rayonnement THz par des impulsions Sawtooth	126
3.2.4	Expériences de génération de rayonnement THz par une impulsion laser à 3 couleurs	130
3.3	Impact de la diffusion Raman stimulée sur la propagation d'une impulsion laser vectorielle	135
3.3.1	SRRS pour une impulsion laser de polarisation arbitraire	135
3.3.2	Implémentation dans CUP3D	140
3.3.3	Impact de la diffusion Raman sur la génération d'ondes THz	141
3.4	Résumé du chapitre	144

Ce chapitre est consacré aux méthodes d’optimisation du rendement de conversion laser-THz. Nous commençons par présenter une étude montrant l’influence de la polarisation de l’impulsion laser sur le rayonnement THz généré au moyen de prédictions LC, de simulations CUP3D et de résultats expérimentaux. Nous établissons ensuite des estimations analytiques, soutenues par des simulations UPPE, montrant que l’ajout de couleurs au champ laser augmente de manière significative l’énergie THz émise. Ce résultat est suivi d’une présentation de quelques expériences récentes employant trois harmoniques laser ($\omega_0, 2\omega_0, 3\omega_0$). Enfin, nous généralisons l’expression de la polarisation associée à la diffusion Raman rotationnelle stimulée (SRRS) à des impulsions laser vectorielles, puis nous étudions son impact sur la propagation non-linéaire du faisceau, sur les caractéristiques du plasma et sur le rayonnement THz qui en résulte.

3.1 Influence de la polarisation laser sur l’onde THz

La première étude portant sur la relation entre l’état de polarisation de l’impulsion laser et l’onde THz produite par des plasmas de gaz a été menée par Dai et al. en 2009 [166, 167]. Cette étude a permis de montrer expérimentalement qu’un faisceau polarisé circulairement génère des impulsions THz polarisées linéairement, orientées selon une direction dépendant du déphasage entre les deux harmoniques laser. Meng et al. [161] ont ensuite démontré expérimentalement qu’une impulsion laser polarisée circulairement permet d’augmenter le rendement de conversion laser-THz d’un facteur allant de 4 à 7 dans l’hélium par rapport à un faisceau pompe polarisé linéairement. Nous présentons ici un travail théorique justifiant ces propriétés et incluant aussi une campagne expérimentale qui a permis de retrouver et d’expliquer ces différents résultats [139].

3.1.1 Configurations des polarisations laser étudiées

Afin de décrire l’état de polarisation des harmoniques laser de la manière la plus générale possible, nous considérons a priori une impulsion polarisée elliptiquement. Nous rappelons qu’un état de polarisation linéaire, déjà mentionné dans le chapitre 2, correspond au cas où les deux couleurs

sont orientées selon un même direction, ici \vec{e}_x par convention. Nous rappelons que (\vec{e}_x, \vec{e}_y) est le plan transverse à l'axe de propagation \vec{e}_z . Par commodité technique, les raisonnements présentés au cours de ce chapitre s'effectueront dans le formalisme des ondes planes, c'est-à-dire que nous négligeons les termes d'enveloppe.

Un champ laser en polarisation elliptique comprend une seconde composante vectorielle, orientée selon \vec{e}_y . Il est caractérisé par 3 paramètres laser supplémentaires, à savoir :

- L'ellipticité ρ ($0 < \rho < 1$) associée à la portion d'énergie allouée à la composante E_y du champ laser.
- Le déphasage entre les composantes vectorielles noté θ .
- L'hélicité ϵ ($\epsilon = \pm 1$), qui détermine si les rotations effectuées par les deux couleurs dans le plan (\vec{e}_x, \vec{e}_y) se réalisent dans le même sens ($\epsilon = +1$), ou dans des sens opposés ($\epsilon = -1$).

A l'aide de ces paramètres, un champ laser polarisé elliptiquement à deux couleurs et de pulsation fondamentale ω_0 s'écrit :

$$\vec{E}_L^{\text{Ell}}(t) = E_0 \frac{1}{\sqrt{1+\rho^2}} \left[\sqrt{1-r} \begin{pmatrix} \cos(\omega_0 t) \\ \rho \cos(\omega_0 t + \theta) \end{pmatrix} + \sqrt{r} \begin{pmatrix} \cos(2\omega_0 t + \phi) \\ \epsilon \rho \cos(2\omega_0 t + \phi + \theta) \end{pmatrix} \right], \quad (3.1)$$

où E_0 est l'amplitude du champ optique, r correspond à la portion d'énergie laser contenue dans la seconde harmonique et ϕ représente la différence de phase temporelle entre les couleurs. La prise en compte des enveloppes s'effectue en réalisant la transformation $E_0 \rightarrow E_0 e^{-t^2/\tau_0^2} e^{-(x^2+y^2)/w_0^2}$, où τ_0 et w_0 correspondent respectivement à la durée et au rayon en $1/e^2$ de l'impulsion laser.

Nous nous intéressons plus particulièrement à quatre états de polarisation distincts : les configurations dites LP-P, LP-O, CP-S et CP-C étudiées Meng et al. [161] et présentées ci-dessous.

La polarisation LP-P (pour "Linear Polarization - Parallel") décrit l'état où les deux couleurs sont dirigées selon le même axe fixe ($\rho = 0$), ici \vec{e}_x :

$$\vec{E}_L^{\text{LP-P}}(t) = E_0 (\sqrt{1-r} \cos(\omega_0 t) + \sqrt{r} \cos(2\omega_0 t + \phi)) \vec{e}_x. \quad (3.2)$$

La polarisation LP-O (pour "Linear Polarization - Orthogonal") représente une impulsion polarisée linéairement où les deux harmoniques sont orientées selon des sens orthogonaux :

$$\vec{E}_L^{\text{LP-O}}(t) = E_0 (\sqrt{1-r} \cos(\omega_0 t) \vec{e}_x + \sqrt{r} \cos(2\omega_0 t + \phi) \vec{e}_y). \quad (3.3)$$

Remarquons que la configuration LP-O ne peut pas être décrite à partir de la relation (3.1). Nous la traiterons donc séparément des autres cas dans la partie suivante.

La polarisation CP-S (pour "Circular Polarization - Same") correspond à la configuration où les deux couleurs sont polarisées circulairement ($\rho = 1$, $\theta = -\pi/2$), et leurs axes d'orientation tournent dans le même sens ($\epsilon = +1$) :

$$\vec{E}_L^{CP-S}(t) = E_0 \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\sqrt{1-r} \begin{pmatrix} \cos(\omega_0 t) \\ \sin(\omega_0 t) \end{pmatrix} + \sqrt{r} \begin{pmatrix} \cos(2\omega_0 t + \phi) \\ \sin(2\omega_0 t + \phi) \end{pmatrix} \right]. \quad (3.4)$$

Enfin, la polarisation CP-C (pour "Circular Polarization - Counter") décrit un état de polarisation circulaire pour lequel les axes d'orientation des deux couleurs tournent dans des sens opposés ($\epsilon = -1$) :

$$\vec{E}_L^{CP-C}(t) = E_0 \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\sqrt{1-r} \begin{pmatrix} \cos(\omega_0 t) \\ \sin(\omega_0 t) \end{pmatrix} + \sqrt{r} \begin{pmatrix} \cos(2\omega_0 t + \phi) \\ -\sin(2\omega_0 t + \phi) \end{pmatrix} \right]. \quad (3.5)$$

La figure 3.1 résume la manière dont les couleurs sont orientées dans ces quatre configurations.

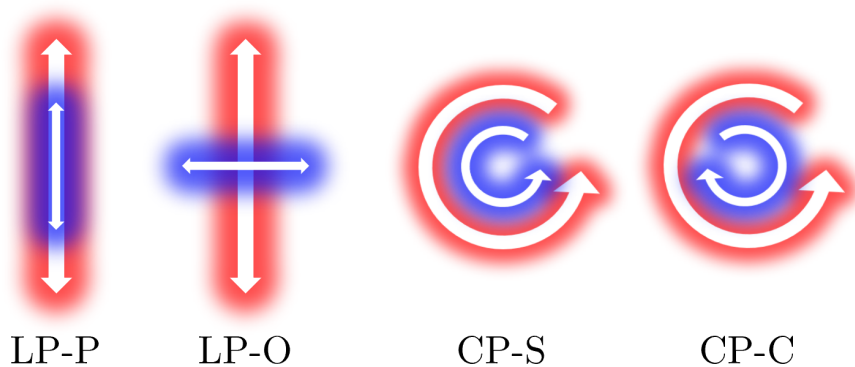


FIGURE 3.1: Schémas indiquant l'orientation des couleurs dans les configurations LP-P, LP-O, CP-S et CP-C. Source : Tailliez [57]

3.1.2 Optimisation de la production d'impulsions THz par un faisceau LP-P

Avant de débiter l'étude portant sur les champs laser polarisés circulairement, nous rappelons brièvement quelques résultats publiés dans la littérature cherchant à maximiser le rendement de conversion à l'aide d'une impulsion laser LP-P.

Une propriété important des impulsions LP-P est que l'énergie THz produite avec cet état de polarisation présente une forte dépendance en ϕ , ce qui a été démontré par l'expérience [56, 168].

Plus précisément, l'amplitude du rayonnement basse-fréquence est attendue suivre une loi de proportionnalité en $\sin \phi$: il s'annule donc pour $\phi = 0$ et devient maximal pour $\phi \approx \pm\pi/2$. Ce résultat est retrouvé dans l'étude présentée ci-dessous. Le ratio de fréquences entre les deux composantes spectrales du faisceau laser a aussi été examiné dans les références [169, 170], qui ont établi qu'un optimum dans le rendement de conversion est atteint lorsque l'une des deux couleurs correspond à l'harmonique deux de l'autre, vérifiant $\lambda_2 = 2\lambda_1$ dans un cas où la majorité de l'énergie laser est contenue dans la composante λ_2 . D'autres études ont porté sur la corrélation entre les dimensions spatiales du plasma et l'énergie THz produite [51, 171]. Elles font intervenir des plasmas de forte densité électronique et de dimensions micrométriques ($\approx 10 \mu\text{m}$), d'où leur appellation de "micro-plasmas", qui sont généralement produits à l'aide d'impulsions laser monochromatiques intenses fortement focalisées ($I_0 > 10^{15} \text{ W/cm}^2$). Cependant, la source principale de rayonnement THz dans ce type de plasmas est la force pondéromotrice, qui a été mentionnée en section 2.1.1, et qui s'écarte donc du présent travail. Les micro-plasmas formés par des impulsions à deux couleurs ont plus particulièrement été étudiés en référence [134]. Enfin, des analyses récentes ont démontré une forte corrélation entre le fondamental laser et l'énergie THz émise. Plus précisément, des résultats numériques [101] et expérimentaux [172] ont montré que l'énergie THz augmente très non-linéairement avec la longueur d'onde du fondamental, en particulier selon le choix de la différence de phase initiale ϕ [101]. Ces résultats ont récemment été confirmés numériquement [173, 174] et expérimentalement [175, 176] à l'aide de systèmes laser à CO_2 opérant dans l'infrarouge lointain ($3.9 \mu\text{m}$).

3.1.3 Développements analytiques

Nous souhaitons caractériser analytiquement les ondes THz générées en fonction de la polarisation laser. Nous employons donc le modèle LC introduit en section 2.2.2, qui relie de manière simple le spectre THz rayonné aux contributions de l'effet Kerr et des photo-courants. Compte tenu des résultats de la section 2.2.3, nous négligeons ici la diffusion Raman stimulée (SRRS) et considérons donc le cas $x_K = 0$.

Effet Kerr

Commençons par le rayonnement THz potentiellement généré par l'effet Kerr, dont on rappelle la polarisation associée :

$$\vec{P}_{\text{Kerr}}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} \vec{E}_L^3(t). \quad (3.6)$$

Nous développons dans un premier temps cette expression pour un champ de polarisation elliptique (3.1). Le module au carré d'un tel champ laser s'écrit :

$$|E_L^{\text{Ell}}|^2(t) = \frac{E_0^2}{2(1+\rho^2)} \begin{cases} 1 + \rho^2 \\ + 2\sqrt{r(1-r)}(1 + \epsilon\rho^2) \cos(\omega_0 t + \phi) \\ + (1 - \rho^2)(1 - r) \cos(2\omega_0 t) \\ + 2\sqrt{r(1-r)}(1 - \epsilon\rho^2) \cos(3\omega_0 t + \phi) \\ + (1 - \rho^2)r \cos(4\omega_0 t + 2\phi) \end{cases} \quad (3.7)$$

où nous avons séparé les différents termes en fonction de leur fréquence d'oscillation pour plus de lisibilité.

L'expression précédente permet de développer la polarisation Kerr, dont le terme basse-fréquence (assimilé aux termes constants) vaut :

$$\vec{P}_{\text{Kerr,THz}}^{\text{Ell}} = \frac{\epsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3}{2(1+\rho^2)^{\frac{3}{2}}} \sqrt{r}(1-r) \begin{pmatrix} (\frac{3}{2} + \rho^2 \epsilon) \cos \phi + \frac{\rho^2}{2} \cos(\phi - 2\theta) \\ \rho(1 + 2\rho^2 \epsilon) \cos(\phi - \theta) + \rho \epsilon \cos(\phi + \theta) \end{pmatrix}. \quad (3.8)$$

Cette équation peut être appliquée séparément aux configurations LP-P ($\rho = 0$), CP-S ($\rho = 1$, $\theta = -\pi/2$, $\epsilon = 1$) et CP-C ($\rho = 1$, $\theta = -\pi/2$, $\epsilon = -1$) pour obtenir finalement :

$$\vec{P}_{\text{Kerr,THz}}^{\text{LP-P}} = \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3 \sqrt{r}(1-r) \cos \phi \vec{e}_x, \quad (3.9)$$

$$\vec{P}_{\text{Kerr,THz}}^{\text{CP-S}} = \frac{1}{2^{3/2}} \epsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3 \sqrt{r}(1-r) \begin{pmatrix} \cos \phi \\ -\sin \phi \end{pmatrix}, \quad (3.10)$$

$$\vec{P}_{\text{Kerr,THz}}^{\text{CP-C}} = \vec{0}. \quad (3.11)$$

Remarquons que le résultat en polarisation LP-P rejoint celui obtenu dans le chapitre précédent. Pour les cas LP-P et CP-S, le terme THz de la polarisation Kerr est toujours polarisé linéairement, respectivement selon les directions \vec{e}_x et $\cos \phi \vec{e}_x - \sin \phi \vec{e}_y$, en accord avec les références [161, 167]. En revanche, une impulsion laser CP-C ne génère pas de rayonnement THz à partir de l'effet Kerr.

Dans le cas LP-O, le module au carré du champ laser s'écrit :

$$|E_L^{\text{LP-O}}|^2(t) = \frac{E_0^2}{2} [1 + (1-r) \cos(2\omega_0 t) + r \cos(4\omega_0 t + 2\phi)], \quad (3.12)$$

ce qui mène à :

$$\vec{P}_{\text{Kerr,THz}}^{\text{LP-O}} = \frac{1}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} E_0^3 \sqrt{r} (1-r) \cos \phi \vec{e}_y. \quad (3.13)$$

En accord avec la référence [177], cette expression montre d'une part que l'émission THz due à l'effet Kerr en configuration LP-O est trois fois plus faible en amplitude que celle produite par le cas LP-P, et d'autre part que la polarisation Kerr basse-fréquence est colinéaire avec la seconde couleur (donc ici selon \vec{e}_y).

Photo-courants

Calculons désormais les contributions basse-fréquence dues aux photo-courants pour les quatre états de polarisation précédents. Pour rappel, le modèle LC microscopique estime le spectre THz issu de cette source dans un plasma non-collisionnel à travers la relation :

$$\widehat{\vec{E}}_{\text{J,THz}}(\omega) \approx g e \sum_{n=1}^N \delta N_e^n \vec{v}_f(t_n) e^{i\omega t_n}, \quad (3.14)$$

avec N le nombre d'évènements d'ionisation.

Cette expression indique que l'amplitude de l'onde THz générée est fortement dépendante du profil temporel de la densité électronique. Afin de clarifier l'impact de la polarisation laser sur cette grandeur, la figure 3.2 illustre les évolutions temporelles de $W_{\text{QST}}(t)$ et de $N_e(t)$ ainsi que le comportement de $N_e(t \rightarrow +\infty)$ pour les quatre configurations étudiées impliquant un gaz d'argon. En particulier, les figures 3.2(a,b) montrent que pour une configuration laser donnée, les pas d'ionisation δN_e^n ont tous des hauteurs comparables. Nous posons donc

$$\delta N_e^n \approx \delta N_e, \quad (3.15)$$

cette hauteur pouvant varier d'un état de polarisation à un autre.

Dans un plasma non-collisionnel, la fonction $\vec{v}_f(t)$ se simplifie telle que :

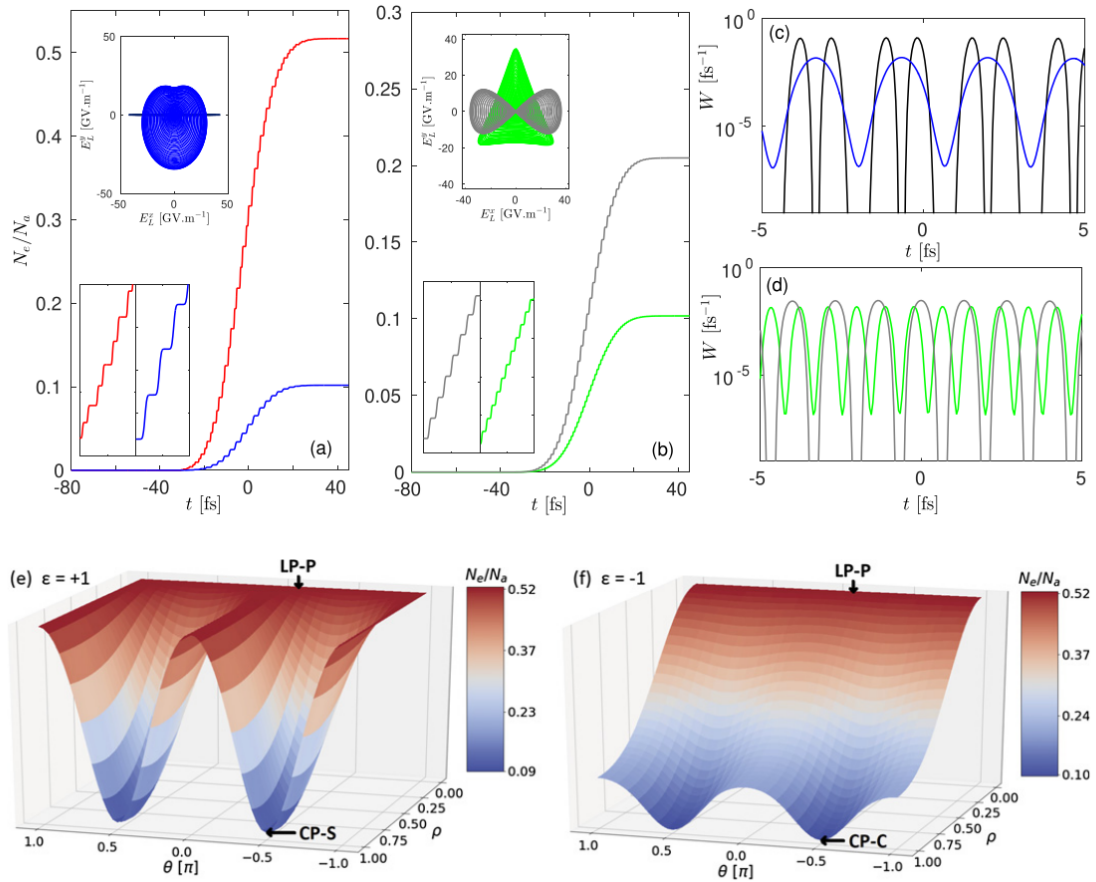


FIGURE 3.2: Evolution temporelle de $N_e(t)$ en configuration (a) LP-P (courbe rouge) et CP-S (courbe bleue), et en configuration (b) CP-C (courbe verte) et LP-O (courbe grise). Les inserts du haut détaillent les figures de champ des polarisations étudiées, et ceux en bas sont un zoom de la croissance de $N_e(t)$ sur un fenetre de 10 fs. (c, d) Profils temporels des taux d'ionisation QST $W_{\text{QST}}(t)$ associés. Cartes de $N_e(t \rightarrow +\infty)/N_a$ en fonction de ρ et θ calculées pour (e) $\epsilon = +1$ et (f) $\epsilon = -1$. Résultats obtenus pour une impulsion laser à deux couleurs de fondamental 800 nm, de durée 60 fs et d'intensité 200 TW/cm² dans l'argon à pression ambiante ($U_i = 15.8$ eV [149]). Source : Tailliez [139]

$$\vec{v}_f(t) = -\frac{e}{m_e} \int_{-\infty}^t \vec{E}_L(t') dt'. \quad (3.16)$$

L'estimation des $\vec{v}_f(t_n)$ nécessite la connaissance des instants d'ionisation t_n . Leur développement, présenté en annexe B, permet d'obtenir les relations suivantes :

$$\omega_0 t_n^{\text{LP-P}} \approx n\pi + 2(-1)^{n+1} \sqrt{\frac{r}{1-r}} \sin \phi \quad (3.17)$$

$$\omega_0 t_n^{\text{LP-O}} \approx n\pi - r \sin \phi \quad (3.18)$$

$$\omega_0 t_n^{\text{CP-S}} = 2n\pi - \phi \quad (3.19)$$

$$\omega_0 t_n^{\text{CP-C}} = \frac{2n\pi}{3} - \frac{\phi}{3} \quad (3.20)$$

où l'on a supposé $r \ll 1$ sans les cas LP-P et LP-O.

Le développement des grandeurs $\vec{v}_f(t_n)$, également effectué en annexe B, mène à :

$$\vec{v}_f^{\text{LP-P}}(t_n) = \frac{3eE_0}{2m_e\omega_0} \sqrt{r} \sin \phi \vec{e}_x, \quad (3.21)$$

$$\vec{v}_f^{\text{LP-O}}(t_n) = -\frac{eE_0}{m_e\omega_0} \sin \phi \begin{pmatrix} (-1)^{n+1} r \sqrt{1-r} \\ \sqrt{r}/2 \end{pmatrix}, \quad (3.22)$$

$$\vec{v}_f^{\text{CP-S}}(t_n) = \frac{eE_0}{\sqrt{2}m_e\omega_0} \left(\sqrt{1-r} + \frac{\sqrt{r}}{2} \right) \begin{pmatrix} \sin \phi \\ \cos \phi \end{pmatrix}, \quad (3.23)$$

$$\vec{v}_f^{\text{CP-C}}(t_n) = \frac{eE_0}{\sqrt{2}m_e\omega_0} \left(\sqrt{1-r} - \frac{\sqrt{r}}{2} \right) \begin{pmatrix} \sin(\phi/3 - 2n\pi/3) \\ \cos(\phi/3 - 2n\pi/3) \end{pmatrix}. \quad (3.24)$$

En substituant l'approximation (3.15) et les relations (3.21) à (3.24) dans l'expression (3.14), nous obtenons finalement :

$$\hat{E}_{\text{J,THz}}^{\text{LP-P}}(\omega) = \frac{3ge^2 N \delta N_e E_0}{2m_e\omega_0} \sqrt{r} \sin \phi \operatorname{sinc} \left(\frac{N\pi\omega}{2\omega_0} \right) \vec{e}_x, \quad (3.25)$$

$$\hat{E}_{\text{J,THz}}^{\text{LP-O}}(\omega) = -\frac{ge^2 N \delta N_e E_0}{2m_e\omega_0} \sqrt{r} \sin \phi \operatorname{sinc} \left(\frac{N\pi\omega}{2\omega_0} \right) \vec{e}_y, \quad (3.26)$$

$$\hat{E}_{\text{J,THz}}^{\text{CP-S}}(\omega) = \frac{ge^2 N \delta N_e E_0}{\sqrt{2}m_e\omega_0} \left(\sqrt{1-r} + \frac{\sqrt{r}}{2} \right) \operatorname{sinc} \left(\frac{N\pi\omega}{\omega_0} \right) \begin{pmatrix} \sin \phi \\ \cos \phi \end{pmatrix}, \quad (3.27)$$

$$\hat{E}_{\text{J,THz}}^{\text{CP-C}}(\omega) = \frac{ge^2 N \delta N_e E_0}{\sqrt{2}m_e\omega_0} \left(\sqrt{1-r} - \frac{\sqrt{r}}{2} \right) \left(\cos \left(\frac{N\pi}{3} \right) + \frac{1}{\sqrt{3}} \sin \left(\frac{N\pi}{3} \right) \right) \begin{pmatrix} \sin \frac{\phi}{3} \\ \cos \frac{\phi}{3} \end{pmatrix}, \quad (3.28)$$

après avoir appliqué la limite $\omega \ll \omega_0$ dans chacun des cas. Remarquons que cette simplification omet le facteur en cosinus dans l'expression (2.158) du chapitre précédent.

Ces résultats analytiques amènent à plusieurs conclusions :

- Le modèle LC prévoit donc, en accord avec [167], qu'une impulsion LP-P génère une

impulsion THz polarisée linéairement, dont l'amplitude est proportionnelle au sinus du déphasage ϕ entre les couleurs et à l'amplitude de l'harmonique deux $\sqrt{r}E_0$.

- Une impulsion LP-O génère un champ THz polarisé linéairement selon l'axe d'orientation de la seconde couleur, à savoir \vec{e}_y , en accord avec des résultats numériques récents [126, 134, 178]. Ce phénomène provient d'interférences destructives entre les composantes orientées selon \vec{e}_x des différentes bouffées THz [$\sum_{j=1}^2 v_f^x(t_{n+j}) = 0$]. L'amplitude du champ THz généré est analogue à celle produite par un faisceau LP-P, i.e., elle dépend de $\sin \phi$ et de $\sqrt{r}E_0$. Elle est toutefois 3 fois plus faible en amplitude d'après le modèle LC à ionisations similaires (le produit $N\delta N_e$ est constant entre les différentes configurations). Le facteur ≈ 9 de différence en énergies est en accord avec les références précédentes.
- Une impulsion CP-S engendre également une onde THz polarisée linéairement, orientée selon la direction \vec{e}_x tournée d'un angle ϕ dans le plan (\vec{e}_x, \vec{e}_y) , et d'amplitude proportionnelle à celle du fondamental laser $\sqrt{1-r}E_0$. Cette caractéristique indique qu'à ionisations semblables, une impulsion CP-S doit générer un rayonnement THz plus intense qu'une impulsion LP-P.
- La configuration CP-C génère des bouffées THz trois par trois qui s'annulent entre elles par interférences destructives, i.e., $\sum_{j=0}^2 \vec{v}_f^{\text{CP-C}}(t_{n+j}) = \vec{0}$. L'expression trouvée est donc un terme résiduel de très faible amplitude devant les autres cas.

3.1.4 Intégration numérique du modèle LC

Nous cherchons maintenant à mettre en relation ces résultats avec une intégration numérique directe du modèle LC évaluant le spectre THz de l'effet Kerr puis des photo-courants.

Effet Kerr

Le calcul du terme basse-fréquence associé à la polarisation Kerr s'effectue simplement en intégrant la relation :

$$\widehat{\vec{E}}_{\text{Kerr}}(\omega) = -g\omega^2\epsilon_0\chi^{(3)}\widehat{\vec{E}}_L^3(\omega), \quad (3.29)$$

puis par filtrage à l'aide d'un filtre passe-bas de type Butterworth d'ordre 32, d'expression :

$$\frac{\widehat{f}_S(\omega)}{\widehat{f}_E(\omega)} = \frac{1}{\sqrt{1 + (\omega/\omega_{co})^2}}, \quad (3.30)$$

où $\widehat{f}_E(\omega)$ et $\widehat{f}_S(\omega)$ décrivent respectivement les spectres d'entrée et de sortie du filtre, et ω_{co} est la fréquence (angulaire)¹ de coupure prenant généralement pour valeur $2\pi \times 90$ THz.

La figure 3.2 montre que l'ionisation du milieu est fortement dépendante de la polarisation laser. Cependant, en pratique, la hausse de l'intensité d'une impulsion laser survenant lors de sa propagation non-linéaire subit une saturation, nommée effet de clamping, causée par la croissance de la densité électronique à des niveaux similaires pour toutes les polarisations considérées [108, 179]. Ce phénomène provient de la défocalisation plasma, qui est d'autant plus importante que l'intensité laser est forte. Afin de prendre en compte cette limitation de la densité plasma, nous adaptons l'expression du facteur de proportionnalité g calibrant la production d'ondes THz pour toutes les configurations laser à densité plasma (ou ionisation) constante :

$$g = \frac{m_e}{e^2 N_e^{max}} \quad (3.31)$$

avec $N_e^{max} = N_e(t \rightarrow +\infty)$ la densité électronique maximale atteinte.

La comparaison entre les spectres THz produits par chaque configuration laser est finalement effectuée à travers le rendement de conversion laser-THz noté η :

$$\eta = \frac{\int_{-\omega_{co}}^{+\omega_{co}} |\widehat{E}_{THz}(\omega)|^2 d\omega}{\int_{-\infty}^{+\infty} |\widehat{E}_L(\omega)|^2 d\omega}. \quad (3.32)$$

Les figures 3.3(a,b) illustrent les résultats de l'intégration numérique des équations (3.29) et (3.32) pour des impulsions à deux couleurs (0.8 μm FH), de durée 60 fs à mi-hauteur et d'intensité initiale 200 TW/cm² dans l'argon à pression ambiante. Elles montrent que la contribution Kerr est maximale parmi les états de polarisation elliptique pour une configuration LP-P. En particulier, la figure 3.3(a) indique un facteur d'environ 2 en amplitude entre les performances des impulsions LP-P et CP-S, en accord avec les relations (3.9) et (3.10) qui prévoient un facteur $3/\sqrt{2} \approx 2.1$. La figure 3.3(b) confirme également la prédiction analytique (3.11) selon laquelle le spectre THz généré par l'effet Kerr en configuration CP-C est nul.

1. Nous pourrions commettre un abus de langage usuel entre "fréquence angulaire", ou "pulsation", et "fréquence" dans ce qui suit.

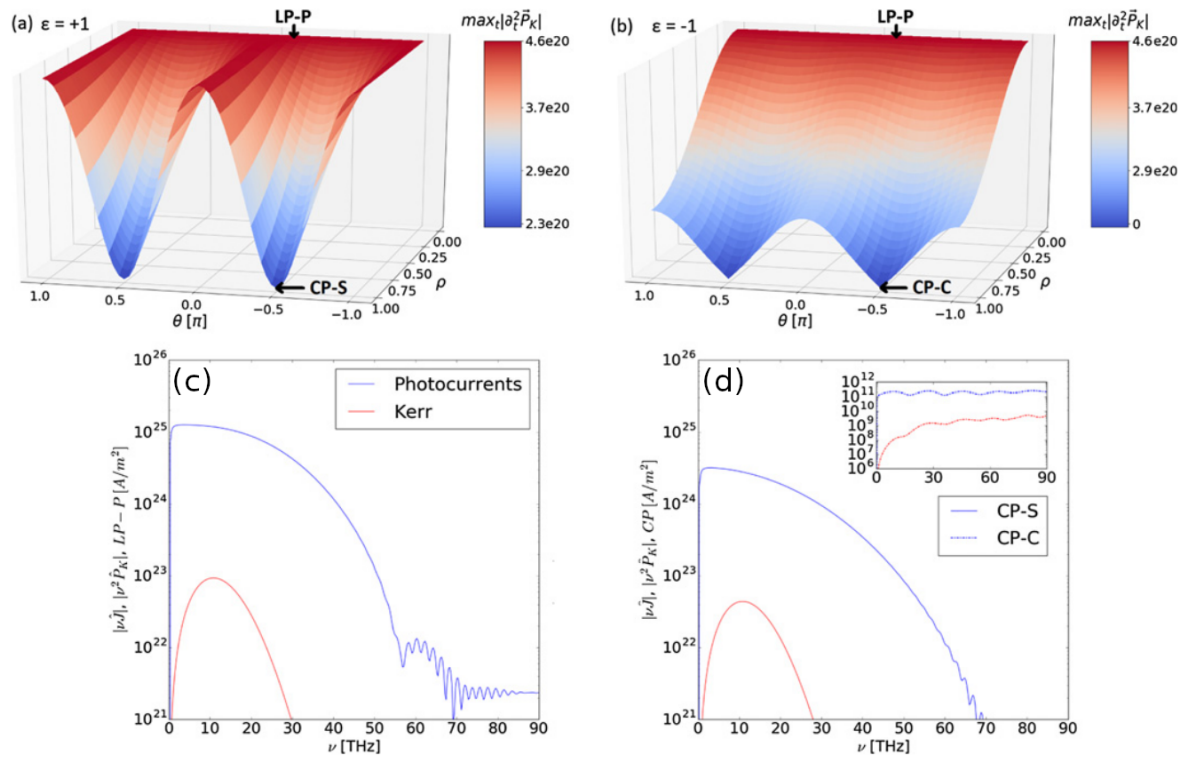


FIGURE 3.3: (a,b) Cartographie du maximum en temps de $|\partial_t^2 \vec{P}_{\text{Kerr}}(t)|$ filtré dans le domaine THz ($\nu < \nu_{co} = 90$ THz) pour (a) $\epsilon = +1$ et (b) $\epsilon = -1$. L'impulsion laser d'intensité 200 TW/cm² comporte deux couleurs en phase ($\phi = 0$), dont l'enveloppe est une gaussienne de largeur 60 fs. $n_2 = 10^{-19}$ cm²/W. (c,d) Spectres THz estimés par le modèle LC associés à l'effet Kerr $|\omega^2 \vec{P}_{\text{Kerr,THz}}|$ (courbes rouges) ($\phi = 0$) et aux photo-courants $|\omega \vec{J}_{e,\text{THz}}|$ (courbes bleues) ($\phi = \pi/2$) en configuration (c) LP-P et (d) CP-S (courbes pleines) et CP-C (courbes pointillées) dans l'argon à pression ambiante. La fréquence de collisions électrons-neutres vaut $\nu_c = 2.85$ THz. Source : Tailliez [139]

Photo-courants

L'expression des photo-courants $\vec{J}_e(t)$ est calculée à partir du taux d'ionisation $W(E_L)$ et de la densité électronique $N_e(t)$ associés au champ laser \vec{E}_L supposé connu. Nous déduisons ensuite le spectre THz dû aux photo-courants à partir de :

$$\widehat{\vec{E}}_{J,\text{THz}}(\omega) = -i\omega g \widehat{\vec{J}}_e|_{\text{THz}}(\omega), \quad (3.33)$$

où $\widehat{\vec{J}}_e|_{\text{THz}}(\omega)$ est la transformée de Fourier de $\vec{J}_e(t)$ filtrée à l'aide de l'équation (3.30).

L'intégration numérique du modèle LC sous les considérations précédentes confirme les prédictions analytiques. En effet, la figure 3.3(c) montre, en accord avec la section 2.2.3, que la contribution au rayonnement THz des photo-courants est prépondérante devant celle de l'effet

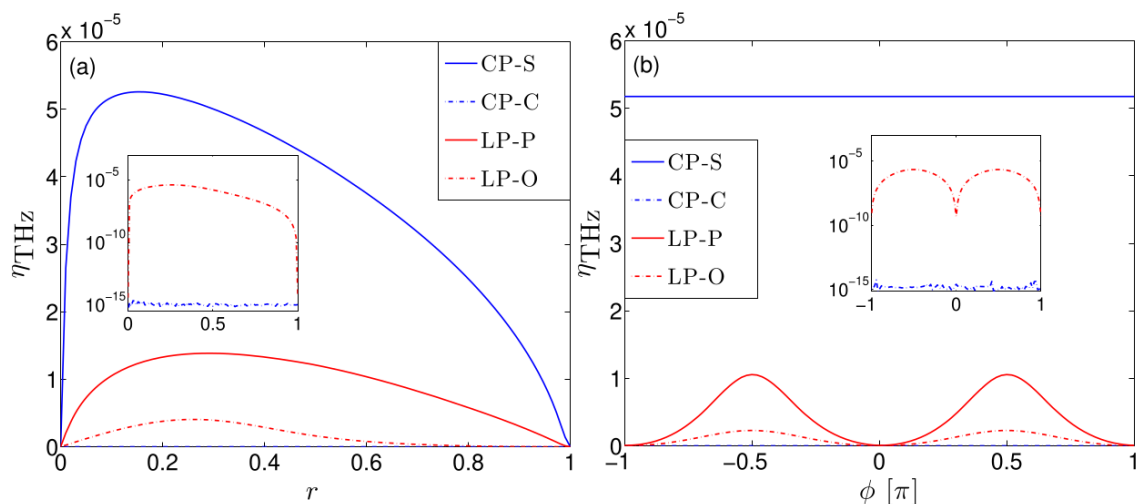


FIGURE 3.4: Estimation LC du rendement de conversion laser-THz en fonction de (a) r ($\phi = \pi/2$) et de (b) ϕ ($r = 0.1$) pour les configurations LP-P (courbe rouge pleine), LP-O (courbe rouge pointillée), CP-S (courbe bleue pleine) et CP-C (courbe bleue pointillée) à ionisation constante. Les inserts sont des zooms illustrant les différences entre $\eta_{\text{LP-O}}$ et $\eta_{\text{CP-C}}$. L'impulsion laser et le milieu sont similaires à ceux employés pour la figure 3.2(a). Source : Tailliez [139]

Kerr en configuration LP-P. La figure 3.3(d) permet d'étendre cette conclusion aux impulsions CP-S et CP-C. De plus, pour une impulsion laser propagée dans l'argon ($U_i = 15.76$ eV [149]) et de mêmes paramètres qu'en figures 3.3(a,b), la figure 3.4 montre l'évolution de η en fonction de r et de ϕ . Elle confirme qu'une impulsion CP-S peut augmenter l'énergie THz générée d'un facteur 4-5 par rapport à une configuration LP-P classique. Nous retrouvons également que la polarisation CP-C tend à neutraliser le rayonnement THz généré. Enfin, ces courbes sont en accord avec les dépendances en ϕ de $\widehat{E}_{\text{J,THz}}^{\text{LP-P}}(\omega)$ et $\widehat{E}_{\text{J,THz}}^{\text{CP-S}}(\omega)$ prévues par les relations (3.25) et (3.27).

Cette figure permet également d'identifier les paramètres (r , ϕ) pour lesquels les champs laser LP-P et CP-S sont optimaux. Une impulsion LP-P présente un rendement de conversion maximal pour $r \approx 25\%$ et $\phi = \pm\pi/2$, là où il tend vers 0 pour $\phi = m\pi$ pour toute valeur de r , en accord avec les références [56, 168]. Dans le cas CP-S, le rendement de conversion η est indépendant de ϕ et est optimisé pour $r \approx 15\%$.

Nous avons également employé le modèle LC afin de trouver la polarisation elliptique maximisant le rendement de conversion pour une réponse purement plasma. Plus précisément, nous avons cartographié à l'aide de simulations numériques la grandeur η en fonction de ρ , θ et ϵ à ionisation constante. La figure 3.5 résume les résultats de cette analyse. Elle indique que la configuration

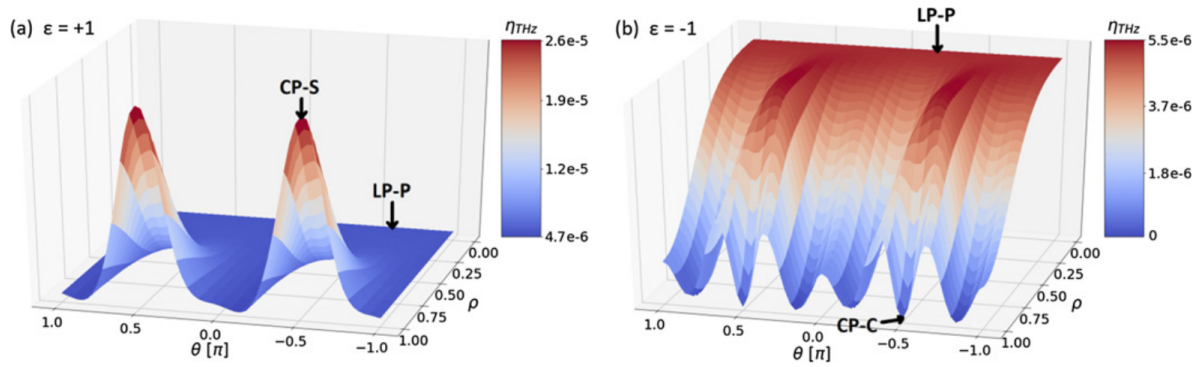


FIGURE 3.5: Estimation LC du rendement de conversion laser-THz en fonction de ρ et θ pour (a) $\epsilon = +1$ et pour (b) $\epsilon = -1$ à ionisation constante. L'impulsion laser et le milieu sont similaires à ceux employés pour la figure 3.2(a). Source : Tailliez [139]

optimale recherchée est à nouveau la polarisation CP-S.

3.1.5 Simulations UPPE

Afin de confirmer ces estimations, des simulations CUP3D ont été effectuées pour des impulsions laser LP-P, CP-S, CP-C et de polarisation elliptique ($\rho = 0.9$, $\theta = -0.446\pi$ et $\epsilon = -1$) proche de l'état CP-C ($\rho = 1$, $\theta = -\pi/2$ et $\epsilon = -1$). Celles-ci entrent dans une cellule de gaz d'argon ($U_i = 15.8$ eV [149]) à pression ambiante, d'indice non-linéaire $n_2 = 10^{-19}$ cm²/W [180]. Les faisceaux utilisés comportaient deux couleurs (0.8 μ m FH) vérifiant $r = 0.1$ et $\phi = \pi/2$, de durées FWHM 60 fs et de largeurs initiales 50 μ m à $1/e^2$ de l'intensité pic totale. Les impulsions étaient légèrement sous-critiques en puissance : $P_{in} = 0.77P_{cr}$. Les simulations ont employé une fenêtre temporelle de largeur 0.8 ps et de résolution 50 attosecondes, ainsi qu'une résolution spatiale d'environ 0.78 μ m. Le filtrage du rayonnement THz a été à nouveau effectué avec une fréquence de coupure $\nu_{co} = 90$ THz.

La figure 3.6(a) montre l'évolution simulée par CUP3D de la densité électronique maximale en (t, x, y) en fonction de la distance de propagation du faisceau (z) pour les quatre cas étudiés. Toutes les impulsions polarisées circulairement présentent des niveaux de densité similaires et sont atténués de manière lisse par la défocalisation plasma et les courants de perte. Quant au cas LP-P, il génère une densité électronique jusqu'à 5 fois plus élevée que les autres impulsions pour $z < 100$ μ m, ce qui est justifié par une amplitude plus élevée d'un facteur $\sqrt{2}$ qu'en polarisation circulaire [cf. relations (3.2), (3.4) et (3.5)]. Cette forte densité provoque des courants de pertes d'autant plus importants menant à une détérioration rapide du filament. La figure 3.6(b) illustre

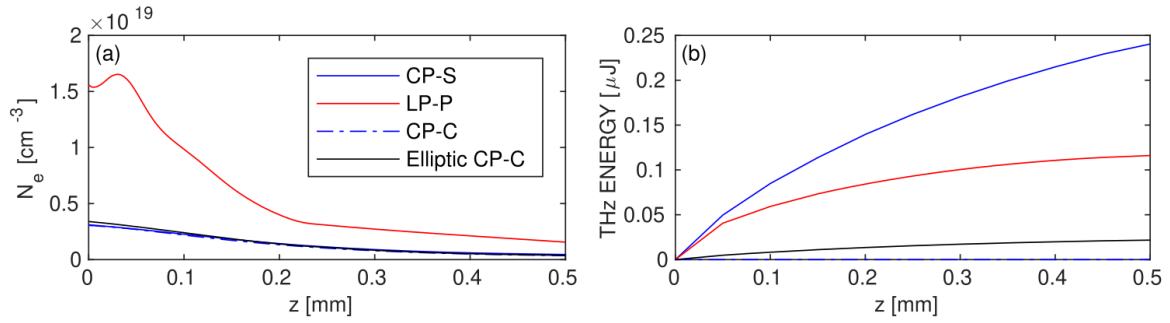


FIGURE 3.6: Simulation CUP3D de l'évolution avec la distance de propagation de (a) la densité électronique maximale et de (b) l'énergie THz générée pour une impulsion LP-P (courbe rouge), CP-S (courbe bleue pleine) et CP-C (courbe bleue pointillée). La courbe noire correspond à un état de polarisation elliptique proche du cas CP-C ($\rho = 0.9$, $\theta = -0.446\pi$). Les caractéristiques des impulsions et du milieu sont précisées dans le texte. Source : Tailliez [139]

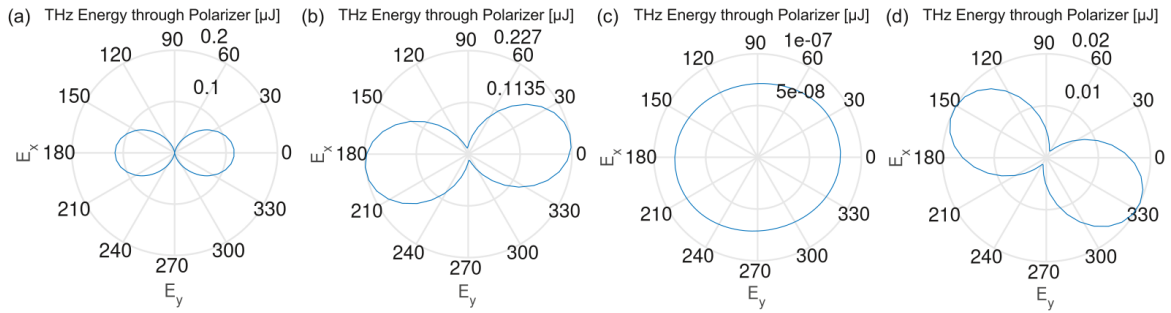


FIGURE 3.7: Simulation CUP3D de l'énergie THz transmise à travers un polariseur situé à $z = 500 \mu\text{m}$ (fin de la boîte de simulation) pour un faisceau (a) LP-P, (b) CP-S, (c) CP-C et (d) elliptique proche de l'état CP-C. Les caractéristiques des impulsions et du milieu sont associées à celles de la figure 3.6. Source : Tailliez [139]

l'augmentation de l'énergie THz produite le long du canal plasma. Elle confirme les prédictions analytiques et les simulations LC, à savoir que l'impulsion CP-S génère un rayonnement THz plus intense que le cas LP-P. En particulier, le ratio entre les énergies THz engendrées entre l'impulsion CP-S et l'impulsion LP-P est d'environ 1.44 à $z = 100 \mu\text{m}$ (où $N_e^{\text{LP-P}}/N_e^{\text{CP-S}} \approx 5$), et s'élève à 2.1 à $z = 500 \mu\text{m}$ (où $N_e^{\text{LP-P}}/N_e^{\text{CP-S}} \approx 3.76$). En normalisant les énergies THz produites par la densité maximale associée afin d'effectuer des comparaisons à ionisations égales, l'augmentation du rendement η est d'environ 7.2-7.9 entre les configurations LP-P et CP-S, en accord avec les prédictions LC annonçant une hausse d'un facteur d'environ 5-6. Enfin, les simulations UPPE ont confirmé que le faisceau CP-C induit un rendement quasi-nul. En revanche, l'impulsion elliptique proche du cas CP-C produit un rayonnement THz non-négligeable, comme montré par la figure 3.7(d).

Ces simulations tridimensionnelles ont également permis de confirmer les prédictions LC sur l'état de polarisation du rayonnement THz généré. La figure 3.7 indique que le champ THz produit par des impulsions LP-P et CP-S est polarisé linéairement, dans le premier cas selon l'axe de polarisation du champ laser, et dans le second cas selon un axe légèrement tourné. L'angle d'orientation du champ THz généré par l'impulsion CP-S est plus faible que celui prédit analytiquement par la relation (3.27), à savoir $\phi = \pi/2$, ce qui peut être attribué aux variations radiales et temporelles de l'intensité laser associées à l'enveloppe de l'impulsion. Le caractère isotrope de la polarisation THz dans le cas CP-C est dû à l'absence de rayonnement basse-fréquence conséquent. Remarquons enfin que le cas elliptique proche de l'état CP-C produit, à l'image des configurations LP-P et CP-S, un champ THz polarisé linéairement.

3.1.6 Confirmation expérimentale

L'étude présentée dans la section précédente a été menée en parallèle d'une campagne expérimentale réalisée par les chercheurs du LRC² en Lituanie. Ces expériences ont consisté à générer un rayonnement THz à partir d'un plasma d'argon à pression ambiante, formé par des faisceaux laser en configurations LP-P, CP-S, LP-O et CP-C. Un schéma du montage expérimental est présenté en figure 3.8. Un laser Ti:Saphir de taux de répétition 1 kHz a été utilisé pour produire des impulsions de fondamental 790 nm, d'énergie 8 mJ et de durée 40-45 fs à mi-hauteur. L'énergie des impulsions est réglable par l'insertion de miroirs diélectriques (DM) fins, partiellement réfléchissants. Les impulsions délivrées sont ensuite dissociées en deux bras par un séparateur (BS1). La deuxième harmonique de la pompe est formée à l'aide d'un cristal BBO de 200 μm d'épaisseur. Une ligne à retard (DL) permet de contrôler le décalage temporel entre les faisceaux des deux bras. La polarisation laser est fixée à l'aide de lames demi-onde (HWP) et quart d'onde (QWP). Plus précisément, les lames quart d'onde permettent d'appliquer une polarisation circulaire aux deux couleurs, et les lames demi-ondes ont permis d'appliquer une polarisation linéaire aux harmoniques. Les couleurs sont ensuite regroupées au moyen d'un séparateur de faisceaux (BS2) puis focalisées par un miroir focalisant de focale ≈ 22 cm.

Un filament plasma de quelques mm a ainsi pu être formé et observé. La pompe résiduelle ainsi que le rayonnement THz ont été guidés à travers deux miroirs paraboliques (PM1 et PM2) vers un filtre passe-bas en silicone. L'onde THz est alors détectée par un dispositif pyro-électrique.

2. Laser Research Center, Vilnius University, Sauletekio 10, Vilnius LT-10223, Lithuania

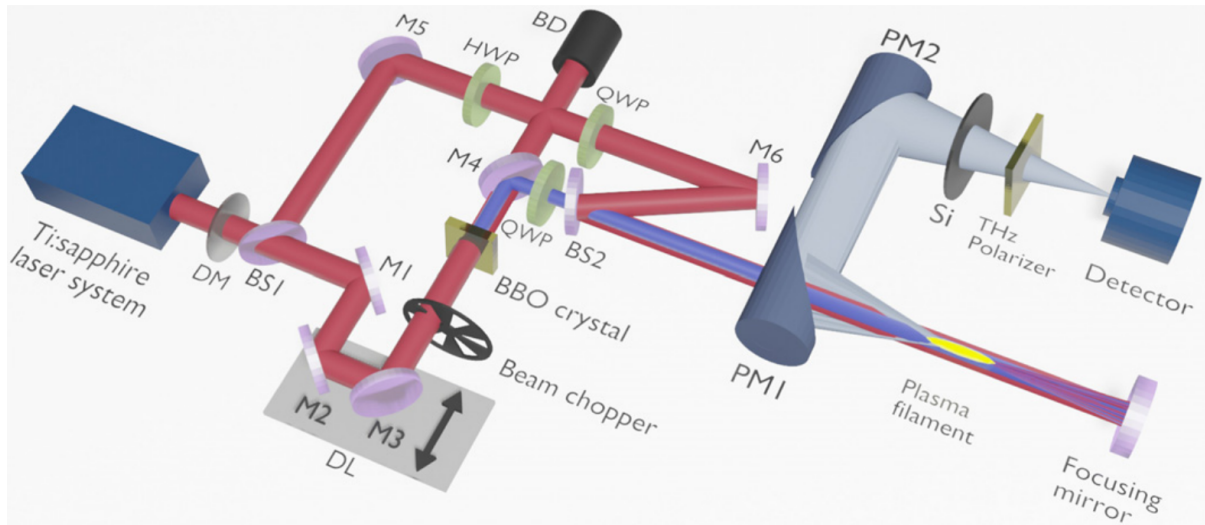


FIGURE 3.8: Schéma de l'expérience. DM, M1-M6 : Miroirs diélectriques. HWP et QWP : Lames demi- et quart d'onde. BS1, BS2 : Séparateurs de faisceaux. PM1, PM2 : Miroirs hors-axe paraboliques. DL : Ligne à retard. BD : Evacuateur de faisceau. Les harmoniques un (fondamental) et deux sont montrées respectivement en rouge et bleu. Le rayonnement THz est représenté en gris. Source : Tailliez [139]

L'état de polarisation de cette impulsion a pu être mesuré à l'aide d'un polariseur THz en polyéthylène à haute densité (HDPE). Enfin, l'imagerie THz a été réalisée à l'aide d'une caméra thermique fonctionnant entre 0.1 et 40 THz.

Les mesures des énergies des impulsions THz générées et de leur état de polarisation sont illustrées en figure 3.9. Les énergies associées au fondamental et au second harmonique étaient respectivement de 0.92 mJ et de 0.03 mJ, ce qui correspond au rapport $r \approx 3.3 \%$. En accord avec les prédictions LC et les simulations CUP3D, la figure 3.9(a) montre qu'une impulsion CP-S génère un rayonnement THz plus intense qu'une impulsion LP-P. Plus précisément, l'onde THz formée par le faisceau CP-S était environ 4.3 fois plus intense que son équivalent LP-P. Les énergies mesurées dans les cas LP-O et CP-C sont beaucoup plus faibles, mais non-nulles. Ce résultat est attribué à la difficulté de produire parfaitement une impulsion CP-C. La figure 3.7 a d'ailleurs permis de montrer qu'une légère perturbation dans les paramètres laser d'un faisceau CP-C peut émettre un rayonnement THz conséquent. L'état de polarisation de l'onde THz produite par une impulsion LP-P est linéaire, comme prévu par la théorie et les simulations. Dans le cas CP-S, le rayonnement THz est cependant plutôt isotrope, ce qui est attribué à un défaut d'alignement entre les faisceaux FH et SH [139].

Afin de compléter cette étude expérimentale, une imagerie des impulsions THz formées a été réa-

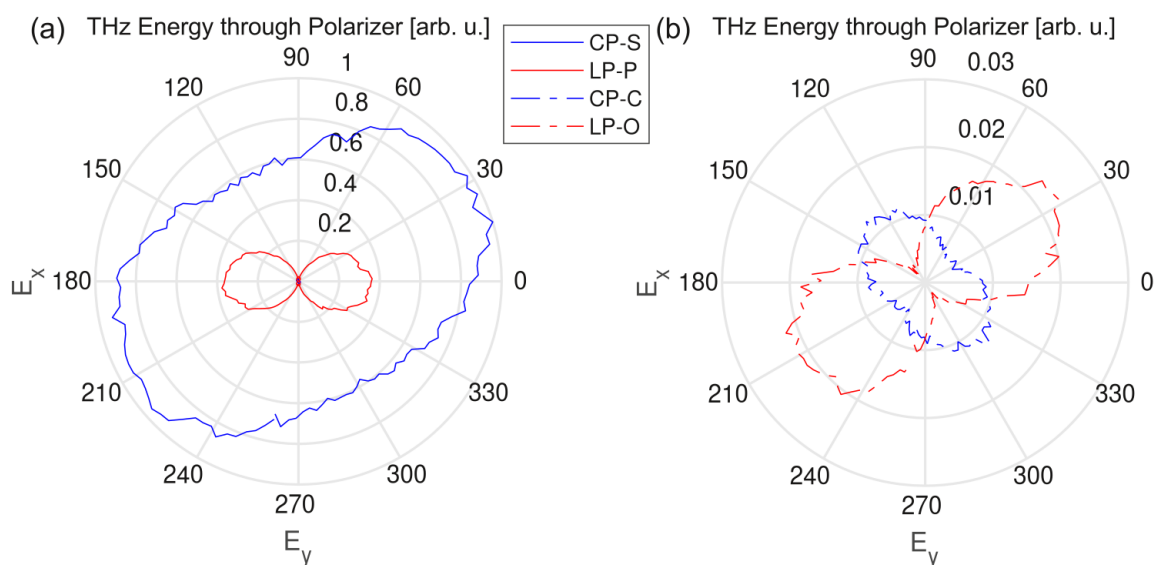


FIGURE 3.9: Mesure expérimentale de l'énergie et de l'état de polarisation de l'impulsion THz passée à travers le polariseur et générée par une impulsion LP-P (courbe rouge pleine), CP-S (courbe bleue pleine), LP-O (courbe rouge pointillée) ou CP-C (courbe bleue pointillée). Source : Tailliez [139]

lisée pour mesurer leur profil spatial en présence ou en l'absence d'un défaut d'alignement entre les deux composantes optiques. La figure 3.10 indique que loin du filament laser, le rayonnement THz prend la forme d'un cône, dont l'angle d'ouverture vaut environ 5° [47, 181, 182]. C'est un résultat typique obtenu lors de la génération THz par plasma d'air, qui sera explicité dans le chapitre 4. En présence de défauts d'alignement entre les faisceaux FH et SH (angle entre les axes optiques, décalage spatial), la symétrie de ce cône est brisée de sorte que le faisceau THz mesuré présente un profil en forme de croissant de lune, comme illustré par la figure 3.10(b).

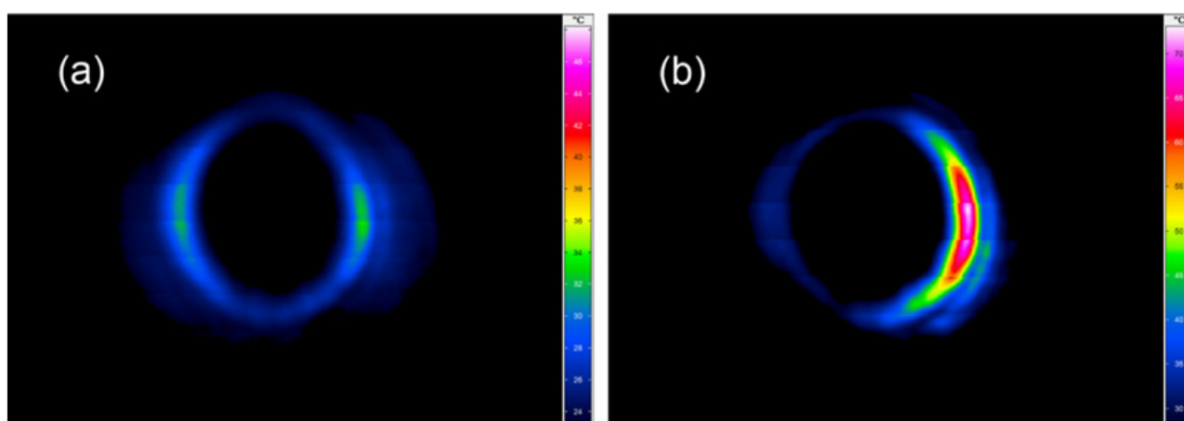


FIGURE 3.10: Champ THz mesuré par une caméra thermique loin du filament pour un décalage spatial des impulsions FH et SH (a) quasi-nul et (b) d'environ $40 \mu\text{m}$, accompagné d'une différence d'orientation (aussi nommée *tilt*) des axes optiques de $\approx 0.7 \text{ mrad}$. Source : Tailliez [139]

3.2 Ajout d'harmoniques laser

L'étude précédente ne concernait que des impulsions laser limitées à deux composantes spectrales. Afin d'explorer de nouvelles pistes pour augmenter le rendement de conversion laser-THz η , nous étudions ici l'avantage potentiel d'ajouter des couleurs supplémentaires au faisceau pompe. Cette section commence par présenter le problème d'optimisation de l'efficacité de conversion laser-THz pouvant être dérivé à l'aide du modèle LC, ainsi que sa résolution analytique en se limitant aux faisceaux LP-P. Ces développements sont issus des travaux de González de Alaiza Martínez et al. [112], et servent de base pour ensuite généraliser cette étude aux impulsions polarisées circulairement [183]. En lien avec cette thématique, nous présentons ensuite des mesures expérimentales de production de rayonnement THz par une impulsion laser à trois couleurs réalisées par des équipes extérieures.

3.2.1 Dérivation du champ laser Sawtooth LP-P

Nous dérivons analytiquement l'équation du champ laser permettant d'optimiser le rendement η donné par l'équation (3.32). Pour cela, le formalisme du modèle LC est particulièrement adapté compte tenu de sa simplicité. En gardant l'énergie laser constante, maximiser η revient donc à maximiser l'énergie THz. Le modèle LC estime le spectre THz à l'aide des pas d'ionisation et des grandeurs $\vec{v}_f(t_n)$ à travers la relation (3.14). Le problème d'optimisation à résoudre s'écrit alors [112] :

$$\vec{E}_{\text{opt}}(\omega) = \max_{\vec{E}_L \in \mathcal{E}_L} \sum_n \delta N_e^n \vec{v}_f(t_n) e^{i\omega t_n}, \quad (3.34)$$

où \mathcal{E}_L décrit l'ensemble des champs laser possibles et où nous avons considéré que le rayonnement THz est entièrement dû aux photo-courants.

Soit $\vec{E}(t)$ le champ laser correspondant à la solution recherchée parmi les impulsions à N couleurs polarisées linéairement³. Ce champ s'écrit de manière générale :

$$\vec{E}(t) = E_0 \sum_{k=1}^N a_k \cos(k\omega_0 t + \phi_k) \vec{e}_x, \quad (3.35)$$

où les coefficients a_k décrivent la portion d'énergie laser contenue dans la k^{eme} harmonique, de

3. Dans cette section, N se réfère au nombre de couleurs laser, bien que cette notation décrivait précédemment le nombre d'évènements d'ionisation. Ce dernier n'est pas utilisé ici, ce qui évite toute confusion.

phase ϕ_k .

Par souci de simplicité et sans perte de généralité, nous posons que $|E(t)|$ admet un maximum en $t = 0$. Le champ recherché vérifie donc

$$\frac{\partial E}{\partial t}(t = 0) = -\omega_0 \sum_{k=1}^N k a_k \sin(\phi_k) = 0. \quad (3.36)$$

Pour que le champ $\vec{E}(t)$ soit optimal, il est nécessaire qu'il maximise les produits $\delta N_e^n |\vec{v}_f(t_n)|$. Nous supposons que l'ionisation (liée aux pas δN_e^n) varie peu selon le champ laser étudié. La solution recherchée doit donc optimiser les grandeurs $v_f(t_n)$. En négligeant les effets d'enveloppe, ce problème revient à maximiser $v_f(0)$, qui s'écrit

$$v_f(t = 0) = -\frac{e}{m_e \omega_0} \sum_{k=1}^N \frac{a_k}{k} \sin(\phi_k). \quad (3.37)$$

Par définition, $a_{k=\{1,\dots,N\}} \geq 0$ et par normalisation :

$$\sum_{k=1}^N a_k^2 = 1. \quad (3.38)$$

Puisque tous les coefficients a_k sont de même signe, le champ recherché doit vérifier $|\sin \phi_k| = 1$ pour maximiser $v_f(0)$, d'où $\phi_k = \pm\pi/2$. Le système d'équations formé par les relations (3.36) à (3.38) permet de trouver les signes des ϕ_k et les valeurs des a_k . Pour le résoudre, nous ré-exprimons le problème d'optimisation (3.37) comme satisfaisant les contraintes (3.36) et (3.38) réécrites sous forme vectorielle. Nous introduisons les vecteurs :

$$\vec{a} = \{a_1, \dots, a_k\}, \quad (3.39)$$

$$\vec{b} = \{\omega_0 \sin(\phi_1), \dots, N\omega_0 \sin(\phi_N)\}, \quad (3.40)$$

$$\vec{c} = \{\omega_0^{-1} \sin(\phi_1), \dots, (N\omega_0)^{-1} \sin(\phi_N)\}, \quad (3.41)$$

Dans ce formalisme, les relations (3.38), (3.36) et (3.37) se réécrivent respectivement :

$$|\vec{a}|^2 = 1 \quad (3.42)$$

$$\frac{\partial E}{\partial t}(t=0) = -\vec{a} \cdot \vec{b} = 0, \quad (3.43)$$

$$v_f(t=0) = -\frac{e}{m_e} \vec{a} \cdot \vec{c}. \quad (3.44)$$

Nous cherchons à déterminer l'expression de $\vec{a} \cdot \vec{c}$ sous les contraintes ci-dessus. Le vecteur \vec{a} solution du problème d'optimisation satisfait la relation fonctionnelle :

$$\vec{a} = C \left(\vec{c} - \frac{\vec{b} \cdot \vec{c}}{|\vec{b}|^2} \vec{b} \right), \quad (3.45)$$

avec C une constante permettant de vérifier $|\vec{a}|^2 = 1$.

Puisque $\vec{b} \cdot \vec{c} = N$ et $|\vec{b}|^2 = \omega_0^2 \sum_{k=1}^N k^2$, la relation précédente permet de déterminer la valeur des coefficients a_k :

$$a_k = \frac{C}{\omega_0} \left(\frac{1}{k} - k \frac{N}{\sum_{k=1}^N k^2} \right) = \frac{C}{\omega_0} \left(\frac{1}{k} - \frac{6k}{(N+1)(2N+1)} \right). \quad (3.46)$$

La constante C est obtenue en sommant la relation précédente et en utilisant la propriété $\sum_k |a_k|^2 = 1$. Elle fixe l'optimum $\vec{a} \cdot \vec{c} = 1/C$ en vertu de l'égalité $|\vec{a}|^2 = 1 = C(\vec{a} \cdot \vec{c})$. De plus, nous posons que N est suffisamment grand pour que $a_k \approx C/(k\omega_0)$. Nous trouvons alors l'expression de C :

$$C \approx \frac{\omega_0}{\sqrt{\sum_k k^{-2}}}, \quad (3.47)$$

conduisant à

$$a_k \approx \frac{1}{k \sqrt{\sum_{j=1}^N j^{-2}}}. \quad (3.48)$$

Afin de vérifier l'équation (3.36), il est nécessaire que les signes des phases ϕ_k soient alternés :

$$\phi_k = (-1)^k \frac{\pi}{2}, \quad (3.49)$$

où nous avons choisi arbitrairement de poser $\phi_1 = -\pi/2$ sans perte de généralité.

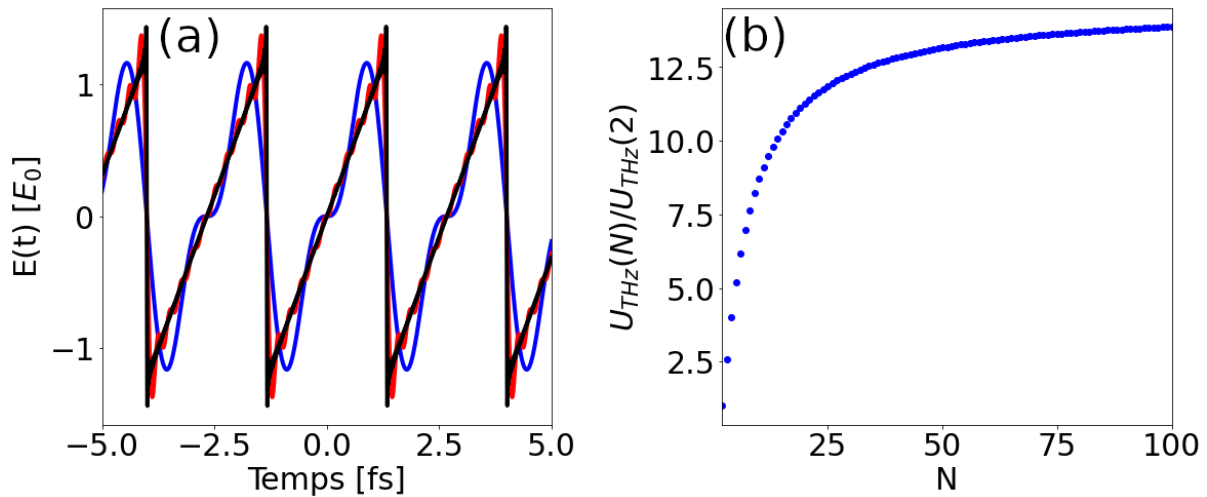


FIGURE 3.11: (a) Profil temporel du champ laser Sawtooth LP-P pour $N = 2$ (courbe bleue), $N = 10$ (courbe rouge) et $N = 100$ (courbe noire). (b) Estimation LC du taux d'accroissement de l'énergie THz produite en fonction de N en suivant la relation (3.50), normalisée par rapport à $U_{\text{THz}}(2)$.

Le champ laser LP-P à N couleurs, solution du problème d'optimisation (3.34), s'écrit donc finalement :

$$\vec{E}(t) = \frac{E_0}{\sqrt{\sum_{j=1}^N j^{-2}}} \sum_{k=1}^N \frac{(-1)^{k+1}}{k} \sin(k\omega_0 t) \vec{e}_x. \quad (3.50)$$

Graphiquement, ce champ prend une forme qui tend vers une série de dents de scie périodiques lorsque $N \rightarrow +\infty$, comme illustré par la figure 3.11(a). C'est pourquoi il est nommé champ "Sawtooth LP-P à N couleurs". Remarquons que les maxima de $|E(t)|$ (donc les instants d'ionisation) sont synchronisés avec les maxima de $|\int_t E(t') dt'|$ (donc les maxima de $|v_f(t)|$), ce qui est rendu possible grâce aux discontinuités que ce champ présente à chaque t_n . Cette propriété explique clairement la raison pour laquelle le champ Sawtooth LP-P est capable de maximiser les produits $\delta N_e^n v_f(t_n)$ à ionisation constante.

Le modèle LC permet aussi d'estimer la croissance d'énergie THz produite avec l'augmentation du nombre d'harmoniques N . Comme précisé dans l'annexe C, les instants d'ionisation t_n associés au champ Sawtooth LP-P à N couleurs sont donnés par

$$t_n = \omega_0^{-1} \left(\pm \frac{N}{N+1} \pi + 2\pi n \right). \quad (3.51)$$

Les grandeurs $v_f(t_n)$ s'écrivent donc

$$v_f(t_n) = \frac{eE_0}{m_e \sqrt{\sum_{j=1}^N j^{-2}}} \sum_{k=1}^N \frac{(-1)^k}{k^2} \cos\left(\frac{N}{N+1} k\pi\right). \quad (3.52)$$

En supposant que tous les δN_e^n ont une hauteur identique δN_e , l'énergie THz générée U_{THz} est obtenue à partir de

$$U_{\text{THz}}(N) \propto (\delta N_e)^2 \left(\sum_n v_f(t_n) \right)^2. \quad (3.53)$$

Nous supposons ensuite que les coefficients g et δN_e sont indépendants du nombre de couleurs N . Les effets d'enveloppe ainsi que les interférences entre les différentes bouffées THz sont également négligés. En remarquant que le nombre d'instants d'ionisation reste le même quel que soit N , le rapport $U_{\text{THz}}(N)/U_{\text{THz}}(2)$ est donc proportionnel au rapport $(v_f(t_n)|_N/v_f(t_n)|_2)^2$. Nous en déduisons une approximation de l'accroissement de $U_{\text{THz}}(N)$:

$$\frac{U_{\text{THz}}(N)}{U_{\text{THz}}(2)} \approx \frac{1}{U_{\text{THz}}(2)} \frac{\left(\sum_{k=1}^N \frac{(-1)^k}{k} \cos\left(\frac{N}{N+1} k\pi\right) \right)^2}{\sum_{j=1}^N j^{-2}}. \quad (3.54)$$

Cette fonction est tracée en figure 3.11(b). Elle révèle une augmentation importante du rendement de conversion laser-THz, qui tend vers un facteur proche de 15 pour une courbe en dents de scie "idéale" ($N \approx 100$) par rapport au cas à 2 couleurs.

3.2.2 Caractérisation du champ laser Sawtooth CP-S

Après avoir montré que pour une impulsion à deux couleurs, une polarisation CP-S permet d'augmenter fortement l'énergie THz produite, il est naturel d'appliquer un tel état de polarisation au champ Sawtooth établi par [112] en polarisation linéaire. Par analogie avec la relation (3.50), nous définissons le champ Sawtooth CP-S à N couleurs par :

$$\vec{E}(t) = \frac{E_0}{\sqrt{2 \sum_{j=1}^N j^{-2}}} \sum_{k=1}^N \frac{(-1)^{k+1}}{k} \begin{pmatrix} \sin(k\omega_0 t) \\ -\cos(k\omega_0 t) \end{pmatrix}. \quad (3.55)$$

Le profil temporel de ce champ est tracé sur la figure 3.12(a). Sa composante $E_x(t)$ reproduit la courbe en dents de scie décrite par l'équation (3.50), alors que sa composante $E_y(t)$ se présente comme une suite de pics très intenses. Remarquons que les instants d'ionisation associés à la Sawtooth CP-S sont les mêmes que ceux liés à la Sawtooth LP-P, décrits par la relation (3.51).

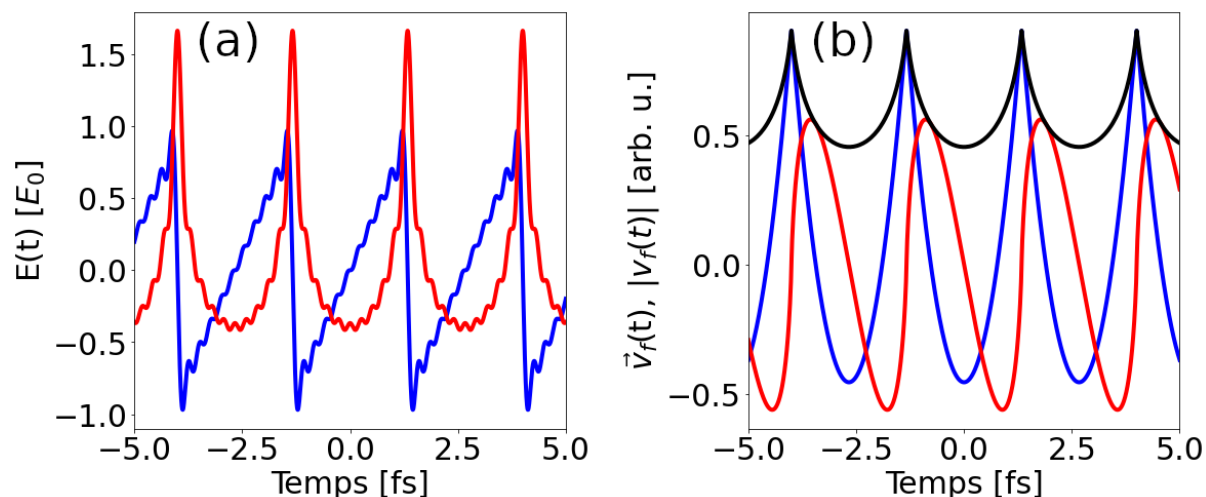


FIGURE 3.12: (a) Profil temporel des composantes E_x (courbe bleue) et E_y (courbe rouge) du champ laser Sawtooth CP-S où $N = 10$. (b) Evolution des composantes $v_{f,x}$ (courbe bleue) et $v_{f,y}$ (courbe rouge) ainsi que du module $|\vec{v}_f|$ (courbe noire).

La fonction $|\vec{v}_f(t)|$ correspondant à la Sawtooth CP-S et tracée en figure 3.12(b) est également maximale en t_n . Le champ décrit par (3.55) est donc également un bon candidat pour la solution du problème d'optimisation (3.34).

A l'instar du champ Sawtooth LP-P, l'accroissement de U_{THz} avec le nombre de couleurs N d'un champ Sawtooth CP-S peut être estimé à l'aide du modèle LC. Pour ce faire, nous procédons à un développement similaire à celui effectué dans la partie précédente. Les grandeurs $\vec{v}_f(t_n)$ s'écrivent

$$\vec{v}_f(t_n) = \frac{eE_0}{m_e \sqrt{2} \sum_j j^{-2}} \sum_{k=1}^N \frac{(-1)^k}{k^2} \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{N}{N+1} k\pi\right) \\ \sin\left(\frac{N}{N+1} k\pi\right) \end{pmatrix}. \quad (3.56)$$

En réutilisant les hypothèses énoncées lors du développement précédent (niveau d'ionisation identique, i.e., saturé pour les configurations laser considérées), on obtient directement

$$U_{\text{THz}}^{\text{CP-S}}(N) \propto |\vec{v}_f(t_n)|^2. \quad (3.57)$$

En normalisant $U_{\text{THz}}^{\text{CP-S}}(N)$ par rapport à $U_{\text{THz}}^{\text{CP-S}}(2)$, nous trouvons finalement :

$$\frac{U_{\text{THz}}^{\text{CP-S}}(N)}{U_{\text{THz}}^{\text{CP-S}}(2)} \approx \frac{1}{U_{\text{THz}}^{\text{CP-S}}(2)} \sum_{j=1}^N \frac{1}{j^2}. \quad (3.58)$$

La figure 3.13(a) compare cette fonction (courbe rouge pointillée) avec celle trouvée pour une

impulsion LP-P (courbe bleue pointillée). Nous observons à nouveau qu'ajouter des composantes spectrales à une impulsion CP-S tend à fortement augmenter le rendement de conversion. Cependant, un résultat étonnant est l'inversion de cette tendance pour un nombre élevé d'harmoniques : au-delà de $N \approx 6 - 7$, une impulsion LP-P est plus performante pour générer une onde THz qu'un faisceau CP-S d'après le modèle LC analytique. Des simulations numériques de ce modèle dans l'air composé à 20 % d'O₂ ($U_i = 12.1$ eV) et à 80 % de N₂ ($U_i = 15.6$ eV) employant les modèles d'ionisation QST (courbes bleue et rouge pleines) et PPT (courbes cyan et magenta pleines) sont en accord avec ce comportement analytique, comme montré par la figure 3.13(c). Elles font intervenir des impulsions laser de fondamental 1.6 μm , de durée 60 fs et d'intensité pic 200 TW/cm². Il est intéressant de remarquer que ces simulations révèlent également une inversion dans les comportements des impulsions LP-P et CP-S par rapport à l'ionisation lorsque N augmente. En effet, pour $N = 2$, la densité électronique croît plus rapidement pour un champ laser LP-P que pour un champ CP-S, a contrario du cas $N = 10$, pour lequel un résultat inverse est observé, comme indiqué par la figure 3.13(b).

Dans le but d'expliquer ces résultats, une intégration numérique de la densité électronique $N_e(t)$ et des grandeurs $\vec{v}_f(t_n)$ dans les cas LP-P et CP-S à 2 et 10 couleurs est présentée en figure 3.14. Les impulsions précédentes conduisent toutes à une ionisation (modélisée par le taux QST) de l'O₂ saturée. L'énergie THz produite est donc dépendante uniquement des grandeurs $\vec{v}_f(t_n)$ au vu de la relation (3.14). Remarquons que pour les cas à 2 couleurs, le champ laser LP-P, dont l'amplitude est plus forte d'un facteur $\sqrt{2}$, conduit à un plasma saturé plus rapidement que pour le cas CP-S. Ce comportement est conforme aux simulations CUP3D illustrées par la figure 3.6. Cependant, l'impulsion CP-S génère des vitesses de dérive électronique $\vec{v}_f(t_n)$ plus importantes, en accord avec les relations (3.25) et (3.27) qui montrent que ces grandeurs sont proportionnelles au second harmonique dans le cas LP-P, et au fondamental dans le cas CP-S. Pour des impulsions à 10 couleurs, ces conclusions s'inversent : la configuration LP-P sature le milieu moins rapidement que le champ CP-S, mais présente des $v_f(t_n)$ plus élevés. En effet, contrairement au cas à 2 couleurs, les instants d'ionisation t_n sont synchronisés avec les maxima de $|E(t)|$ dans le cas LP-P, ce qui explique la forte augmentation des vitesses de dérive $v_f(t_n)$. Quant à la configuration CP-S, cette synchronisation était déjà vérifiée à 2 harmoniques, ce qui indique que l'ajout de couleurs est moins efficace pour améliorer la production THz dans ce cas. De plus, la figure 3.14(d) révèle que les $v_{f,y}(t_n)$ sont quasi-nuls aussi bien dans le cas

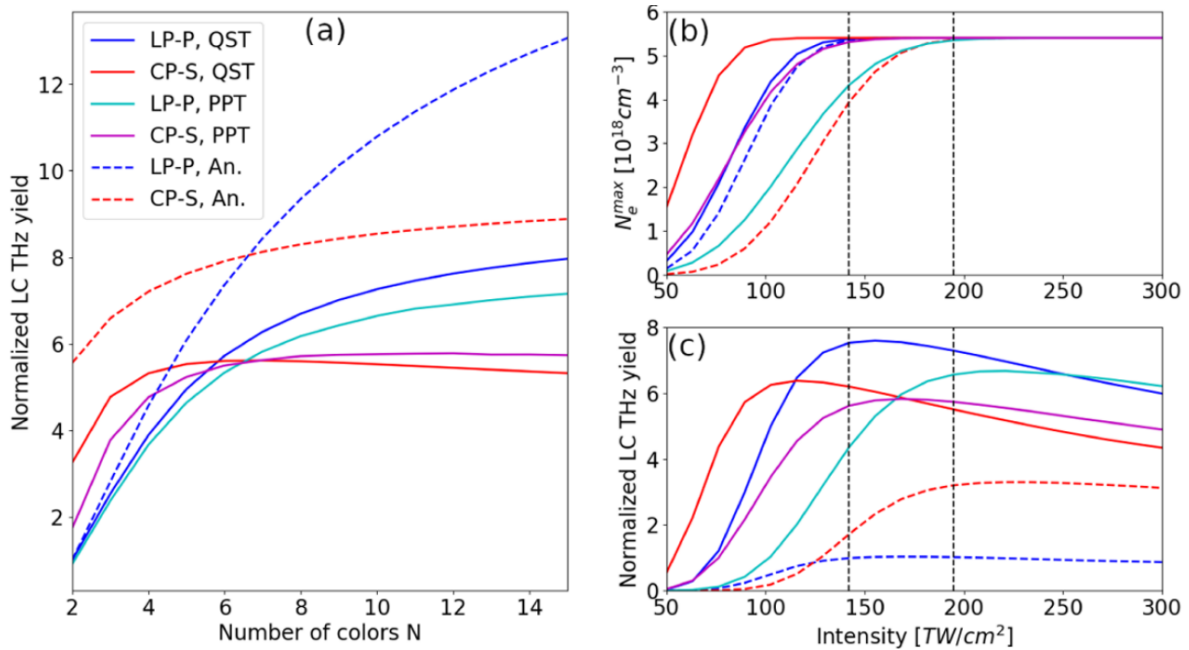


FIGURE 3.13: (a) Estimations LC analytiques (courbes pointillées) ou numériques (courbes pleines) de l'énergie THz produite par une impulsion Sawtooth LP-P ou CP-S comportant 2 à 15 couleurs (1.6 μm FH, 60 fs, 200 TW/cm^2), à l'aide du taux d'ionisation QST (courbes bleue et rouge) ou PPT (courbes cyan et magenta). Les résultats obtenus sont normalisés par rapport à la configuration LP-P à deux couleurs correspondante. Simulations LC de l'évolution de (b) la densité électronique finale et (c) du rendement de conversion LC en fonction de l'intensité pic d'une impulsion LP-P (courbes bleues/cyan) ou CP-S (courbes rouges/magenta) à 2 (courbes pointillées) ou 10 couleurs (courbes pleines) à l'aide du modèle QST (courbes bleues/rouges) ou PPT (courbes cyan/magenta). Source : Stathopulos [183]

LP-P que dans le cas CP-S, ce qui signifie que seuls les $v_{f,x}(t_n)$ contribuent au rayonnement THz. Or, la polarisation circulaire assure $E_x^{\text{CP-S}}(t) = E_x^{\text{LP-P}}(t)/\sqrt{2}$, ce qui implique donc que $v_{f,x}^{\text{CP-S}}(t_n) = v_{f,x}^{\text{LP-P}}/\sqrt{2}$.

3.2.3 Simulations CUP3D de production de rayonnement THz par des impulsions Sawtooth

Afin de confirmer ces estimations, nous avons effectué des simulations CUP3D d'impulsions LP-P et CP-S à 2 et 10 couleurs, de fondamental 1.6 μm , de durée 60 fs, et d'intensité pic initiale de 200 TW/cm^2 , entrant dans une cellule d'air et s'y propageant sur 500 μm . Le rayonnement THz est toujours obtenu par filtrage passe-bas $\nu_{co} = 90$ THz. Nous avons commencé par effectuer ces simulations dans l' O_2 , dont la photo-ionisation est modélisée à l'aide du taux QST. Les résultats, présentés sur les figures 3.15(a, b), sont en bon accord avec la théorie car on observe

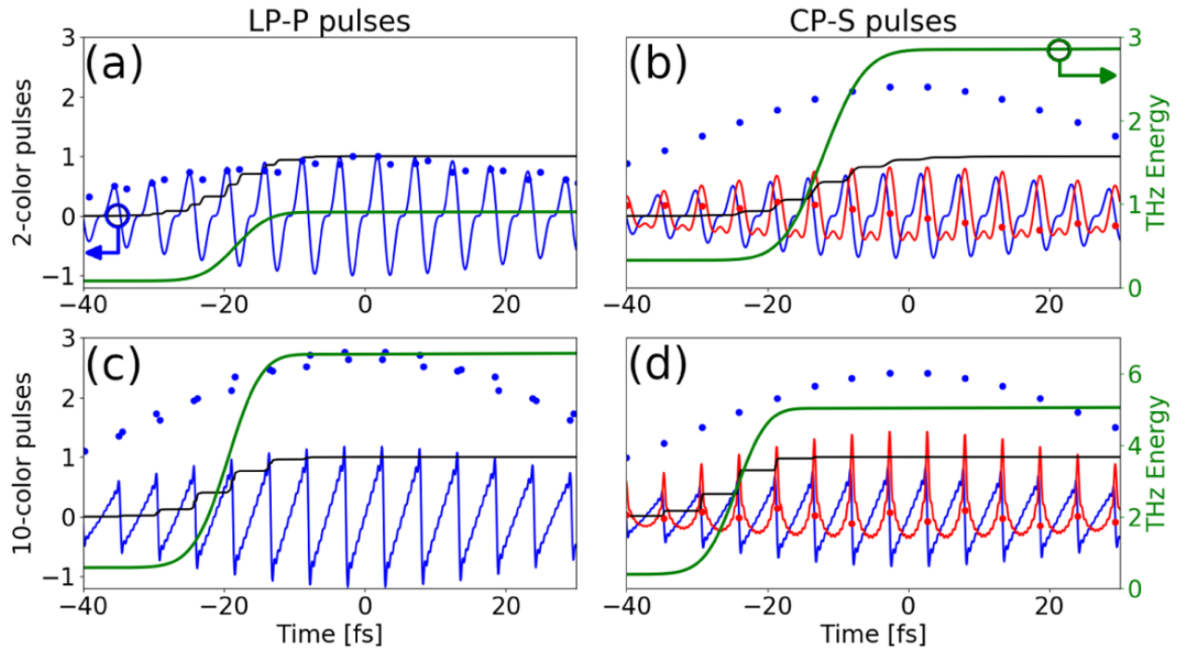


FIGURE 3.14: Axe de gauche : Composantes $E_x(t)$ (courbe bleue) et $E_y(t)$ (courbe rouge) du champ laser, densité électronique $N_e(t)$ (courbe noire), grandeurs $v_{f,x}(t_n)$ (points bleus) et $v_{f,y}(t_n)$ (points rouges) en fonction du temps pour une impulsion LP-P à (a) 2 ou (c) 10 couleurs, et pour une impulsion CP-S à (b) 2 ou (d) 10 couleurs. Axe de droite : Evolutions temporelles de $|\int_{-\infty}^t \partial_t N_e \vec{v}_f(t) dt|^2$ (courbes vertes), qui est analogue à l'énergie THz produite au cours du temps. Les impulsions laser, $1.6 \mu\text{m}$ FH, de durée 60 fs FWHM, et d'intensité $200 \text{ TW}/\text{cm}^2$ ionisent l' O_2 (modèle QST). Toutes les grandeurs sont normalisées par rapport au cas LP-P à 2 couleurs. Source : Stathopoulos [183]

bien un inversion de tendance dans l'énergie produite par les impulsions LP-P et CP-S lorsque le nombre de couleurs augmente. Notons que l'énergie THz accumulée jusqu'à $z = 500 \mu\text{m}$ a augmenté d'un facteur de l'ordre de 10 pour le cas LP-P, et de 2 pour le cas CP-S lorsque N est passé de 2 à 10, ce qui s'approche des estimations LC. Des simulations plus précises faisant intervenir les impulsions LP-P et CP-S à 10 couleurs ont ensuite été réalisées dans l'air constitué de 20 % d' O_2 et de 80 % de N_2 , où nous avons employé le taux d'ionisation PPT. Les nombres de charge respectifs de ces deux espèces ont été fixés à $Z_{\text{O}_2}^* = 0.53$ et $Z_{\text{N}_2}^* = 0.9$ selon le modèle de Talebpour et al. [135]. Une nouvelle fois, les simulations montrent que la Sawtooth LP-P est plus performante que la Sawtooth CP-S pour produire un rayonnement THz intense. Le double croisement entre les énergies THz observable en $z < 100 \mu\text{m}$ [voir figure 3.15(d)] est attribué à une ionisation particulièrement forte induite par le cas CP-S en début de simulation [cf. figure 3.15(c)]. Celle-ci provoque des courants de pertes intenses la rendant moins efficace pour produire une émission THz aussi énergétique que pour le cas LP-P à partir de $z \approx 50 \mu\text{m}$.

Ce phénomène est dû à de légers décalages de phase entre les couleurs qui tendent à accroître localement les maxima du champ laser, comme illustré par l'insert en figure 3.15(c). Au vu des figures 3.15(e, f), l'inversion de comportement LP-P/CP-S est également observable dans l'argon dont l'ionisation est modélisée par le taux d'ionisation multiple décrit en section 2.1.4, et où nous avons employé des impulsions d'intensité pic $\approx 400 \text{ TW/cm}^2$. Nous avons vérifié que la présence ou l'absence d'ionisation par avalanche ne modifiait pas ces conclusions. Les niveaux de densité atteints par l'impulsion LP-P à 10 couleurs variaient entre $N_e/N_a = 1.41$ et 2.02 dans l'argon, et les niveaux maximaux associés au cas CP-S à 10 couleurs sont de 1.99 et 1.89 dans l'Ar et l'He à 0.2 bar respectivement, ce qui justifie l'utilisation du modèle d'ionisation multiple utilisé ici. Pour finir, nous pouvons remarquer à l'aide des inserts en figures 3.15(a, d) que le rayonnement THz prend une forme conique en champ lointain, d'angle d'ouverture valant $4\text{-}5^\circ$. Ces simulations CUP3D nous ont également permis de mesurer la polarisation du rayonnement THz produit dans chaque cas, comme illustré par la figure 3.16. Pour rappel, une onde THz générée par une impulsion CP-S à deux couleurs est polarisée linéairement selon un axe de rotation tourné d'un angle correspondant au déphasage ϕ entre les deux harmoniques laser, en accord avec la figure 3.16(a), qui montre également que lors de la croissance de l'énergie THz, l'axe de polarisation THz tourne dans le sens direct. Ces deux comportements restent conservés dans le cas à 10 couleurs d'après la figure 3.16(b). Nous attribuons la rotation de la direction de polarisation THz à un effet dit de chirp de phase, qui correspond à une dépendance temporelle des phases des couleurs. Ce phénomène peut être causé par différentes non-linéarités, comme l'auto-modulation Kerr, les courants de pertes, la défocalisation plasma et la dispersion plasma. Il est particulièrement visible sur les profils temporels des deux couleurs séparées de la composante E_x du champ laser CP-S en $z = 500 \text{ }\mu\text{m}$, montrés en figure 3.16(c). Afin de caractériser le chirp affectant l'impulsion pompe, nous avons modélisé à l'aide du modèle LC la polarisation de l'onde THz produite par un champ laser CP-S bicolore dont les composantes spectrales sont soumises à cet effet. Plus particulièrement, nous avons modélisé le chirp par une dépendance temporelle linéaire ou quadratique des phases des couleurs laser, alors notées $\phi_j(t)$. La figure 3.16(d) montre en effet qu'un chirp appliqué aux phases ϕ_j affecte de manière non-négligeable la direction de polarisation de l'onde THz associée.

En résumé, cette étude a permis de montrer que des impulsions laser à plus de deux couleurs sont capables d'augmenter de manière significative le rendement de conversion laser-THz. Cependant,

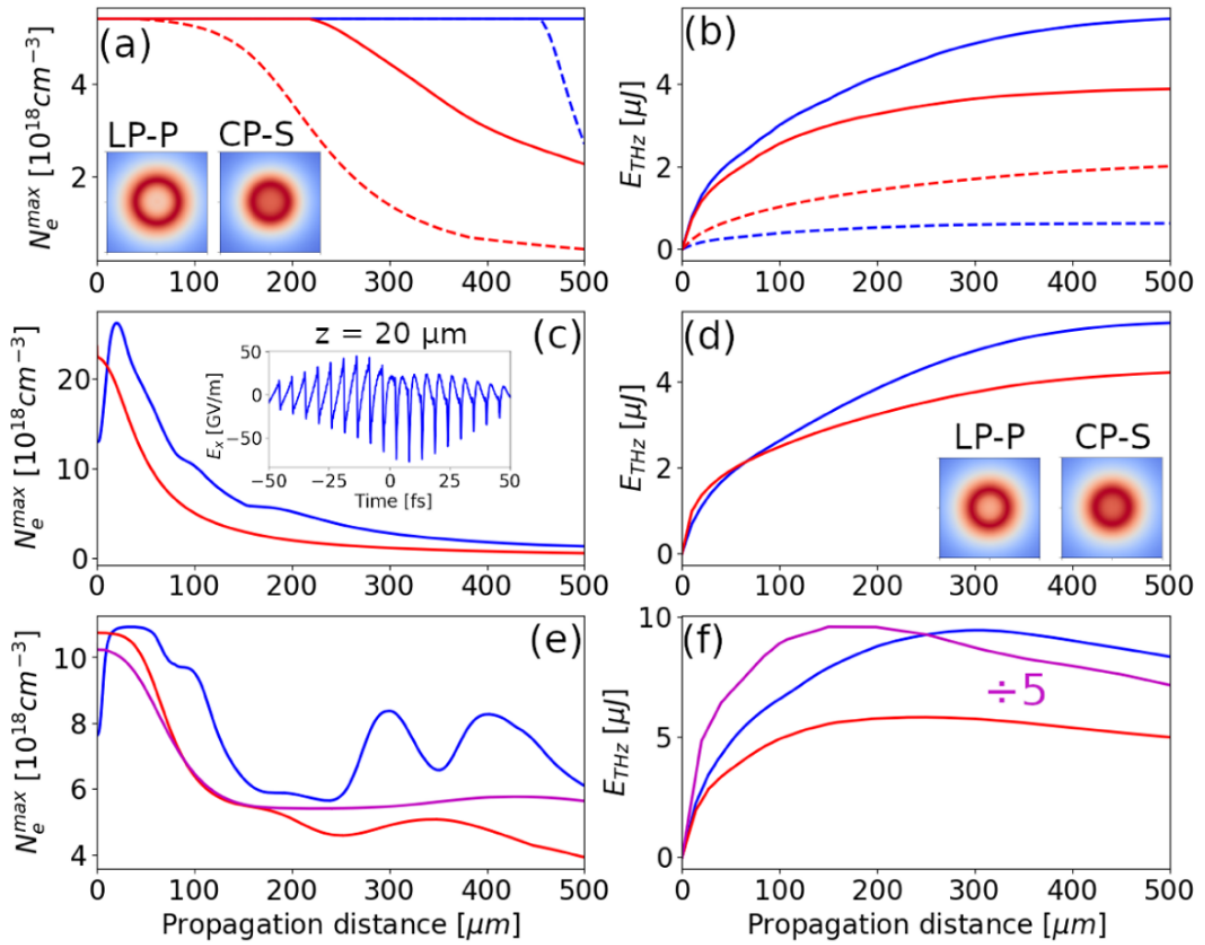


FIGURE 3.15: (a,c,e) Densités électroniques maximales et (b,d,f) énergies THz calculées par simulation UPPE pour des impulsions LP-P (courbes bleues) et CP-S (courbes rouges) à 2 (courbes pointillées) et 10 couleurs (courbes pleines). (a,b) O_2 ionisé avec le taux QST. (c,d) 20 % d' O_2 et 80 % de N_2 ionisés avec le taux PPT. Nous avons choisi $Z_{O_2}^* = 0.53$ et $Z_{N_2}^* = 0.9$ en accord avec la référence [135]. (e,f) Impulsions à 10 couleurs LP-P (courbe bleue) et CP-S (courbes rouge et magenta) ionisant l'argon (courbes bleue et rouge) ou l'hélium (courbe magenta) à 0.2 bar à l'aide du modèle d'ionisation multiple. La courbe magenta a été réduite d'un facteur 5 pour commodité graphique. Les inserts montrent la transformée de Fourier transverse du champ THz émis et révèlent une émission conique du rayonnement THz à $z = 500 \mu\text{m}$ dans le plan transverse $-100 \leq x, y \leq 100 \mu\text{m}$. Source : Stathopoulos [183]

de tels faisceaux restent inaccessibles en pratique, car la génération d'harmoniques élevées et cohérentes avec le fondamental est particulièrement complexe à réaliser. Toutefois, des efforts récents ont été réalisés dans la production d'ondes THz par des impulsions laser constituée de trois harmoniques.

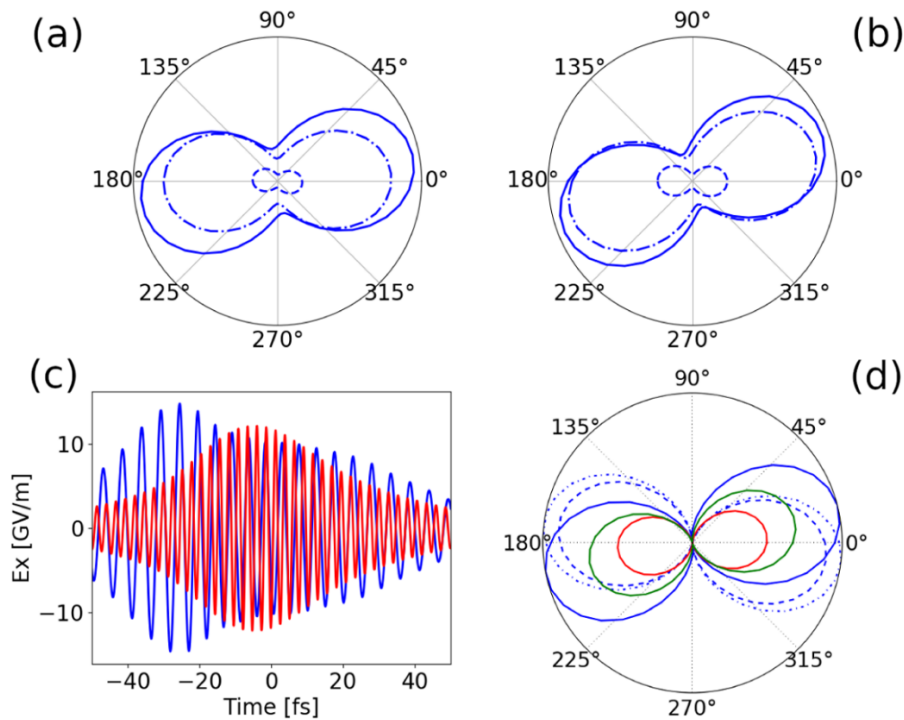


FIGURE 3.16: Diagrammes de polarisation angulaire calculés par CUP3D pour une impulsion CP-S à (a) 2 et (b) 10 couleurs pour $z = 10 \mu\text{m}$ (courbes pointillées), $z = 250 \mu\text{m}$ (courbes en points-tirets) et $z = 500 \mu\text{m}$ (courbes pleines). (c) Profils temporels du fondamental (courbe bleue) et de la deuxième harmonique (courbe rouge) de la composante $E_x(t)$ du champ laser à deux couleurs en $z = 500 \mu\text{m}$, montrant une phase *chirpée* (déphasage non-conservé sur la totalité des oscillations optiques). (d) Polarisation THz théoriques pour une phase constante $\phi = 0.19 \text{ rad}$ (courbe rouge) reproduisant (a), pour un *chirp* linéaire $\phi_j(t) = -1.38t/\tau_j$ (courbe verte) et pour un *chirp* quadratique $\phi_j(t) = 5.54t^2/\tau_j^2$ (courbes bleues) avec $\tau_1 = \tau_2$ (courbe en points-tirets) et $\tau_2 = \tau_1/\sqrt{2}$. Source : Stathopoulos [183]

3.2.4 Expériences de génération de rayonnement THz par une impulsion laser à 3 couleurs

Même si l'utilisation pratique d'impulsions à un nombre d'harmoniques supérieur à deux est difficile, nous présentons ici quelques résultats expérimentaux de génération d'ondes THz par des impulsions à trois couleurs. Compte tenu de leur potentiel pour améliorer la production de rayonnement THz, ce sujet fait l'objet de nombreuses études numériques [184–187] et expérimentales [188–192] depuis quelques années. La première expérience réalisée sur ce sujet a été publiée en 2010 par Petersen et al. [188]. La méthode utilisée pour former la troisième harmonique a été d'employer un premier cristal BBO, d'épaisseur $200 \mu\text{m}$, afin de générer la seconde harmonique ($0.4 \mu\text{m}$) à partir du fondamental laser ($0.8 \mu\text{m}$), puis un second (nommé cristal tripleur) dans lequel la troisième couleur ($0.267 \mu\text{m}$) est formée par accord de phase. Des lames

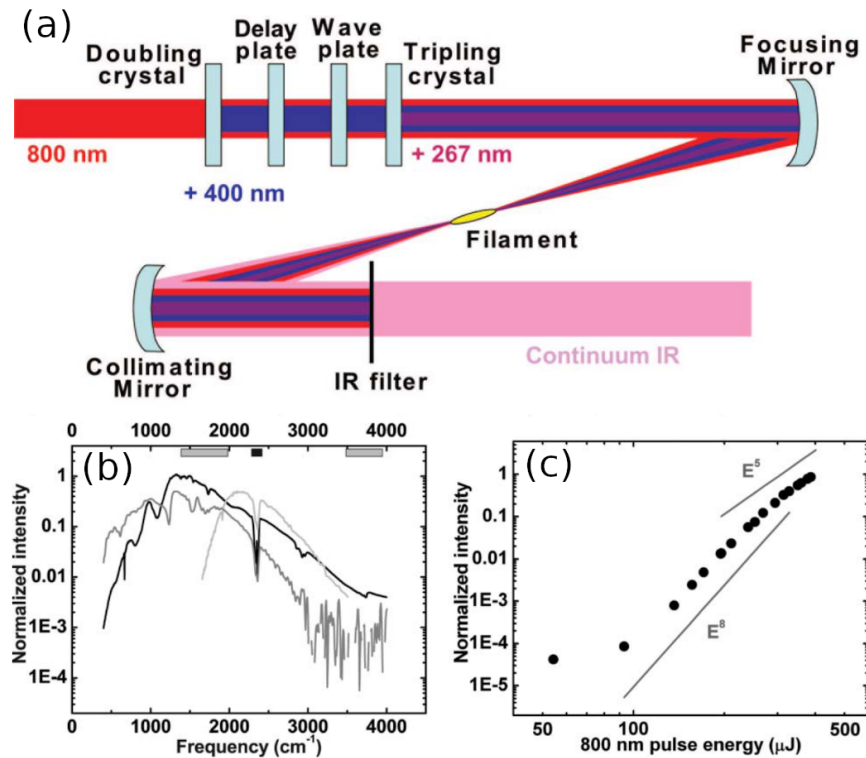


FIGURE 3.17: (a) Schéma du dispositif expérimental de génération de rayonnement THz par une impulsion à trois couleurs formée à l'aide de deux cristaux non-linéaires. (b) Spectres infrarouges mesurés à l'aide d'un détecteur MCT (Tellurure de mercure-cadmium) (courbe gris clair) et d'un spectromètre à infrarouge employant la méthode FTIR (courbe grise) comparés au spectre de la lampe infrarouge incluse dans le spectromètre (courbe noire). Les barres grises et noires représentent les domaines d'absorption du CO_2 et de l' H_2O respectivement. (c) Dépendance de l'intensité du spectre infrarouge intégré en fonction de la puissance du fondamental laser opérant à $0.8 \mu\text{m}$. Source : Petersen [188]

demi-ondes et quart d'ondes sont utilisées pour régler l'état de polarisation des composantes spectrales de l'impulsion laser, à l'image du dispositif expérimental présenté en figure 3.8. Les décalages temporels entre les trois harmoniques sont corrigés à l'aide d'une lame à retard [193]. La figure 3.17(a) illustre ce dispositif, qui a permis de générer un continuum infrarouge entre 12 et 100 THz montré par la figure 3.17(b), bien que son énergie n'ait pas été mesurée. Un tel spectre a également été obtenu à l'aide de simulations LC en 2017 par Lu et al. [189]. Enfin, la figure 3.17(c) indique que l'intensité infrarouge intégrée, rayonnée par ce dispositif, croît fortement non-linéairement avec l'énergie du fondamental laser (énergie à la puissance 5-6), ce qui invite à utiliser des impulsions pompe à plus haute énergie ($\approx 500 \mu\text{J}$) pour la génération de rayonnement THz à travers cette méthode.

Plus récemment, Liu et al. en 2020 [190] ont repris ce procédé de création d'harmonique trois

pour une expérience de génération d'ondes THz. Une amélioration apportée par ce travail a été la possibilité de contrôler les déphasages entre les trois couleurs, en pouvant modifier librement la position et l'orientation des cristaux doubleur et tripleur. Les expérimentateurs ont ainsi pu reproduire un champ s'approchant d'une Sawtooth LP-P à trois couleurs. L'énergie THz mesurée était environ 3.2 fois plus élevée en présence de la troisième couleur par rapport à un faisceau bicolore analogue. Le champ THz obtenu était polarisé elliptiquement.

Dans le cadre du projet ALTESSE2, une expérience similaire a aussi été menée à DTU/Fotonik, où les deuxième (0.4 μm) et troisième (0.267 μm) harmoniques ont été créées à l'aide de deux cristaux non-linéaires BBO à partir du fondamental opérant à 0.8 μm , de durée 40 fs. L'impulsion laser tri-couleur focalisée dans l'air a généré un plasma émettant un rayonnement THz, qui a été filtré de la pompe rémanente et guidé à l'aide d'une série de miroirs paraboliques vers un dispositif de détection ABCD, mentionné au chapitre précédent. La plateforme employée est illustrée en figure 3.18(a). Elle a permis de comparer les champs THz générés par le plasma d'air avec et sans la troisième couleur. En particulier, l'utilisation de l'harmonique trois a augmenté notablement le rayonnement THz, dont l'amplitude a été multipliée par ≈ 10 par rapport au cas classique à deux couleurs, comme montré par la figure 3.18(b). Les spectres THz associés à ces rayonnements sont tracés en figure 3.18(c). Nous observons d'une part une intensité spectrale maximale plus forte d'un facteur de l'ordre de 100 dans le cas à 3 couleurs (courbe verte) comparé au cas à 2 couleurs (courbe rouge). De plus, le spectre THz (normalisé) généré à l'aide de l'impulsion laser tri-couleur s'étend pour des niveaux d'intensité $> 10^{-3}$ (en unités arbitraires) jusqu'à 40 THz, contre 20 THz dans la configuration à deux harmoniques. Cette expérience confirme, en accord avec les références [188, 190], que l'ajout d'une troisième composante spectrale à l'impulsion laser permet d'augmenter fortement le rendement de conversion laser-THz.

Une seconde manière de générer la troisième harmonique est d'utiliser un amplificateur paramétrique optique (abrégé OPA pour "Optical Parametric Amplifier"). Un tel système laser prend pour entrées l'impulsion pompe ω_0 et un signal lumineux, généralement de la lumière blanche. Par rectification optique dans un cristal non-linéaire, il engendre une impulsion opérant dans l'infrarouge ($\lambda \leq 1.6 \mu\text{m}$). Celle-ci peut être utilisée comme signal dans un second étage afin de former avec la pompe une troisième impulsion dite "idler" de plus grande longueur d'onde ($\lambda \geq 1.6 \mu\text{m}$). Les trois faisceaux lumineux sortant de l'OPA sont la pompe, le signal et l'idler,

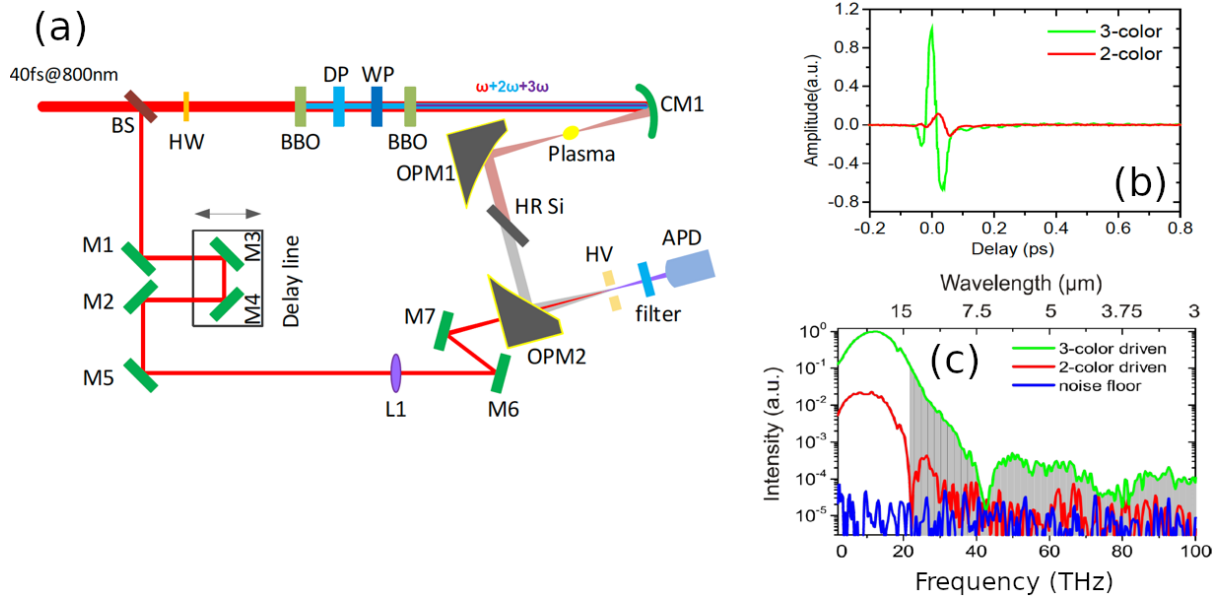


FIGURE 3.18: (a) Schéma du dispositif expérimental de génération de rayonnement THz à DTU/Fotonik par une impulsion à trois couleurs formée à l'aide d'un cristal tripleur. (b) Profils temporels des champs THz générés par une impulsion laser à deux (courbe rouge) ou trois couleurs (courbe verte). L'amplitude THz maximale est environ 10 fois plus élevée dans le cas à trois harmoniques que dans le cas à deux couleurs. (c) Spectres THz calculés par transformée de Fourier à partir des champs de la figure (b). La courbe bleue représente le niveau de bruit mesuré par le capteur.

dont les fréquences peuvent s'approcher d'un système $\omega : 2\omega : 3\omega$. Un polariseur en calcite est placé en sortie de l'OPA pour que ces trois impulsions soient dans le même état de polarisation. Ce procédé a été employé pour la première fois pour générer des impulsions tricolores par Bagley et al. en 2018 [191], où le faisceau laser comportait trois longueurs d'onde : 0.8 μm (pompe), 1.3-1.6 μm (sonde) et 1.6-2.075 μm (idler). A l'opposé du procédé de création d'impulsions tricolores illustré en figure 3.17(a), les fréquences générées à partir de l'onde de pompe sont ici plus faibles que cette dernière, ce qui semble au premier abord particulièrement intéressant pour augmenter l'énergie THz émise [101]. Cette méthode comporte cependant deux désavantages principaux qui ont tendance à réduire très fortement l'énergie THz produite : les impulsions générées par l'OPA ne sont pas aussi spectralement piquées que pour une impulsion laser habituelle, et elles sont soumises à un effet de chirp, c'est-à-dire à des variations de phase temporelles. Un spectre infrarouge s'étendant jusqu'à 6 THz a été mesuré lors de cette expérience, mais son énergie n'a pas pu être obtenue.

Les travaux de Vaičaitis et al. en 2019 [192] viennent compléter ces mesures. Le dispositif expérimental utilisé reprend le principe de la référence précédente et est illustré sur la figure 3.19. Ici,

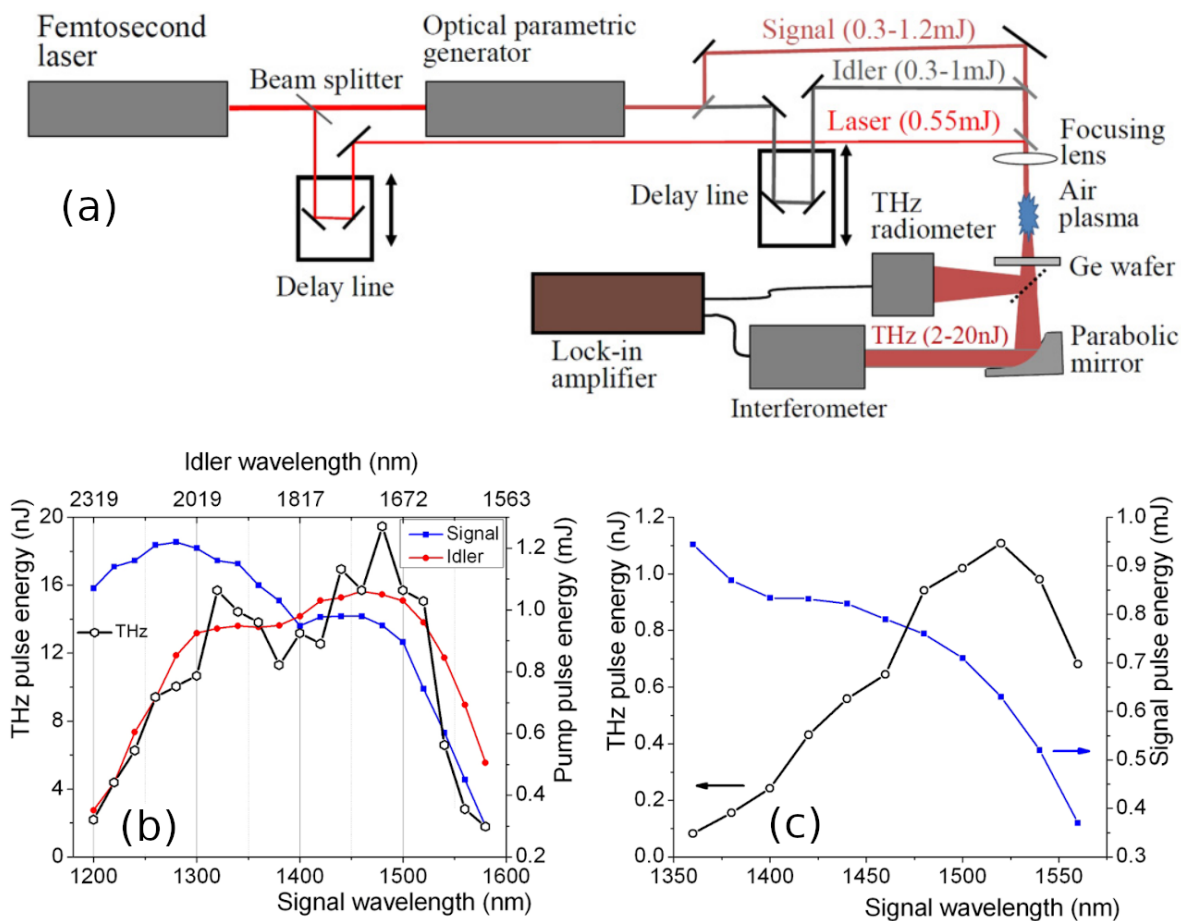


FIGURE 3.19: (a) Schéma du dispositif expérimental de génération de rayonnement THz par une impulsion à trois couleurs formée à l'aide d'un amplificateur paramétrique optique (OPA). (b) Energie THz mesurée (courbe noire) en fonction des longueurs d'onde du signal (courbe bleue) et du faisceau *idler* (courbe rouge) pour une génération d'ondes THz à *trois couleurs*. (c) Energie THz mesurée (courbe noire) en fonction de la longueur d'onde du signal (courbe bleue) pour une génération d'ondes THz à *deux couleurs*. Source : Vaičaitis [192]

la longueur d'onde du signal variait entre 1.2 et 1.6 μm , et celle de l'idler se situait entre 1.6 et 2.4 μm , pour une impulsion pompe de 0.8 μm . Comme illustré par la figure 3.19(b), l'onde THz la plus énergétique obtenue (20 nJ) a été générée pour des longueurs d'onde signal et idler de 1.475 μm et 1.7 μm respectivement, ce qui correspond à un rendement de conversion laser-THz de l'ordre de 10^{-5} . Comme montré par comparaison entre les figures 3.19(b) et 3.19(c), cela représente un facteur d'amélioration proche de 20 par rapport à l'impulsion THz la plus énergétique mesurée dans le cas à 2 couleurs (longueur d'onde du signal $\approx 1.37 \mu\text{m}$, pas de faisceau idler).

3.3 Impact de la diffusion Raman stimulée sur la propagation d’une impulsion laser vectorielle

Cette troisième section est consacrée à l’étude de la diffusion Raman rotationnelle stimulée (SRRS) dans l’air (molécules de diazote), et à son influence sur le plasma généré ainsi que sur le rayonnement THz émis. Elle vient compléter la description scalaire présentée en section 2.1.3 car je généralise ici son expression pour une impulsion laser vectorielle de polarisation quelconque. En premier lieu, nous développons l’expression de la polarisation due à la SRRS généralisée pour des impulsions laser vectorielles. Nous présentons ensuite une manière alternative de la décrire, afin de faciliter son implémentation dans le code de calcul CUP3D. Cette section se termine par une étude numérique portant sur la production de rayonnement THz en présence ou en l’absence de SRRS pour des impulsions LP-P et CP-S.

3.3.1 SRRS pour une impulsion laser de polarisation arbitraire

Nous proposons un modèle théorique pour la polarisation des électrons liés associés à la SRRS induite par les rotations de molécules atmosphériques suite à une excitation par un champ électrique vectoriel $\vec{E}(t)$. A pression ambiante, la SRRS est majoritairement causée par l’excitation de transitions rotationnelles dans les molécules de diazote N_2 [124, 125, 127], comme mentionné en section 2.1.3. Ces transitions créent ainsi des photons par émissions Stockes et anti-Stockes, dont les mécanismes ont été introduits dans la figure 2.4 du chapitre 2.

Avant le passage du faisceau pompe de fréquence fondamentale ω_0 , les molécules de N_2 sont dans un état rotationnel nommé 1 de fréquence propre Ω_1 . Conformément à la figure 2.4, les photons peuvent exciter la transition rotationnelle d’énergie $\hbar\omega_R$ permettant aux espèces d’atteindre l’état 2 de fréquence propre Ω_2 . Les émissions Stockes (resp. anti-Stockes) représentent la transition de l’état 1 à l’état 2 (resp. de l’état 2 à l’état 1) en passant par un état virtuel situé en-dessous de l’état 3, de fréquence propre Ω_3 et supposé suffisamment haut pour ne pas pouvoir être excité lors du passage de l’impulsion laser. Elles émettent alors un photon de pulsation ω_S (resp. ω_A) vérifiant $\omega_S = \omega_0 - \omega_R$ (resp. $\omega_A = \omega_0 + \omega_R$). Puisque seul l’état 1 est considéré initialement peuplé, les émissions anti-Stockes seront négligées.

Nous commençons par développer la polarisation microscopique due à la SRRS associée à une molécule de N_2 isolée. Soit $\Omega_{nm} = \Omega_n - \Omega_m$ la différence de fréquences propres entre les ni-

veaux n et m ($n, m = 1, 2, 3$). Au vu des hypothèses précédentes, nous pouvons considérer $\Omega_{21} \ll \omega_0 \ll \Omega_{32}$. Nous introduisons également $\psi(t, \vec{r})$ la fonction d'onde moléculaire de l'espèce isolée, $H_0 = -\frac{\hbar^2}{2m}\nabla^2$ le Hamiltonien (libre) de la molécule à l'équilibre, et $V(t, \vec{r}) = \vec{\mu} \cdot \vec{E}(t, \vec{r}) = \mu_x E_x(t, \vec{r}) + \mu_y E_y(t, \vec{r}) = V_x(t, \vec{r}) + V_y(t, \vec{r})$ l'opérateur de perturbation du Hamiltonien, avec $\vec{\mu} = -e\vec{r}$ le vecteur moment dipolaire de la molécule étudiée. La fonction d'onde moléculaire vérifie l'équation de Schrödinger :

$$(H_0 + V_x + V_y)|\psi\rangle = i\hbar \frac{\partial |\psi\rangle}{\partial t}. \quad (3.59)$$

Afin de résoudre cette équation, $\psi(t, \vec{r})$ est décomposée en une somme des états propres stationnaires de H_0 , que l'on note $u_n(\vec{r})_{n=1,2,3}$, et de coefficients associés dépendants du temps notés $c_n(t)$. Ces états propres forment une base orthonormée, c'est-à-dire $\langle u_m | u_n \rangle = \delta_{mn}$, avec δ_{mn} le symbole de Kronecker. La fonction d'onde s'écrit alors [129]

$$\psi(t, \vec{r}) = \sum_{n=1}^3 c_n(t) e^{-i\Omega_n t} u_n(\vec{r}). \quad (3.60)$$

Le développement de (3.59) mène aux équations différentielles vérifiées par les coefficients $c_m(t)$:

$$\frac{\partial c_m}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} \sum_{n=1}^3 c_n(t) \left(\vec{\mu}_{mn} \cdot \vec{E} \right) e^{-i\Omega_{nm} t}, \quad (3.61)$$

où nous avons introduit le vecteur de moment dipolaire microscopique $\vec{\mu}_{mn} = \mu_{mn}^x \vec{e}_x + \mu_{mn}^y \vec{e}_y$ avec $\mu_{mn}^{x,y} = \langle u_m | \mu_{x,y} | u_n \rangle$.

La polarisation microscopique due à la SRRS est définie par

$$\vec{P}_R^{\text{mic}}(t) = N_a \sum_{m=1}^3 \sum_{n=1}^3 \rho_{nm} e^{i\Omega_{mn} t} \vec{\mu}_{mn}, \quad (3.62)$$

où les coefficients de la matrice densité $(\rho_{nm})_{n=1,2,3}^{m=1,2,3}$ tels que $\rho_{nm} = c_m^* c_n$ vérifient les équations différentielles

$$\frac{\partial \rho_{nm}}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} \sum_{j=1}^3 \left(\rho_{nj} \left(\vec{\mu}_{jm} \cdot \vec{E} \right) e^{-i\Omega_{mj} t} - \rho_{jm} \left(\vec{\mu}_{nj} \cdot \vec{E} \right) e^{-i\Omega_{jn} t} \right). \quad (3.63)$$

Comme l'état 3 est de trop haute énergie pour être excité par l'impulsion laser, $\rho_{33} = 0$. De plus, dans le cadre d'une émission Stockes, la transition de l'état 1 à l'état 2 se fait de manière

3.3 Impact de la diffusion Raman stimulée sur la propagation d'une impulsion laser vectorielle

indirecte via un état virtuel, d'où $\vec{\mu}_{12} = \vec{0}$ et $\vec{\mu}_{11} = \vec{\mu}_{22} = \vec{\mu}_{33} = \vec{0}$. Nous supposons enfin que les $\vec{\mu}_{mn}$ non-nuls sont tous égaux et assimilables au vecteur $\vec{\mu}$. Ces simplifications permettent de développer la relation (3.62) sous la forme

$$\vec{P}_R^{\text{mic}}(t) = N_a (\rho_{13} e^{i\Omega_{31}t} + \rho_{32} e^{-i\Omega_{32}t}) \vec{\mu} + c.c. \quad (3.64)$$

où *c.c.* correspond au complexe conjugué.

Les coefficients ρ_{13} et ρ_{32} dépendent de ρ_{12} à travers l'équation (3.63), de sorte que

$$\frac{\partial \rho_{13}}{\partial t} = \frac{i(\vec{\mu} \cdot \vec{E})}{\hbar} (\rho_{11} e^{-i\Omega_{31}t} + \rho_{12} e^{-i\Omega_{32}t}), \quad (3.65)$$

$$\frac{\partial \rho_{32}}{\partial t} = -\frac{i(\vec{\mu} \cdot \vec{E})}{\hbar} (\rho_{12} e^{i\Omega_{31}t} + \rho_{22} e^{i\Omega_{32}t}). \quad (3.66)$$

La hauteur du troisième niveau implique que les variations temporelles de ρ_{11} , ρ_{12} , ρ_{21} et ρ_{22} sont lentes devant celles de ρ_{13} et de ρ_{32} car $\Omega_{31}, \Omega_{32} \gg \Omega_{21}$ et $\Omega_{31} \sim \Omega_{32}$. Ces quatre coefficients peuvent donc être considérés comme indépendants du temps dans (3.65) et (3.66). De plus, la période laser est grande devant les temps caractéristiques de repopulation du milieu ($\omega_0 \ll \Omega_{31}$). Le champ \vec{E} est donc également considéré constant ici. Nous appliquons les conditions initiales $\rho_{13}(t=0) = \rho_{32}(t=0) = 0$, de sorte que l'intégration des équations (3.65) et (3.66) mène à :

$$\rho_{13}(t) = -\frac{(\vec{\mu} \cdot \vec{E})}{\hbar \Omega_{31}} (\rho_{11} e^{-i\Omega_{31}t} + \rho_{12} e^{-i\Omega_{32}t}), \quad (3.67)$$

$$\rho_{32}(t) = -\frac{(\vec{\mu} \cdot \vec{E})}{\hbar \Omega_{31}} (\rho_{12} e^{i\Omega_{31}t} + \rho_{22} e^{i\Omega_{32}t}). \quad (3.68)$$

Par conservation de la densité totale des états, $\sum_{i=1}^3 \rho_{ii} = 1$. Puisque l'état 3 ne peut être peuplé ($\rho_{33} \approx 0$), cette relation mène à $\rho_{11} + \rho_{22} \approx 1$. Nous supposons également que l'état 1 reste beaucoup plus peuplé que l'état 2, c'est-à-dire $\rho_{11} - \rho_{22} \approx 1$. Selon ces considérations, nous trouvons une expression simple de $\vec{P}_R^{\text{mic}}(t)$:

$$\vec{P}_R^{\text{mic}}(t) = -\frac{2N_a \mu^2}{\hbar \Omega_{31}} \rho_{12} e^{i\Omega_{21}t} (\vec{\mu} \cdot \vec{E}) \vec{\mu} + c.c. \quad (3.69)$$

où l'expression de $\rho_{12}(t)$ provient de l'équation (3.63) :

$$\frac{\partial \rho_{12}}{\partial t} = -\frac{i(\vec{\mu} \cdot \vec{E})^2}{\hbar^2 \Omega_{31}} e^{-i\Omega_{21}t}. \quad (3.70)$$

En pratique, une décroissance de la population de $\rho_{12}(t)$, non-décrite par le modèle présenté, est attendue [129]. Afin de la prendre en compte, nous ajoutons artificiellement un terme $-\rho_{12}/\tau_2$ à l'équation différentielle, avec $\tau_2 = \Gamma^{-1}$ désignant la durée de vie de la population ρ_{12} . Nous introduisons également $\tau_1 = \Omega_{21}^{-1}$ le temps caractéristique entre deux transitions de l'état 1 à l'état 2. Numériquement, ces grandeurs sont estimées à $\tau_1 \approx 62.5$ fs et $\tau_2 \approx 77$ fs pour les molécules de N_2 [129, 130]. L'équation différentielle vérifiée par $\rho_{12}(t)$ se reformule alors

$$\frac{\partial \rho_{12}}{\partial t} = -\frac{\rho_{12}}{\tau_2} - \frac{i(\vec{\mu} \cdot \vec{E})^2}{\hbar^2 \Omega_{31}} e^{-i\frac{t}{\tau_1}} \quad (3.71)$$

et permet d'obtenir la forme développée de la polarisation microscopique due à la SRRS :

$$\vec{P}_R^{\text{mic}}(t) = \frac{4N_a \vec{\mu}}{\hbar^3 \Omega_{31}^2} (\vec{\mu} \cdot \vec{E}(t)) \int_{-\infty}^t (\vec{\mu} \cdot \vec{E})^2 \sin\left(\frac{t-t'}{\tau_1}\right) e^{-\frac{t'-t}{\tau_2}} dt'. \quad (3.72)$$

A l'aide du changement de variable $\tau = t - t'$, on obtient l'expression finale de $\vec{P}_R^{\text{mic}}(t)$:

$$\vec{P}_R^{\text{mic}}(t) = \frac{4N_a \vec{\mu}}{\hbar^3 \Omega_{31}^2} (\vec{\mu} \cdot \vec{E}(t)) \int_0^{+\infty} (\vec{\mu} \cdot \vec{E}(t-\tau, \vec{r}))^2 \sin\left(\frac{\tau}{\tau_1}\right) e^{-\frac{\tau}{\tau_2}} d\tau. \quad (3.73)$$

Cette expression ne concerne qu'une molécule de diazote isolée. Afin d'obtenir la polarisation macroscopique associée à la SRRS, il est nécessaire d'intégrer l'équation (3.73) pour toutes les molécules entrant en interaction avec le faisceau laser. Pour cela, nous supposons que toutes les molécules de N_2 sont localisées uniformément dans l'espace, et que leur moment dipolaire $\vec{\mu}$ est orienté selon une direction aléatoire au passage de l'impulsion laser. Soit ξ la variable aléatoire représentant l'angle entre la direction de $\vec{\mu}$ et \vec{e}_x . En supposant que les moments $\vec{\mu}$ sont répartis de manière isotrope dans l'air, nous en déduisons que ξ est distribué uniformément entre 0 et 2π . En notant $\vec{P}_R(t)$ la polarisation macroscopique associée à la SRRS, ces hypothèses mènent à

$$\vec{P}_R(t) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \vec{P}_R^{\text{mic}}(t, \xi) d\xi. \quad (3.74)$$

Le calcul de cette moyenne aboutit à

$$\vec{P}_R(t) = \frac{N_a \mu^4}{2\hbar^3 \Omega_{31}^2} \int_0^{+\infty} \left[E^2(t-\tau) \vec{E}(t) + 2(\vec{E}(t) \cdot \vec{E}(t-\tau)) \vec{E}(t-\tau) \right] \sin\left(\frac{\tau}{\tau_1}\right) e^{-\frac{\tau}{\tau_2}} d\tau. \quad (3.75)$$

Nous posons $R(\tau) = \tau_1(\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}) \sin(\tau/\tau_1) e^{-\tau/\tau_2}$ en vertu de l'identité :

$$\int_0^{+\infty} \sin\left(\frac{\tau}{\tau_1}\right) e^{-\frac{\tau}{\tau_2}} d\tau = \frac{1}{\tau_1} \left(\frac{1}{\tau_1^2} + \frac{1}{\tau_2^2} \right)^{-1} = \frac{\Omega_{21}^2}{\Omega_{21}^2 + \Gamma^2} \quad (3.76)$$

qui permet de normaliser la fonction de retard associée à la réponse Raman en $\sin(\tau/\tau_1) e^{-\tau/\tau_2}$.

Nous définissons également

$$\vec{G}(\vec{E}, t, \tau) = \frac{1}{3} \left[E^2(t-\tau) \vec{E}(t) + 2(\vec{E}(t) \cdot \vec{E}(t-\tau)) \vec{E}(t-\tau) \right]. \quad (3.77)$$

La relation (3.75) se réécrit alors :

$$\vec{P}_R(t) = \frac{3N_a \mu^4}{2\hbar^3 \Omega_{31}^2} \frac{\Omega_{21}^2}{\Omega_{21}^2 + \Gamma^2} \underbrace{\int_0^{+\infty} \vec{G}(\vec{E}, t, \tau) R(\tau) d\tau}_{\vec{f}(\vec{E}, t)}. \quad (3.78)$$

Nous rappelons que, d'après la section 2.1.3, la polarisation Kerr s'exprime sous la forme $\vec{P}_K(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} \vec{E}^3(t)$. Nous introduisons alors la grandeur x_K de manière à ce que la polarisation Raman s'exprime de manière analogue $\vec{P}_R(t) = x_K \epsilon_0 \chi^{(3)} \vec{f}(\vec{E}, t)$. Ici, x_K est la fraction d'intensité laser permettant d'exciter les transitions rotationnelles du N_2 , l'autre partie servant à provoquer la réponse Kerr instantanée de l'air. Par identification dans (3.78), on trouve

$$x_K = \frac{1}{\epsilon_0 \chi^{(3)}} \frac{N_a \mu^4}{\hbar^3 \Omega_{31}^2} \frac{\Omega_{21}^2}{\Omega_{21}^2 + \Gamma^2}. \quad (3.79)$$

Nous pouvons également définir $n_R = x_K n_2$ qui correspond à l'indice non-linéaire effectif de l'air associé à la SRRS :

$$n_R = \frac{1}{2c\epsilon_0^2 n_0(\omega_0)^2} \frac{3N_a \mu^4}{2\hbar^3 \Omega_{31}^2} \frac{\Omega_{21}^2}{\Omega_{21}^2 + \Gamma^2}. \quad (3.80)$$

En injectant (3.79) dans (3.78), nous obtenons finalement la formulation générale de la polarisation macroscopique associée à la SRRS pour une impulsion laser vectorielle :

$$\vec{P}_R(t) = \frac{3}{2}x_K\epsilon_0\chi^{(3)} \int_0^{+\infty} \vec{G}(\vec{E}, t, \tau)R(\tau) d\tau. \quad (3.81)$$

Remarquons que pour un champ laser scalaire ($E_y = 0$), l'expression précédente permet de retrouver la polarisation Raman dérivée par Sprangle et al. [128] mentionnée par l'équation 2.43 dans le chapitre 2.

En résumé, la polarisation non-linéaire totale des électrons liés, associée à l'effet Kerr et à la SRRS, s'écrit donc pour une impulsion laser vectorielle :

$$\vec{P}_{\text{NL}}(t) = (1 - x_K)\epsilon_0\chi^{(3)}\vec{E}(t)^3 + \frac{3}{2}x_K\epsilon_0\chi^{(3)} \int_0^{+\infty} \vec{G}(\vec{E}, t, \tau)R(\tau) d\tau. \quad (3.82)$$

3.3.2 Implémentation dans CUP3D

L'équation (3.81) est coûteuse à intégrer car elle fait intervenir, pour chaque valeur de t , le calcul d'une intégrale à borne infinie comprenant des variations rapides. Afin d'alléger les contraintes numériques nécessaires pour modéliser la SRRS pour une impulsion laser vectorielle, nous proposons une définition alternative pour $\vec{P}_R(t)$. Le vecteur $\vec{G}(\vec{E}, t, t-\tau)$, intervenant dans l'expression (3.81) et défini par l'équation (3.77), se développe comme suit :

$$\vec{G}(\vec{E}, t, t-\tau) = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} [3E_x^2(t-\tau) + E_y^2(t-\tau)] E_x(t) \\ [E_x^2(t-\tau) + 3E_y^2(t-\tau)] E_y(t) \end{pmatrix}. \quad (3.83)$$

Nous introduisons les fonctions $Q_x(t)$ et $Q_y(t)$ telles que

$$Q_{x,y}(t) = \tau_1 \int_0^{+\infty} \sin\left(\frac{\tau}{\tau_1}\right) e^{-\frac{\tau}{\tau_2}} E_{x,y}^2(t-\tau) d\tau. \quad (3.84)$$

La polarisation Raman se réécrit donc

$$\vec{P}_R(t) = \frac{1}{2}x_K\epsilon_0\chi^{(3)} (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}) \begin{pmatrix} [3Q_x(t) + Q_y(t)] E_x(t) \\ [Q_x(t) + 3Q_y(t)] E_y(t) \end{pmatrix}, \quad (3.85)$$

où les fonctions $Q_{x,y}(t)$ vérifient les équations différentielles :

$$\frac{d^2 Q_{x,y}}{dt^2} + \frac{2}{\tau_2} \frac{dQ_{x,y}}{dt} + (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}) Q_{x,y}(t) = E_{x,y}^2(t), \quad (3.86)$$

avec pour conditions initiales $Q_{x,y}(t \rightarrow -\infty) = 0$.

En pratique, les fonctions $Q_{x,y}(t)$ sont calculables beaucoup plus rapidement en résolvant les équations (3.86) qu’avec la formulation intégrale (3.84). Afin de résoudre ces équations différentielles, le code CUP3D emploie un solveur de schéma numérique Runge-Kutta d’ordre 4.

3.3.3 Impact de la diffusion Raman sur la génération d’ondes THz

L’implémentation de la diffusion Raman vectorielle dans le code CUP3D permet alors de calculer numériquement la production de rayonnement THz par plasma d’air en prenant en compte, ou non, cet effet selon la polarisation de l’impulsion pompe.

Nos simulations à ce sujet ont consisté à modéliser la propagation initialement collimatée d’impulsions laser LP-P et CP-S à deux couleurs sur 2 mètres dans l’air, dont l’indice optique linéaire $n_{\text{opt}}(\omega)$ est donné par la référence [117] et dont l’indice non-linéaire vaut $n_2 = 3.8 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$ [120]. Sa puissance critique vaut $P_{\text{cr}} = 10.7 \text{ GW}$. Le faisceau laser est décrit par un fondamental opérant à $1.6 \mu\text{m}$, de durée 50 fs FWHM et de rayon initial 0.5 mm. Les impulsions utilisées contiennent une énergie de 4.43 mJ, dont 20 % est attribuée à la seconde harmonique, ce qui correspond à une puissance laser incidente de $15.5 P_{\text{cr}}$. La fraction des non-linéarités associée à la SRRS est choisie à $x_K = 0.8$ en accord avec les mesures rapportées dans la référence [120]. La fenêtre temporelle des simulations a une largeur de 0.8 ps et une résolution temporelle de $\Delta t = 0.98$ attosecondes, ce qui correspond à une résolution fréquentielle de $\Delta\nu = 1.25 \text{ THz}$. La longueur d’onde fondamentale laser étant relativement élevée, nous considérons que la résolution spatiale des simulations, à savoir $\Delta x, y = 12 \mu\text{m}$, est suffisante pour ce problème, car les dimensions radiales du filament augmentent avec λ_0 , et celles du plasma croissent avec $\sqrt{\lambda_0}$ [194]. Afin de discriminer le rayonnement THz, nous employons un filtre passe-bas coupant le champ électrique à 90 THz.

La figure 3.20(a) illustre l’évolution des densités électroniques calculées par le solveur CUP3D. Elle indique que la SRRS réduit fortement la photo-ionisation de l’air, ce qui donne lieu à des canaux plasmas moins denses, mais plus longs et réguliers car soumis à des courants de pertes plus modérés. La formule de Marburger [équation (2.41)] prévoit une distance focale non-linéaire $z_c = 12 \text{ cm}$ en l’absence de SRRS, ce qui est en accord avec la simulation (courbes pointillées) [107, 123]. La figure 3.20(a) montre cependant que la SRRS tend à repousser la création de plasma vers $z_c \approx 25 - 30 \text{ cm}$. Nous attribuons ce phénomène à une augmentation de la puissance critique effective du milieu due à la SRRS, car en présence de cet effet, seule une

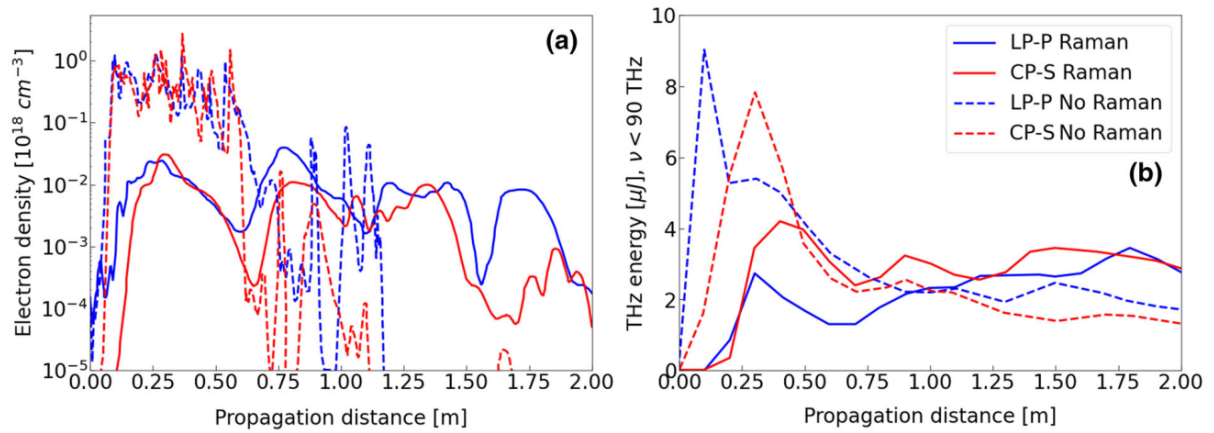


FIGURE 3.20: (a) Densité électronique maximale en fonction de la distance de propagation laser et (b) énergie THz ($\nu < 90$ THz) associée en présence ($x_K = 0.8$) (courbes pleines) ou en l'absence ($x_K = 0$) (courbes pointillées) de la diffusion Raman pour une impulsion laser LP-P (courbes bleues) ou CP-S (courbes rouges). Source : Stathopoulos [195]

portion $1 - x_K = 20\%$ de polarisation non-linéaire totale participe à la réponse Kerr instantanée.

La puissance critique d'auto-focalisation se corrige donc telle que :

$$P_{cr} \approx \frac{3.72\lambda_0^2}{8\pi n_0 n_2} \rightarrow \frac{3.72\lambda_0^2}{8\pi(1-x_K)n_0 n_2}. \quad (3.87)$$

La distance focale non-linéaire en présence de SRRS se réécrit donc :

$$z_c(x_K) \approx \frac{z_c(x_K = 0)}{\sqrt{1-x_K}}. \quad (3.88)$$

Cette dernière subit donc une correction d'un facteur $\approx (1-x_K)^{-1/2}$, ce qui mène à $z_c \approx 27$ cm pour $x_K = 0.8$, en accord avec la figure 3.20(a).

En résumé, la SRRS est caractérisée par une réduction de l'auto-focalisation Kerr d'un facteur $1 - x_K$, peu importe la polarisation laser. Il en résulte que l'énergie THz produite, montrée en figure 3.20(b), croît plus lentement en présence de diffusion Raman, mais est plus régulière au cours de la propagation laser. Les diminutions d'énergies THz sont dues aux pertes aux bords de la boîte de simulation. Il est à noter que le faisceau CP-S produit un rayonnement THz plus intense que l'impulsion LP-P, comme précédemment attendu avec deux couleurs.

La figure 3.21 montre le spectre du champ électrique total en différents lieux de l'axe optique. Sans contribution Raman, celui-ci présente déjà un spectre plat pour $\omega > 3\omega_0$ en $z = 10$ cm, et se développe en un super-continuum pour $z = 50$ cm. Cette évolution spectrale n'apparaît

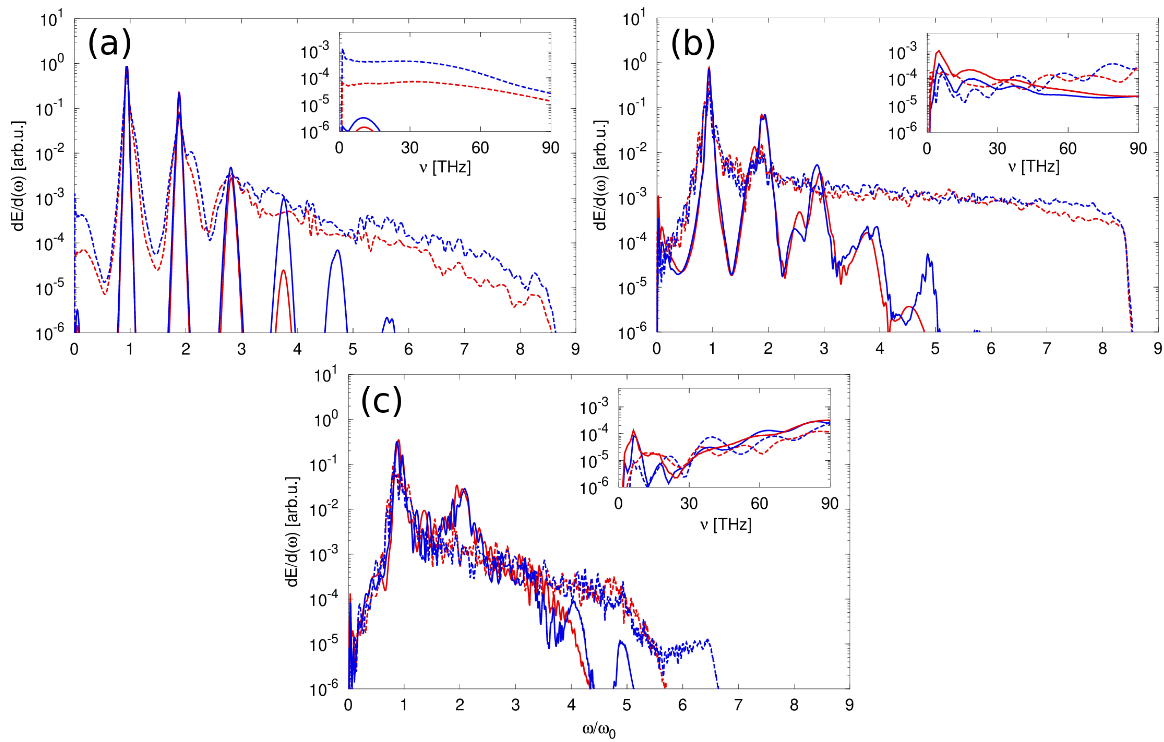


FIGURE 3.21: Spectre optique à (a) $z = 10$ cm, (b) $z = 50$ cm et (c) $z = 2$ m. Les inserts sont des zooms sur les spectres THz correspondants. La légende est similaire à celle de la figure 3.20.

que pour $z = 2$ m en présence de SRRS. En accord avec les conclusions tirées lors de l'analyse de la figure 3.20, la capacité de la SRRS à s'opposer à l'auto-focalisation Kerr tend donc à réduire les non-linéarités causant des intensités pic élevées et les distorsions spectrales qui y sont associées. Les inserts indiquent, en accord avec la figure 3.20(b), que le spectre THz produit par une impulsion CP-S est plus intense que celui généré par un faisceau LP-P à partir de $z = 50$ cm, et ce en présence ou en l'absence de la diffusion Raman stimulée.

Enfin, la figure 3.22 décrit les profils temporels du champ électrique et de la densité électronique en $z = 50$ cm pour ces quatre cas. En particulier, elle montre que les champs laser ont subi de plus fortes distorsions sans SRRS (courbes de gauche) qu'avec (courbes de droite), ce qui rejoint les observations précédentes. Il est intéressant de remarquer que l'ampleur de ces distorsions est beaucoup plus sensible à l'action de la diffusion Raman stimulée qu'à la polarisation laser, ce qui justifie la nécessité de bien modéliser cet effet pour réaliser une simulation de production THz aussi réaliste que possible.

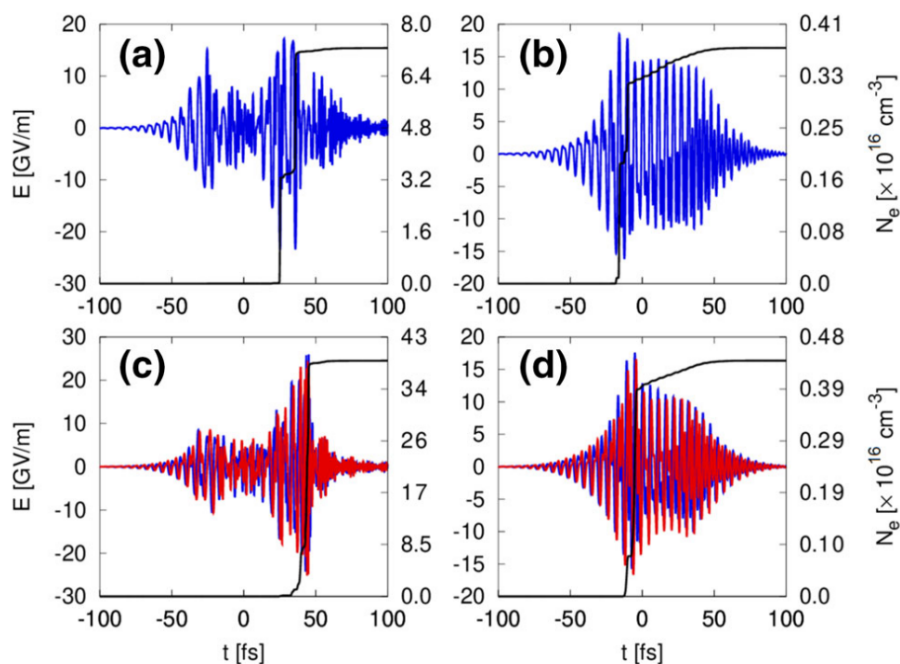


FIGURE 3.22: Champs électriques E_x (courbes bleues) et E_y (courbes rouges) associés au profil temporel de densité (courbes noires) en $z = 50$ cm pour une impulsion (a, b) LP-P ou (c, d) CP-S (a, c) en l'absence ou (b, d) en présence de diffusion Raman. Source : Stathopoulos [195]

3.4 Résumé du chapitre

En résumé, nous avons d'abord montré que la polarisation de l'impulsion laser a une forte action sur les performances des ondes THz générées. Dans le cas à deux couleurs, nous rapportons qu'un champ laser en polarisation CP-S permet d'augmenter le rendement de conversion laser-THz d'un facteur $\approx 4 - 6$ en comparaison de la configuration LP-P classique. Dans le cas CP-S, l'axe d'orientation de l'onde THz produite peut aussi être contrôlé par le déphasage entre les harmoniques ϕ . Nous avons également montré que les configurations LP-O et CP-C tendent à réduire le rendement η à cause d'interférences destructives entre les bouffées THz produites successivement. Ce travail a conduit à la publication de l'article [139].

L'ajout de couleurs permet aussi d'accroître fortement l'énergie THz engendrée lorsque le champ laser suit un profil temporel en dents de scie. Le rendement de conversion peut alors augmenter d'un facteur pouvant atteindre jusqu'à 15 en configuration LP-P en comparaison du cas à 2 couleurs. La généralisation de ce champ laser à une polarisation CP-S, pourtant prometteuse à deux couleurs, ne permet toutefois pas d'améliorer ces conclusions. Au contraire, à partir de ≈ 6 couleurs, le champ LP-P devient plus efficace que le champ CP-S pour produire un rayonnement

THz. Ces observations ont donné lieu à une seconde publication présentée en référence [183]. Enfin, la diffusion Raman stimulée (SRRS), induite par les transitions rotationnelles de molécules de diazote dans l'air, est caractérisée par un affaiblissement de l'auto-focalisation Kerr. En effet, les électrons liés aux noyaux participant à la SRRS (en effectuant une transition rotationnelle) ne contribuent pas aux non-linéarités Kerr instantanées. Cette réduction de l'auto-focalisation tend à augmenter la distance focale non-linéaire, et à former des plasmas plus longs et réguliers, mais également moins denses. La croissance de l'énergie THz générée par ce type de filament est donc plus lente, et se produit sur une plus longue distance. Nous avons ici généralisé et utilisé l'expression de la SRRS pour des états de polarisation variés de l'onde de pompe laser, ce qui a conduit à la publication de l'article [195].

Chapitre 4

Emission conique

Sommaire

4.1	Emission conique par un plasma cylindrique homogène	148
4.1.1	Modèle de You, Oh et Kim (2012)	148
4.1.2	Comparaison à des données expérimentales	152
4.2	Généralisation du modèle de You et <i>al.</i>	160
4.2.1	Commentaires préliminaires	161
4.2.2	Emission conique pour des impulsions laser gaussiennes	165
4.2.3	Intégration du modèle généralisé	177
4.3	Résumé du chapitre	188

Ce chapitre est consacré au caractère conique de l'émission THz couramment observé lors des expériences de production de rayonnement basse-fréquence par un plasma d'air [49, 196–198]. Nous commençons par expliquer cet effet à l'aide d'un premier modèle simple, qui permet d'estimer la distribution spatiale du rayonnement THz généré par un plasma cylindrique et de densité électronique homogène. Les résultats sont ensuite comparés à une mesure expérimentale de spectre THz angulaire (ou spectre angulo-fréquentiel) obtenue lors d'une expérience réalisée à DTU/Fotonik. Enfin, nous généralisons le modèle d'émission conique pour des plasmas admettant des inhomogénéités transverses, associées soit aux variations radiales de l'enveloppe laser, soit aux modifications de phase induites par différentes aberrations optiques. Les impulsions laser étudiées ici sont toujours initialement en état de polarisation LP-P. L'émission conique due à des impulsions laser CP-S sera examinée dans le prochain chapitre.

4.1 Emission conique par un plasma cylindrique homogène

4.1.1 Modèle de You, Oh et Kim (2012)

Un premier modèle permettant d'expliquer l'émission conique du rayonnement THz a été proposé en 2012 par You, Oh et Kim (abrégé par You et al. dans ce qui suit) [47, 48]. Ce modèle suppose que le plasma est cylindrique de rayon a et de longueur L , et homogène en densité électronique N_e . D'après la référence ci-dessus, le plasma se comporte comme une source volumique d'ondes THz polarisées selon une direction dépendant du déphasage entre les deux harmoniques laser ϕ , conformément à la section 3.1.3 [139]. Pour rappel, la dispersion du milieu est caractérisée par une dépendance en fréquence de l'indice de son groupe $n_g(\omega)$, défini par

$$n_g(\omega) = c \left. \frac{\partial k}{\partial \omega} \right|_{\omega} = \left. \frac{\partial [\omega' n(\omega')]}{\partial \omega'} \right|_{\omega} \quad (4.1)$$

avec $n(\omega)$ l'indice de réfraction du milieu incluant la contribution plasma due à l'ionisation [29] :

$$n^2(\omega) = n_{\text{opt}}^2(\omega) - \frac{\omega_p^2}{\omega^2(1 + i\nu_c/\omega)}. \quad (4.2)$$

ω_p est la pulsation plasma décrite par

$$\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 N_e}{m_e \epsilon_0}}. \quad (4.3)$$

La dispersion optique, compte tenu des différentes vitesses de groupe des deux harmoniques laser, produit une variation de leur déphasage le long du canal plasma, et avec elle une évolution de la polarisation des impulsions THz générées. Nous introduisons donc l_d la longueur dite de déphasage (ou longueur de cohérence), qui correspond à la distance que les deux harmoniques laser doivent parcourir dans le plasma uniforme pour que leur déphasage varie de $\pm\pi$. Cette longueur est définie par

$$l_d = \frac{\lambda_0}{4 |n(\omega_0) - n(2\omega_0)|} \quad (4.4)$$

où ω_0 et λ_0 sont respectivement la fréquence et la longueur d'onde du fondamental de l'impulsion laser. Notons que la correction de l'indice optique due à l'effet Kerr ($n(\omega) \rightarrow n(\omega) + n_2 I$) ne contribue pas à la longueur de déphasage car cette correction est, par hypothèse, la même pour

les deux couleurs.

Lorsque le plasma est suffisamment long (typiquement $L > l_d$), les rayonnements THz produits en différents lieux (donc de polarisations différentes) entrent en interférences destructives là où l'impulsion laser est la plus intense, c'est-à-dire sur l'axe optique. Cependant, un accord de phase naturel peut apparaître hors-axe, ce qui mène à une géométrie de rayonnement conique loin du plasma. Ce mécanisme est illustré par la figure 4.1.

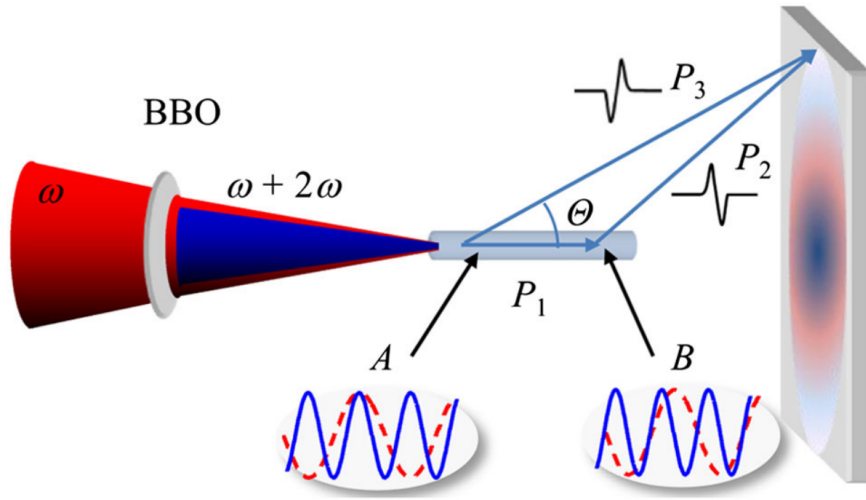


FIGURE 4.1: Schéma illustrant le mécanisme de formation de l'émission conique dans un plasma cylindrique homogène. Source : You [47]

Posons les points A et B, séparés d'une distance l_d et appartenant au filament. Si la polarité de l'onde THz est positive en A (et donc négative en B), les impulsions THz générées en A et B interfèrent constructivement lorsque la différence de chemins vérifie $P_3 - (P_1 + P_2) = (m + 1/2)\lambda_{\text{THz}}$, avec $m = \{0, 1, \dots\}$. Pour le mode principal $m = 0$, l'angle d'interférences constructives théorique Θ_p est approché par

$$\cos[\Theta_p(\lambda_{\text{THz}}, N_e)] \approx 1 - \frac{\lambda_{\text{THz}}}{2l_d(N_e)}. \quad (4.5)$$

Les plasmas d'air formés par une impulsion laser d'intensité $10^{13-15} \text{ W/cm}^2$ et de fondamental $\lambda_0 = 0.8 \mu\text{m}$ ont une densité typique de l'ordre de $N_e = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, ce qui correspond à $l_d \approx 2.6 \text{ cm}$. L'angle d'émission d'une onde THz de fréquence 1 THz est donc estimé par $\Theta_p \approx 6^\circ$. Le modèle de You et al., dont nous justifions la dérivation en section 4.2.2, décrit la répartition spatiale et spectrale du rayonnement THz loin du plasma cylindrique de longueur L et de rayon

a en coordonnées sphériques (r, Θ, Φ) :

$$|\widehat{E}(\omega, \Theta)|^2 \propto |A(\omega)|^2 \left(\frac{J_1(\beta)}{\beta} \right)^2 [\kappa_+^2 + \kappa_-^2 - 2\kappa_+\kappa_- \cos(2\phi_0)] \quad (4.6)$$

où $E(\omega, \Theta)$ est le champ électrique THz associé à la pulsation $\omega = ck_{\text{THz}} = 2\pi c/\lambda_{\text{THz}}$, $A(\omega)$ son amplitude spectrale et ϕ_0 le déphasage entre les couleurs à l'entrée du plasma. Les paramètres β et κ_{\pm} sont donnés par

$$\beta = k_{\text{THz}}a \sin \Theta, \quad (4.7)$$

$$\kappa_{\pm} = \text{sinc } \alpha_{\pm}, \quad (4.8)$$

$$\alpha_{\pm} = \frac{1}{2}k_{\text{THz}}L \left(1 - \cos \Theta \pm \frac{\lambda_{\text{THz}}}{2l_d} \right). \quad (4.9)$$

Chacun des trois facteurs de l'expression (4.6) peut être interprété physiquement :

- Le facteur $A(\omega)$ contient l'information sur le profil en fréquence du rayonnement THz. Il peut être estimé avec le modèle LC, de manière plus complète à partir de simulations UPPE, ou de manière heuristique à partir d'une forme de spectre caractéristique, comme nous le verrons par la suite.
- La quantité $J_1(\beta)/\beta$ décrit l'influence de la géométrie radiale ($\beta \propto a$) du plasma sur le rayonnement THz loin de la source. Plus précisément, il correspond à la diffraction circulaire des ondes THz par un plasma de rayon fini. Sa dépendance en Θ est centrée autour de 0 et tend donc à atténuer les ondes émises hors de l'axe optique. Cependant, les plasmas étudiés ici ont un rayon de quelques dizaines de microns au plus, d'où $\beta \ll 1$ et donc $J_1(\beta)/\beta \approx 1$ aux ordres de grandeur concernés par les angles d'émission conique typiques ($< 10^\circ$).
- Le troisième facteur contient la signature de la géométrie axiale du plasma sur le champ THz généré ($\alpha_{\pm} \propto L$). Incluant les fonctions décrivant l'accord de phase entre les deux couleurs laser au sein du plasma, c'est ce terme qui contient l'information sur le caractère conique du rayonnement THz.

La figure 4.2, résultant de l'intégration de l'équation (4.6), indique que l'émission conique dépend majoritairement de trois paramètres :

- Le premier est la longueur du plasma L . La figure 4.2(a) montre que lorsque $L < l_d$, le rayonnement THz est maximal sur l'axe optique ($\Theta = 0$). En revanche pour des longueurs plasma plus élevées ($L > l_d$), un creusement de l'amplitude du rayonnement THz sur l'axe se crée, et l'onde THz est produite majoritairement hors-axe.
- Le second est la densité électronique N_e . D'une part, la figure 4.2(b) indique que pour $N_e > 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, l'angle d'émission théorique Θ_p augmente fortement avec N_e alors qu'il reste constant autour de 2.5° (pour $\nu = 5 \text{ THz}$) pour des niveaux de densité plus faibles. D'autre part, la figure 4.2(d) montre que la longueur de déphasage l_d est fortement décroissante avec N_e . Pour des niveaux de densité élevés, l'émission conique apparaît donc pour des longueurs plasmas plus faibles. Ce phénomène est dû à la correction de l'indice du milieu associée au plasma, décrite par l'équation (4.2) : plus N_e est important, plus la dispersion plasma est forte. Les interférences engendrant l'émission conique apparaissent alors pour des plasmas plus courts.
- Le troisième paramètre est la fréquence de l'onde THz rayonnée. A ce propos, la figure 4.2(c) trace l'intensité THz donnée par l'équation (4.6) en fonction de ν et Θ pour $N_e = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ et $L = 2l_d$. Elle met en lumière que l'angle d'émission théorique Θ_p est fortement décroissant avec la fréquence, en particulier dans la partie basse du spectre THz. De plus, cette figure montre que l'angle Θ_p prévu par l'équation (4.5) (courbe blanche) restitue de manière consistante l'évolution en ν de l'angle d'émission privilégié calculé à partir du modèle (4.6).

Lorsque $\lambda_{\text{THz}}/(2l_d) \ll 1$, l'angle d'émission conique donné par le modèle de You et al. (4.6) peut être déduit analytiquement. Il correspond à la valeur de Θ pour laquelle $|\widehat{E}(\omega, \Theta)|^2$ est maximal, i.e., le facteur dépendant de κ_{\pm} est maximal, étant donné que $A(\omega)$ est indépendant de Θ et que le terme de diffraction circulaire est d'influence limitée ($\beta \ll 1$). L'approximation $\text{sinc}\alpha_+ \approx \text{sinc}\alpha_- \approx 1$ conduit de facto à la relation (4.5). Cette condition est respectée ici car l_d reste souvent d'ordre millimétrique, voire centimétrique, là où la longueur d'onde THz reste inférieure à 300 microns ($\equiv 1 \text{ THz}$) sur l'ensemble du spectre étudié.

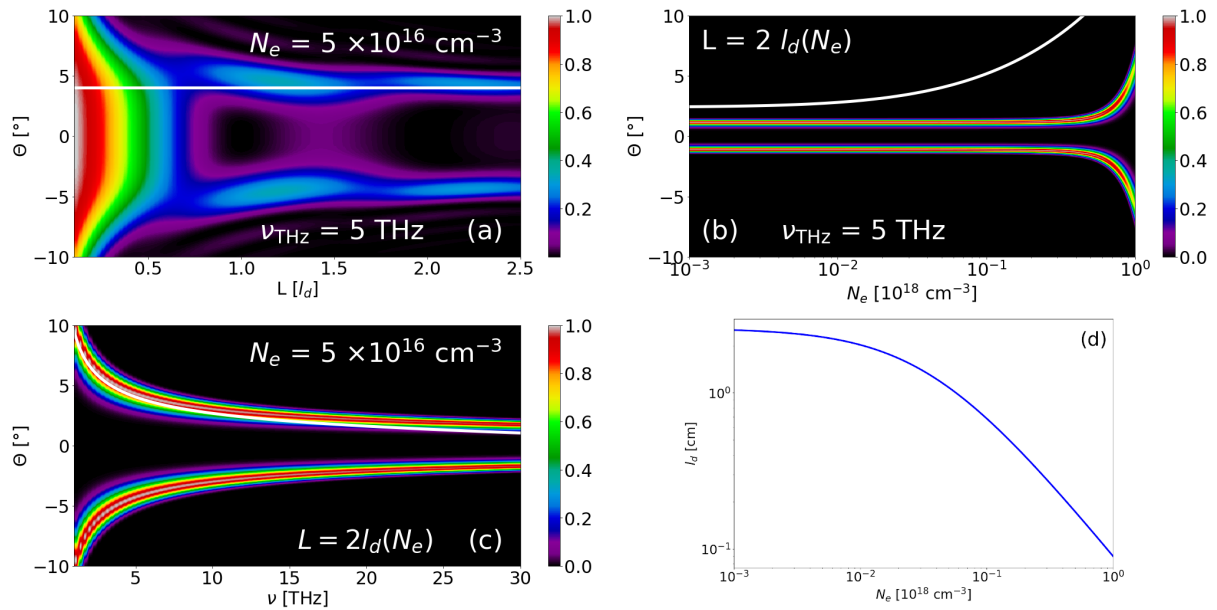


FIGURE 4.2: (a,b,c) Cartographie de l'intensité THz donnée par l'équation (4.6) en fonction de l'angle d'émission conique Θ et (a) de la longueur plasma L , (b) de la densité électronique N_e et (c) de la fréquence ν . Lorsqu'ils sont constants, ces paramètres valent $L = 2l_d(N_e)$, $N_e = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ et $\nu = 5 \text{ THz}$. Les cartes sont normalisées par rapport à leurs valeurs maximales respectives, et nous avons posé $A(\omega) = 1$ par commodité. Les courbes blanches rapportent l'angle d'émission conique Θ_p prédit par l'équation (4.5). (d) Evolution de la longueur de déphasage l_d avec N_e en échelle logarithmique. Dans tous les cas, nous avons posé $\lambda_0 = 0.8 \text{ }\mu\text{m}$.

4.1.2 Comparaison à des données expérimentales

Profil radial du faisceau THz

Dans le cadre du projet ALTESSE2, un enjeu a été de vérifier expérimentalement le caractère conique lié à l'émission THz produite par un plasma d'air. A cette fin, une étude dédiée à la mesure des profils transverses THz émis par un plasma atmosphérique créé par deux couleurs laser a nécessité de nouveaux diagnostics appropriés, exploités par les chercheurs de DTU/Fotonik en 2022 [199].

L'expérience consistait à focaliser dans l'air ambiant purgé en O_2 une impulsion laser femtoseconde ($\approx 40 \text{ fs}$) de fondamental 800 nm . La source optique était un amplificateur laser Ti:Saphir de taux de répétition 1 kHz . Le faisceau (5.5 mm de diamètre à mi-hauteur, d'énergie 0.9 mJ) traversait un cristal doubleur BBO, générant la seconde couleur (400 nm , environ 35% en conversion d'énergie laser). Le caractère LP-P de la polarisation de l'impulsion laser était assuré par une lame demi-onde (DWP). Le plasma d'air formé par photo-ionisation émettait des impulsions

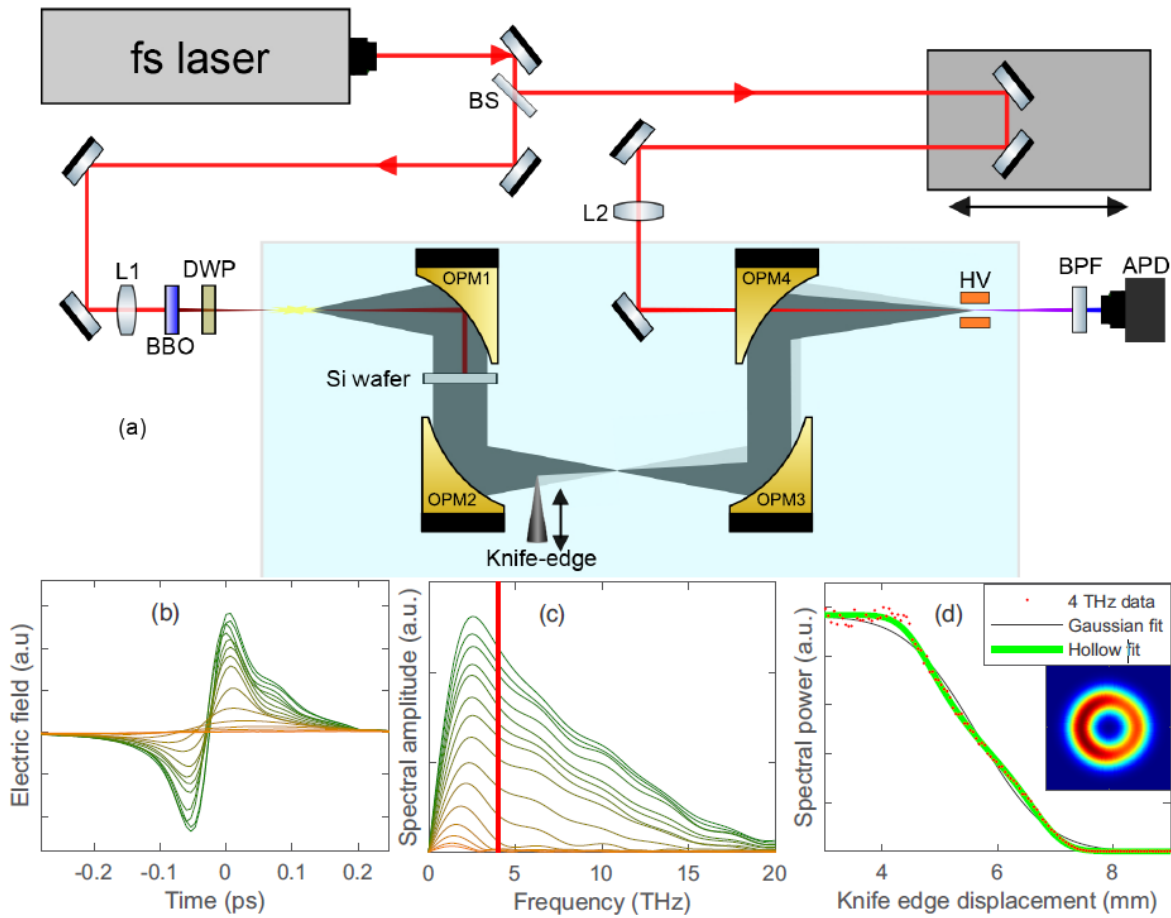


FIGURE 4.3: (a) Schéma de l'expérience menée à DTU/Fotonik incluant le diagnostic "knife-edge". (b) Signaux THz captés par la caméra pour chaque position de la lame de couteau, (c) et spectres correspondants. Entre chaque mesure, la lame de couteau est translatée de 0.3 mm. La ligne rouge désigne le choix de la fréquence pour laquelle le profil spatial THz est tracé (ici 4 THz). (d) Puissance spectrale mesurée (points rouges) de l'impulsion THz ($\nu = 4$ THz) pour différentes positions de la lame de couteau, comparée aux profils attendus pour une impulsion THz radialement gaussienne (courbe noire) ou annulaire (courbe verte). Source : Rasmussen [199]

THz ($\approx 0.2 \mu\text{J}$) qui étaient guidées par quatre miroirs paraboliques vers une lame de silicium filtrant ces impulsions de l'onde de pompe, puis vers un système de détection ABCD pour collecter le champ THz produit. Ce dispositif est représenté sur la figure 4.3(a).

Un point important de l'étude a été de mesurer les profils spatiaux du faisceau THz rayonné. Pour ce faire, cette mesure a utilisé la méthode dite de la lame de couteau, plus communément appelée "knife-edge". Les expérimentateurs ont veillé à localiser une zone où l'impulsion THz était focalisée et ont placé, proche de cette zone, une lame de couteau pouvant être translatée dans le plan transverse à l'axe optique pour contrôler le rayon du faisceau propagé. Pour chaque position de la lame, une caméra THz enregistrait le profil temporel du rayonnement produit et en

déduisait son spectre. Des exemples de telles mesures pour différentes positions de la lame sont présentés en figures 4.3(b, c), où nous remarquons une atténuation de l'amplitude THz détectée lorsque la lame est translatée vers l'axe optique, c'est-à-dire lorsque le rayon de l'impulsion THz mesurée diminue. La courbe de la puissance spectrale THz à $\nu = 4$ THz mesurée en fonction de la position de la lame de couteau est montrée en figure 4.3(d) (points rouges). Si le faisceau THz était transversalement gaussien, cette courbe suivrait une fonction d'erreur complémentaire du type :

$$P_{\text{THz}}(x) \propto \operatorname{erfc} \left| \sqrt{2}(x - x_0)/w \right| \quad (4.10)$$

avec x la position de la lame de couteau, x_0 un paramètre de fit et w le rayon en $1/e^2$ de l'impulsion THz.

Cependant, cette estimation (courbe noire) s'écarte de la mesure. Afin d'expliquer ces différences, une seconde comparaison a été effectuée avec le profil prévu dans le cas d'un faisceau THz axisymétrique et creux autour de l'axe optique (courbe verte), qui prend pour expression générale :

$$I_{\text{donut}}(r) = \exp \left(-2 \frac{(r - r_{\text{donut}})^2}{w_{\text{donut}}^2} \right) + \exp \left(-2 \frac{(r + r_{\text{donut}})^2}{w_{\text{donut}}^2} \right) \quad (4.11)$$

avec r_{donut} le rayon de l'anneau et w_{donut} son épaisseur, ces grandeurs satisfaisant $r_{\text{donut}} \leq w_{\text{donut}}$.

Le deuxième terme permet d'assurer $\partial_r I_{\text{donut}}(r = 0) = 0$.

Des correspondances satisfaisantes ont été retrouvées entre la mesure et ce modèle, indiquant que la forme de l'impulsion THz dans le plan où se situe la lame de couteau décrit un anneau, significatif de l'émission conique, et illustré par l'insert de la figure 4.3(d).

Ce procédé peut être réitéré en plaçant la lame de couteau plus ou moins loin du point où le rayonnement THz est focalisé, afin de mesurer l'étendue transverse de cette onde en différents lieux de sa propagation. La figure 4.4(a) montre à ce propos que lorsque la lame est positionnée proche du point focal, l'impulsion THz est radialement gaussienne et son diamètre diminue avec la fréquence, indiquant que les parties basse et haute du spectre THz se propagent avec des angles différents. Les figures 4.4(b,c) décrivent que plus loin du point focal, le profil mesuré se creuse autour de l'axe optique pour présenter un pic hors-axe, représentatif de l'émission conique. En particulier, les mesures confirment que l'angle d'ouverture du cône diminue avec la

fréquence mesurée, comme attendu selon le modèle de You et al.

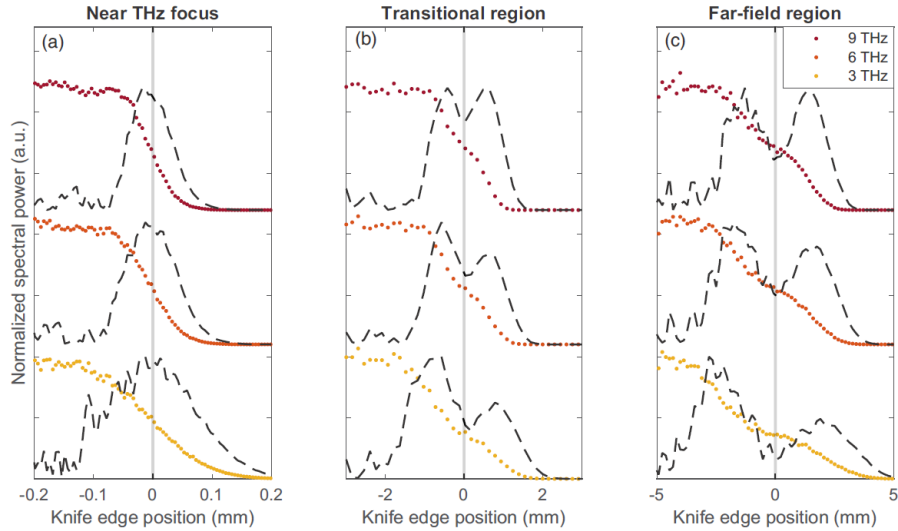


FIGURE 4.4: Mesures expérimentales du profil radial de l'émission THz pour $\nu = 3$ THz (courbes jaunes), $\nu = 6$ THz (courbes oranges) et $\nu = 9$ THz (courbes rouges) (a) proche du point focal, (b) dans la région transitoire et (c) loin du point focal, où le rayonnement prend la forme d'un cône. Source : Rasmussen [199]

Emission conique : Comparaison avec le modèle de You et al.

Un enjeu du présent travail a été de justifier et caractériser l'émission conique dans cette expérience, et de retrouver numériquement la dépendance angulaire des spectres THz mesurés. A cette fin, nous avons employé le modèle de You et al. (4.6), dont l'intégration consiste en l'estimation de quatre grandeurs : le profil spectral THz $A(\omega)$, le rayon a du plasma, sa longueur L et sa densité électronique N_e , toujours supposée uniforme dans le filament. Afin de les calculer, une simulation CUP3D de l'expérience a été réalisée. Nous avons simulé la propagation non-linéaire d'une impulsion à deux couleurs de fondamental opérant à $0.8 \mu\text{m}$, de durée 34 fs, de rayon initial $467 \mu\text{m}$ et d'énergie $800 \mu\text{J}$, dont 35 % était attribué à la seconde harmonique. Cette impulsion laser était focalisée par une lentille convergente de longueur focale 300 mm dans du diazote ($U_i = 15.6 \text{ eV}$) de densité initiale d'espèces neutres $2.7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et dont l'indice optique est calculé à partir du modèle de Peck et Reeder [117]. La fréquence de collisions électrons-neutres valait 2.86 THz et l'indice non-linéaire du milieu choisi était $n_2 = 3 \times 10^{19} \text{ cm}^2/\text{W}$. La puissance incidente laser vérifiait donc $P_{\text{in}} = 3P_{\text{cr}}$, avec $P_{\text{cr}} = 3.1 \text{ GW}$ la puissance critique du milieu.

Il est important de souligner que les plasmas observé et simulé ont des longueurs et densités

électroniques différentes, ce que nous attribuons à des imperfections du faisceau expérimental (distorsions du front d'onde, enveloppes non-gaussiennes). Nous identifierons donc séparément les quatre paramètres nécessaires à l'intégration du modèle de You et al. à partir des mesures expérimentales d'une part (indice *exp*), et de la simulation d'autre part (indice *sim*) afin de pouvoir comparer les estimations de ce modèle avec les spectres mesuré ou simulé.

Ignoré dans le modèle originel de You et al. [47, 48], le calcul du spectre THz $A(\omega)$, qui décrit le profil fréquentiel de l'impulsion THz, est rarement effectué dans la bibliographie. Toutefois, comme l'angle d'émission conique Θ_p est fortement dépendant de ν_{THz} [cf. figure 4.2(c)], la prise en compte de $A(\omega)$ est essentielle pour caractériser efficacement le rayonnement THz émis [197]. Lors de l'expérience menée à DTU/Fotonik, le détecteur THz employé fonctionnait comme un filtre passe-bas, dont la réponse fréquentielle en puissance est illustrée en figure 4.7(a). Afin de se rapprocher au mieux des conditions expérimentales, nous considérons que le facteur $|A_{\text{exp}}(\omega)|^2$ est donné par cette courbe.

Pour nos comparaisons avec les résultats du code CUP3D, le facteur $A_{\text{sim}}(\omega)$ a été calculé à partir d'une simulation LC. Les paramètres de l'impulsion laser ont été choisis à l'aide de la configuration initiale du champ optique de la simulation UPPE ($r = 35\%$, $\phi = \pi/4$), et son intensité a été identifiée à partir de celle calculée par CUP3D à l'entrée du plasma ($E_0 = 35$ GV/m).

Afin d'estimer le rayon du plasma a , nous avons cartographié la densité électronique maximale ($t \rightarrow +\infty$) calculée par CUP3D en fonction de la distance de propagation z et de la distance x à l'axe optique dans le plan transverse à ce dernier. Cette carte est illustrée en figure 4.5.

Cette figure révèle que le rayon du plasma vaut au plus $a \approx 50 \mu\text{m}$. Cet ordre de grandeur est cohérent avec les remarques effectuées en section 4.1.1, qui indiquaient que la diffraction circulaire associée à l'étendue radiale du canal plasma est négligeable dans une telle configuration ($\beta \ll 1$). Cette valeur sera retenue lors de l'intégration du modèle de You et al..

Les références [47, 48] définissent la grandeur L comme étant la longueur du plasma, ce qui reste flou pour un plasma réel, car tout point d'un tel filament ne génère pas nécessairement de rayonnement THz (les deux couleurs peuvent ne pas rester superposées par exemple). Nous choisissons ici de renommer cette quantité "longueur du volume émetteur d'ondes THz". Cette nouvelle définition indique que L peut être estimé à partir de la croissance de l'énergie THz générée par le plasma, montrée en figure 4.6(b) (courbe rouge).

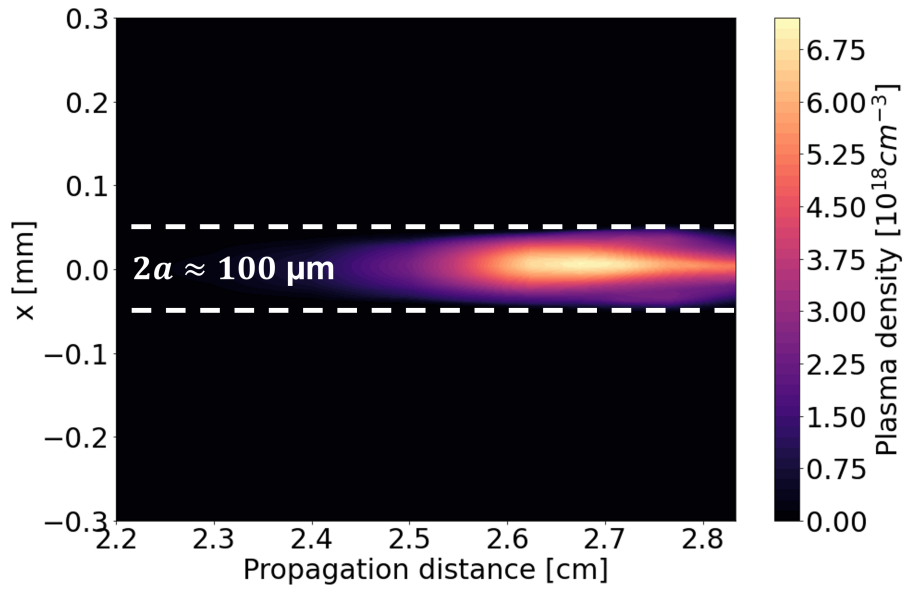


FIGURE 4.5: Cartographie de la densité électronique simulée par CUP3D dans le plan (x, z) (paramètres décrits dans le texte). Le rayon du canal plasma est estimé à $a \approx 50 \mu\text{m}$.

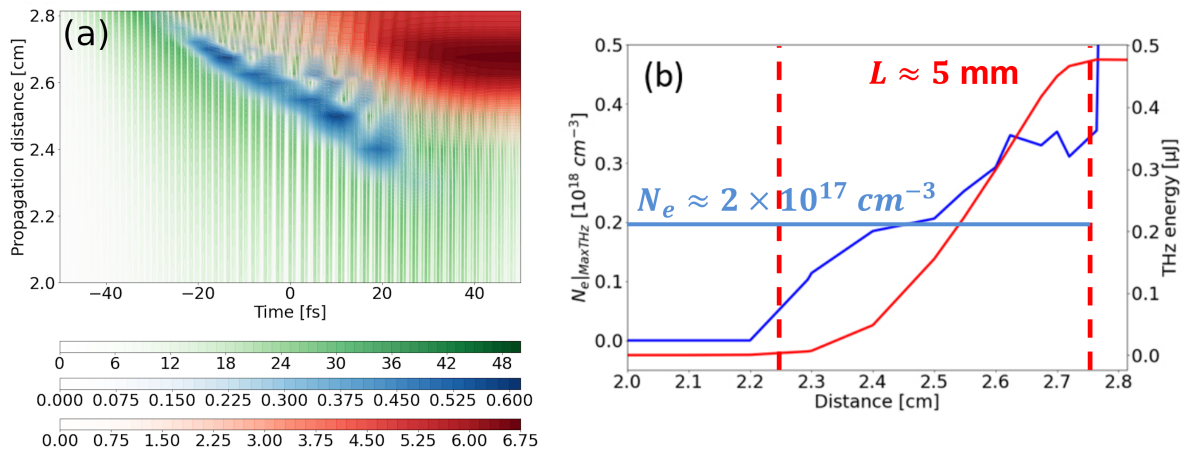


FIGURE 4.6: (a) Chronographies des évolutions en z du champ laser (carte verte, en GV/m), du champ THz ($\nu < 90$ THz) (carte bleue, en GV/m) et de la densité électronique (carte rouge, en 10^{18}cm^{-3}). Le rayonnement THz est produit avant que la densité plasma n'atteigne son maximum. (b) Evolutions en z de la valeur de la densité électronique à l'instant où le champ THz est maximal (courbe bleue, axe de gauche) et de l'énergie THz présente dans la fenêtre de simulation (courbe rouge, axe de droite). Source : Rasmussen [199]

En l'occurrence, nous observons que l'énergie THz contenue dans la boîte de simulation présente un accroissement entre 2.25 cm et 2.75 cm, et nous estimons donc la longueur de l'antenne génératrice de rayonnement THz à $L_{\text{sim}} \approx 5$ mm. La longueur du canal plasma observé lors de l'expérience est quant à elle estimée à $L_{\text{exp}} = 2.5$ cm.

A l'instar de la longueur L , la densité électronique N_e n'est pas clairement définie pour un

plasma sujet à des variations de densité en temps et en espace. Il est donc nécessaire d'estimer une valeur de densité plasma effective N_e^{eff} représentative du niveau de densité moyen atteint lorsque les ondes THz sont produites.

Dans le cas de la simulation, commençons par supposer que la majorité du rayonnement THz est formé proche de l'axe optique, où la densité est la plus élevée. Nous assimilons donc $N_e(t, x, y, z)$ à $N_e(t, x = 0, y = 0, z)$. Les variations en (t, z) de $N_e(t, z)$ et de $E_{\text{THz}}(t, z)$ sont tracées en figure 4.6(a). Cette dernière indique que le rayonnement THz (en bleu) est généré au cours de la croissance de la densité électronique (en rouge). La figure 4.6(b) précise pour chaque distance z le niveau de densité atteint à l'instant où le champ THz est maximal. Nous observons que le long du canal plasma, cette densité varie entre 1 et $3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Nous choisissons donc $N_{e,\text{sim}}^{\text{eff}} = 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ pour intégrer l'équation (4.6).

Lors de l'expérience, la densité plasma n'a pas pu être mesurée. Nous nous référons donc aux mesures de Théberge et al. [200] qui indiquent que la densité électronique maximale atteinte pour un plasma d'air formé par une impulsion laser femtoseconde de puissance incidente $P_{\text{in}} = 3P_{\text{cr}}$ et de rapport $w_0/f \approx 0.01$ vaut environ $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Or, le rapport entre la densité plasma maximale $N_e(t \rightarrow +\infty) \approx 6.75 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ [cf. figure 4.6(a)] et la densité électronique effective $N_e^{\text{eff}} = 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ valait ≈ 35 dans la simulation UPPE. En supposant que ce facteur reste le même pour le plasma expérimental, nous en déduisons $N_{e,\text{exp}}^{\text{eff}} \approx 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

A partir de la simulation UPPE et des estimations expérimentales, nous pouvons maintenant estimer le spectre angulo-fréquentiel en intensité THz généré par les plasmas de diazote définis sous les conditions ci-dessus. La figure 4.7(c) représente ce spectre résultant de l'intégration du modèle de You et al. à l'aide des paramètres expérimentaux (indice *exp*), et est comparé à la mesure réalisée lors de l'expérience, illustrée en figure 4.7(b). La figure 4.7(a) montre le spectre intégré en angle de cette mesure, que nous retenons comme facteur $|A_{\text{exp}}(\omega)|^2$ lors de la résolution de l'équation (4.6).

Les angles d'émission conique $\Theta_p(\nu_{\text{THz}})$ prévus par le modèle de You et al. sont en adéquation avec la mesure ($2^\circ < \Theta_p(\nu_{\text{THz}}) < 6^\circ$). En effet, cette dernière montre une évolution de $\Theta_p(\nu_{\text{THz}})$ en $\nu_{\text{THz}}^{-1/2}$ (courbe blanche pointillée), en accord avec la relation (4.5) lorsque $\lambda_{\text{THz}}/(2l_d) \ll 1$ car

$$\Theta_p \approx \arccos \left(1 - \frac{\lambda_{\text{THz}}}{2l_d} \right) \sim \sqrt{\frac{c}{l_d \nu_{\text{THz}}}}, \quad (4.12)$$

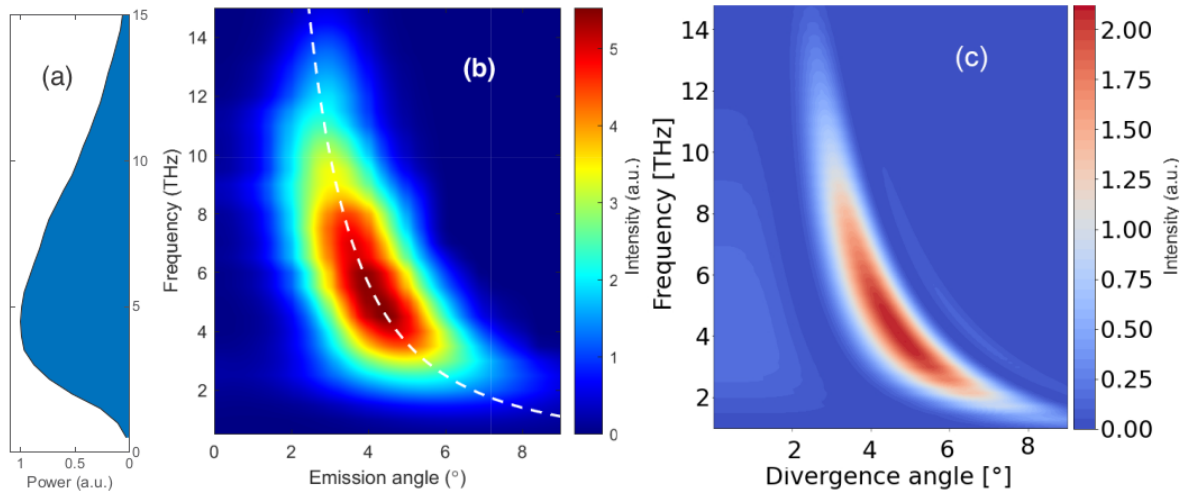


FIGURE 4.7: (a) Intégration angulaire du spectre mesuré, illustré en (b). (b) Spectre angulo-fréquentiel en intensité THz mesuré à l'aide de la technique de la lame de couteau. La ligne blanche montre que l'angle d'émission conique suit la loi $1/\sqrt{\nu_{\text{THz}}}$ en accord avec la relation (4.12). (c) Intégration du modèle de You et *al.* à l'aide des paramètres $L_{\text{exp}} = 2.5$ cm, $a = 50$ μm , et $N_{e,\text{exp}}^{\text{eff}} = 5 \times 10^{16}$ cm^{-3} . Le spectre $|A_{\text{exp}}(\omega)|^2$ utilisé correspond à la courbe tracée en (a). Source : Rasmussen [199]

en vertu du développement limité $\arccos(1 - u) \sim_{u \rightarrow 0} \sqrt{2u}$.

Cette relation est aussi en accord avec les observations de Nikolaeva et al. [201]. Remarquons que bien que l'intégration du facteur $A(\omega)$ est rarement effectuée dans la littérature, elle a ici été essentielle pour retrouver la mesure montrée en figure 4.7(b).

Enfin, la figure 4.8(a) illustre le spectre angulo-fréquentiel calculé par le code CUP3D. Contrairement à la mesure expérimentale, il présente une forte contribution sur l'axe pour $\nu < 10$ THz provenant d'un ratio L/l_d plus faible dans la simulation (≈ 1.3) que lors de l'expérience (≈ 2.3). Les angles d'émission privilégiés ($\Theta \approx 3 - 5^\circ$) ainsi que leur évolution avec la fréquence ν restent cependant en bon accord avec les mesures expérimentales. La figure 4.8(b) décrit le spectre estimé à partir du modèle de You et al, où nous avons utilisé les paramètres indicés *sim*. Pour rappel, le facteur $A_{\text{sim}}(\omega)$ a été ici calculé par intégration numérique du modèle LC, où les paramètres de l'impulsion laser d'entrée étaient choisis selon le faisceau laser UPPE à l'entrée du plasma. Le modèle de You et al. reproduit de manière satisfaisante les angles d'émission conique ainsi que la contribution sur l'axe prédits par la simulation UPPE. Les différences observées aux faibles fréquences entre ces deux spectres sont attribuées au code CUP3D, qui devient moins fiable pour les fréquences inférieures à la fréquence plasma ($< 3 - 4$ THz) car celui-ci ne prend

pas en compte les effets de dispersion, d'absorption et d'opacité plasma [202].

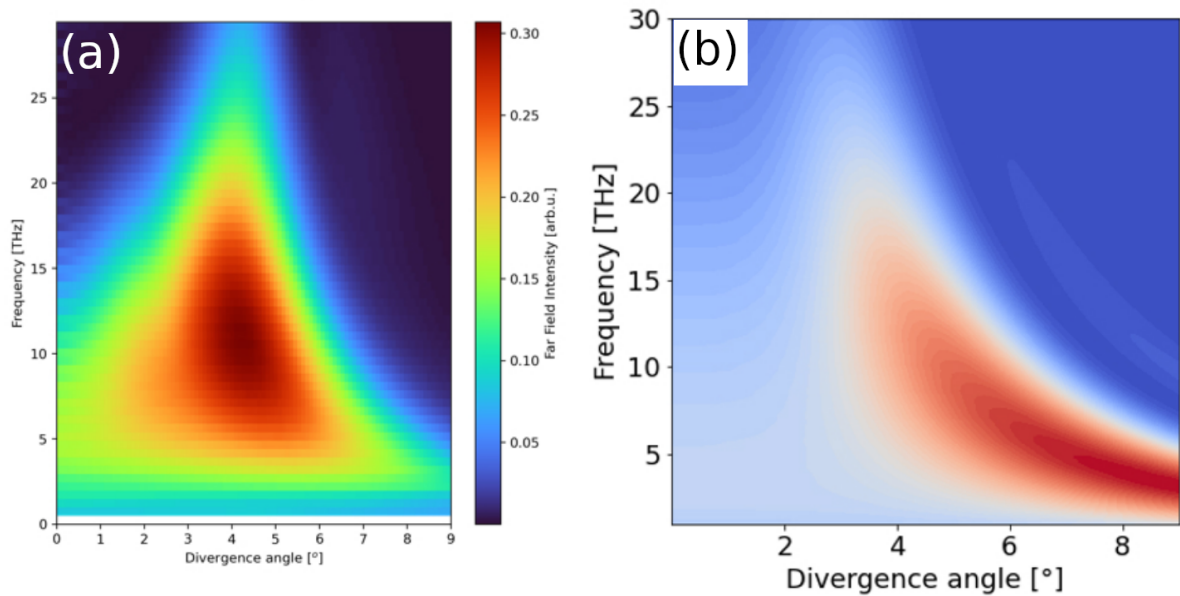


FIGURE 4.8: (a) Spectre angulo-fréquentiel simulé par le code CUP3D (paramètres précisés dans le texte). (b) Intégration du modèle de You et *al.* à partir des paramètres $L_{\text{sim}} = 5$ mm, $a = 50$ μm et $N_{e,\text{sim}}^{\text{eff}} = 2 \times 10^{17}$ cm^{-3} . La répartition fréquentielle $A_{\text{sim}}(\omega)$ a été obtenue par intégration du modèle LC, où les paramètres laser choisis ont été identifiés par rapport au faisceau laser UPPE à l'entrée du plasma. Source : Rasmussen [199]

4.2 Généralisation du modèle de You et *al.*

Cette section généralise le modèle de You et al. pour des canaux plasmas arbitraires. Nous commençons par établir que l'absorption et l'opacité plasma ainsi que les variations axiales de densité électronique jouent un rôle mineur sur le spectre angulo-fréquentiel THz, en nous basant sur des travaux précédemment publiés. Je propose ensuite un modèle de rayonnement THz en champ lointain produit par des canaux plasma admettant des variations de densité transverses et incluant les dépendances en enveloppe des impulsions laser excitatrices. Après avoir montré que ces effets d'enveloppe sont d'influence limitée, le modèle de You et al. est retrouvé comme une simplification du modèle général. Enfin, nous intégrons numériquement notre modèle en le comparant avec des spectres calculés par le code CUP3D pour des impulsions laser polarisées linéairement. Ces résultats permettent d'apprécier les différences entre le rayonnement généré par un plasma homogène transversalement ou non.

4.2.1 Commentaires préliminaires

Mis à part la publication de You et al. en 2012, d'autres auteurs se sont attachés à proposer une modélisation de l'émission conique THz incluant des effets annexes que nous rappelons ci-dessous.

Absorption et opacité plasma dans le domaine THz

Lorsque l'onde THz est générée, elle se propage sur une courte distance au sein du canal plasma d'indice de réfraction $n(\omega)$, dont les parties réelle et imaginaire se développent à partir de l'équation (4.2) :

$$\Re[n(\omega)] = \left(n_{\text{opt}}^2(\omega) - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \nu_c^2} \right)^{1/2}, \quad (4.13)$$

$$\Im[n(\omega)] = \frac{\nu_c \omega_p^2}{2\omega(\omega^2 + \nu_c^2)} \left(n_{\text{opt}}^2(\omega) - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \nu_c^2} \right)^{-1/2}, \quad (4.14)$$

où pour rappel, $\omega_p = \sqrt{e^2 N_e / (m_e \epsilon_0)}$ est la fréquence angulaire plasma (nous appellerons par la suite $\nu_p = \omega_p / (2\pi)$ la fréquence plasma) et ν_c est la fréquence de collisions électrons-neutres.

La réduction d'amplitude de l'onde THz associées aux collisions dans le plasma se réfèrent à l'"absorption plasma", et sont représentées par la partie imaginaire de $n(\omega)$. Par ailleurs, lorsque que $\omega < \sqrt{\omega_p^2 - \nu_c^2}$, la quantité dans la racine de l'expression de $\Re[n(\omega)]$ devient négative, ce qui induit une contribution supplémentaire à la partie imaginaire de $n(\omega)$. Cette dernière est nommée "opacité plasma".

Chronologiquement, le premier modèle de puissance THz rayonnée a été proposé par Kim et al. en 2008 [56]. Dans ce modèle impliquant une impulsion laser à deux couleurs, le rayonnement THz est généré uniquement par les photo-courants. Cette référence donne la dépendance spatiale et spectrale de l'intensité THz I_{THz} rayonnée par un plasma de longueur L supposé unidimensionnel sous la forme :

$$I_{\text{THz}}(\omega) \propto \left| \int_0^L E_{\text{THz}}(\omega, z) \exp \left[-\frac{L-z}{L_a(\omega, \omega_0, N_e)} \right] \exp[i\phi(z, \omega_p)] dz \right|^2, \quad (4.15)$$

où $E_{\text{THz}}(\omega, z)$ est le spectre THz produit par les photo-courants en z , $L_a = c / (\omega \Im[n])$ est la

longueur d'absorption caractéristique du filament induite par les collisions et $\phi(z, \omega_p)$ est le déphasage entre les deux couleurs à la sortie du plasma.

A l'image des travaux de You et al., le champ THz est supposé varier avec z en suivant l'évolution axiale du déphasage entre les deux couleurs (dispersion optique et plasma), ce qui mène à une émission conique loin du filament. Une caractéristique intéressante de ce modèle est la prise en compte de l'absorption plasma dans le domaine THz, qui ne peut être négligée d'après Kim et al. car l'onde THz est supposée se propager longitudinalement dans le plasma. Cependant, dans un cas réel, le rayonnement THz sort du filament par ses faces latérales. L'absorption plasma joue donc un rôle limité dans les configurations étudiées ici ($a \ll L$).

En 2014, Gorodetsky et al. [197] ont établi un modèle d'émission conique considérant l'opacité plasma et incluant les variations axiales et transverses du plasma afin de généraliser le modèle de Kim et al. Le champ électrique THz rayonné s'écrit :

$$E(\vec{r}, \omega) \propto k_{\text{THz}} \int_V \frac{e^{ik_{\text{THz}}|\vec{r}-\vec{r}'|}}{|\vec{r}-\vec{r}'|} A(x', z', \omega) \sin[\phi(z)] e^{ik_{\text{THz}}z} h(\vec{r}, \vec{r}', \omega) d^2\vec{r}', \quad (4.16)$$

avec $A(x, z, \omega)$ son amplitude spectrale générée localement, $\phi(z)$ le déphasage entre les couleurs, et $h(\vec{r}, \vec{r}', \omega)$ le terme d'absorption défini par :

$$h(\vec{r}, \vec{r}', \omega) = \begin{cases} 0 & \text{si } \omega < \omega_p, \\ \exp \left[i \int_{l(\vec{r}, \vec{r}')} k_{\text{THz}}(n(\xi, \omega) - 1) d\xi \right] & \text{si } \omega \geq \omega_p, \end{cases}, \quad (4.17)$$

où $l(\vec{r}, \vec{r}')$ décrit le chemin pris par l'onde THz générée en \vec{r}' pour sortir du filament et arriver en \vec{r} .

Hormis les variations spatiales du plasma considéré, ce modèle améliore la prise en compte du terme d'absorption en estimant le chemin optique parcouru par le rayonnement THz dans le plasma. Remarquons que formellement, le facteur $h(\vec{r}, \vec{r}', \omega)$ peut être généralisé tel que :

$$h(\vec{r}, \vec{r}', \omega) \rightarrow \exp \left[i \int_{l(\vec{r}, \vec{r}')} k_{\text{THz}}(n(\xi, \omega) - 1) d\xi \right]. \quad (4.18)$$

L'intégration numérique de ce terme est particulièrement complexe, d'une part car elle nécessite la connaissance de la distribution spatiale tridimensionnelle du plasma étudié, et d'autre part car en chaque point du filament, il contient une intégrale à calculer sur un chemin oblique dépendant de r' , de Θ , de Φ et de ν .

Une autre solution a été proposée par Thiele et al. [51], qui ont étudié la génération de rayonnement THz par des impulsions laser femtoseconde formant des micro-plasmas, dans lesquels la source principale d'ondes THz est la force pondéromotrice. Ce type de plasmas fait intervenir des niveaux de densité bien plus élevés que dans les filaments étudiés ici, et l'absorption plasma peut a priori devenir conséquente. D'après cette référence, il est possible de considérer que le rayonnement THz est généré sur une coquille de plasma, au centre de laquelle toute onde basse-fréquence ne peut sortir à cause de l'opacité et de l'absorption plasma.

Nous choisirons de négliger l'absorption plasma par la suite. En effet, la majeure partie du spectre THz produit par les photo-courants vérifie $\nu > \nu_c = 2.86 - 5$ THz. Pour les niveaux de densité effectifs généralement atteints par les plasmas de gaz étudiés ($N_e^{\text{eff}} \approx 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, cf. section précédente), la longueur d'absorption $L_a = c/(\omega \Im[n(\omega)])$ associée à une onde THz de fréquence $\omega = \nu_c$ est de l'ordre de la centaine de microns. En outre, dans cette partie du spectre, le rayonnement THz est rayonné à $\Theta \approx 5^\circ$. Sa distance de propagation au sein d'un filament de largeur $a \approx 20 \text{ }\mu\text{m}$ vaut donc $\sim 200 \text{ }\mu\text{m} \approx L_a$. Comme la longueur d'absorption est fortement croissante avec la fréquence, nous en déduisons que l'absorption plasma est négligeable dans la majeure partie du spectre THz ($\omega > \nu_c$) pour les configurations étudiées. De plus, l'intégration numérique du facteur $h(\vec{r}, \vec{r}', \omega)$ est particulièrement coûteuse, car elle fait intervenir en chaque point du filament, pour chaque fréquence THz ν et pour chaque angle d'émission Θ une intégrale sur un chemin devant être déterminé numériquement.

De même, l'opacité plasma concerne les fréquences inférieures à $\sqrt{\omega_p^2 - \nu_c^2} < 10$ THz pour des niveaux de densité effectifs de l'ordre de 10^{17} cm^{-3} . Cet effet devrait donc également jouer un rôle limité dans le spectre angulo-fréquentiel rayonné.

Notons que dans la référence [134], qui étend le modèle de rayonnement THz proposé par Thiele et al. en 2016 aux impulsions laser à deux couleurs, l'opacité plasma est négligée en raison des arguments présentés ci-dessus.

Variations axiales de la densité plasma

Le modèle de Gorodetsky et al. prend également en compte les inhomogénéités axiales du filament, que nous choisissons aussi de négliger dans notre modèle. Premièrement, au vu de la figure 4.6(b), la densité électronique effective N_e^{eff} varie peu au cours de la croissance de l'énergie THz. Deuxièmement, ce type de variations engendre des effets non-observés en pratique, comme des

angles d'émission conique secondaires. Afin de les mettre en évidence, nous généralisons le modèle de You et al. aux plasmas admettant de telles variations. L'intensité spectrale se reformule alors telle que :

$$|\widehat{\vec{E}}(\vec{r}, \omega)|^2 = \frac{\omega^2 \mu_0^2}{16\pi^2 r^2} \left(\frac{J_1(\beta)}{\beta} \right)^2 \left| \int_{-L/2}^{+L/2} dz' A(\omega, z') \sin \left(\phi_0 + \pi \frac{z'}{l_d(z')} \right) e^{i \frac{\omega}{c} (1 - \cos \Theta) z'} \right|^2. \quad (4.19)$$

en reprenant les notations de l'équation (4.6).

Par commodité technique, nous supposons que $A(z') \propto N_e^{\text{eff}}(z')$ car les ondes THz sont majoritairement formées par les photo-courants, pour lesquels $\widehat{J}_e(\omega) \propto \widehat{N}_e \widehat{E}(\omega)$.

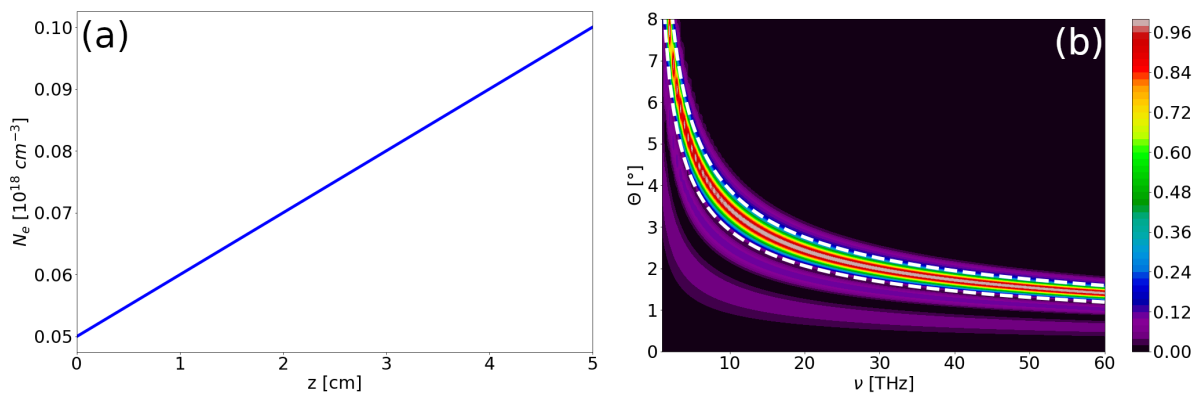


FIGURE 4.9: (a) Croissance linéaire de la densité électronique effective avec z . (b) Spectre angulo-fréquentiel THz calculé à l'aide de l'équation (4.19) pour $A(\omega, z')$ indépendant de ω et suivant la croissance en z' explicitée en (a). Les courbes blanches pointillées tracent l'angle conique $\Theta_p(\nu)$ prévu par le modèle de You et al. (4.5) pour un plasma homogène de densité $N_e^{\text{eff}} = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ (courbe inférieure) ou $N_e^{\text{eff}} = 1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ (courbe supérieure). Le spectre est normalisé par rapport à sa valeur maximale.

La figure 4.9(b), qui illustre le spectre calculé à partir de l'équation (4.19) pour la croissance linéaire de $N_e^{\text{eff}}(z')$ montrée en figure 4.9(a), révèle que les variations axiales de densité électronique ne modifient pas significativement l'angle d'émission privilégié. En effet, le lobe d'émission majoritaire reste correctement encadré par les angles minimum $\Theta_p(\nu, N_e^{\text{eff}} = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3})$ (courbe inférieure) et maximum $\Theta_p(\nu, N_e^{\text{eff}} = 1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3})$ (courbe supérieure) prévus par le modèle de You et al. Nous observons aussi des lobes supplémentaires, mais ceux-ci sont associés à des pics de faible intensité THz ($\approx 10\%$ de la valeur maximale du spectre), qui ne sont d'ailleurs pas observés dans les mesures rapportées dans la littérature [cf. figure 4.7(b)]. Nous en déduisons donc que l'importance des variations axiales du plasma sur le spectre angulo-fréquentiel THz

est marginale dans le contexte précédent.

4.2.2 Emission conique pour des impulsions laser gaussiennes

Sur la base des remarques précédentes, nous établissons ici un modèle général d'émission conique incluant des profils d'enveloppe laser en temps et dans le plan transverse. Soient t la variable de temps et \vec{r} la position du détecteur d'ondes THz. L'origine du repère est situé au centre du plasma de longueur L supposée finie. La géométrie du problème est illustrée en figure 4.10. Dans ce qui suit, Θ correspond à l'angle polaire avec lequel le rayonnement est émis par rapport à l'axe optique ; Φ est l'angle azimutal.

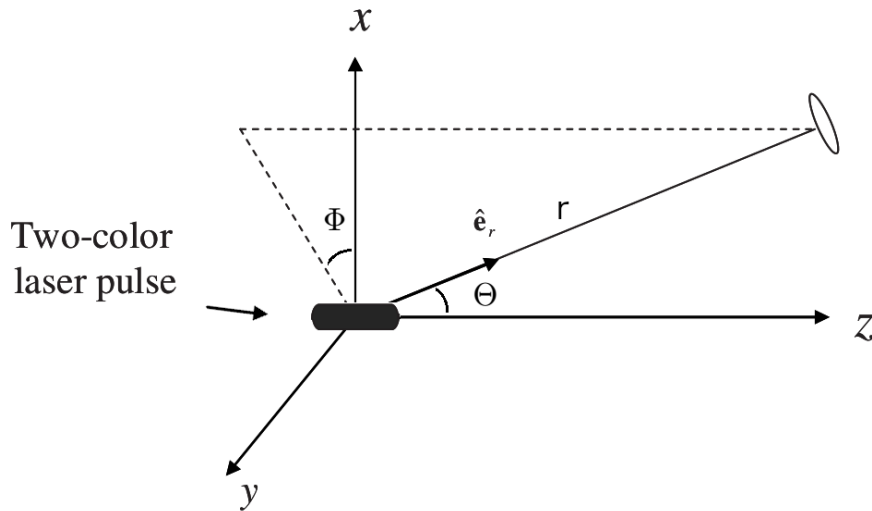


FIGURE 4.10: Schéma de la géométrie du problème étudié. Source : Peñano [203].

Le théorème de Helmholtz donne le potentiel vecteur $\vec{A}(\vec{r}, t)$ émis par une source volumique de volume V (ici le plasma) parcourue par une densité de courant électronique $\vec{J}(\vec{r}', t')$:

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \frac{\mu_0}{4\pi} \int_V d^3\vec{r}' \frac{\vec{J}(\vec{r}', t')}{|\vec{r} - \vec{r}'|}. \quad (4.20)$$

Le champ électrique $\vec{E}(\vec{r}, t)$ associé s'écrit, en l'absence de potentiel scalaire [$V(\vec{r}, t) = 0$] :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{\mu_0}{4\pi} \int_V d^3\vec{r}' \frac{\partial_t \vec{J}(\vec{r}', t')}{|\vec{r} - \vec{r}'|}, \quad (4.21)$$

où $t' = t - |\vec{r} - \vec{r}'|/c$ correspond au temps retardé auquel le détecteur reçoit le signal généré en t . Nous avons supposé que l'indice du milieu vaut 1 dans le domaine en fréquences étudié, ici le

spectre THz.

La transformée de Fourier temporelle de l'équation (4.21) mène à :

$$\widehat{\vec{E}}(\vec{r}, \omega) = -\frac{\mu_0}{4\pi} \int_V d^3\vec{r}' \frac{e^{ik|\vec{r}-\vec{r}'|}}{|\vec{r}-\vec{r}'|} \widehat{\partial_t \vec{J}}(\vec{r}', \omega), \quad (4.22)$$

en appliquant l'identité $\partial_t = \partial_{t'}$ et en posant $k = \omega/c$.

Nous supposons que la distance plasma-détecteur est grande devant les dimensions du filament, i.e., $|\vec{r}| \gg |\vec{r}'|$. Les coordonnées cartésiennes, cylindriques et sphériques sont écrites respectivement (x, y, z) , (r, φ, z) et (r, Θ, Φ) . Les notations ' s'appliquent aux coordonnées locales dans le plasma. L'hypothèse de champ lointain mène à la simplification :

$$|\vec{r} - \vec{r}'| \simeq r - \frac{\vec{r}' \cdot \vec{r}}{r} = r - \frac{r'}{r} (x \cos \varphi' + y \sin \varphi') - \frac{zz'}{r} = r - \frac{\vec{k}_\perp \cdot \vec{r}'_\perp}{k} - z' \cos \Theta. \quad (4.23)$$

L'équation (4.22) se réécrit donc :

$$\widehat{\vec{E}}(\vec{r}, \omega) = \frac{i\omega\mu_0}{4\pi r} e^{ikr} \int_{-L/2}^{+L/2} dz' e^{-ik \cos \Theta z'} \left[\iint_{x,y} d^2\vec{r}'_\perp \widehat{\vec{J}}(\vec{r}', \omega) e^{-i\vec{k}_\perp \cdot \vec{r}'_\perp} \right]. \quad (4.24)$$

Rappelons ici que le champ magnétique $\widehat{\vec{B}}(\vec{r}, \omega)$ associé au champ électrique émis par le plasma $\widehat{\vec{E}}(\vec{r}, \omega)$ a pour expression :

$$\widehat{\vec{B}}(\vec{r}, \omega) = -\frac{ik\mu_0}{4\pi r^2} e^{ikr} \int_{-L/2}^{+L/2} dz' e^{-ik \cos \Theta z'} \left[\iint_{x,y} d^2\vec{r}'_\perp \left(\vec{r} \times \widehat{\vec{J}}(\vec{r}', \omega) \right) e^{-i\vec{k}_\perp \cdot \vec{r}'_\perp} \right]. \quad (4.25)$$

Pour un rayonnement THz produit par les photo-courants ou la réponse Kerr, le champ basse-fréquence est orienté dans le plan transverse (\vec{e}_x, \vec{e}_y) à l'axe de propagation \vec{e}_z . En notant $\vec{e}_\perp = \cos \alpha \vec{e}_x + \sin \alpha \vec{e}_y$ la direction d'orientation de ce rayonnement, la puissance spectrale magnétique rayonnée $P_B(\vec{r}, \omega) = -c|\widehat{\vec{B}}(\vec{r}, \omega)|^2/\mu_0$ prend pour expression :

$$P_B(\vec{r}, \omega) = \frac{k^2 \mu_0^2}{16\pi^2 r^2} |\vec{e}_r \times \vec{e}_\perp|^2 \left| \int_{-L/2}^{+L/2} dz' e^{-ik \cos \Theta z'} \left[\iint_{x,y} d^2\vec{r}'_\perp \widehat{\vec{J}}(\vec{r}', \omega) e^{-i\vec{k}_\perp \cdot \vec{r}'_\perp} \right] \right|^2. \quad (4.26)$$

où $|\vec{e}_r \times \vec{e}_\perp|^2$ se développe en coordonnées sphériques (r, Θ, Φ) :

$$|\vec{e}_r \times \vec{e}_\perp|^2 = 1 - [\sin \Theta (\cos \alpha \cos \Phi + \sin \alpha \sin \Phi)]^2. \quad (4.27)$$

En comparaison de l'intensité électrique pouvant être calculée à partir de la relation (4.24), cette équation contient une dépendance en Θ supplémentaire déterminée par la direction de polarisation du champ électrique THz. Dans le cas où l'émission basse-fréquence est générée par la force pondéromotrice, le terme source est orienté selon \vec{e}_z [50, 54, 134, 172, 203, 204]. Cette dépendance supplémentaire s'écrit alors $|\vec{e}_r \times \vec{e}_z|^2 = 2 \sin^2 \Phi \sin^2 \Theta$ et influe fortement sur l'angle d'émission conique car elle favorise les émissions à angle Θ élevé. Au contraire, pour des photocourants orientés selon la direction transverse de l'onde laser, la relation (4.27) satisfait $|\vec{e}_r \times \vec{e}_\perp|^2 \approx 1$ aux angles de rayonnement faibles ($\Theta \approx 2-6^\circ$). Dans cette configuration, ce terme n'est pas discriminant et les champs $\vec{E}(\vec{r}, t)$ et $\vec{B}(\vec{r}, t)$ peuvent être supposés rayonnés à des angles Θ similaires. Les développements à suivre s'effectueront à partir de la formulation de $\vec{E}(\vec{r}, t)$ par continuité avec le modèle de You et al.

Cas d'une impulsion laser monochromatique

Commençons par développer la relation (4.24) dans le cas d'une impulsion laser monochromatique. Pour un tel faisceau, nous supposons que les dépendances transverses de tous les termes sources sont séparables en z et ω :

$$\widehat{\vec{J}}(x, y, z, \omega) = J_{\text{tr}}(x, y) \widehat{\vec{J}}_{\text{ax}}(z, \omega). \quad (4.28)$$

De plus, la densité de courant électronique $\vec{J}(\vec{r}, t)$ peut être supposée invariante par translation le long du canal plasma :

$$\vec{J}_{\text{ax}}(z, t) = \vec{J}_{\text{ax}}(t - z/v_g) \quad (4.29)$$

où v_g décrit la vitesse de groupe de l'onde de pompe. Cette condition s'applique à tous les termes sources de rayonnement THz inclus dans le courant $\vec{J}(\vec{r}, t)$ (photo-courants et effet Kerr) et amène la simplification :

$$\widehat{\vec{E}}(\vec{r}, \omega) = \frac{\mu_0}{4\pi r} e^{ikr} i\omega \widehat{\vec{J}}_0(\omega) \iint_{x,y} d^2\vec{r}'_\perp J_{\text{tr}}(\vec{r}'_\perp) e^{-i\vec{k}_\perp \cdot \vec{r}'_\perp} \int_{-L/2}^{+L/2} dz' e^{ikz'(\frac{c}{v_g} - \cos \Theta)}, \quad (4.30)$$

où nous avons utilisé $\widehat{\vec{J}}_{\text{ax}}(z, \omega) = \widehat{\vec{J}}_0(\omega) e^{i\omega z'/v_g}$ compte tenu des relations (4.28) et (4.29). Le terme $\widehat{\vec{J}}_0(\omega)$ correspond au spectre du mécanisme de conversion générant l'onde THz dont l'am-

plitude spectrale est notée $A(\omega)$ dans le modèle de You et al.

Le plasma étant supposé fini transversalement, l'intégrale dépendant de $J_{\text{tr}}(\vec{r}'_{\perp})$ peut se réécrire sous la forme d'une transformée de Fourier dans l'espace (x, y) :

$$\widehat{\vec{E}}(\vec{r}, \omega) = \frac{\mu_0}{4\pi r} e^{ikr} i\omega \widehat{\vec{J}}_0(\omega) \overline{J_{\text{tr}}}(k_{\perp}) \int_{-L/2}^{+L/2} dz' e^{ikz'(\frac{c}{v_g} - \cos \Theta)}, \quad (4.31)$$

où $\overline{f}(k_x, k_y)$ dénote la transformée de Fourier transverse de la fonction $f(x, y)$ (voir Formulaire).

La calcul du facteur intégral conduit finalement au modèle d'émission conique en intensité pour une impulsion laser monochromatique :

$$\left| \widehat{\vec{E}}(r, L, \omega) \right|^2 = \frac{\omega^2 \mu_0^2 L^2}{16\pi^2 r^2} \left| \widehat{\vec{J}}_0(\omega) \right|^2 \left| \overline{J_{\text{tr}}}(\vec{k}_{\perp}) \right|^2 \text{sinc}^2 \left[\frac{1}{2} kL \left(\frac{c}{v_g} - \cos \Theta \right) \right]. \quad (4.32)$$

Dans le cas d'une propagation laser axisymétrique, cette équation peut se simplifier selon la géométrie du plasma, par exemple :

- Pour un plasma filaire de rayon a , nous pouvons approcher son profil radial par des distributions de Dirac [54] :

$$J_{\text{tr}}(\vec{r}_{\perp}) = \delta(x)\delta(y)\pi a^2. \quad (4.33)$$

- Pour un plasma cylindrique, toujours de rayon a , le terme $\overline{J_{\text{tr}}}(k_{\perp})$ s'exprime par une fonction de Bessel $J_1(\beta)/\beta$ (avec $\beta = \omega a \sin \Theta / c$) représentant la diffraction circulaire des ondes THz dans le plasma [134].

Cas d'une impulsion laser à deux couleurs

Nous avons établi dans les chapitres précédents que les termes sources de rayonnement THz contenus dans $\vec{J}(\vec{r}, t)$ sont les photo-courants $\vec{J}_e(\vec{r}, t)$ et la réponse Kerr $\vec{P}_{\text{Kerr}}(\vec{r}, t)$ en moindre proportion. Nous négligeons ici la SRRS ne contribuant que marginalement au spectre THz. La décomposition

$$\vec{J}(\vec{r}, t) = \underbrace{\vec{J}_e(\vec{r}, t)}_{\text{Photo-courants}} + \underbrace{\partial_t \vec{P}_{\text{Kerr}}(\vec{r}, t)}_{\text{Kerr}} \quad (4.34)$$

permet ainsi de poursuivre le développement de l'équation (4.24) en calculant les termes sources

$\vec{J}_e(\vec{r}, t)$ et $\vec{P}_{\text{Kerr}}(\vec{r}, t)$ pour une impulsion laser à deux couleurs. Commençons par établir l'expression de son champ laser :

$$\vec{E}_L(\vec{r}, t) = \vec{\mathcal{E}}_1(\vec{r}, t'_1) \cos[\omega_0 t'_1 + \phi_1(\vec{r})] \quad (4.35)$$

$$+ \vec{\mathcal{E}}_2(\vec{r}, t'_2) \cos[2\omega_0 t'_2 + \phi_2(\vec{r})] \quad (4.36)$$

en posant $t'_{j=\{1,2\}} = t - t_c^j - z/v_{gj}$. Les instants t_c^j correspondent aux maxima des enveloppes temporelles des deux couleurs, $v_{gj} = c/n(j\omega_0)$ sont leurs vitesses de groupe respectives et $\phi_j(\vec{r})$ leurs phases.

Nous supposons que le profil radial des enveloppes des deux couleurs laser $\mathcal{E}_j(\vec{r})$ varient peu le long du filament à cause de l'effet de clamping. Nous admettons que les phases $\phi_j(\vec{r})$ respectent également cette hypothèse pour des filaments suffisamment courts. Bien que cette dernière approximation puisse être mise en cause à cause des non-linéarités optiques, nous verrons par la suite qu'elle permet de restituer des spectres de rayonnement THz en champ lointain satisfaisants.

La contribution des électrons libres $\vec{J}_e(\vec{r}, t)$ est ici calculée à l'aide du modèle de taux d'ionisation QST simplifié :

$$W(E) \approx CE^2(t), \quad C = \text{const.} \implies N_e(t) \approx C \int_{-\infty}^t E_L^2(t') dt', \quad (4.37)$$

mentionné au chapitre 2 [cf. figure 2.8] et valable pour un degré d'ionisation faible ($N_e \ll N_a$) [160]. Nous commençons par développer notre modèle pour un faisceau laser LP-P. Il sera aisément généralisé à des impulsions CP-S par la suite. En ne retenant que les termes quasi-DC, nous obtenons ainsi :

$$(\partial_t + \nu_c) \vec{J}_{e,\text{THz}} = \dot{J}_{e,0} \mathcal{E}_1^2(\vec{r}_\perp, t'_1) \mathcal{E}_2(\vec{r}_\perp, t'_2) \sin[\Delta k z + \phi'(\vec{r}_\perp)] \vec{e}_x, \quad (4.38)$$

avec $\dot{J}_{e,0} = \frac{3Ce^2}{8m_e\omega_0}$ et où nous avons posé les notations :

$$\Delta k = \frac{2\omega_0}{c} [n(\omega_0) - n(2\omega_0)], \quad (4.39)$$

$$\Delta t = t_c^1 - t_c^2, \quad (4.40)$$

$$\phi(\vec{r}_\perp) = \phi_2(\vec{r}_\perp) - 2\phi_1(\vec{r}_\perp) \quad (4.41)$$

$$\phi'(\vec{r}_\perp) = \phi(\vec{r}_\perp) + 2\omega_0\Delta t. \quad (4.42)$$

Physiquement, Δk est la différence de nombres d'ondes entre les harmoniques, Δt est le décalage temporel entre leurs enveloppes, et $\phi'(\vec{r}_\perp)$ est leur déphasage en temps et dans les coordonnées transverses incluant le décalage précédent.

De même, le terme source Kerr est obtenu en injectant l'équation (4.35) dans la définition $\vec{P}_{\text{Kerr}} = \epsilon_0\chi^{(3)}\vec{E}_L^3$ puis en ne gardant que le terme basse-fréquence :

$$\vec{P}_{\text{Kerr,THz}} = P_{\text{Kerr},0}\mathcal{E}_1^2(\vec{r}_\perp, t'_1)\mathcal{E}_2(\vec{r}_\perp, t'_2) \cos [\Delta kz + \phi'(\vec{r}_\perp)]\vec{e}_x, \quad (4.43)$$

avec $P_{\text{Kerr},0} = \frac{3\epsilon_0}{4}\chi^{(3)}(\omega_0)$.

La grandeur $P_{\text{Kerr},0}$ (resp. $\dot{J}_{e,0}$) est une constante de proportionnalité entre la polarisation Kerr (resp. la dérivée temporelle des photo-courants), les effets cubiques d'enveloppes temporelles (en $\mathcal{E}_1^2\mathcal{E}_2$) et les dépendances axiales en sinus et cosinus. Afin de simplifier les relations (4.38) et (4.43), nous séparons les variations temporelles et radiales des enveloppes laser :

$$\mathcal{E}_j(\vec{r}_\perp, t'_j) = \mathcal{E}_{tr,j}(\vec{r}_\perp)\mathcal{E}_{ax,j}(t'_j) \quad (4.44)$$

de manière à pouvoir développer $\widehat{\vec{J}}(\vec{r}, \omega)$ tel que :

$$\widehat{\vec{J}}(\vec{r}, \omega) = \widehat{\vec{J}}_0(\vec{r}, \omega)J_{\text{tr}}(\vec{r}'_\perp)\mathcal{F}_t [\mathcal{E}_{ax,1}^2(t'_1)\mathcal{E}_{ax,2}(t'_2)], \quad (4.45)$$

où nous avons introduit $J_{\text{tr}}(\vec{r}'_\perp)$ tel que :

$$J_{\text{tr}}(\vec{r}'_\perp) = \mathcal{E}_{tr,1}^2(\vec{r}'_\perp)\mathcal{E}_{tr,2}(\vec{r}'_\perp) \quad (4.46)$$

et où $\widehat{\vec{J}}_0(\vec{r}, \omega)$ est défini par

$$\widehat{J}_0(\vec{r}'_{\perp}, z, \omega) = \frac{-i\omega J_{e,0}}{\nu_c - i\omega} \sin(\Delta kz + \phi'(\vec{r}'_{\perp}))\vec{e}_x - i\omega P_{\text{Kerr},0} \cos(\Delta kz + \phi'(\vec{r}'_{\perp}))\vec{e}_x, \quad (4.47)$$

où nous avons posé $J_{e,0} = -i\omega \dot{J}_{e,0}$. La notation \mathcal{F}_t fait référence à la transformée de Fourier temporelle (équivalente à la notation $\widehat{\cdot}$ utilisée précédemment).

Pour des impulsions laser CP-S, il suffit d'effectuer la transformation

$$J_{e,0} \sin(\Delta kz + \phi'(\vec{r}'_{\perp}))\vec{e}_x \rightarrow \begin{pmatrix} J_{e,0}^x \sin(\Delta kz + \phi'(\vec{r}'_{\perp})) \\ J_{e,0}^y \cos(\Delta kz + \phi'(\vec{r}'_{\perp})) \end{pmatrix} \quad (4.48)$$

$$P_{\text{Kerr},0} \cos(\Delta kz + \phi'(\vec{r}'_{\perp}))\vec{e}_x \rightarrow \begin{pmatrix} P_{\text{Kerr},0}^x \cos(\Delta kz + \phi'(\vec{r}'_{\perp})) \\ -P_{\text{Kerr},0}^y \sin(\Delta kz + \phi'(\vec{r}'_{\perp})) \end{pmatrix} \quad (4.49)$$

d'après les développements présentés au chapitre précédent. Par la suite, nous supposons que $J_{e,0}^x = J_{e,0}^y$ et $P_{\text{Kerr},0}^x = P_{\text{Kerr},0}^y$.

Les enveloppes transverses $\mathcal{E}_{tr,1}(\vec{r}_{\perp})$ et $\mathcal{E}_{tr,2}(\vec{r}_{\perp})$ ainsi que le déphasage $\phi(\vec{r}_{\perp})$ sont supposées connues. En pratique, ces grandeurs sont calculées à l'aide d'un code de simulation de propagation linéaire d'impulsions laser dont les couleurs comportent des enveloppes transverses généralement gaussiennes initialement, et leurs phases contiennent l'effet de lentille. Dans le chapitre suivant, nous ajouterons à $\phi(\vec{r}_{\perp})$ des distorsions correspondant aux aberrations optiques pouvant survenir dans la chaîne optique d'un montage expérimental.

Le seul facteur restant à caractériser est donc la transformée de Fourier des enveloppes temporelles laser. A cette fin, nous supposons qu'elles suivent un profil gaussien :

$$\mathcal{E}_{ax,j}(t) = e^{-t^2/t_j^2} \quad (4.50)$$

avec t_j la durée de l'enveloppe de la j^{eme} couleur.

A l'aide de la propriété de la transformée de Fourier $\mathcal{F}_t[f(t - t_0)] = \mathcal{F}_t[f(t)]e^{i\omega t_0}$, nous pouvons simplifier :

$$\mathcal{F}_t[\mathcal{E}_{ax,1}^2(t'_1)\mathcal{E}_{ax,2}(t'_2)] = \mathcal{F}_t\left[\mathcal{E}_{ax,1}^2(t)\mathcal{E}_{ax,2}(t + \Delta t + \frac{z\Delta k}{2\omega_0})\right] e^{i\frac{\omega}{v_{g1}}z + i\omega t_c^1}. \quad (4.51)$$

Or,

$$\mathcal{F}_t \left[\mathcal{E}_{ax,1}^2(t) \mathcal{E}_{ax,2}(t + \Delta t + \frac{z\Delta k}{2\omega_0}) \right] = e^{-b(z)^2 t_2^2} \mathcal{F}_t \left[e^{-ut^2} e^{-2b(z)t} \right] \quad (4.52)$$

où nous avons utilisé les notations :

$$u = \frac{2}{t_1^2} + \frac{1}{t_2^2}, \quad b(z) = \frac{\Delta k z}{2\omega_0 t_2^2} + \frac{\Delta t}{t_2^2}. \quad (4.53)$$

A l'aide de l'identité :

$$\mathcal{F}_t [e^{-ut^2 - 2b(z)t}] = \sqrt{\frac{\pi}{u}} e^{\frac{(2b(z) - i\omega)^2}{4u}}, \quad (4.54)$$

nous pouvons établir la relation suivante :

$$\mathcal{F}_t [\mathcal{E}_{ax,1}^2(t'_1) \mathcal{E}_{ax,2}(t'_2)] = \sqrt{\frac{\pi}{u}} e^{i\frac{\omega}{v_{g1}} z + i\omega t'_c} e^{\frac{(2b(z) - i\omega)^2}{4u}} e^{-b^2(z)t_2^2}. \quad (4.55)$$

Après les développements, cette équation s'écrit sous la forme :

$$\mathcal{F}_t [\mathcal{E}_{ax,1}^2(t'_1) \mathcal{E}_{ax,2}(t'_2)] = \exp [ikzn_0] C_{env}(\omega) D_{env}(z, \omega). \quad (4.56)$$

Le terme $C_{env}(\omega)$ est donné par :

$$C_{env}(\omega) = t_1 \sqrt{\frac{\pi}{2}} \exp [i\omega t'_c] \exp \left[-\frac{2\Delta t^2}{t_{eq}^2} \right] \exp \left[-i\omega \Delta t \frac{t_1^2}{t_{eq}^2} \right] \exp \left[-\frac{t_1^2 t_2^2}{4t_{eq}^2} \omega^2 \right], \quad (4.57)$$

avec $t_{eq}^2 = t_1^2 + 2t_2^2$.

Il représente l'impact des interactions cubiques entre les enveloppes temporelles laser gaussiennes (dépendance en t_{eq}) sur le spectre THz rayonné, ainsi que la décroissance exponentielle de ce dernier selon le décalage temporel Δt .

$D_{env}(z, \omega)$ contient les variations axiales du spectre THz rayonné dû à ces effets d'enveloppe :

$$D_{env}(z, \omega) = \exp \left[-i\frac{\omega}{\omega_0} \frac{t_1^2}{2t_{eq}^2} Z \right] \exp \left[-\frac{2\Delta t}{\omega_0 t_{eq}^2} Z \right] \exp \left[-\frac{1}{2\omega_0^2 t_{eq}^2} Z^2 \right], \quad (4.58)$$

où nous avons noté $Z = \pi z / l_d$ par souci de simplicité.

Remarquons que les définitions de $C_{env}(\omega)$ et de $D_{env}(z, \omega)$ sont telles que négliger les effets d'enveloppe revient à poser $C_{env}(\omega) = D_{env}(z, \omega) = 1$.

Au vu de l'équation (4.56), la grandeur $\widehat{\vec{J}}(\vec{r}, \omega)$ donnée par la relation (4.45) se simplifie alors :

$$\widehat{\vec{J}}(\vec{r}, \omega) = \widehat{\vec{J}}_0(\vec{r}, \omega) \exp [ikzn_0] J_{\text{tr}}(\vec{r}'_{\perp}) C_{\text{env}}(\omega) D_{\text{env}}(z, \omega), \quad (4.59)$$

L'intégration telle quelle de la relation (4.59) donne lieu à des développements relativement complexes. Nous pouvons cependant la simplifier en remarquant que le terme quadratique en z^2 dans l'expression de $D_{\text{env}}(z, \omega)$ est très faible devant les autres : nous traitons habituellement des longueurs plasma L au plus de quelques l_d tandis que $\omega_0 t_{\text{eq}} \gg 1$. Les contributions d'ordre $(\omega_0 t_{\text{eq}})^{-2}$ étant négligeables, le dernier terme dans l'équation (4.58) est donc très proche de l'unité.

En injectant les relations (4.59) et (4.47) dans l'équation (4.24), le champ électrique rayonné prend la forme :

$$\widehat{\vec{E}}(\vec{r}, \omega) = -\frac{\mu_0}{4\pi r} e^{ikr} \left[A_J(\omega) \vec{I}_J(\Theta, \Phi, \omega) + A_{\text{Kerr}}(\omega) \vec{I}_{\text{Kerr}}(\Theta, \Phi, \omega) \right], \quad (4.60)$$

avec $A_J(\omega)$ et $A_{\text{Kerr}}(\omega)$ les spectres THz associés respectivement aux photo-courants et à la réponse Kerr

$$A_J(\omega) = -i\omega C_{\text{env}}(\omega) \frac{J_{e,0}}{1 + i\nu_c/\omega}, \quad (4.61)$$

$$A_{\text{Kerr}}(\omega) = -\omega^2 C_{\text{env}}(\omega) P_{\text{Kerr},0}, \quad (4.62)$$

et où les grandeurs $\vec{I}_J(\Theta, \omega)$ et $\vec{I}_{\text{Kerr}}(\Theta, \omega)$ décrivent respectivement les interférences entre les ondes THz générées par les photo-courants et par la réponse Kerr au sein du canal plasma :

$$\vec{I}_J(\Theta, \Phi, \omega) = \int_{-L/2}^{+L/2} dz' e^{ikz'(\frac{c}{v_{g1}} - \cos \Theta)} D_{\text{env}}(z', \omega) \frac{e^{i\Delta kz'} I_S^+ - e^{-i\Delta kz'} I_S^-}{2i} \vec{e}_x, \quad (4.63)$$

$$\vec{I}_{\text{Kerr}}(\Theta, \Phi, \omega) = \int_{-L/2}^{+L/2} dz' e^{ikz'(\frac{c}{v_{g1}} - \cos \Theta)} D_{\text{env}}(z', \omega) \frac{e^{i\Delta kz'} I_S^+ + e^{-i\Delta kz'} I_S^-}{2} \vec{e}_x. \quad (4.64)$$

Les grandeurs $I_S^{\pm}(\Theta, \Phi, \omega)$ contiennent les intégrales transverses :

$$I_S^\pm(\Theta, \Phi, \omega) = \iint_{x,y} d^2\vec{r}'_\perp J_{\text{tr}}(\vec{r}'_\perp) e^{\pm i\phi'(\vec{r}'_\perp)} e^{-i\vec{k}_\perp \cdot \vec{r}'_\perp}. \quad (4.65)$$

Ces expressions, valables pour une impulsion optique LP-P, peuvent être généralisées au cas CP-S à l'aide des relations (4.48) et (4.49).

À l'image du cas d'une impulsion laser monochromatique, le plasma est supposé fini transversalement. Les facteurs $I_S^\pm(\Theta, \Phi, \omega)$ peuvent donc se réécrire :

$$I_S^\pm(\Theta, \Phi, \omega) = \mathcal{F}_\perp \left[J_{\text{tr}}(\vec{r}'_\perp) e^{\pm i\phi'(\vec{r}'_\perp)} \right] (\Theta, \Phi, \omega), \quad (4.66)$$

où \mathcal{F}_\perp représente l'opérateur de transformée de Fourier transverse (voir Formulaire).

Le calcul des intégrales $\vec{I}_J(\Theta, \Phi, \omega)$ et $\vec{I}_{\text{Kerr}}(\Theta, \Phi, \omega)$ donne, pour une impulsion laser LP-P :

$$\vec{I}_J^{\text{LP-P}}(\Theta, \omega) = \frac{L}{2} \left[I_S^+(\Theta, \Phi, \omega) \text{sinc}(\alpha_+ + i\beta) - I_S^-(\Theta, \Phi, \omega) \text{sinc}(\alpha_- + i\beta) \right] \vec{e}_x, \quad (4.67)$$

$$\vec{I}_{\text{Kerr}}^{\text{LP-P}}(\Theta, \omega) = i \frac{L}{2} \left[I_S^+(\Theta, \Phi, \omega) \text{sinc}(\alpha_+ + i\beta) + I_S^-(\Theta, \Phi, \omega) \text{sinc}(\alpha_- + i\beta) \right] \vec{e}_x, \quad (4.68)$$

avec $\text{sinc}(x) = \sin x/x$ la fonction sinus cardinal, et pour un faisceau CP-S :

$$\vec{I}_J^{\text{CP-S}}(\Theta, \omega) = \frac{L}{2} \left(I_S^+(\Theta, \Phi, \omega) \text{sinc}(\alpha_+ + i\beta) - I_S^-(\Theta, \Phi, \omega) \text{sinc}(\alpha_- + i\beta) \right), \quad (4.69)$$

$$\vec{I}_{\text{Kerr}}^{\text{CP-S}}(\Theta, \omega) = i \frac{L}{2} \left(I_S^+(\Theta, \Phi, \omega) \text{sinc}(\alpha_+ + i\beta) + I_S^-(\Theta, \Phi, \omega) \text{sinc}(\alpha_- + i\beta) \right). \quad (4.70)$$

Les grandeurs α_\pm et β sont définies par :

$$\alpha_\pm = \frac{1}{2} kL \left(n_0 - \cos \Theta \pm \frac{\lambda_{\text{THz}}}{2l_d} - \frac{\omega}{\omega_0} \frac{t_1^2}{t_{eq}^2} \frac{\lambda_{\text{THz}}}{4l_d} \right) \quad (4.71)$$

$$\beta = \frac{\Delta t}{\omega_0 t_{eq}^2} \frac{\pi L}{l_d} \quad (4.72)$$

Dans l'expression de α_\pm , qui contient l'information sur les interférences induites par les harmoniques laser dans le plasma et menant à l'émission conique, le terme en ω/ω_0 provient du caractère gaussien des enveloppes temporelles. Dans le domaine THz, $\omega \ll \omega_0$. Il est dès lors

naturel de le négliger.

La quantité β décrit la décroissance d'amplitude THz générée à cause du décalage temporel Δt entre les enveloppes des deux harmoniques laser. Lorsque celles-ci sont superposées (ce qui est généralement le cas ici), $\Delta t = 0$ mène à $\beta = 0$. Dans le cas contraire, notre modèle indique une décroissance exponentielle de l'amplitude du champ THz avec Δt .

Les équations (4.57), (4.67) et (4.68) [alternativement (4.69) et (4.70)] peuvent finalement être injectées dans la relation (4.60) pour aboutir à notre modèle d'émission conique en intensité :

$$\left| \widehat{\vec{E}}(\vec{r}, \omega) \right|^2 = \frac{\mu_0^2}{16\pi^2 r^2} \left| A_J(\omega) \vec{I}_J(\Theta, \Phi, \omega) + A_{\text{Kerr}}(\omega) \vec{I}_{\text{Kerr}}(\Theta, \Phi, \omega) \right|^2. \quad (4.73)$$

Celui-ci représente une amélioration du modèle de You et al. sur quatre points :

- L'étendue transverse des termes sources n'est plus supposée constante de rayon a , mais est ici quelconque (tant que le plasma reste fini transversalement). Le modèle de You et al. est alors facilement retrouvé sous cette hypothèse et pour des couleurs superposées en temps $\Delta t = 0$ modélisées par des ondes planes. Ces développements sont explicités plus bas.
- Les effets d'enveloppes temporelles survenant lors des mélanges de fréquences (liés à $N_e \vec{E}_L$ pour les photo-courants et à \vec{E}_L^3 pour l'effet Kerr) sont pris en compte à travers le terme $C_{env}(\omega)$.
- Ce modèle permet l'étude de faisceaux laser CP-S, contrairement au modèle de You et al qui ne traite que des faisceaux polarisés linéairement. L'impact de cette configuration vectorielle sur l'émission conique sera adressé dans le chapitre 5.
- Enfin, les sources de rayonnement THz ont été généralisées pour également inclure la contribution des électrons liés aux noyaux (réponse Kerr).

Notons que les spectres $A_J(\omega)$ et $A_{\text{Kerr}}(\omega)$ sont analogues, quoique plus complets, à la grandeur $A(\omega)$ décrite dans le modèle de You et al. (4.6). Leur expression est ici définie par le caractère gaussien des enveloppes temporelles laser.

Nous avons implicitement supposé que la longueur de déphasage l_d est constante dans l'espace, bien que les termes sources de rayonnement THz comportent des variations radiales. Cela signifie qu'à l'instar du modèle de You et al., nous avons besoin d'identifier un niveau de densité électronique effectif N_e^{eff} à partir d'un plasma réel ou simulé pour calculer l_d et ainsi intégrer

notre modèle. Cette hypothèse est justifiée par les figures 4.2(b,d), qui indiquent que $l_d(N_e)$ et en particulier $\Theta_p(N_e)$ sont plutôt constants pour des valeurs de densité effectives réalistes $N_e^{\text{eff}} < 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Elle peut cependant être mise en cause à des niveaux de densité plasma plus élevés, où la longueur de déphasage $l_d(N_e)$ est plus sensible aux variations de N_e .

Dérivation du modèle de You et *al.*

Le modèle originel de You et al. (4.6) [47, 48] se retrouve facilement à partir de notre modèle d'émission conique. Nous supposons que le plasma est cylindrique de longueur L et de rayon a , et homogène en densité électronique. Ainsi, les dépendances transverses des termes sources, contenues dans $I_S^\pm(\Theta, \Phi, \omega)$, sont supposées constantes sur le disque $r_\perp < a$ et nulles pour $r_\perp \geq a$. En outre, nous introduisons ϕ_0 la valeur (également constante) que prend la phase $\phi'(\vec{r}_\perp)$ selon ces considérations. Nous pouvons donc développer $I_S^\pm(\Theta, \Phi, \omega)$ comme :

$$I_S^\pm(\Theta, \Phi, \omega) = e^{\pm i\phi_0} \iint d^2\vec{r}'_\perp \exp[-i\vec{k}_\perp \cdot \vec{r}'_\perp] \quad (4.74)$$

$$= e^{\pm i\phi_0} \int_0^a dr'_\perp r'_\perp \int_0^{2\pi} d\varphi' \exp[-ik_\perp r'_\perp \cos \varphi'] \quad (4.75)$$

$$= 2\pi e^{\pm i\phi_0} \int_0^a dr'_\perp r'_\perp J_0(k_\perp r'_\perp), \quad (4.76)$$

$$(4.77)$$

avec $J_0(x)$ la fonction de Bessel de première espèce et de rang 0. Les simplifications se poursuivent à l'aide de l'identité $\int dx x J_0(x) = x J_1(x)$ [205], où $J_1(x)$ décrit la fonction de Bessel de première espèce et de rang 1 :

$$I_S^\pm(\Theta, \omega) = 2\pi e^{\pm i\phi_0} \frac{a}{k_\perp} J_1(ak_\perp) = 2\pi e^{\pm i\phi_0} a^2 \frac{J_1(ak \sin \Theta)}{ak \sin \Theta} \quad (4.78)$$

où l'on a utilisé $k_\perp = k \sin \Theta$.

Nous négligeons maintenant la contribution de la réponse Kerr au rayonnement THz, c'est-à-dire $A_{\text{Kerr}}(\omega) = 0$, et nous supposons que l'impulsion laser est polarisée linéairement (LP-P). En injectant l'expression de $\vec{I}_J(\Theta, \omega)$ (4.67) dans le modèle (4.73), nous trouvons donc :

$$\left| \widehat{E}(\vec{r}, \omega) \right|^2 = \frac{\mu_0^2}{16r^2} a^4 L^2 |A_J(\omega)|^2 \left(\frac{J_1(ak \sin \Theta)}{ak \sin \Theta} \right)^2 \left| e^{i\phi_0} \text{sinc}(\alpha_+ + i\beta) - e^{-i\phi_0} \text{sinc}(\alpha_- + i\beta) \right|^2. \quad (4.79)$$

Les fréquences THz vérifient $\omega \ll \omega_0$. De plus, nous supposons que les harmoniques laser sont superposées temporellement ($\Delta t = 0$), et nous assimilons l'indice optique de l'air n_0 à 1. Les expressions de α_{\pm} et β se simplifient donc :

$$\alpha_{\pm} = \frac{1}{2} kL \left(n_0 - \cos \Theta \pm \frac{\lambda_{\text{THz}}}{2l_d} - \frac{\omega}{\omega_0} \frac{t_1^2}{t_{eq}^2} \frac{\lambda_{\text{THz}}}{4l_d} \right) \approx \frac{1}{2} kL \left(1 - \cos \Theta \pm \frac{\lambda_{\text{THz}}}{2l_d} \right), \quad (4.80)$$

$$\beta = \frac{\Delta t}{\omega_0 t_{eq}^2} \frac{\pi L}{l_d} = 0. \quad (4.81)$$

En notant $\kappa_{\pm} = \text{sinc}(\alpha_{\pm})$, le terme dépendant de α_{\pm} se développe tel que :

$$\left| e^{i\phi_0} \text{sinc}(\alpha_+ + i\beta) - e^{-i\phi_0} \text{sinc}(\alpha_- + i\beta) \right|^2 = \kappa_+^2 + \kappa_-^2 - 2\kappa_+ \kappa_- \cos(2\phi_0). \quad (4.82)$$

L'intensité THz rayonnée loin du plasma se simplifie finalement :

$$\left| \widehat{E}(\vec{r}, \omega) \right|^2 = \frac{\mu_0^2}{16r^2} a^4 L^2 |A_J(\omega)|^2 \left(\frac{J_1(ak \sin \Theta)}{ak \sin \Theta} \right)^2 [\kappa_+^2 + \kappa_-^2 - 2\kappa_+ \kappa_- \cos(2\phi_0)]. \quad (4.83)$$

Nous avons retrouvé le modèle de You et al. (4.6), où les notations $A(\omega) = A_J(\omega)$ et $\beta = ak \sin \Theta$ ont été utilisées, et où le facteur de proportionnalité vaut $\mu_0^2 a^4 L^2 / (16r^2)$.

4.2.3 Intégration du modèle généralisé

Nous concluons ce chapitre sur des résultats obtenus à l'aide de l'intégration de notre modèle. Pour des effets d'enveloppe faibles, son apport réside dans l'utilisation de profils radiaux $J_{\text{tr}}(r_{\perp}^-)$ et spectraux $A_{J, \text{Kerr}}(\omega)$ adaptés au régime de propagation, ainsi que dans la caractérisation des variations transverses du front d'onde de l'impulsion pompe affectant la condition d'accord de phase (longueur de cohérente effective) des ondes THz.

En réalité, les enveloppes laser ne restent pas gaussiennes au cours de la propagation non-linéaire de l'impulsion, de sorte que le profil spectral dans l'expression (4.57) doit être révisé. La forme de ces profils spectraux est associée au régime de focalisation étudié ainsi qu'aux

termes sources d'ondes THz en jeu [108, 206]. En particulier, la figure 4.11(a) extraite de la référence [108] rappelle qu'en régime focalisé, la réponse Kerr (courbes bleues) tend à générer des spectres paraboliques ($\propto \omega^2 \widehat{P}_{\text{NL}}$) maximaux ici autour de 20 THz et diminuant d'un facteur 10 au-delà de ≈ 60 THz. Quant aux photo-courants [$\propto N_e \widehat{E}/(1 + i\nu_c/\omega)$] (courbes oranges), ils produisent plutôt un rayonnement maximal autour de la fréquence de collisions électrons-neutres et qui s'éteint typiquement après 60-70 THz. La figure 4.11(b) indique qu'en régime de filamentation laser, les spectres THz s'élargissent au point de former un continuum avec les fréquences optiques, engendré par les non-linéarités plasma [107]. Enfin, la figure 4.11(c) trace les formes caractéristiques de ces spectres, qui pourront être utilisées par la suite pour modéliser $A_J(\omega)$ et $A_{\text{Kerr}}(\omega)$ de manière simple.

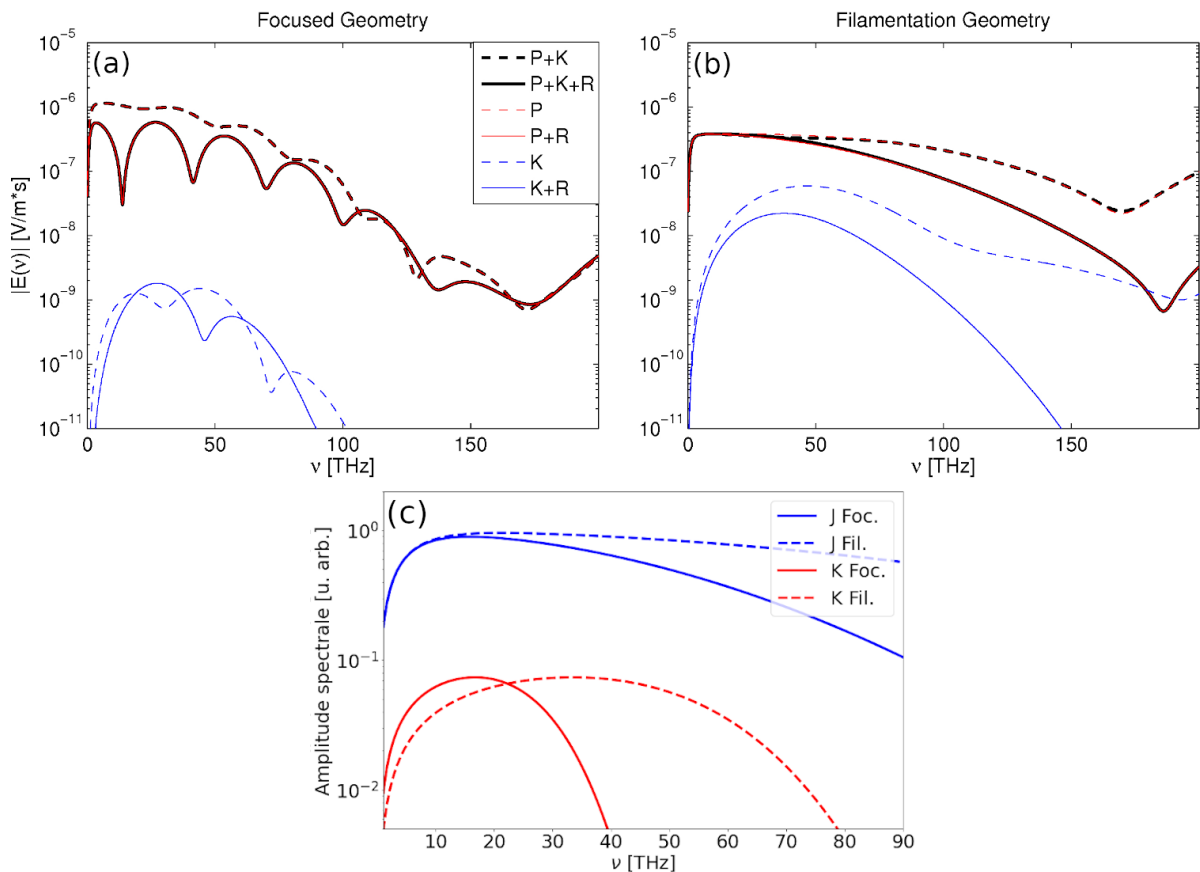


FIGURE 4.11: (a,b) Spectres THz obtenus à partir du calcul semi-analytique des termes sources $\partial_t J_e$ (P), $\partial_t^2 P_{\text{Kerr}}$ (K) et $\partial_t^2 P_{\text{Raman}}$ (R) à l'aide d'un champ électrique prélevé en (a) $z = 2.5$ cm et (b) $z = 20$ cm d'une simulation CUP3D de propagation d'une impulsion laser à deux couleurs ($0.8 \mu\text{m}$ FH). Source : Nguyen [108]. (c) Formes caractéristiques des spectres THz dus aux photo-courants (courbes bleues) et à l'effet Kerr (courbe rouge) en régimes focalisé (courbes pleines) et de filamentation (courbes pointillées).

En plus de ces profils spectraux, l'intégration de notre modèle nécessite la caractérisation de la longueur du canal plasma L étudié, ainsi que sa densité électronique effective N_e^{eff} , qui correspond à un niveau de densité représentatif de ceux atteints lorsque le champ THz est généré. Une fois ces grandeurs connues, nous pouvons intégrer numériquement notre modèle en plusieurs étapes :

- Nous commençons par initialiser l'impulsion en lui affectant les paramètres laser désirés ainsi qu'une phase spatiale correspondant à la focale.
- Celle-ci est ensuite propagée linéairement de $z = 0$ à $z = z_p$, qui correspond à une distance où le faisceau laser a un rayon semblable à celui atteint par l'impulsion expérimentale ou CUP3D à l'entrée du filament. Ce rayon est supposé constant le long du canal plasma par effet de clamping. Puisque notre propagateur ne prend pas en compte l'auto-focalisation Kerr, la distance z_p pourra être supérieure à la distance de propagation CUP3D nécessaire pour commencer à ioniser le milieu. Nous calculons ensuite en chaque point du plan $(x, y, z = z_p)$ la phase $\phi(\vec{r}_\perp)$ et l'enveloppe transverse des photo-courants $J_{\text{tr}}(x, y)$ à l'aide des équations (4.41) et (4.46) respectivement, ce qui mène à la connaissance des termes $I_S^\pm(k_x, k_y)$.
- A partir des estimations des grandeurs N_e^{eff} et L du plasma étudié, nous calculons la longueur de déphasage l_d , puis les facteurs $I_J(\Theta, \omega)$ et $I_K(\Theta, \omega)$.

Les rayonnements THz caractérisés dans cette section sont tous produits à partir d'impulsions laser polarisées linéairement. Nous testerons notre modèle - que nous appelons "Modèle Augmenté" par comparaison avec le modèle originel de You et al. - pour des configurations laser CP-S dans le chapitre 5, où sera également étudié l'impact d'aberrations optiques sur le spectre THz.

Régime de propagation focalisé (sans effet Kerr)

Commençons par appliquer notre modèle pour un cas vérifiant au mieux les hypothèses du modèle de You et al. (production uniquement par photo-courants, plasma cylindrique uniforme en densité électronique). Le canal plasma simulé avec CUP3D résultait de l'interaction non-linéaire d'une impulsion laser LP-P à deux couleurs de fondamental $0.8 \mu\text{m}$, d'énergie 500 mJ , de durée 34 fs et de rayon initial $250 \mu\text{m}$. Une nouvelle fois, 35% de l'énergie laser est attribuée à la seconde harmonique. L'impulsion était focalisée par une lentille de focale 2.6 cm dans l'air (20% d' O_2 + 80% de N_2 , taux d'ionisation PPT, $Z_{\text{O}_2}^* = 0.53$ et $Z_{\text{N}_2}^* = 0.9$ [135]). Pour que

les photo-courants soient la seule source de rayonnement THz dans la simulation, nous avons aussi négligé les réponses des électrons liés aux noyaux (effets Kerr et Raman) en fixant l'indice non-linéaire du milieu n_2 à 10^{-25} cm²/W, ce qui est très faible par rapport à la valeur habituelle $n_2 = 3.8 \times 10^{-19}$ cm²/W. Nous n'avons pas posé $n_2 = 0$ afin que la puissance critique $P_{cr} \propto n_2^{-1}$ reste finie.

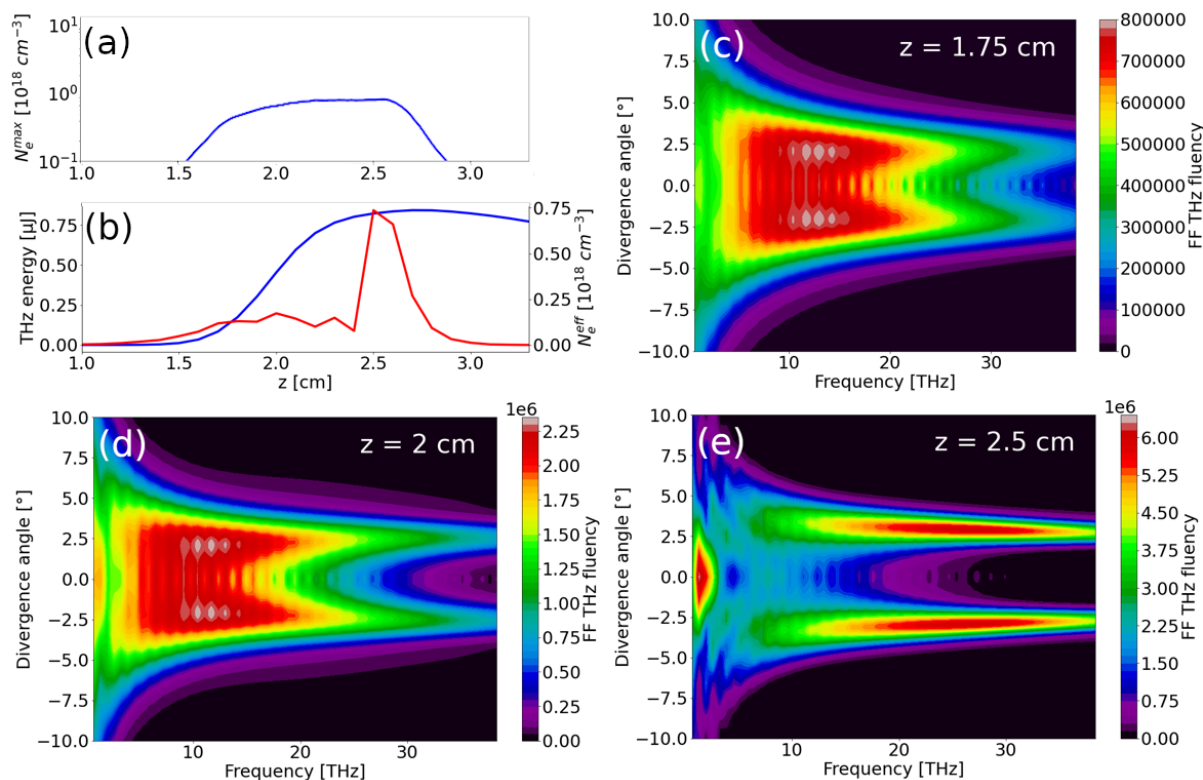


FIGURE 4.12: (a,b) Evolutions avec z de (a) la densité électronique maximale et de (b) l'énergie THz ($\nu < 90$ THz) dans la boîte de simulation (courbe bleue, axe de gauche), et de la densité plasma à l'instant où le champ THz est maximal (courbe rouge, axe de droite). (c,d,e) Spectres angulo-fréquentiels en intensité THz calculés par transformée de Fourier transverse du rayonnement THz dans la boîte de simulation (c) en $z = 1.75$ cm, (d) en $z = 2$ cm et (e) en $z = 2.5$ cm. Ces résultats sont issus de la simulation CUP3D décrite dans le texte.

Les figures 4.12(a,b) tracent les évolutions en z des densités électroniques maximale et effective ainsi que de l'énergie THz présente dans la fenêtre de simulation. Elles révèlent que la densité N_e^{\max} (resp. N_e^{eff}) est plutôt constante $\approx 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ (resp. $\approx 2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) au cours de la croissance de l'énergie THz produite, entre 1.5 et 2.25 cm. Les figures 4.12(c,d,e) illustrent respectivement les spectres THz angulo-fréquentiels en intensité calculés par transformation de Fourier transverse et en temps du champ filtré ($\nu < 90$ THz) en $z = 1.75$ cm (début du plasma), $z = 2$ cm (milieu du plasma) et $z = 2.5$ cm (fin du plasma). Au fil de la propagation laser, le

rayonnement THz développe une contribution sur l'axe optique qui s'efface à cause de l'allongement du filament en commençant par la partie haute du spectre. Cette dynamique spectrale est souvent retrouvée dans la bibliographie [49, 199]. Nous considérons que le spectre tracé en figure 4.12(e) est le plus représentatif du spectre THz total rayonné car il contient toute l'énergie THz produite lors de la simulation. Il présente une contribution sur l'axe optique notable pour $\nu < 10 - 15$ THz, puis une émission conique à $\Theta \approx 3^\circ$ pour $\nu > 15$ THz.

Nous souhaitons maintenant comparer les figures 4.12(c,d,e) à l'aide des modèles de You et al. d'une part et de notre modèle généralisé d'autre part. Pour rappel, la seule source d'ondes THz ici sont les photo-courants, d'où $A_{\text{Kerr}}(\omega) = 0$. Puisque la simulation CUP3D se situe en régime focalisé, le spectre $A_J(\omega)$ suit la courbe bleue pleine de la figure 4.11(c). Lors de l'intégration du modèle de You et al., le plasma est supposé cylindrique de rayon $a = 30$ μm conformément à la simulation 3D (non montré) et homogène en densité électronique effective $N_e^{\text{eff}} = 2 \times 10^{17}$ cm^{-3} , ce qui correspond à une longueur de déphasage valant $l_d \approx 4$ mm. Sa longueur est déterminée en fonction de z par rapport à la croissance de l'énergie THz, qui débute en $z = 1.5$ cm et se termine en $z = 2.25$ cm.

Pour l'intégration de notre modèle, le faisceau laser polarisé linéairement de longueur d'onde fondamentale 0.8 μm a 35 % de l'énergie laser affectée à l'harmonique deux, qui est déphasée initialement de $\pi/4$ par rapport au fondamental. Les largeurs spatiale et temporelle de l'impulsion valent respectivement 250 μm et 34 fs. L'impulsion est focalisée dans l'air (20 % O_2 + 80 % N_2) par une lentille de longueur focale 2.6 cm. Nous propageons linéairement l'impulsion laser jusqu'en $z_p = 1.85$ cm, où la fluence laser et la densité plasma prennent des formes similaires à celles calculées par CUP3D, à savoir des profils transverses gaussiens de rayon ≈ 50 μm .

Les figures 4.13(a,b,c) et 4.13(d,e,f) illustrent respectivement les résultats donnés par le modèle de You et al. et le nôtre pour L valant respectivement 2.5 mm, 5 mm et 7.5 mm, ce qui correspond aux distances de propagation CUP3D $z = 1.75$ cm, $z = 2$ cm et $z = 2.5$ cm. Nous remarquons que les spectres prédits par les deux modèles sont plutôt similaires, ce qui indique que les hypothèses du modèle de You et al. semblent plutôt satisfaisantes pour des canaux plasma à symétrie radiale. Toutefois, pour $L \approx l_d$ [cf. figures 4.13(b,e)], la forte contribution sur l'axe prédite par la simulation CUP3D est mieux restituée par notre modèle augmenté que par le modèle classique de You et al. Cette différence est attribuée à la modulation en phase apportée par les termes en $e^{\pm i\phi(\vec{r}'_\perp)}$, qui prennent en compte les interférences entre les ondes THz formées

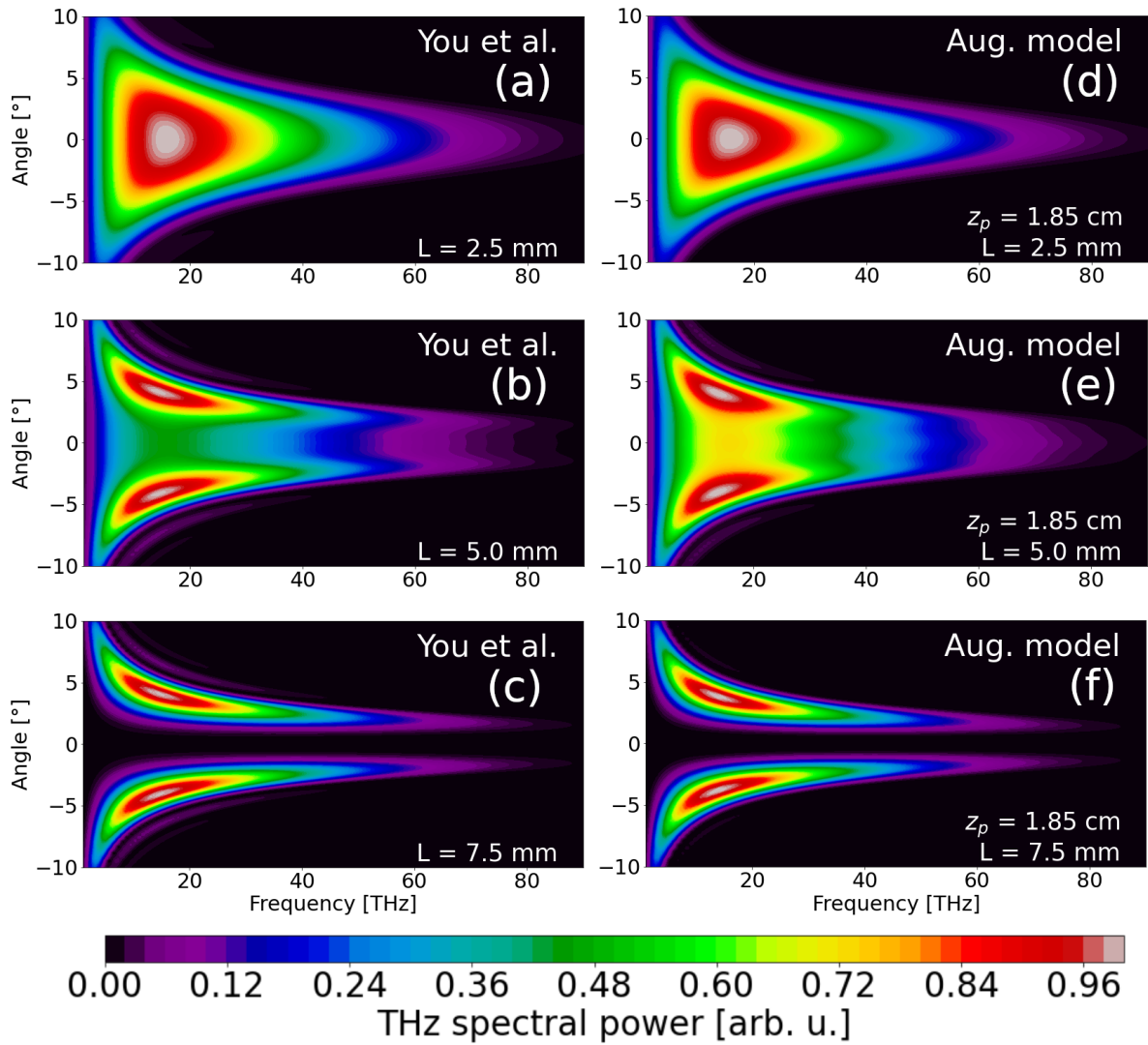


FIGURE 4.13: Estimations du spectre THz angulo-fréquentiel THz par (a,b,c) le modèle de You et *al.* et (d,e,f) notre modèle (a,d) pour $L = 2.5$ mm, (b,e) $L = 5$ mm et (c,f) $L = 7.5$ mm. Les paramètres laser-gaz utilisés pour leur intégration sont précisés dans le texte.

dans tout le plan transverse.

Régime Kerr fort

Nous intégrons maintenant la contribution Kerr à l'estimation du rayonnement THz en champ lointain. Pour mieux apprécier la signature THz de cette réponse, une seconde simulation CUP3D a été réalisée impliquant une polarisation non-linéaire particulièrement importante. Elle comporte les mêmes paramètres que précédemment, mais nous fixons cette fois $x_K = 0$ et $n_2 = 3.8 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$ afin de favoriser la réponse Kerr. Notons que notre choix de x_K implique que la SRRS n'agit pas sur la propagation laser, ce qui maximise l'effet d'auto-focalisation et la

contribution Kerr au spectre THz.

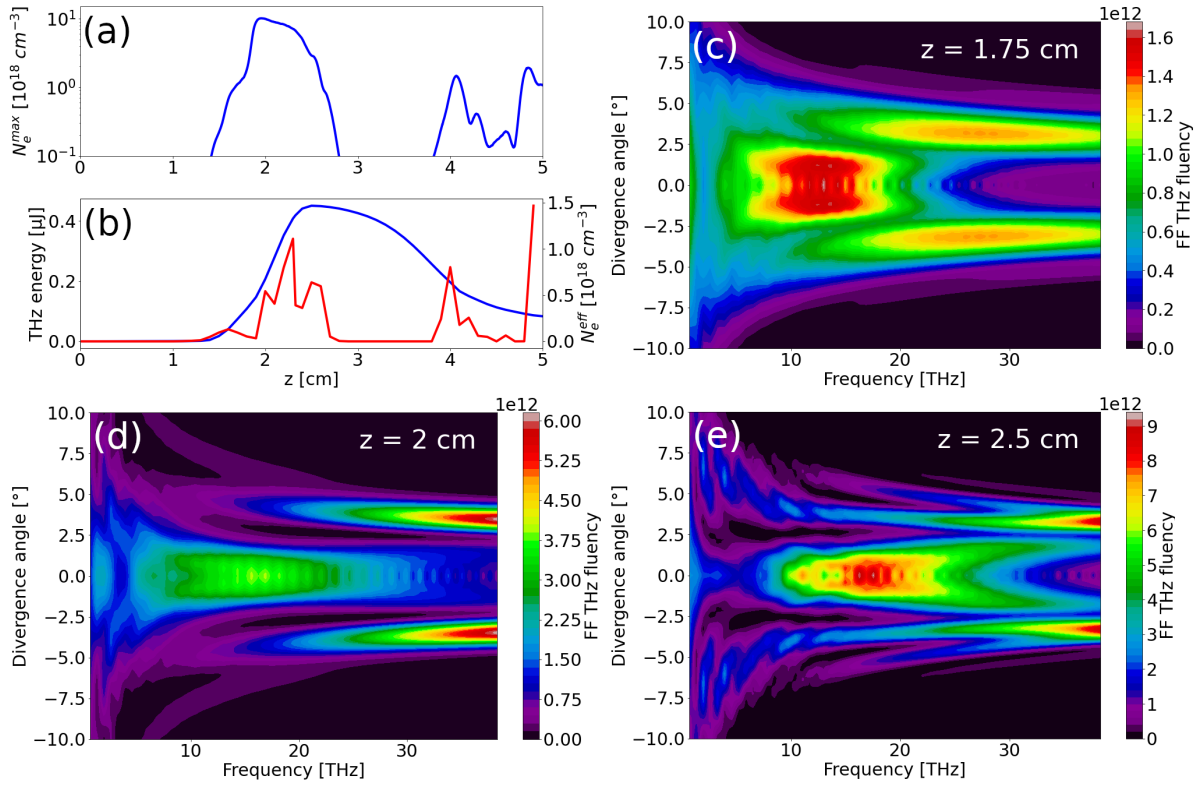


FIGURE 4.14: Résultats de la simulation CUP3D où l'effet Kerr est favorisé ($x_K = 0$, $n_2 = 3.8 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$). Légende similaire à la figure 4.12.

La figure 4.14(a) montre que la densité plasma maximale prend pour valeur $N_e \approx 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, qui est 10 fois plus importante que dans la configuration précédente, compte tenu de l'auto-focalisation Kerr qui est favorisée ici. Un résultat intéressant est que cet accroissement de densité n'est pas synonyme d'augmentation du rendement de conversion laser-THz : l'énergie THz totale produite a été divisée par deux par rapport au cas précédent [cf. figures 4.12(b) et 4.14(b)]. Nous considérons que la croissance de l'énergie THz se produit entre 1.5 et 2.3 cm, d'où $L = 8 \text{ mm}$. La densité effective varie ici fortement avec z , ce qui rend son estimation peu précise. Nous la fixons à $N_e^{\text{eff}} \approx 3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, ce qui correspond à $l_d^J = 2.8 \text{ mm}$. La réponse Kerr étant produite pour des valeurs de champ laser plus faibles, elle survient en des temps antérieurs à ceux de la croissance de N_e , pour lesquels l'indice du milieu vaut $n_0 \approx 1$ et la longueur de déphasage prend alors pour valeur $l_d^{\text{Kerr}} \approx 2.6 \text{ cm}$. Les figures 4.14(c,d,e) illustrent les spectres THz angulo-fréquentiels calculés par CUP3D. A contrario du cas précédent, ils présentent ici une forte contribution sur l'axe optique ($\Theta < 2.5^\circ$) attribuée à l'effet Kerr étant donné que $L < l_d^{\text{Kerr}}$. Notons qu'elle suit,

aux hautes fréquences ($\nu > 30$ THz), la dynamique spectrale observée en figures 4.12(c,d,e) pour le rayonnement généré par les photo-courants. Dans les figures 4.14(c,d,e), la contribution sur l'axe est superposée à une émission conique ($\Theta = 3 - 5^\circ$) associée aux photo-courants car le critère $L > l_d^J$ est bien vérifié. De manière similaire au cas précédent, c'est le spectre présenté en figure 4.14(e) qui décrit le mieux le rayonnement THz émis par un plasma soutenu par une forte réponse Kerr, car il est calculé à la fin de la croissance de l'énergie THz.

Evaluons maintenant le rayonnement THz à partir de notre modèle et des estimations ci-dessus. Pour rappel, les longueurs de déphasage associées aux photo-courants et à la réponse Kerr valent respectivement $l_d^J = 2.8$ mm et $l_d^{\text{Kerr}} = 2.6$ cm. La longueur L est estimée en considérant que la croissance de l'énergie THz est comprise entre 1.5 et 2.3 cm. Les fonctions $A_J(\omega)$ et $A_{\text{Kerr}}(\omega)$ choisies correspondent respectivement aux courbes pleines bleue et rouge de la figure 4.11(c), et leur rapport d'amplitudes spectrales est choisi tel que $A_{\text{Kerr}}^{\text{max}}/A_J^{\text{max}} = 77$ %. Lors de l'intégration de notre modèle, nous propageons linéairement l'impulsion laser jusqu'en $z_p = 2$ cm (au lieu de $z_p = 1.85$ cm comme dans le cas précédent) car l'auto-focalisation Kerr étant favorisée ici, le canal plasma est légèrement plus comprimé sur l'axe optique.

Les figures 4.15(a,b,c) [resp. figures 4.15(d,e,f)] regroupent les résultats de l'intégration du modèle de You et al. (resp. du nôtre) selon les considérations ci-dessus, respectivement en $z = 1.75$ cm, $z = 2$ cm et en $z = 2.5$ cm. A ces distances, les longueurs L valent 2.5 mm, 5 mm et 8 mm. Remarquons pour commencer que les spectres angulo-fréquentiels fournis par notre modèle comportent une contribution sur l'axe optique supplémentaire, piquée autour de $\nu = 15$ THz, qui correspond au rayonnement THz produit par la réponse Kerr non-prise en compte par le modèle de You et al. Les figures 4.15(a,d) montrent que notre modèle prévoit ici une émission THz plus centrée autour de l'axe optique que selon le modèle de You et al., ce qui est attribué aux variations radiales de phase $\phi(\vec{r}_\perp)$. Les figures 4.15(b,e) indiquent un creusement de la contribution des photo-courants sur l'axe optique lorsque $L \approx l_d$. Celui-ci est bien plus marqué que lors du cas précédent étant donné que la longueur l_d^J est plus faible dans le cas présent, dû à la hausse de densité électronique associée à l'auto-focalisation Kerr. Enfin, les figures 4.15(c,f) décrivent toutes deux une émission conique due aux photo-courants à des angles compris entre 3 et 5° , conformément à la simulation UPPE (cf. figure 4.14). La contribution sur l'axe associée à la réponse Kerr est plutôt bien représentée par notre modèle, bien qu'il soit plus large ($\Theta < 3.5^\circ$) que celui calculé par CUP3D ($\Theta < 2.5^\circ$). Notons que dans tous les cas,

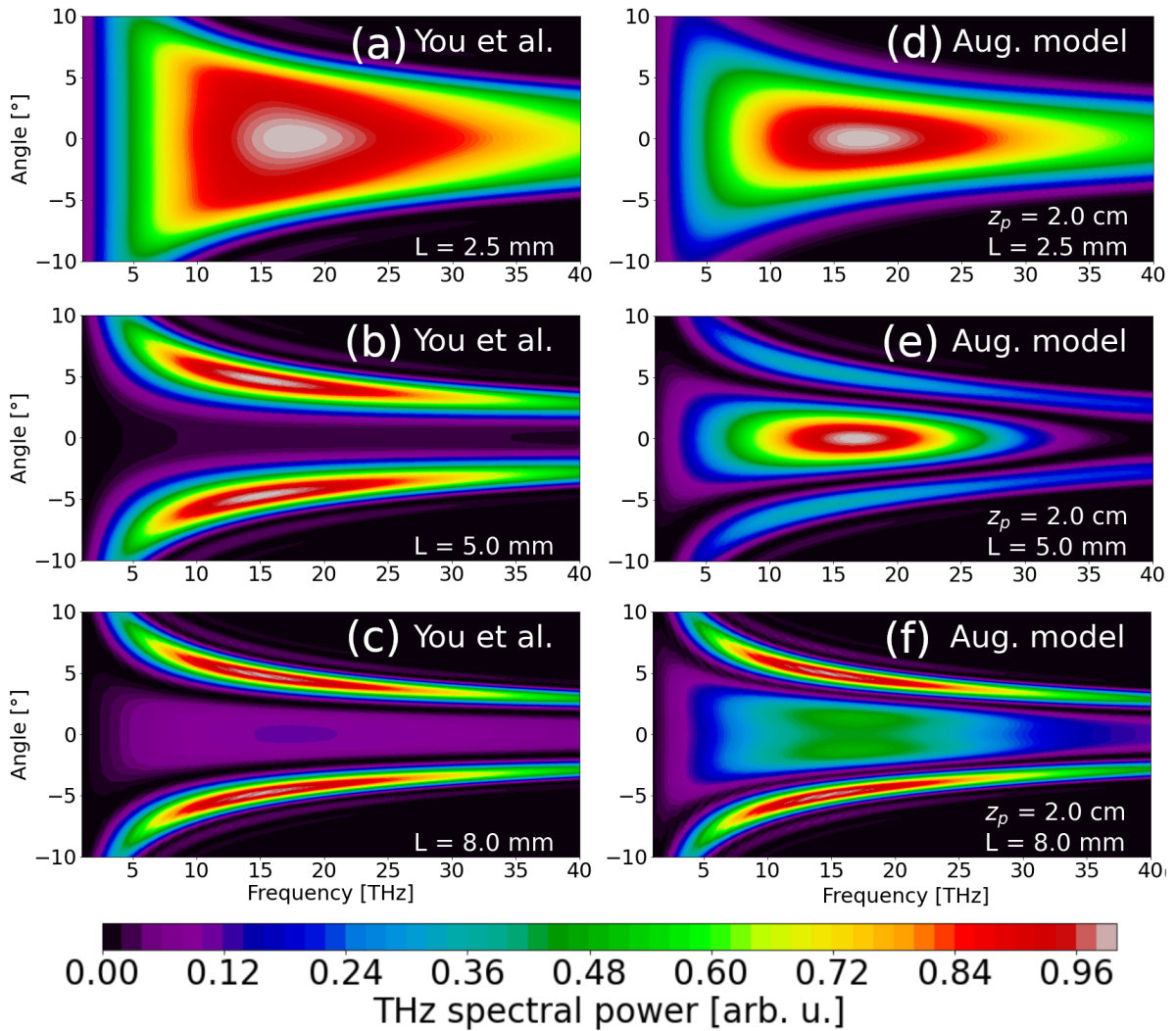


FIGURE 4.15: Légende similaire à celle de la figure 4.13 appliquée à une configuration de forte réponse Kerr.

l'émission THz générée par les photo-courants dans la simulation 3D est piquée dans la partie haute du spectre ($\nu > 30$ THz), tandis que le spectre $A_J(\omega)$ générique utilisé ici est maximal aux basses-fréquences ($\nu < 25$ THz). Ce phénomène est expliqué par les fortes non-linéarités (auto-modulation Kerr, défocalisation plasma) associées à la favorisation de l'auto-focalisation Kerr ici. Il pourra être retrouvé dans le chapitre 5, où nous adapterons alors les grandeurs $A_J(\omega)$ et $A_{\text{Kerr}}(\omega)$ afin de les prendre en compte dans notre modèle.

Régime de filamentation laser

Nous concluons ce chapitre sur une dernière comparaison entre les deux modèles, portant sur une simulation UPPE de production de rayonnement THz en régime de filamentation laser [99], c'est-à-dire pour des plasmas dont la longueur peut être de l'ordre de plusieurs mètres, comme rappelé dans le chapitre 2.

Ici, le code CUP3D nous a servi à simuler une impulsion laser à deux couleurs ($r = 35\%$) de fondamental opérant à $0.8\ \mu\text{m}$, de durée 34 fs, de rayon initial 2.5 mm, et d'énergie 1.5 mJ, légèrement focalisée dans l'air (20 % $\text{O}_2 + 80\%$ N_2) d'indice non-linéaire $n_2 = 3.8 \times 10^{-19}\ \text{cm}^2/\text{W}$ ($x_K = 0.8$) par une lentille de longueur focale $f = 2.6\ \text{m}$. Pour un tel faisceau, l'utilisation du pré-processeur Python a été nécessaire : nous avons préalablement réalisé la propagation linéaire de l'impulsion laser de $z = -2.3\ \text{m}$ jusqu'à $z = 0$, qui correspond à l'apparition des premières non-linéarités. Ce faisceau a ensuite été utilisé comme condition d'entrée pour le code CUP3D.

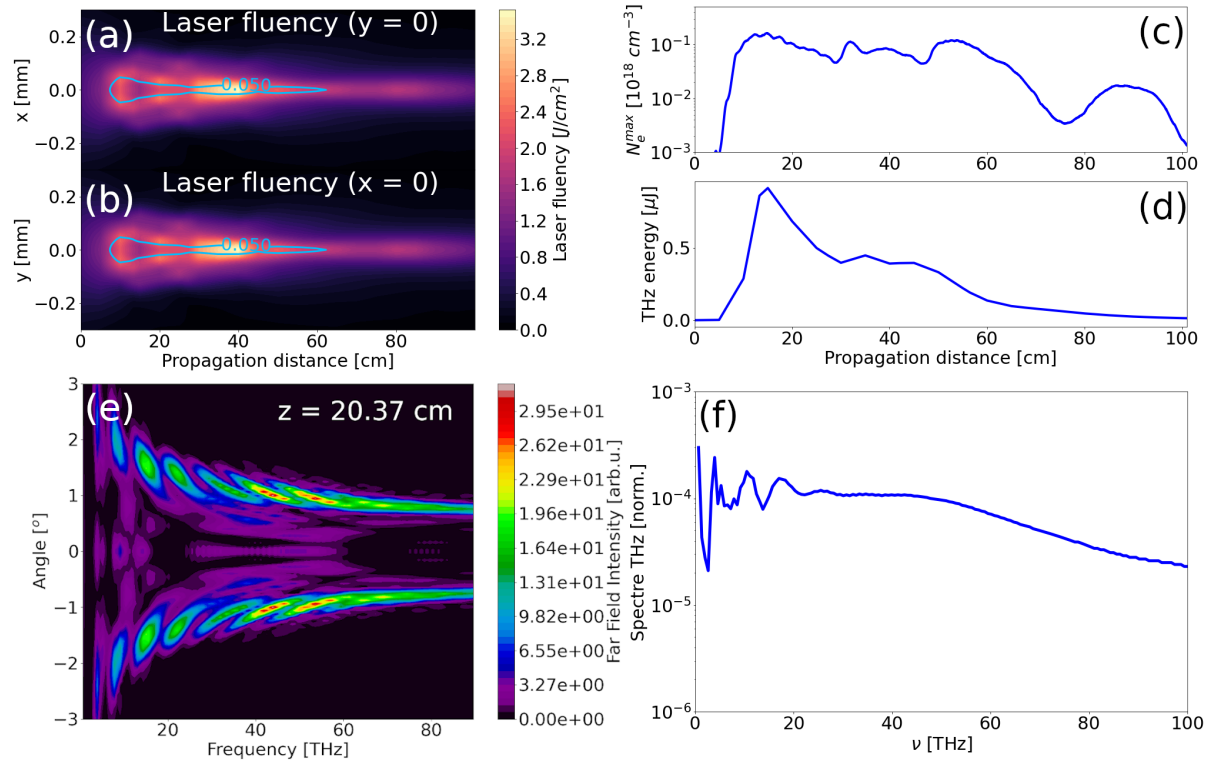


FIGURE 4.16: (a,b) Evolution en z et (a) x ou (b) y de la fluence laser simulée par le code CUP3D. La ligne bleue correspond à l'iso-densité plasma $N_e(t \rightarrow +\infty) = 5 \times 10^{16}\ \text{cm}^{-3}$. (c) Densité électronique maximale et (d) énergie THz ($\nu < 90\ \text{THz}$) contenue dans la fenêtre de simulation en fonction de z . (e) Spectre angulo-fréquentiel THz calculé en $z = 20.37\ \text{cm}$. (f) Spectres THz calculé par intégration transverse associé à (e).

Les figures 4.16(a,b) cartographient la fluence laser dans les plans (z, x) et (z, y) respective-

ment. Elles montrent que la propagation du faisceau se produit en régime de filamentation simple de manière axisymétrique. Nous n’observons pas de régime de filamentation multiple, pouvant survenir pour P_{in} valant plusieurs P_{cr} [207]. Le creux de fluence laser observé autour de l’axe optique pour $z \approx 15$ cm est dû à l’effet dit de replenishment [208], qui correspond à un lieu où la densité électronique, et donc la défocalisation plasma, est particulièrement importante. La figure 4.16(c) trace l’évolution en z de la densité plasma maximale. Elle montre que le filament présente un niveau de densité électronique $\approx 10^{17}$ cm $^{-3}$ relativement constant entre $z = 10$ cm et $z = 60$ cm, significatif de l’effet de clamping, puis s’éteint à partir de $z = 60$ cm. La figure 4.16(d), qui trace l’énergie THz dans la fenêtre de simulation pour chaque valeur de z , montre de fortes pertes au-delà de $z = 17 - 18$ cm, dues à la sortie du rayonnement THz de la boîte de simulation. Elle ne permet pas d’identifier clairement une zone de croissance de l’énergie THz. La figure 4.16(e) décrit le spectre THz calculé par CUP3D en $z = 20.36$ cm. Elle indique d’une part que l’entièreté du rayonnement est émis à un angle $\Theta = 1 - 2^\circ$ de l’axe optique. La fenêtre de simulation s’étendant de -1.3 mm à 1.3 mm, la distance qu’une onde THz générée en $x = y = 0$ à un angle $\Theta = 1.5^\circ$ doit parcourir pour en sortir vaut 5 cm. Il est donc raisonnable de considérer que la courbe présentée en figure 4.16(d) trace l’évolution de l’énergie THz générée par un tronçon de plasma de longueur $L = 5$ cm se déplaçant le long du filament. La figure 4.16(e) montre d’autre part que la dépendance fréquentielle du spectre généré est plutôt plate. Ce résultat est en accord avec la figure 4.16(f), qui décrit l’évolution fréquentielle de ce spectre THz intégré transversalement. Cette observation est également conforme avec la figure 4.11. Notons que la succession de lobes disjoints observables aux basses-fréquences en figure 4.16(e) est due à la pauvre résolution angulaire du spectre dans ce domaine ($\Delta\Theta \propto 1/\nu$).

Afin d’appliquer notre modèle et celui de You et al., nous choisissons $L = 5$ cm comme longueur de plasma effective, en rapport avec les observations du paragraphe précédent. La densité électronique effective peut être estimée à $N_e^{\text{eff}} \approx 10^{16}$ cm $^{-3}$, ce qui correspond à $l_d \approx 2.6$ cm. Remarquons que pour de tels niveaux de densité ($N_e < 10^{17}$ cm $^{-3}$), la figure 4.16(c) montre que la longueur de déphasage dépend peu de N_e^{eff} . Les imprécisions dans l’estimation de ce paramètre induisent donc peu d’écarts avec la simulation CUP3D dans cette configuration. Nous propageons linéairement l’impulsion laser jusqu’en $z_p = 2.6$ m pour l’intégration de notre modèle. Enfin, nous choisissons la courbe bleue pointillée de la figure 4.11(c) pour représenter $A(\omega)$ et $A_J(\omega)$ (photo-courants), et la courbe rouge pointillée pour décrire $A_{\text{Kerr}}(\omega)$ (réponse Kerr).

Leur rapport en amplitude est évalué à $A_{\text{Kerr}}^{\text{max}}/A_J^{\text{max}} = 10\%$.

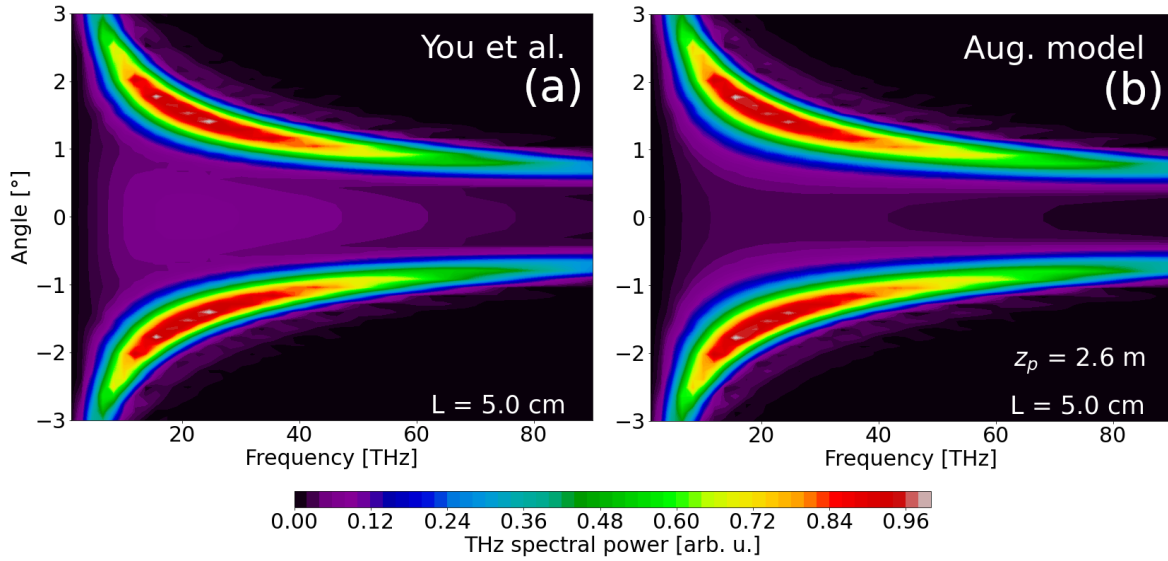


FIGURE 4.17: Spectres angulo-fréquentiels THz estimés à l’aide (a) du modèle de You et *al.* et (b) du nôtre. Les paramètres employés sont précisés dans le texte.

Les figures 4.17(a,b) tracent respectivement les spectres angulo-fréquentiels calculés à l’aide du modèle de You et *al.* et du nôtre. Ces deux estimations sont très proches : les spectres présentent une émission conique pour $\Theta = 1 - 2^\circ$ avec un profil plat en fréquence, en bon accord avec la simulation CUP3D. Ce résultat rejoint d’ailleurs les figures 4.13(c,f), qui indiquent que pour $L > l_d$, les deux modèles fournissent des résultats similaires.

4.3 Résumé du chapitre

En résumé, ce chapitre a permis d’éclaircir la physique régissant l’émission conique de la distribution spatiale du rayonnement THz. Cet effet est dû à des interférences destructives entre les impulsions THz produites le long du canal plasma, provenant des variations axiales de la polarité du champ électrique THz associée à la dispersion optique et plasma.

La modèle de You et *al.* fournit une équation permettant d’estimer de manière rapide le spectre angulo-fréquentiel THz produit par les photo-courants au sein d’un plasma supposé cylindrique et de densité électronique uniforme. Son intégration est cependant questionnable lorsqu’il est nécessaire d’identifier trois paramètres mal définis : le spectre THz $A(\omega)$, la longueur de volume générateur d’ondes THz L et la densité électronique effective N_e^{eff} qui correspond au niveau de densité globalement atteint lorsque le rayonnement THz est produit. Dans un plasma réel

ou simulé par un code tridimensionnel, les variations spatiales de densité électronique rendent imprécise la caractérisation de ces quantités. Ce modèle nous a cependant permis de retrouver le spectre THz mesuré lors d'une expérience menée à DTU/Fotonik en régime focalisé dans le diazote, ainsi que le spectre calculé lors d'une simulation UPPE dans une configuration similaire.

Nous avons ensuite généralisé ce modèle à des plasmas plus réalistes, prenant en compte les variations transverses de la densité électronique, des états de polarisation laser vectoriels, la contribution due à la réponse Kerr et les effets dus aux enveloppes laser. Ces derniers ont été évalués analytiquement et prouvés être négligeables, excepté lorsque les enveloppes temporelles des deux harmoniques laser ne se recouvrent pas. Nous avons négligé les variations axiales de densité, l'absorption et l'opacité plasma sur la base de travaux publiés antérieurement. Bien que l'intégration de notre modèle généralisé nécessite toujours l'identification des paramètres $A(\omega)$ (dissocié pour les photo-courants et la réponse Kerr), L et N_e^{eff} , il permet de prendre en compte les effets d'aberration optiques, ce qui sera essentiel dans le chapitre à venir.

Pour finir, nous avons éprouvé notre modèle en comparant ses résultats à des simulations CUP3D et aux estimations fournies par le modèle de You et al. Dans les trois cas étudiés, notre modèle a permis de retrouver de manière satisfaisante la dynamique des spectres calculés lors des simulations UPPE. En particulier, pour des plasmas à symétrie radiale, il a été en mesure d'estimer correctement la contribution de la réponse Kerr au spectre THz, ce que le modèle de You et al. ne permet pas.

Chapitre 5

Influence des aberrations optiques sur le rayonnement THz

Sommaire

5.1	Introduction aux aberrations optiques	192
5.1.1	Principe d'aberration optique	192
5.1.2	Le miroir déformable	196
5.1.3	Application du modèle d'émission conique	198
5.2	Influence des aberrations optiques en régime focalisé	198
5.2.1	Polarisation LP-P	199
5.2.2	Polarisation CP-S	206
5.3	Influence des aberrations optiques en régime de filamentation laser	212
5.4	Résumé du chapitre	217

Le présent chapitre cherche à caractériser l'influence qu'ont les aberrations optiques sur la propagation de l'impulsion laser, sur le canal plasma et sur le rayonnement THz émis par ce dernier. Nous avons étudié les effets les plus communs lors d'expériences laser : l'astigmatisme, l'aberration de coma et la sphéricité. Une première partie est consacrée à la présentation de ces aberrations et du miroir déformable, instrument d'optique adaptative en mesure de les générer ou plus couramment de les corriger. Elle explicite également la manière dont les aberrations peuvent être prises en compte dans notre modèle d'émission conique présenté dans le chapitre précédent. Une seconde partie décrit les résultats de simulations UPPE comparant les propagations non-linéaires, les filaments et les émissions THz engendrés en fonction de la

présence ou de l'absence d'aberrations optiques communes en régime focalisé. La troisième partie de ce chapitre est analogue à la précédente, mais examine l'influence des aberrations sur le rayonnement THz sur des domaines de propagation étendus en régime de filamentation laser.

5.1 Introduction aux aberrations optiques

5.1.1 Principe d'aberration optique

Les aberrations optiques sont des effets modifiant la propagation d'un faisceau laser à travers une distorsion de sa phase transverse, et donc de son front d'onde optique [209]. Elles tendent à modifier la position et la forme de la tache focale, et donc la géométrie du canal plasma en régime non-linéaire. Elles sont usuellement classées à l'aide de deux nombres entiers : le degré radial n et le degré azimutal $m \leq n$. Formellement, elles sont associées à une carte de phase transverse, chacune proportionnelle à un polynôme de Zernike $Z_n^m(\rho, \varphi)$ d'expression générale [210] :

$$Z_n^m(\rho, \varphi) = \begin{cases} R_n^m(\rho) \cos(m\varphi) & \text{si } m \geq 0 \\ R_n^m(\rho) \sin(m\varphi) & \text{si } m < 0 \end{cases}, \quad (5.1)$$

où $R_n^m(\rho)$ sont les polynômes radiaux de Zernike, définis par

$$R_n^m(\rho) = \sum_{k=0}^{(n-m)/2} \frac{(-1)^k (n-k)!}{k! \left(\frac{n-m}{2} - k\right)! \left(\frac{n-m}{2} + k\right)!} \rho^{n-2k}. \quad (5.2)$$

Les variations en ρ (resp. φ) du polynôme de Zernike $Z_n^m(\rho, \varphi)$ représentent la dépendance radiale (resp. azimutale) de la phase associée à l'aberration optique de degrés n et m . A titre illustratif, la figure 5.1 représente les polynômes de Zernike d'ordres $0 \leq n \leq 5$ dans le disque $\rho \leq 1$.

Nous étudierons plus particulièrement les trois aberrations optiques les plus observées lors des expériences laser, à savoir l'astigmatisme vertical ($n = m = 2$ abrégé "astigmatisme"), l'aberration de coma verticale ($n = 3, m = -1$ abrégée "coma") et la sphéricité ($n = 4, m = 0$). Au cours de ce chapitre, nous ne traiterons pas l'effet de lentille comme une aberration optique, bien qu'elle soit représentée par le polynôme de Zernike de degrés $n = 2$ et $m = 0$. Pour ces quatre effets, les polynômes $Z_n^m(\rho, \varphi)$ se simplifient comme suit :

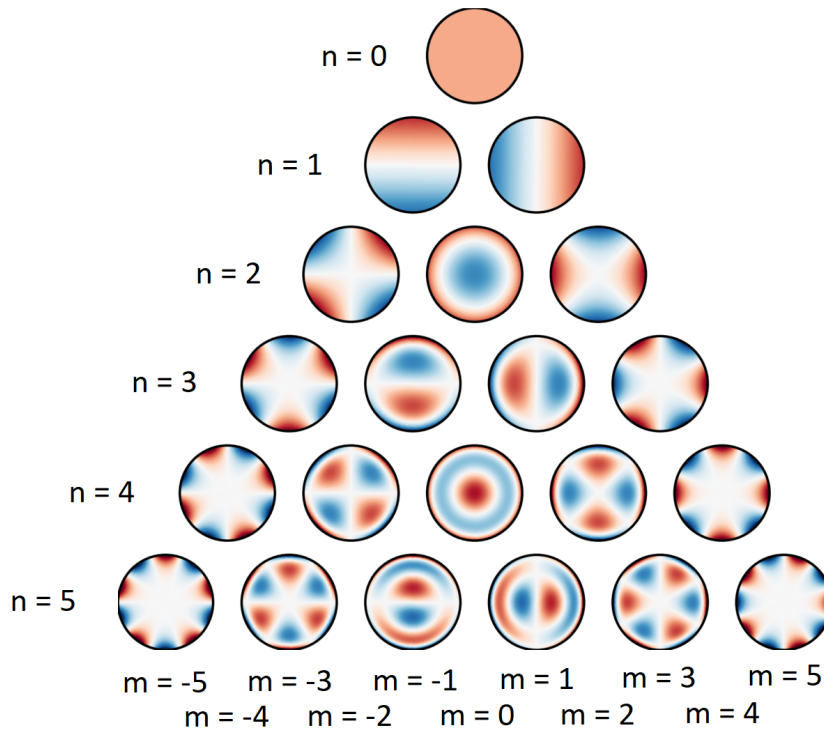


FIGURE 5.1: Représentation graphique des 21 premiers polynômes de Zernike sur un cercle de rayon $\rho = 1$. Source : Wikipédia

$$\text{Effet de lentille :} \quad Z_2^0(\rho) = 2\rho^2 - 1, \quad (5.3)$$

$$\text{Astigmatisme :} \quad Z_2^2(\rho, \varphi) = \rho^2 \cos(2\varphi), \quad (5.4)$$

$$\text{Coma :} \quad Z_3^{-1}(\rho, \varphi) = (3\rho^3 - 2\rho) \sin(\varphi), \quad (5.5)$$

$$\text{Sphéricité :} \quad Z_4^0(\rho) = 6\rho^4 - 6\rho^2 + 1. \quad (5.6)$$

Remarquons que plus n (m) est élevé, plus les variations en ρ (resp. φ) de $Z_n^m(\rho, \varphi)$ sont fortes. Les aberrations réelles influant sur la propagation laser sont une combinaison linéaire des différents effets décrits ici dans la base des polynômes de Zernike. Ainsi, à chaque aberration est associée un coefficient, noté c_n^m et ayant la dimension d'une distance, qui correspond à l'importance de chaque aberration sur la phase radiale totale. Ils permettent d'exprimer de manière générale le profil de phase dû aux aberrations $\phi_a(r_\perp, \varphi)$, appliqué à une impulsion laser de fréquence ω_0 et de rayon en $1/e^2$ noté w_0 [211] :

$$\phi_a(r_\perp, \varphi) = -\frac{\omega_0}{c} \sum_{n,m \leq n} c_n^m Z_n^m(\sqrt{2}r_\perp/w_0, \varphi). \quad (5.7)$$

Les aberrations optiques peuvent ainsi être intégrées à un code de propagation linéaire en affectant à l'impulsion laser initiale $\vec{E}_L(\vec{r}, t)$ la phase $\phi_a(r_\perp, \varphi)$ puis en résolvant l'équation de propagation linéaire, dont la solution s'écrit pour rappel [cf. equation (2.191)] :

$$\overline{\vec{E}}_L(\omega, k_\perp, z + \Delta z) = \overline{\vec{E}}_L(\omega, k_\perp, z) \exp \left(i\Delta z \left[\sqrt{k^2(\omega) - k_\perp^2} - n_g(\omega_0) \frac{\omega}{c} \right] \right), \quad (5.8)$$

avec $n_g(\omega_0)$ l'indice de groupe du milieu à la fréquence du fondamental laser ω_0 .

Notons que la phase $\phi_a(r_\perp, \varphi)$ associée à une lentille de longueur focale f s'écrit plus couramment $\phi_a(r_\perp) = -\omega_0 r_\perp^2 / (2fc)$. Nous identifions donc la relation entre f et c_2^0 :

$$f = \frac{w_0^2}{8c_2^0}, \quad (5.9)$$

où nous avons omis le terme constant du polynôme $Z_2^0(\rho)$ car il n'influe pas sur la propagation laser.

La figure 5.2 illustre les résultats obtenus par simulation de la propagation linéaire d'une impulsion laser à deux couleurs ($r = 35\%$) de fondamental $0.8 \mu\text{m}$ et de diamètre initial $w_0 = 250 \mu\text{m}$ focalisée ($f = 2.6 \text{ cm}$ correspondant à $c_2^0 = 300 \text{ nm}$) dans l'air, dont l'indice de réfraction est calculé à l'aide du modèle de Peck et Reeder [117]. Les valeurs des amplitudes c_n^m sont choisies par rapport aux quantités typiques disponibles dans la bibliographie [212] et aux caractéristiques techniques du miroir déformable fourni par Imagine Optic durant le projet ALTESSE2. La figure 5.2(a) représente le cas de référence, c'est-à-dire sans aberration optique (excepté l'effet de lentille). La propagation est axisymétrique le long de z , et symétrique par rapport au plan transverse dans lequel se trouve le foyer. Lorsque le faisceau comporte de la sphéricité [$c_4^0 = 5 \text{ nm}$, figure 5.2(b)], nous observons que la tâche focale s'étale en z , et la fluence laser maximale est donc plus faible que dans le cas de référence. Cet effet est expliqué par le fait que la phase radiale associée à la sphéricité peut être exprimée comme celle d'une focale dépendant de r_\perp :

$$\phi_4^0(r_\perp) = -\frac{\omega_0}{c} c_4^0 Z_4^0(\sqrt{2}r_\perp/w_0) \sim -6 \frac{\omega_0}{c} c_4^0 \frac{2r_\perp^2}{w_0^2} \left(\frac{2r_\perp^2}{w_0^2} - 1 \right) = -\frac{\omega_0}{c} \frac{r_\perp^2}{2f_4^0(r_\perp)} \quad (5.10)$$

où la focale équivalente $f_4^0(r_\perp)$ est identifiée par

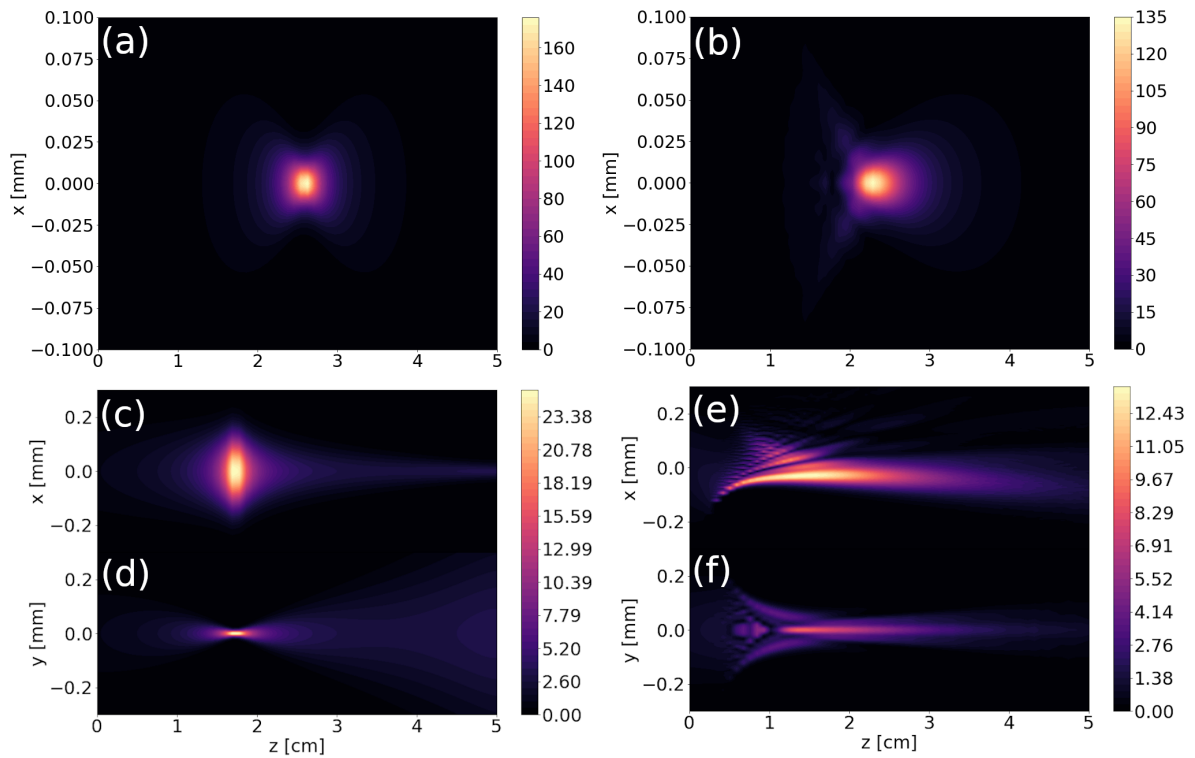


FIGURE 5.2: Cartographies de la fluence laser en régime linéaire (a,b,c,e) dans le plan (x, z) et (d,f) dans le plan (y, z) pour une impulsion laser à deux couleurs ($r = 35\%$) de fondamental $0.8\ \mu\text{m}$ et de rayon initial $w_0 = 250\ \mu\text{m}$ focalisée dans l'air par une lentille de focale $f = 2.6$ cm (a) sans aberration optique supplémentaire, (b) avec ajout de sphéricité ($c_4^0 = 5\ \text{nm}$), (c,d) d'astigmatisme ($c_2^2 = 300\ \text{nm}$) et (e,f) de coma ($c_3^{-1} = 300\ \text{nm}$).

$$f_4^0(r_\perp) = \frac{w_0^2}{24c_4^0 (2r_\perp^2/w_0^2 - 1)}. \quad (5.11)$$

La figure 5.2(c) illustre une propagation laser soumise à de l'astigmatisme ($c_2^2 = 300\ \text{nm}$). Puisque cette aberration est d'ordre $m \neq 0$, elle génère des asymétries azimutales dans la distribution de la fluence. En particulier, nous observons que l'astigmatisme est caractérisé par une tache focale en forme d'œil de chat. Cette propriété provient du fait que l'astigmatisme est en fait équivalente à un système optique admettant un foyer dépendant de φ :

$$\phi_2^2(r_\perp, \varphi) = -\frac{\omega_0}{c} c_2^2 Z_2^2(\sqrt{2}r_\perp/w_0) = -\frac{\omega_0}{c} c_2^2 \frac{2r_\perp^2}{w_0^2} \cos(2\varphi) = -\frac{\omega_0}{c} \frac{r_\perp^2}{2f_2^2(\varphi)} \quad (5.12)$$

où la focale équivalente $f_2^2(\varphi)$ vaut

$$f_2^2(\varphi) = \frac{w_0^2}{4c_2^2 \cos(2\varphi)}. \quad (5.13)$$

Nous remarquons également que cette aberration réduit fortement la valeur maximale de la fluence laser par rapport au cas de référence, ce qui privilégiera des plasmas plus courts et de moindre densité en régime non-linéaire. Pour finir, l'aberration de coma [$c_3^{-1} = 300$ nm, figure 5.2(d)] produit également des asymétries orthoradiales ainsi qu'un affaiblissement conséquent de l'intensité laser maximale. Elle est caractérisée par un effet de tilt (une imperfection d'alignement du faisceau optique par rapport à l'axe) dépendant de φ . La tâche focale est alors très déstructurée en comparaison au cas sans aberration.

5.1.2 Le miroir déformable

Lors d'une expérience de filamentation laser par exemple, les aberrations optiques (hormis l'effet de lentille) doivent souvent être corrigées afin de stabiliser le canal plasma formé [211, 212]. Ceci s'effectue au moyen d'un instrument optique nommé "miroir déformable" [213]. Cet outil est constitué d'une membrane réfléchissante dont la surface peut être contrôlée par ordinateur (analyseur de front d'onde) au moyen de plusieurs électrodes (ou actionneurs) afin d'influer sur la phase spatiale du faisceau laser incident. Un schéma explicatif de cet instrument est montré en figure 5.3.

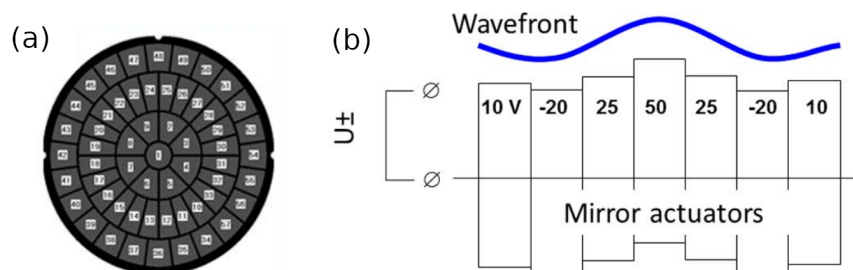


FIGURE 5.3: (a) Répartition des électrodes sous la membrane d'un miroir déformable. (b) Schéma représentant le déplacement de la membrane selon le voltage appliqué aux électrodes. Source : Apeksimov [212]

La figure 5.4(a) montre le déplacement de la surface du miroir déformable employé en référence [214] suite à l'activation de plusieurs actionneurs distincts. La répartition physique (nombre, positionnement et forme) des électrodes sous la surface du miroir ainsi que l'élasticité de sa membrane définissent une série de surfaces propres à chaque miroir déformable, appelées modes et illustrées en figure 5.4(b), que l'instrument peut reproduire parfaitement. Ces modes représentent une seconde base - en plus de celle formée par les polynômes de Zernike où chaque

aberration est liée à un coefficient c_n^m - à partir de laquelle les aberrations optiques peuvent être décomposées. En pratique, un miroir déformable est utilisé de pair avec un capteur permettant d'identifier les amplitudes c_n^m au sein du front de phase d'une impulsion. Ainsi, caractériser une aberration par rapport à une autre revient à effectuer un changement de base entre les polynômes de Zernike et la base formée des modes du miroir. La géométrie de cet instrument impose cependant deux limitations techniques. La première correspond aux valeurs maximales de c_n^m pouvant être traitées par le miroir, montrées en figure 5.4(c). La seconde réside dans le caractère fini du nombre de modes du miroir déformable, provenant du nombre fini d'actionneurs situés sous sa membrane, et qui implique que certaines aberrations optiques (généralement d'ordres n et m élevés) ne sont pas disponibles ou ne peuvent être reproduites parfaitement [214, 215].

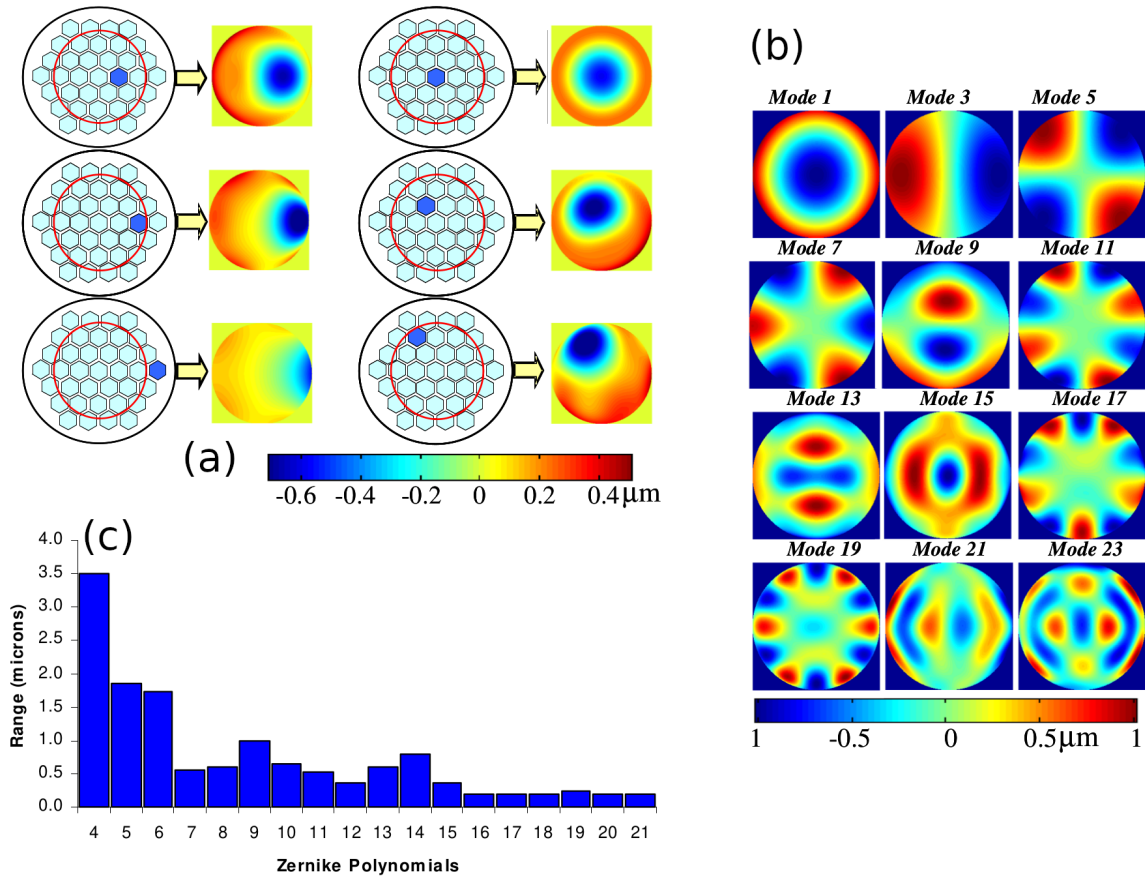


FIGURE 5.4: (a) Influence de l'action d'électrodes isolées (en bleu foncé) sur la surface du miroir déformable (cartes de couleur). (b) Modes spatiaux représentatifs de cet instrument constituant la base à partir de laquelle les aberrations optiques peuvent être déclenchées ou corrigées. (c) Valeurs maximales des coefficients associés aux 21 premiers polynômes de Zernike pouvant être traités à l'aide du miroir déformable. Les polynômes de degrés $n = 0$ et $n = 1$ (numérotés 1 à 3) ne sont pas représentés. L'effet de lentille, l'astigmatisme, la coma et la sphéricité sont ici numérotés respectivement 5, 6, 8 et 13. Source : Fernández [214]

5.1.3 Application du modèle d'émission conique

La propagation laser étant fortement influencée par les aberrations optiques, comme observé en figure 5.2, il est utile d'examiner l'effet de ces dernières dans notre modèle d'émission conique. Nous supposons que celui-ci reste valable en présence de ces aberrations, ce qui revient à émettre à nouveau deux hypothèses importantes :

- La densité plasma reste invariante le long de z jusqu'à l'extinction du filament à cause de l'effet de clamping, ce qui assure que les variations transverses de l'amplitude des impulsions THz $J_{\text{tr}}(\vec{r}_{\perp})$ sont indépendantes de z .
- Nous supposons également que les variations radiales de la phase des ondes THz générées $\phi(\vec{r}_{\perp})$ sont toujours indépendantes de z au sein du canal plasma.

Pour rappel, les deux termes ci-dessus sont calculés après une propagation linéaire de l'impulsion laser jusqu'à une distance $z = z_p$, où son rayon est semblable à celui atteint à l'entrée du plasma dans le cas non-linéaire. Comme les aberrations optiques modifient de manière non-négligeable la géométrie et la densité électronique du canal plasma, il sera nécessaire, lors de l'intégration de notre modèle, d'adapter les coefficients L et N_e^{eff} , ainsi que les spectres THz $A_J(\omega)$ et $A_{\text{Kerr}}(\omega)$, à chaque configuration étudiées.

Notons que lorsque l'impulsion laser est soumise à une forte aberration de coma, les deux hypothèses formulées ici peuvent être mises en cause car le faisceau ne se propage plus le long de l'axe \vec{e}_z . Nous considérons cependant que dans les configurations étudiées, le modèle d'émission conique reste robuste.

5.2 Influence des aberrations optiques en régime focalisé

Nous présentons maintenant les résultats de simulations UPPE ayant eu pour but de caractériser l'impact des aberrations optiques étudiées (astigmatisme, coma, sphéricité) en régime focalisé. Nous commençons par expliciter les résultats obtenus pour des champs laser polarisés linéairement (LP-P selon les notations de Meng et al. [161]), puis nous les comparerons avec des simulations de faisceaux polarisés circulairement (CP-S).

5.2.1 Polarisation LP-P

Les impulsions laser simulées ici comportaient deux couleurs ($r = 35\%$), de fondamental $\lambda_0 = 0.8\ \mu\text{m}$, de durée 34 fs, de rayon initial 250 μm . L'énergie laser vaut 500 μJ et les faisceaux sont polarisés linéairement (LP-P) selon \vec{e}_x . Ces derniers sont focalisés ($f = 2.6\ \text{cm}$ équivalent à $c_2^0 = 300\ \text{nm}$) dans l'air (dont l'indice non-linéaire vaut $n_2 = 3.8 \times 10^{-19}\ \text{cm}^2/\text{W}$) composé à 20 % d' O_2 ($Z_{\text{O}_2}^* = 0.53$) et à 80 % de N_2 ($Z_{\text{N}_2}^* = 0.9$). Un premier cas servant de référence a été simulé, où l'impulsion laser n'était soumise qu'à l'effet de lentille. Nous avons réalisé ensuite trois autres simulations : une première comportant de l'aberration sphérique ($c_4^0 = 5\ \text{nm}$), une seconde prenant en compte de l'astigmatisme ($c_2^2 = 300\ \text{nm}$) et une troisième faisant intervenir la coma ($c_3^{-1} = 300\ \text{nm}$). Les aberrations optiques modélisées comme décrit précédemment affectent la phase de l'impulsion laser en $z = 0$. Le miroir déformable engendrant ces aberrations se situe après le BBO, c'est-à-dire qu'il affecte les deux couleurs séparément. Les distorsions de phase du fondamental (resp. de l'harmonique deux) sont donc proportionnelles à $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0$ (resp. $2\omega_0$). Sur de courtes distances de propagation, il n'a pas été nécessaire de propager linéairement l'impulsion laser en amont de la simulation CUP3D à l'aide de notre pré-processeur Python.

Le choix des valeurs des amplitudes c_n^m a été motivé par plusieurs considérations. Remarquons d'abord que des coefficients c_n^m élevés engendrent des variations transverses de $\phi(\vec{r}_\perp)$ d'autant plus rapides, qui nécessitent une résolution spatiale fine. D'ailleurs, un polynôme de Zernike d'ordre n (resp. m) est proportionnel à r_\perp^n (resp. $m\varphi$), ce qui signifie qu'une aberration d'ordres n et m élevés (comme la sphéricité par exemple, où $n = 4$ et $m = 0$) impose des contraintes numériques plus strictes qu'une aberration d'ordres moindres (comme l'effet de lentille, d'ordres $n = 2$ et $m = 0$). Les valeurs maximales des amplitudes c_n^m pouvant être prises en compte par nos codes de simulation sont donc naturellement décroissantes avec n et m . Ainsi, les choix $c_2^2 = 300\ \text{nm}$ et $c_3^{-1} = 300\ \text{nm}$ correspondent respectivement aux amplitudes maximales d'astigmatisme et de coma que nous pouvons modéliser en assurant un temps de calcul et une précision raisonnables. Afin de fixer $c_4^0 = 5\ \text{nm}$, nous nous sommes d'abord appuyés sur la bibliographie [211,212] et sur les caractéristiques techniques du miroir déformable fourni par Imagine Optic pour encadrer les valeurs relevantes de ce coefficient. Nous avons ensuite effectué plusieurs simulations comprenant des choix de c_4^0 variés ($c_4^0 < 30\ \text{nm}$). Bien que les conclusions tirées de chacune de ces simulations restent les mêmes que celles qui seront présentées plus loin, l'amplitude $c_4^0 = 5$

nm maximise l'énergie THz générée parmi les valeurs de c_4^0 testées, ce qui a motivé ce choix.

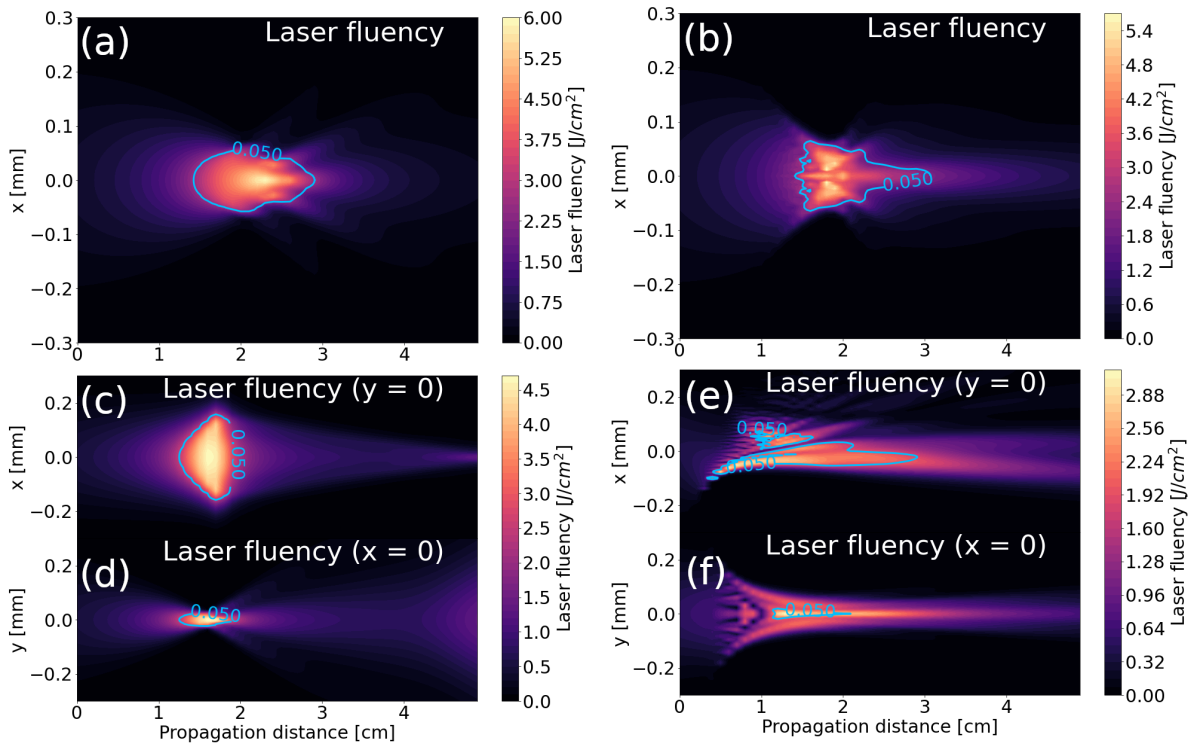


FIGURE 5.5: Cartographies de la fluence laser pour une polarisation LP-P calculée par CUP3D en régime non-linéaire (a,b,c,e) dans le plan (x, z) et (d,f) dans le plan (y, z) (a) dans le cas de référence, (b) avec ajout de sphéricité, (c,d) avec de l'astigmatisme et (e,f) avec de l'aberration de coma. Les lignes bleues représentent les iso-densités $N_e = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Les paramètres de la simulation sont précisés dans le texte.

La figure 5.5 montre les évolutions des fluences laser calculées par le code CUP3D en régime non-linéaire. Remarquons dans un premier temps que nous retrouvons des dynamiques de propagation semblables à celles observées en régime linéaire [cf. figure 5.2], mais que les écarts entre les valeurs de fluence maximales des différents cas sont ici réduits. Les lignes bleues représentent l'iso-contour de densité $N_e = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$, et dessinent ainsi la forme du plasma d'air. Dans le cas de référence [figure 5.5(a)] et en présence de sphéricité [figure 5.5(b)], le plasma reste axisymétrique. Cependant, l'ajout d'astigmatisme [figures 5.5(c,d)] et de coma [figures 5.5(e,f)] tend à briser cette symétrie. Remarquons en particulier que dans la configuration coma, le plasma est en fait composé d'un filament suivant la direction de propagation de l'impulsion laser, accompagné de petites zones hors-axe à densité électronique non-nulle autour de $z = 1 \text{ cm}$.

La figure 5.6(a) décrit les évolutions en z de la densité électronique maximale pour les quatre configurations considérées. Remarquons dans un premier temps que par rapport au cas de ré-

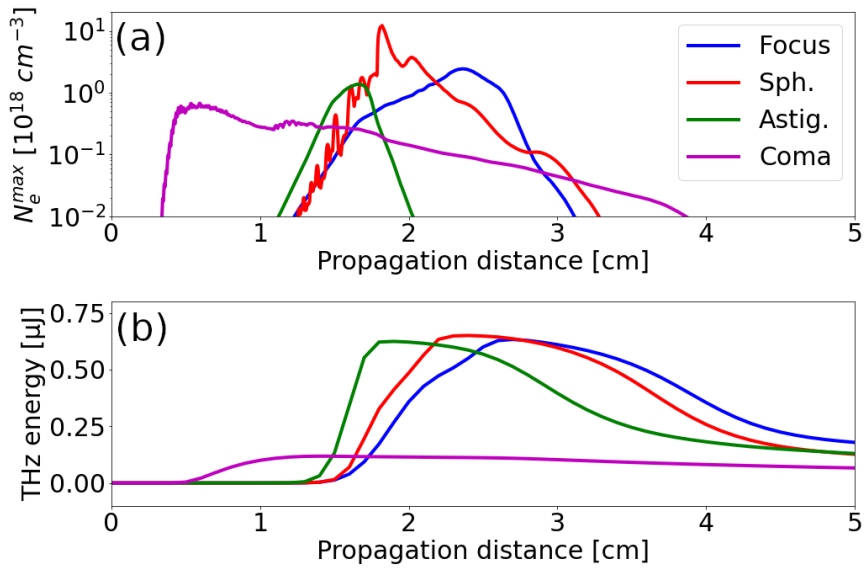


FIGURE 5.6: Evolutions en z de (a) la densité électronique maximale et (b) l'énergie THz ($\nu < 90$ THz) contenue dans la boîte de simulation dans le cas de référence (courbe bleue), avec de la sphéricité (courbe rouge), de l'astigmatisme (courbe verte) et de l'aberration de coma (courbe magenta).

férence (courbe bleue), qui forme un plasma de densité électronique $N_e \approx 2 - 3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, l'astigmatisme (courbe verte) et l'aberration de coma (courbe magenta) présentent des niveaux de densités plus faibles d'un facteur ≈ 2 et ≈ 5 respectivement. Quant à la sphéricité, elle génère des pics de densités locaux très intenses ($N_e \approx 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) correspondant aux points lumineux hors-axe visibles au sein de la carte de fluence laser tracée en figure 5.5(b). L'astigmatisme forme un plasma plus court aux z plus courts que celui du cas de référence car cette aberration induit une focale supplémentaire, comme mis en avant dans la section précédente. La sphéricité, quant à elle, produit un plasma de position et de dimensions semblables au cas de base : bien qu'elle représente aussi une focale supplémentaire, la longueur f_4^0 dépend de r_\perp , et le point focal s'étend donc en z . Cette aberration optique tend donc à favoriser l'allongement du plasma, conformément aux observations effectuées en régime linéaire et aux références [211, 212]. Enfin, l'aberration de coma engendre un plasma particulièrement long car elle présente un niveau de fluence maximale (donc de densité électronique) plus étendu et plus régulier car associé à un niveau de densité plus faible. Cette aberration produit un plasma aux z plus faibles que dans les autres cas ($z > 4 \text{ mm}$ contre $z > 1 \text{ cm}$) car la fluence atteint sa valeur maximale plus rapidement, conformément à la figure 5.2. La figure 5.6(b), qui trace l'évolution en z de l'énergie THz

($\nu < 90$ THz) présente dans la fenêtre de simulation, montre que dans le régime de focalisation étudié, les aberrations optiques modifient peu le rendement de conversion laser-THz, excepté pour l'aberration de coma, qui produit une énergie THz abaissée d'un facteur ≈ 5 par rapport aux autres cas en raison de la faible densité plasma atteinte.

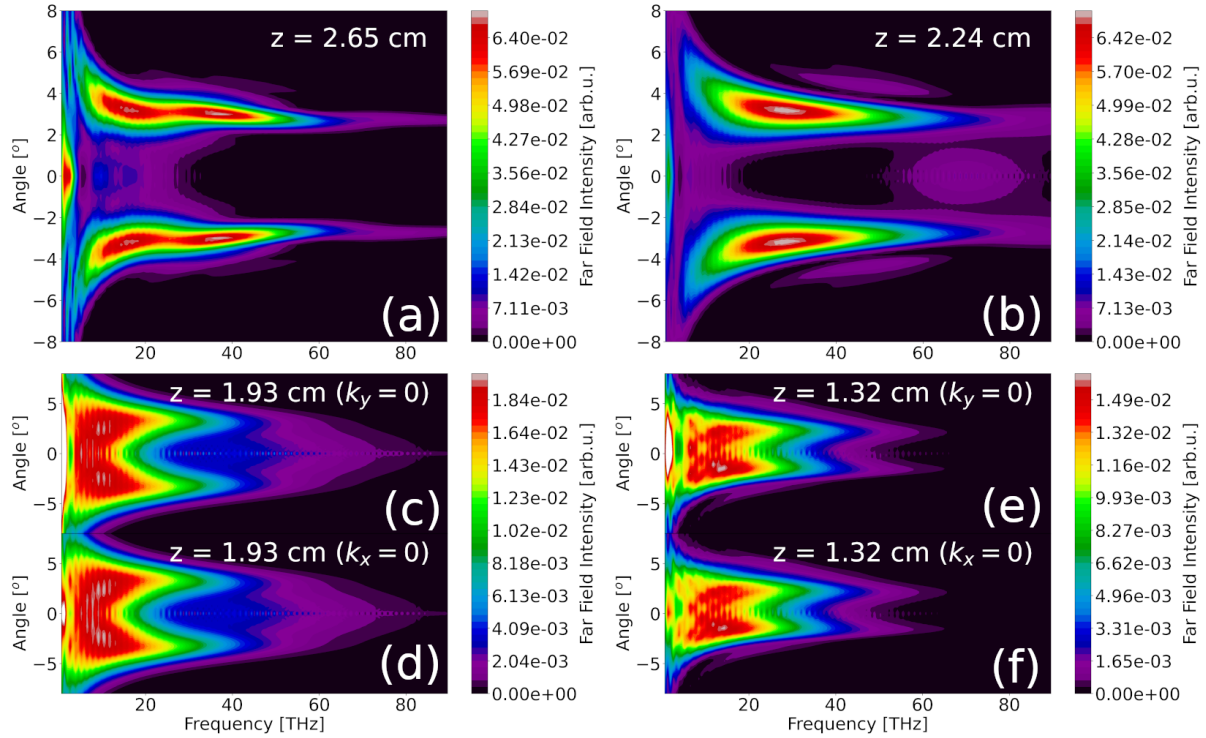


FIGURE 5.7: Spectres THz angulo-fréquentiels calculés par CUP3D (a,b,c,e) selon \vec{e}_x et (d,f) selon \vec{e}_y (a) dans le cas de référence en $z = 2.65$ cm, (b) dans le cas sphéricité en $z = 2.24$ cm, (c,d) dans le cas astigmatisme en $z = 1.93$ cm et dans le cas coma en (e,f) $z = 1.32$ cm.

La figure 5.7 illustre les spectres THz angulo-fréquentiels calculés par CUP3D dans les quatre cas d'intérêt. Ceux-ci sont estimés aux distances pour lesquelles la croissance de l'énergie THz tracée en figure 5.6(b) est maximale pour qu'ils contiennent le rayonnement THz le plus complet possible. Le cas de référence [figure 5.7(a)] présente une émission conique aux angles $2.5^\circ < \Theta < 4^\circ$ et s'étend jusqu'à 60 THz. La composante sur l'axe située à $\nu < 3$ THz est interprétée comme un artefact numérique situé en dehors de la limite de validité du code CUP3D, c'est-à-dire aux fréquences inférieures à la fréquence plasma ν_p estimée ici à environ 8 THz. Dans le cas sphéricité [figure 5.7(b)], le spectre comporte les mêmes caractéristiques que dans la simulation sans aberration optique. Cependant, nous remarquons son léger élargissement jusqu'à 70-80 THz, que nous attribuons à de fortes non-linéarités associées aux pics locaux de densité observés en figure 5.6(a). Ceux-ci engendrent une défocalisation plasma suffisamment forte pour que la

partie arrière de l'impulsion laser soit amortie, comme mis en évidence par la figure 5.8. Ainsi, au sein du plasma, le champ laser dans le cas sphéricité voit son enveloppe temporelle comprimée par rapport au cas de référence. Son profil spectral est donc plus large, et le champ THz produit a un spectre plus étendu en fréquence.

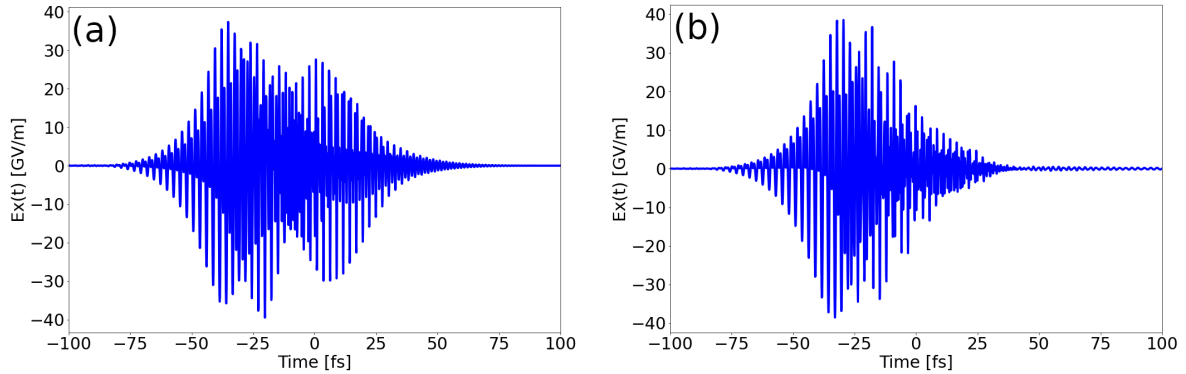


FIGURE 5.8: Profils temporels des champs laser sur l'axe optique (a) sans aberration optique en $z = 2.6$ cm et (b) avec de la sphéricité en $z = 2.2$ cm. La partie arrière du champ laser a été défocalisée : son enveloppe temporelle effective est donc moins intense et plus courte que dans (a).

Les cas astigmatisme [figures 5.7(c,d)] et coma [figures 5.7(e,f)] sont associés à une réduction de la largeur spectrale THz rayonnée ($\nu < 45$ THz). Dans le premier cas, nous observons que l'onde rayonnée apparaît plutôt axisymétrique (elle est $\approx 1\%$ plus intense dans le plan $k_x = 0$) malgré le caractère asymétrique de l'aberration d'astigmatisme. Elle comporte une forte contribution sur l'axe aux basses fréquences ($\nu < 20 - 25$ THz) et une émission conique à $\Theta \approx 4^\circ$ dans la partie haute du spectre ($\nu > 25$ THz). Lorsque l'impulsion laser est influencée par la coma, celle-ci produit un plasma d'intensité maximale distincte selon les axes transverses de sorte que le spectre THz devient asymétrique : sa largeur fréquentielle est différente pour les valeurs positives et négatives de Θ . Cette dépendance azimutale provient du décalage de l'axe de propagation laser. En effet, le plasma n'est plus centré en $x = y = 0$ comme pour les autres configurations, ce qui favorise une direction d'émission, en particulier pour des angles négatifs. La dynamique fréquentielle du spectre THz dans le cas coma est composée d'une émission sur l'axe pour $\nu < 35 - 40$ THz, puis d'une émission conique pour $\nu > 40$ THz en des angles compris entre 2° et 3° en valeur absolue.

Enfin, nous intégrons notre modèle augmenté dans le but de retrouver ces spectres, en suivant la procédure expliquée en section 4.2.3. Les paramètres utilisés pour son intégration sont résumés

dans le tableau 5.1.

	Focale	Sphéricité	Astigmatisme	Coma
z_p [cm]	2	1.5	1.8	0.8
N_e^{eff} [10^{18} cm $^{-3}$]	0.2	0.4	0.3	0.01
L [mm]	7	5	3	10

TABLE 5.1: Paramètres employés pour l'intégration de notre modèle d'émission conique en régime focalisé pour des impulsions laser LP-P.

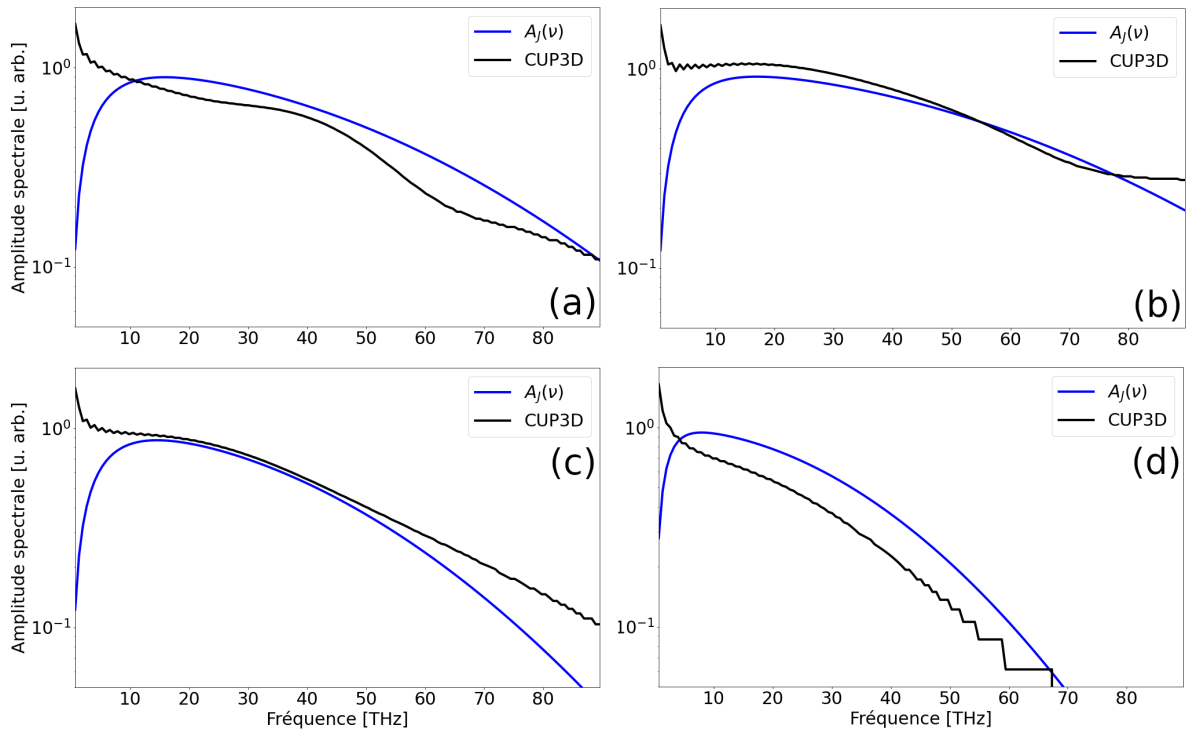


FIGURE 5.9: Spectres THz présentés en figure 5.7 intégrés transversalement (courbes noires) et termes $A_J(\omega)$ (courbes bleues) choisis pour intégrer notre modèle d'émission conique (a) dans le cas de référence, et lorsque l'impulsion laser est influencée par (b) de la sphéricité, (c) de l'astigmatisme et (d) de la coma.

Afin de nous rapprocher au mieux des conditions de la simulation UPPE, nous avons choisi des profils spectraux $A_J(\omega)$ de sorte qu'ils reproduisent au mieux les spectres THz CUP3D représentés en figure 5.7 intégrés transversalement. La figure 5.9 compare ces spectres intégrés (courbes noires) avec les profils $A_J(\omega)$ (courbes bleues) choisis dans le cas de référence (a), le cas sphéricité (b), le cas astigmatisme (c) et le cas coma (d).

La figure 5.10(a) trace le spectre THz angulo-fréquentiel estimé par notre modèle dans le cas d'une propagation laser non-affectée par les aberrations optiques. Nous remarquons que la présence d'émission conique et les angles prédits sont en accord raisonnable avec la simulation

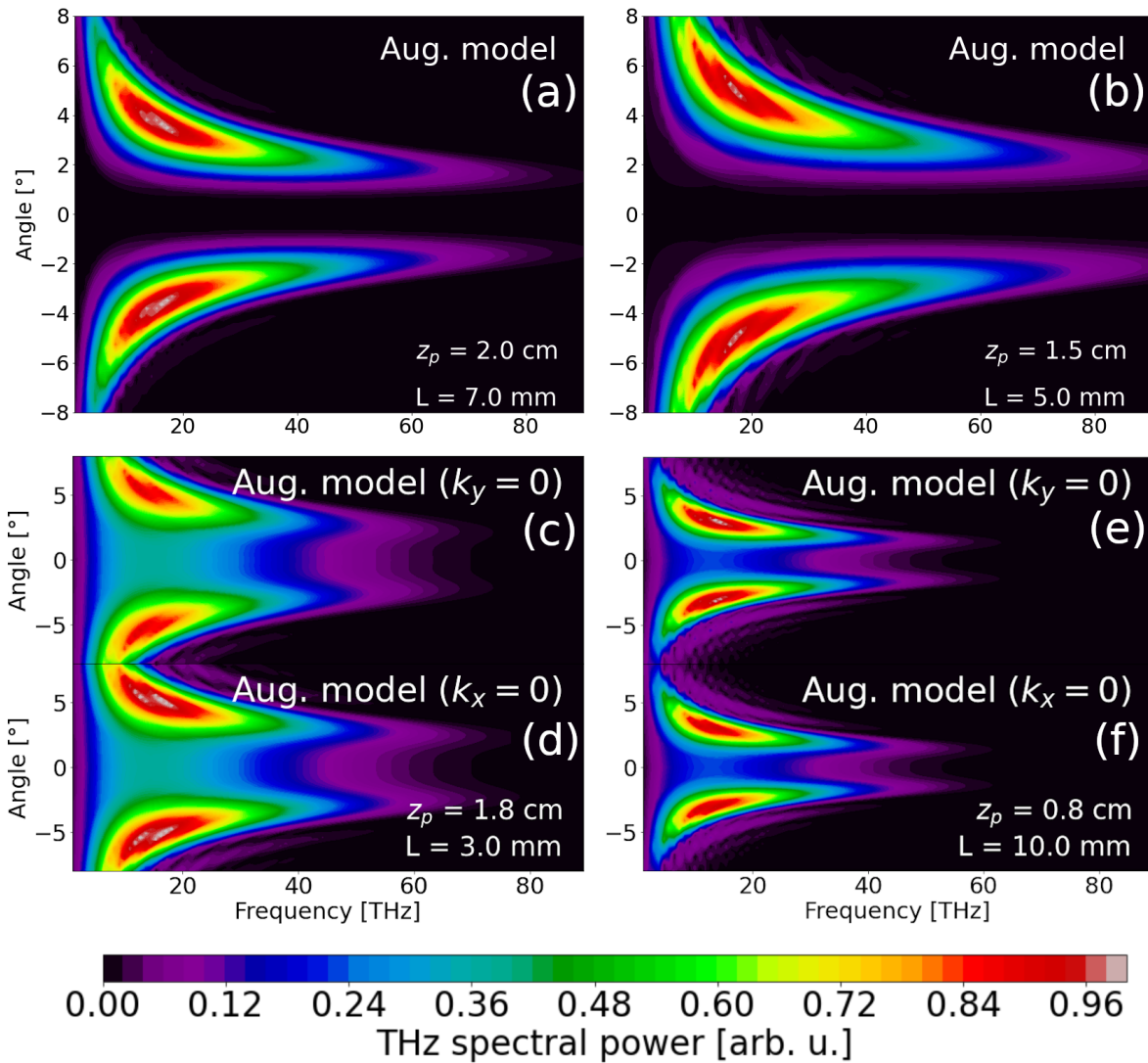


FIGURE 5.10: Spectres THz angulo-fréquentiels selon (a,b,c,e) \vec{e}_x et (d,f) \vec{e}_y estimés à l’aide de notre modèle d’émission conique pour une propagation laser affectée par (a) aucune aberration optique, (b) de la sphéricité, (c) de l’astigmatisme et (d) de l’aberration de coma. Les paramètres employés sont résumés dans le tableau 5.1.

CUP3D [cf. figure 5.7(a)]. Le cas sphéricité, représenté dans la figure 5.10(b), décrit une émission conique très similaire à celle du cas de référence, et prévoit des angles valant environ $3.5 - 4^\circ$. L’élargissement en fréquences de ce spectre provient de l’adaptation du facteur $A_J(\omega)$. Conformément aux calculs UPPE, ces deux figures mettent en évidence que la sphéricité a particulièrement peu d’impact sur le spectre THz produit. Dans le cas astigmatisme, présenté en figures 5.7(c,d), notre modèle tend à surestimer les asymétries spectrales de la simulation CUP3D : la largeur et l’amplitude du spectre comprennent de légères variations azimutales (à hauteur de $\approx 9\%$ en amplitude). Ces asymétries sont dues aux termes $I_S^\pm(k_x, k_y)$, qui sures-

timent ici la diffraction transverse des ondes THz dans le plasma. En effet, les effets propagatifs non-linéaires (auto-focalisation Kerr et défocalisation plasma), qui ne sont pas pris en compte dans la méthode d'intégration de notre modèle (propagation linéaire), modifient localement la géométrie de l'impulsion laser et du canal plasma. En particulier, nous observons généralement que les dimensions du plasma dans la simulation CUP3D sont plus faibles que les dimensions transverses minimales de $J_{\text{tr}}(x, y)$ prévues par le code de propagation linéaire. En outre, la diffraction transverse, qui est d'autant plus importante que le canal plasma est large, tend à atténuer les hautes fréquences, pour lesquelles la condition $k_{\text{THz}}a \sin \Theta \ll 1$ n'est plus vérifiée. Une piste d'amélioration de la méthode d'intégration de notre modèle serait donc d'extraire le terme $J_{\text{tr}}(\vec{r}_{\perp})$ directement depuis la simulation CUP3D, ou de prendre en compte l'auto-focalisation Kerr par exemple. Les angles d'émission THz ($\Theta \approx 4^\circ$) sont cependant correctement restitués par notre modèle. Enfin, dans le cas prenant en compte l'aberration de coma [cf. figures 5.10(e,f)], les asymétries observées dans les spectres CUP3D sont partiellement retrouvées. Elles sont également associées à la diffraction asymétrique apportée par les termes $I_S^{\pm}(k_x, k_y)$, et les écarts avec la simulation CUP3D sont une nouvelle fois attribués aux non-linéarités omises dans notre modèle. La dynamique spectrale prévue par ce dernier est conforme à celle calculée par CUP3D, à savoir une émission conique en des angles $\Theta \approx 3^\circ$ comportant une contribution sur l'axe non-négligeable, en particulier aux basses-fréquences.

5.2.2 Polarisation CP-S

Nous avons effectué une étude similaire pour des impulsions laser polarisées circulairement afin de vérifier si les conclusions tirées pour des champs polarisés linéairement restent valides. Les simulations UPPE ont comporté les mêmes paramètres que pour les simulations précédentes. La figure 5.11 montre les cartes de fluence laser en régime non-linéaire calculées par CUP3D dans les quatre cas étudiés. En la comparant à la figure 5.5, nous remarquons que les géométries du faisceau laser et du plasma sont similaires à la configuration LP-P. Nous en concluons que la polarisation laser modifie peu la propagation de l'impulsion en présence, et en l'absence, d'aberrations optiques.

La figure 5.12(a) illustre les prédictions CUP3D des évolutions en z des densités électroniques maximales atteintes sans aberration optique (courbe bleue), avec de la sphéricité (courbe rouge), de l'astigmatisme (courbe verte) et de l'aberration de coma (courbe magenta). Les caractéris-

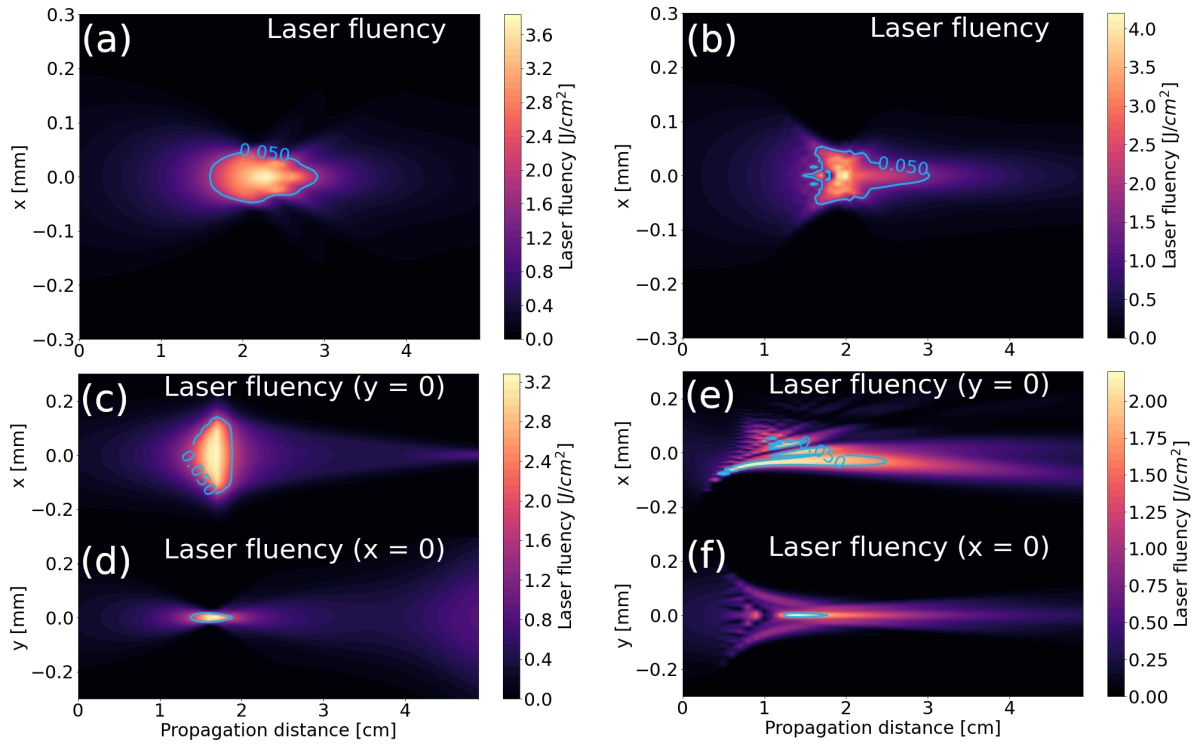


FIGURE 5.11: Légende similaire à la figure 5.5 mais pour des impulsions laser à deux couleurs polarisées circulairement (CP-S).

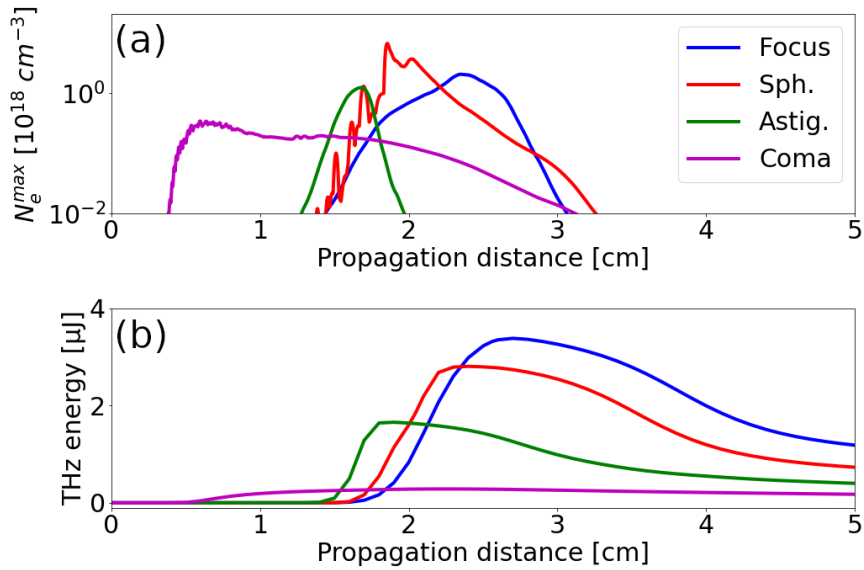


FIGURE 5.12: Même légende que la figure 5.6 en configuration CP-S.

tiques axiales du plasma sont très semblables à celles observées en configuration LP-P, en accord avec la figure 5.11. Notons que les niveaux de densité atteints ici sont légèrement plus faibles que ceux obtenus pour une impulsion laser LP-P, car l'amplitude d'un champ laser CP-S est plus faible d'un facteur $\sqrt{2}$ que celle d'un champ optique LP-P (cf. les valeurs maximales des barres de couleurs montrées en figures 5.5 et 5.11). La figure 5.12(b) montre les évolutions des énergies THz dans les quatre cas étudiés. En accord avec les conclusions du chapitre 3, l'énergie THz produite dans le cas CP-S est plus élevée qu'en configuration LP-P d'un facteur ≈ 6 dans le cas sans aberration optique (courbe bleue). Cet accroissement est conservé pour les impulsions laser contenant de la sphéricité (courbe rouge) et de l'astigmatisme (courbe verte), d'un facteur valant respectivement ≈ 4 et ≈ 3 . Contrairement à la figure 5.6(b), ces deux cas réduisent cependant de manière non-négligeable le rendement de conversion laser-THz par rapport au cas de référence. Nous retrouvons toutefois que l'aberration de coma (courbe magenta) est particulièrement néfaste pour le rayonnement THz, car elle réduit trop fortement la densité électronique par rapport au cas sans d'aberrations optiques.

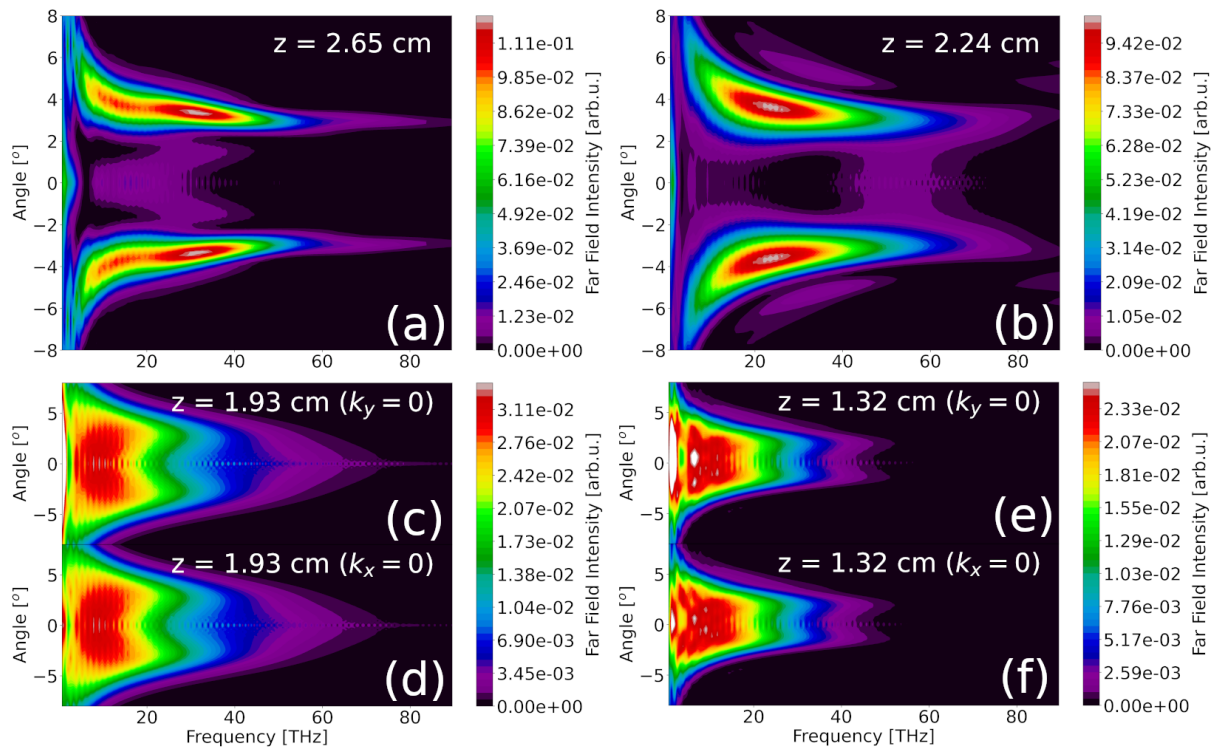


FIGURE 5.13: Spectres THz angulo-fréquentiels calculés par CUP3D (a,b,c,e) selon \vec{e}_x et (d,f) selon \vec{e}_y (a) dans le cas de référence en $z = 2.65$ cm, (b) dans le cas sphéricité en $z = 2.24$ cm, (c,d) dans le cas astigmatisme en $z = 1.93$ cm et dans le cas coma en (e,f) $z = 1.32$ cm pour une impulsion laser CP-S.

La figure 5.13 illustre les spectres angulo-fréquentiels THz calculés par le code CUP3D. En la comparant la figure 5.7, nous remarquons que les spectres obtenus sont très similaires à ceux calculés pour une polarisation laser LP-P, bien qu'ils soient légèrement plus courts en fréquence. Dans le cas sphéricité, montré en figure 5.13(b), l'élargissement spectral par rapport au cas de référence [cf. figure 5.13(a)] est moins important qu'en polarisation LP-P car les non-linéarités sont de moindre intensité ici, conformément avec les observations de la figure 5.11. Ainsi, le champ laser est moins défocalisé par le plasma, et ses harmoniques sont moins larges spectralement, ce qui est confirmé par la figure 5.14.

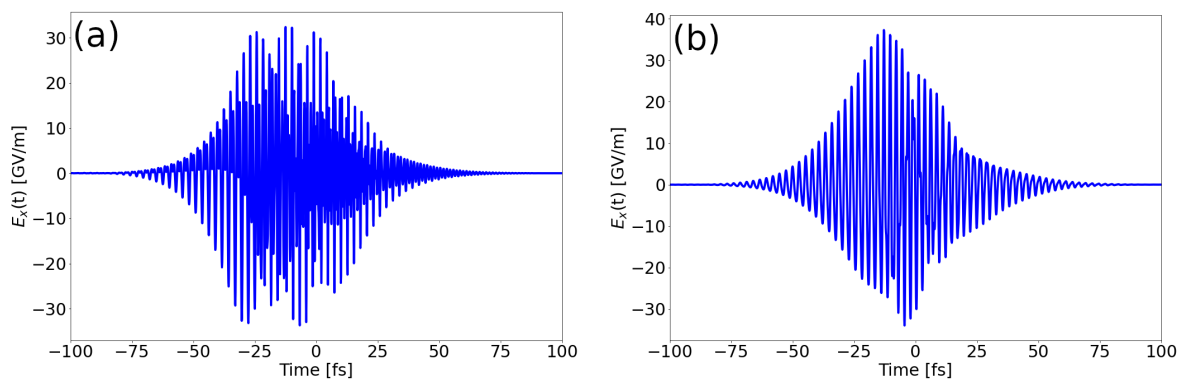


FIGURE 5.14: Profils temporels des composantes vectorielles $E_x(t)$ des champs laser sur l'axe optique (a) sans aberration optique en $z = 2.4$ cm et (b) avec de la sphéricité en $z = 2$ cm. Contrairement à la figure 5.8(b), nous n'observons pas de défocalisation plasma particulièrement forte dans la partie arrière de l'impulsion laser.

Les caractéristiques des spectres THz influencés par l'astigmatisme et l'aberration de coma, respectivement représentés par les figures 5.13(c,d,e,f), sont conservées par rapport au cas LP-P, à savoir une forte réduction de la largeur spectrale, un spectre axisymétrique dans le cas astigmatisme et une asymétrie comparable, quoique moins prononcée aux angles négatifs, à celle observée en figures 5.7(e,f) dans le cas coma. Nous remarquons également que la polarisation CP-S tend à diminuer l'émission THz hors axe dans ces deux configurations en réduisant légèrement la longueur des canaux plasma formés. Somme toute, les impulsions laser polarisées circulairement modifient assez peu les spectres THz des faisceaux LP-P.

Nous intégrons maintenant notre modèle d'émission conique afin de retrouver les spectres tracés en figure 5.13. La prise en compte de la polarisation CP-S est a été décrite dans le chapitre précédent. Nous supposons qu'elle modifie de manière suffisamment mineure les paramètres L et N_e^{eff} pour que l'on puisse employer à nouveau les valeurs présentées dans le tableau 5.1, ce

qui permet d'isoler l'impact du changement de polarisation laser sur les spectres THz. Nous adaptons toutefois les facteurs $A_J(\omega)$ afin qu'ils puissent représenter efficacement les spectres THz CUP3D. A cette fin, la figure 5.15 compare les profils spectraux $A_J(\omega)$ choisis avec les spectres THz montrés en figure 5.13 intégrés transversalement.

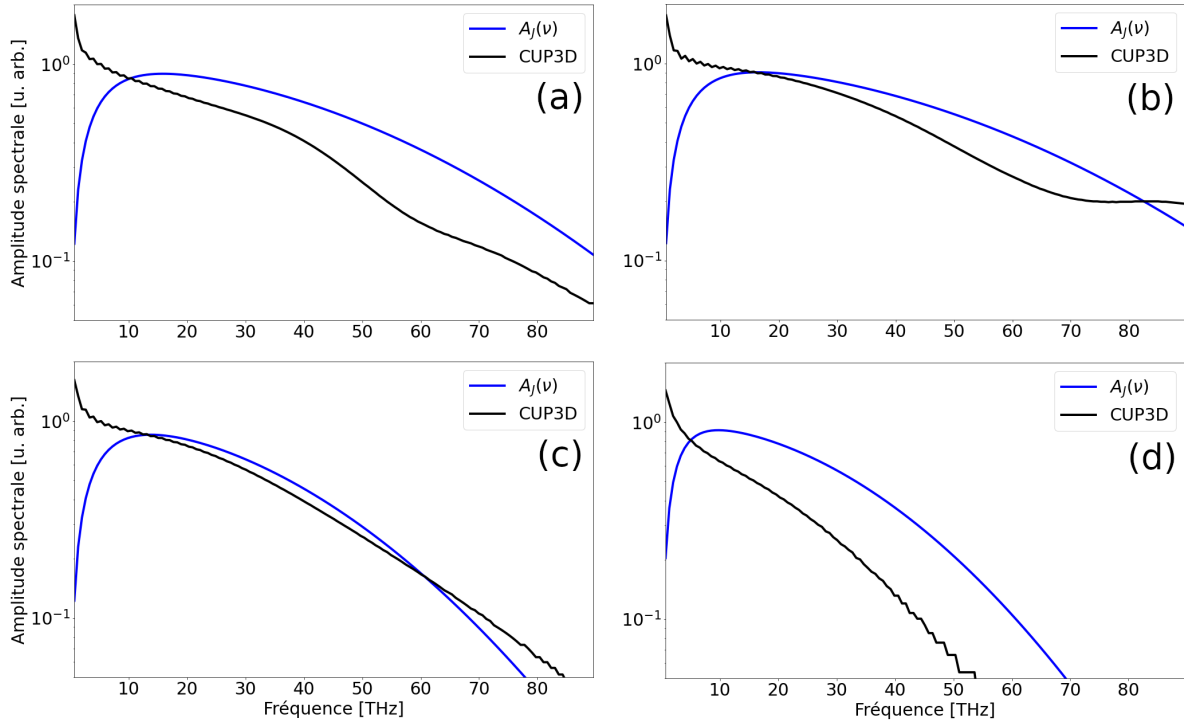


FIGURE 5.15: Spectres THz présentés en figure 5.13 intégrés transversalement (courbes noires) et termes $A_J(\omega)$ (courbes bleues) choisis pour intégrer notre modèle d'émission conique (a) dans le cas de référence, et lorsque l'impulsion laser est influencée par (b) de la sphéricité, (c) de l'astigmatisme et (d) de la coma.

La figure 5.16 trace les spectres THz angulo-fréquentiels obtenus par intégration de notre modèle d'émission conique pour une impulsion laser CP-S. Remarquons que les spectres axisymétriques estimés ici sont très proches de ceux calculés dans le cas LP-P, indiquant de manière conforme avec les spectres UPPE montrés en 5.7 et 5.13 que la polarisation laser a un impact limité sur l'émission conique. Cependant, dans les cas asymétriques, nous observons des différences quant à la contribution sur l'axe. Elles sont attribuées à une forte dépendance de cette contribution avec la phase $\phi(\vec{r}_\perp)$ lorsque $L \approx l_d$, ce qui est le cas ici. Puisque l'état de polarisation CP-S apporte un rayonnement THz supplémentaire selon \vec{e}_y , qui est supposé être déphasé de $\pi/2$ par rapport à la composante \vec{e}_x dans notre modèle, la répartition transverse des phases des ondes THz est modifiée et influe de manière conséquente sur l'émission aux faibles angles Θ . Cette observation

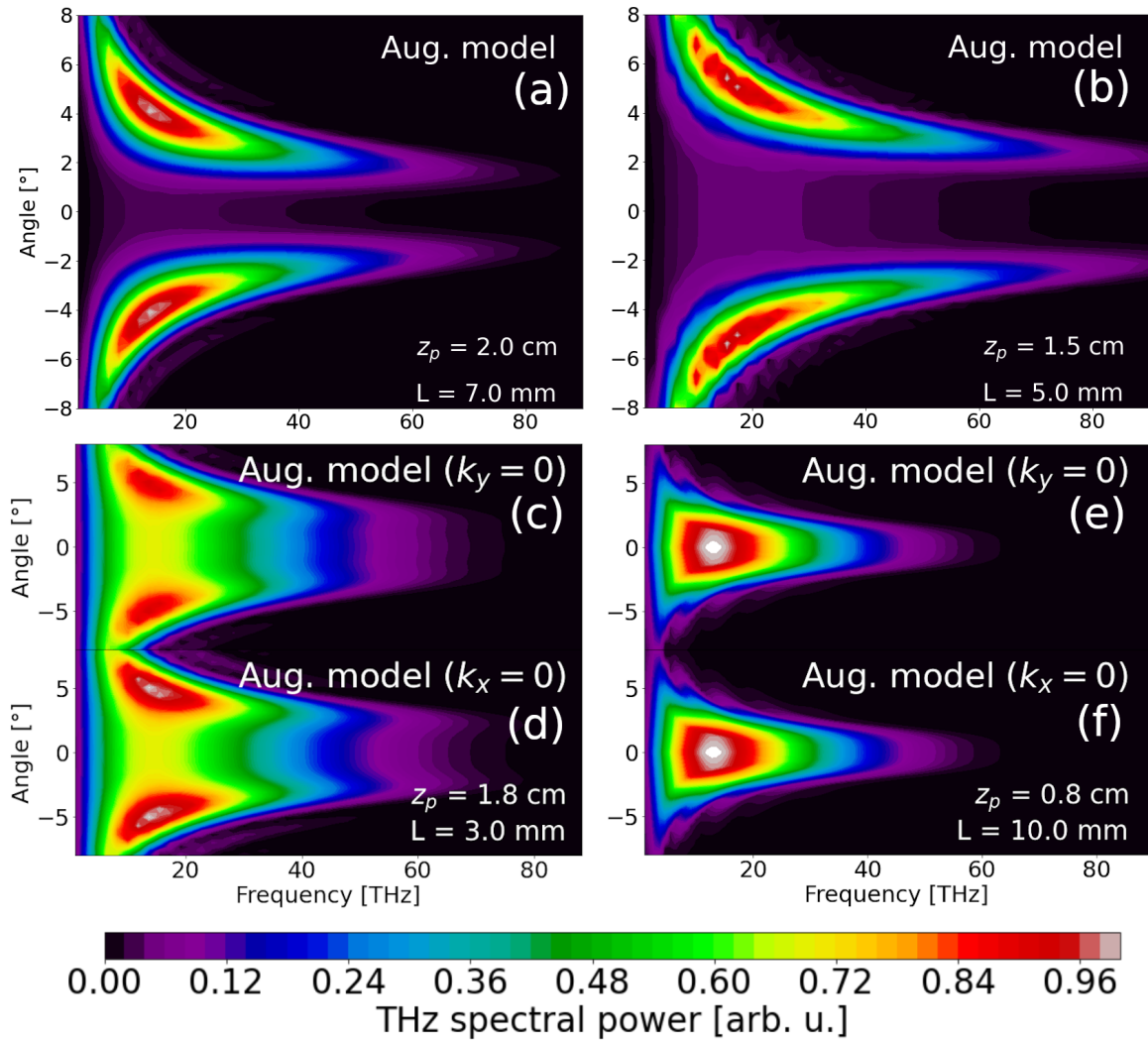


FIGURE 5.16: Même légende que la figure 5.10 mais pour une impulsion laser CP-S.

est analogue aux différences observées entre notre modèle augmenté et le modèle de You et al. dans le chapitre précédent, lorsque $L \approx l_d$. Nous remarquons de façon récurrente qu'à cause des réponses non-linéaires du milieu qui altèrent l'impulsion laser au cours de sa propagation, notre modèle surestime légèrement les asymétries des spectres THz dans le cas astigmatisme [cf. figures 5.16(c,d)]. Ces asymétries ne sont cependant pas observées dans le cas coma [cf. figures 5.16(e,f)].

Nous concluons de cette étude que les aberrations optiques doivent être corrigées pour optimiser la production de rayonnement THz parce qu'elles tendent toutes à diminuer le rendement de conversion laser-THz, en particulier en polarisation CP-S. De plus, les aberrations asymétriques réduisent fortement l'étendue spectrale de l'émission THz et peuvent briser la symétrie

de l'émission conique (en particulier l'aberration de coma d'après les résultats CUP3D). Les angles d'émission THz sont cependant peu affectés par ces aberrations ici. Nous avons enfin remarqué que la polarisation laser a peu d'effet sur l'émission conique dans les configurations étudiées, excepté lorsque $L \approx l_d$, où le rayonnement sur l'axe optique est particulièrement sensible au paramètre de phase $\phi(\vec{r}_\perp)$. Notons que l'accroissement d'énergie THz produite par une impulsion laser CP-S par rapport à une configuration LP-P, discutée dans le chapitre 3, a été retrouvé ici même en présence d'aberrations optiques.

5.3 Influence des aberrations optiques en régime de filamentation laser

Le développement des techniques de spectroscopie THz-TDS à distance pratiquées lors du projet ALTESSE2 (cf. chapitre 1) nous amène à étudier l'impact des aberrations optiques sur le rayonnement THz en régime de filamentation laser. Pour rappel, ce dernier survient lorsque les effets d'auto-focalisation Kerr, comprimant l'impulsion laser sur l'axe optique, et la défocalisation plasma, favorisant sa divergence hors de l'axe, atteignent un équilibre local pouvant se perpétuer sur des distances étendues (supérieures au mètre) [99, 107, 207].

Dans ce contexte, nous avons réalisé quatre simulations UPPE d'impulsions laser polarisées linéairement en l'absence d'aberration optique ou comportant de la sphéricité $c_4^0 = 10$ nm, de l'astigmatisme $c_2^2 = 150$ nm ou de l'aberration de coma $c_3^{-1} = 100$ nm. Ces valeurs correspondent aux amplitudes c_n^m maximales pouvant être simulées avec une résolution spatiale convenable (< 7 μm). Les faisceaux laser, de durée 34 fs, de rayon initial 2.5 mm et d'énergie 1.5 mJ, comportaient deux couleurs (0.8 μm FH, $r = 35$ %) et étaient focalisées ($f = 2.6$ m équivalent à $c_2^0 = 300$ nm) dans l'air (d'indice non-linéaire $n_2 = 3.8 \times 10^{-19}$ cm^2/W) composé de 20 % d'O₂ et de 80 % de N₂, pour des nombres de charges effectifs valant respectivement $Z_{\text{O}_2}^* = 0.53$ et $Z_{\text{N}_2}^* = 0.9$ selon le modèle de Talebpour et al. [135]. Ces simulations ont nécessité l'utilisation du pré-processeur Python pour calculer la propagation linéaire des impulsions laser jusqu'à l'apparition des premières non-linéarités, puis pour affiner la résolution spatiale des données d'entrée de CUP3D. Les faisceaux laser dans les cas sans aberration optique, avec sphéricité, avec astigmatisme et avec aberration de coma ont ainsi été propagés respectivement sur 2.3 m, 1.7 m, 1.7 m et 1.5 m. Les valeurs des distances z sur lesquelles les impulsions sont propagées linéairement, et donc où

leur propagation non-linéaire débute, sont fixées à $z = 0$ par convention.

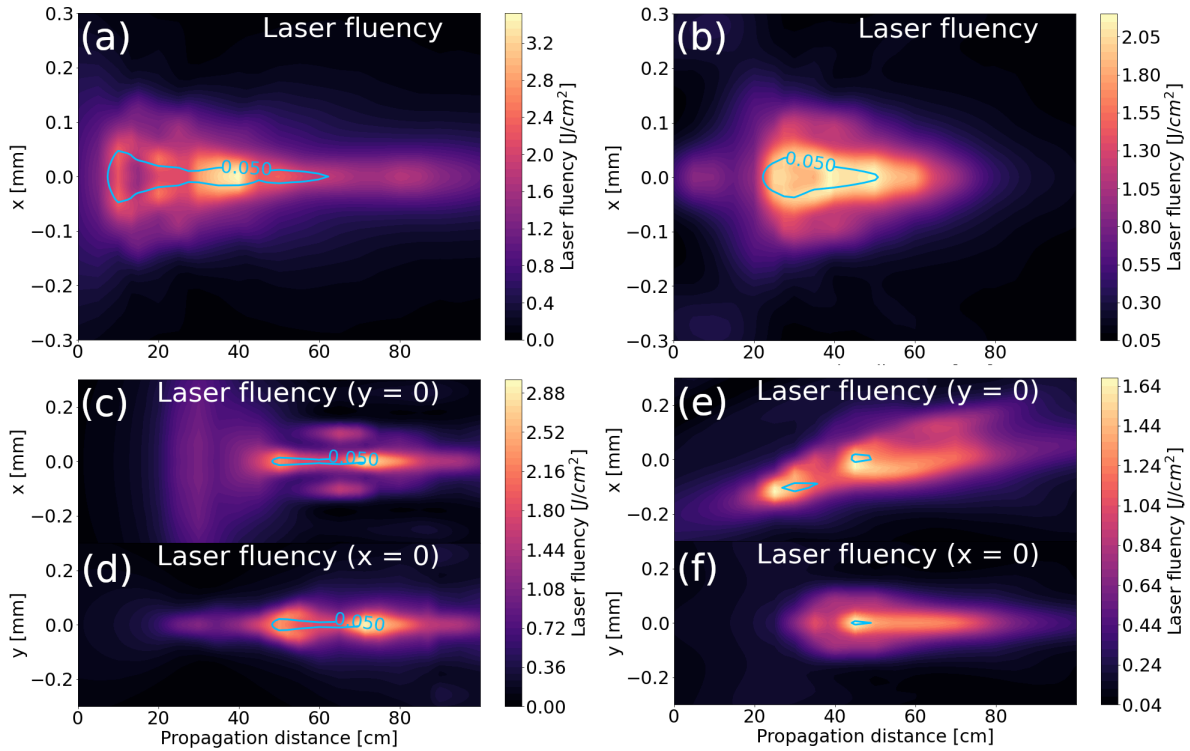


FIGURE 5.17: Cartographies de la fluence laser calculée par CUP3D en régime non-linéaire (a,b,c,e) dans le plan (x, z) et (d,f) dans le plan (y, z) (a) dans le cas de référence, (b) avec ajout de sphéricité, (c,d) avec de l’astigmatisme et (e,f) avec de l’aberration de coma. Les lignes bleues représentent les iso-densité $N_e = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$.

La figure 5.17 montre les cartes de fluence laser calculées par le code CUP3D. Le cas de référence, illustré par la figure 5.17(a), présente un plasma de plusieurs dizaines de centimètres de long, typique du régime de filamentation laser. Les fortes non-linéarités associées à ce régime et les cycles d’auto-focalisation Kerr/défocalisation plasma induisent des évolutions en z des fluences laser qui s’écartent de celles présentées dans la figure 5.2, en particulier pour les impulsions affectées par des aberrations asymétriques. Les zones creuses observées dans le cas de référence et avec de la sphéricité [cf. figure 5.17(b)] respectivement en $z \approx 15$ cm et en $z \approx 30$ cm indiquent la présence d’un effet de replenishment [208], qui est engendré par une forte défocalisation plasma liée à une densité électronique élevée. Remarquons que contrairement au régime focalisé, les aberrations optiques asymétriques génèrent des filaments plutôt axisymétriques par rapport à leur axe de propagation (\vec{e}_z dans le cas astigmatisme, et comprenant une composante selon \vec{e}_x dans le cas coma). Les figures 5.17(c,d) illustrent bien cet effet : avant l’apparition du plasma ($z <$

40 cm), la fluence laser prend une forme en œil de chat typique de l’astigmatisme. Cependant, au début du canal plasma ($z \approx 45 - 50$ cm), celle-ci est plutôt circulaire, ce qui diminue les asymétries du canal plasma et du spectre THz. Notons à ce propos que les courbes bleues d’iso-densités $N_e = 5 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ prennent une forme cylindrique de même rayon dans les deux plans observés. De même, les figures 5.17(e,f) (coma) contiennent moins de points chauds en comparaison des fluences laser observées en figures 5.5(e,f) et 5.11(e,f). Nous en concluons qu’en régime de filamentation laser, l’auto-focalisation Kerr et la défocalisation plasma tendent à uniformiser la tache focale, même en présence d’aberrations optiques fortement asymétriques.

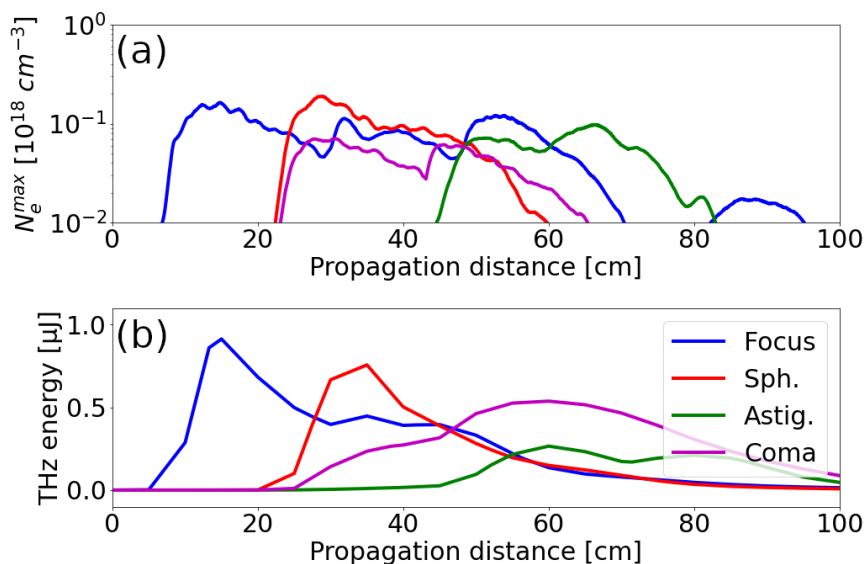


FIGURE 5.18: Evolutions en z de (a) la densité électronique maximale et (b) l’énergie THz ($\nu < 90$ THz) contenue dans la boîte de simulation dans le cas de référence (courbe bleue), avec de la sphéricité (courbe rouge), de l’astigmatisme (courbe verte) et de l’aberration de coma (courbe magenta).

La figure 5.18(a) décrit les évolutions longitudinales des niveaux de densités électroniques maximales atteints par le cas de référence (courbe bleue), le cas sphéricité (courbe rouge), le cas astigmatisme (courbe verte) et le cas coma (courbe magenta). Nous précisons que les différences observées entre les distances z à partir desquelles les canaux plasma apparaissent sont partiellement dues aux distances préalables de propagation linéaire, qui varient d’un cas à l’autre. Les filaments générés avec et sans aberration sphérique produisent des densités maximales comparables, bien que cette aberration réduit la longueur du plasma ($25 \text{ cm} < z < 55 \text{ cm}$) en comparaison du cas focalisé ($10 \text{ cm} < z < 65 \text{ cm}$). Les aberrations asymétriques, quant à elles,

réduisent les niveaux de densité plasma d'un facteur ≈ 2 et diminuent également la longueur du filament généré. La figure 5.18(b) trace les évolutions associées des énergies THz ($\nu < 90$ THz) présentes dans la boîte de simulation. Nous observons que toutes les aberrations étudiées réduisent le rendement de conversion laser-THz, à l'image du régime focalisé en polarisation CP-S, et en polarisation LP-P plus marginalement. Les aberrations optiques sont donc particulièrement néfastes pour le rendement de conversion laser-THz en régime de filamentation laser, ce qui corrobore les observations rapportées dans le cadre du projet ALTESSE2 (cf. chapitre 1).

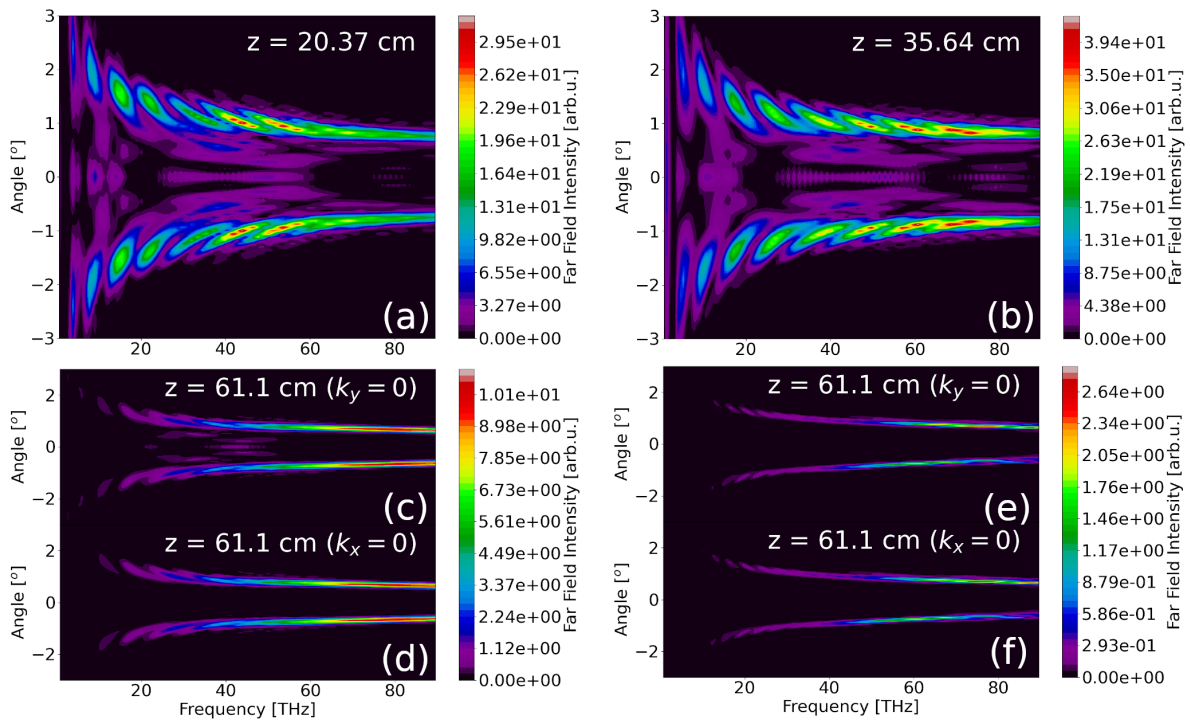


FIGURE 5.19: Spectres THz angulo-fréquentiels calculés par CUP3D (a,b,c,e) selon \vec{e}_x et (d,f) selon \vec{e}_y (a) dans le cas de référence en $z = 20.37$ cm, (b) dans le cas sphéricité en $z = 35.64$ cm, (c,d) dans le cas astigmatisme en $z = 61.1$ cm et (e,f) dans le cas coma en $z = 61.1$ cm.

Les spectres angulo-fréquentiels calculés par le code CUP3D sont représentés en figure 5.19. Nous observons que, hormis leurs intensités respectives, les rayonnements THz générés dans les quatre cas sont très semblables : ils sont tous caractérisés par un spectre plat jusqu'à 90 THz, typique du régime de filamentation laser, et un angle d'émission suivant la même dépendance en fréquence. En effet, en régime de filamentation laser, la densité effective plasma est suffisamment faible ($N_e^{\text{eff}} < 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) pour que les angles d'émission privilégiés dépendent peu des variations de densité apportées par les aberrations optiques. De plus, dans ce régime, la longueur du plasma vérifie toujours la condition $L \gg l_d$, assurant une émission parfaitement conique loin

du filament. Les lobes d'émission disjoints observés dans les cas de référence et sphéricité, ainsi que la disparition de l'émission aux basses-fréquences dans les cas astigmatisme et coma, sont attribués à une faible résolution en Θ de ces spectres aux basses-fréquences ($\Delta\Theta \propto \nu^{-1}$). A l'image du régime focalisé, l'astigmatisme n'induit pas d'asymétrie conséquente dans l'intensité THz rayonnée, ce qui est aisément expliqué à l'aide des observations de la figure 5.17. La coma, quant à elle, tend à légèrement déséquilibrer l'émission entre les Θ positifs et négatifs à cause du décalage du canal plasma par rapport à l'axe optique.

Pour finir, nous avons aussi intégré notre modèle d'émission conique en polarisation LP-P afin de retrouver les spectres THz générés dans cette configuration. Pour des contraintes de résolution spatiale, nous ne pouvons pas propager linéairement une impulsion laser de rayon initial valant 2.5 mm vers un point z_p où son diamètre serait équivalent à celui du canal plasma ($< 50 \mu\text{m}$). Nous choisissons donc de réaliser une première propagation linéaire sur une distance $3z_p/4$ intermédiaire, où l'impulsion est plus concentrée sur l'axe optique. A l'instar de la procédure d'adaptation des données d'entrée de CUP3D par notre pré-processeur, nous réduisons la largeur de la fenêtre spatiale puis nous réalisons une interpolation de Fourier afin d'en affiner la résolution. Nous effectuons alors une seconde propagation linéaire jusqu'en $z = z_p$ où nous pouvons finalement évaluer les variations transverses du faisceau laser et du plasma. Les paramètres employés sont résumés dans le tableau 5.2.

	Focale	Sphéricité	Astigmatisme	Coma
z_p [m]	2.6	2	2.2	2
N_e^{eff} [10^{18} cm^{-3}]	0.01	0.01	0.01	0.01
L [cm]	5	5	5	5

TABLE 5.2: Paramètres employés pour l'intégration de notre modèle d'émission conique en régime de filamentation laser.

Les spectres $A_J(\omega)$ et $A_K(\omega)$ ont été choisis dans chaque cas pour approcher l'évolution fréquentielle des spectres CUP3D large bande, comme montré en figure 5.20.

Les spectres angulo-fréquentiels estimés par notre modèle d'émission conique sont illustrés en figure 5.21. A l'image des simulations CUP3D, nous observons que les aberrations optiques n'ont pas d'effet significatif sur les angles d'émission du rayonnement THz ($\Theta = 1 - 2^\circ$), qui sont d'ailleurs correctement restitués ici. Cependant, à l'instar du régime focalisé, notre modèle surestime les asymétries causées par l'astigmatisme, représentée en figures 5.21(c,d) car les effets

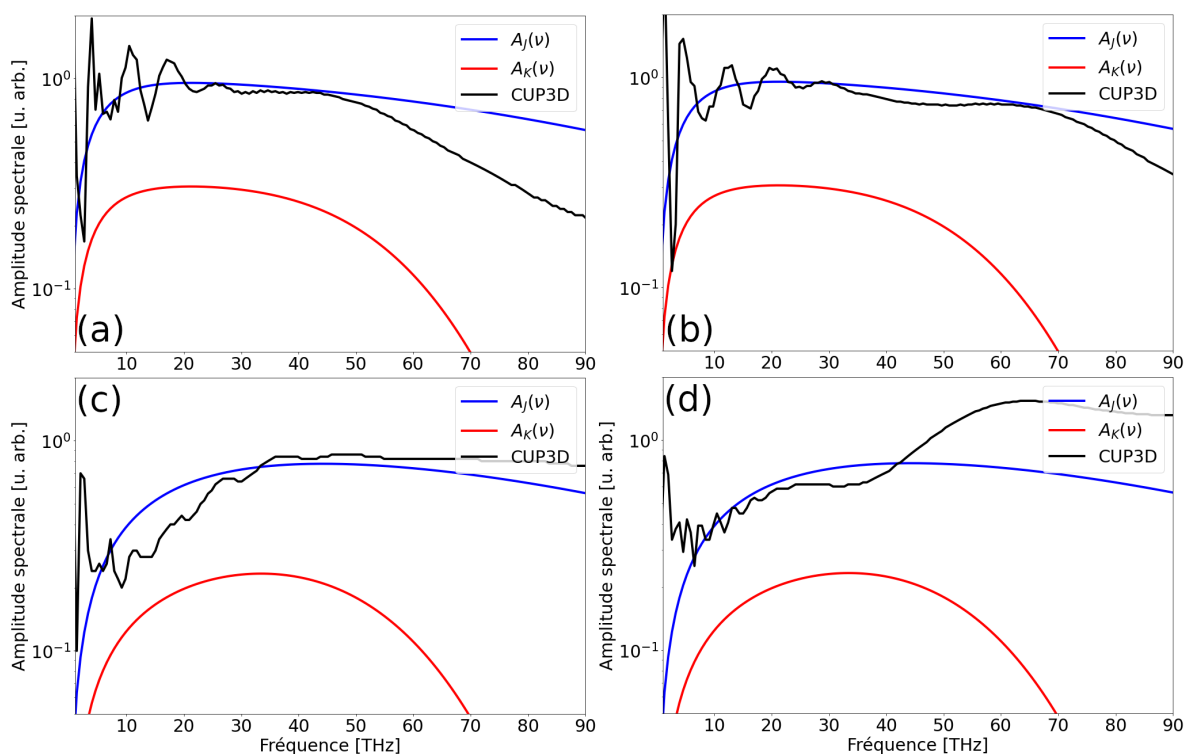


FIGURE 5.20: Spectres THz présentés en figure 5.19 intégrés transversalement (courbes noires) et distributions $A_J(\omega)$ (courbes bleues) et $A_K(\omega)$ (courbes rouges) choisies pour intégrer notre modèle d'émission conique (a) dans le cas de référence, et lorsque l'impulsion laser est influencée par (b) de la sphéricité, (c) de l'astigmatisme et (d) de la coma.

de propagation non-linéaires de l'impulsion laser sont ignorés dans notre modèle, de sorte que notre terme de diffraction comprend un écart observable avec la simulation CUP3D.

En résumé, en régime de filamentation laser, toutes les aberrations optiques tendent à réduire le rendement de conversion laser-THz car elles détériorent la longueur et l'homogénéité de la densité électronique du canal plasma. Les aberrations optiques doivent donc être corrigées pour assurer un rayonnement THz optimal en régime de filamentation laser, ce qui est en accord avec les campagnes expérimentales menées dans le cadre du projet ALTESSE2. Notons toutefois que l'impact de ces aberrations sur la distribution spatiale du rayonnement THz reste marginal ici.

5.4 Résumé du chapitre

Pour conclure, nous avons caractérisé l'impact des aberrations optiques communes (sphéricité, astigmatisme et coma) sur la propagation laser dans l'air, le canal plasma et le rayonnement THz à l'aide de simulations UPPE.

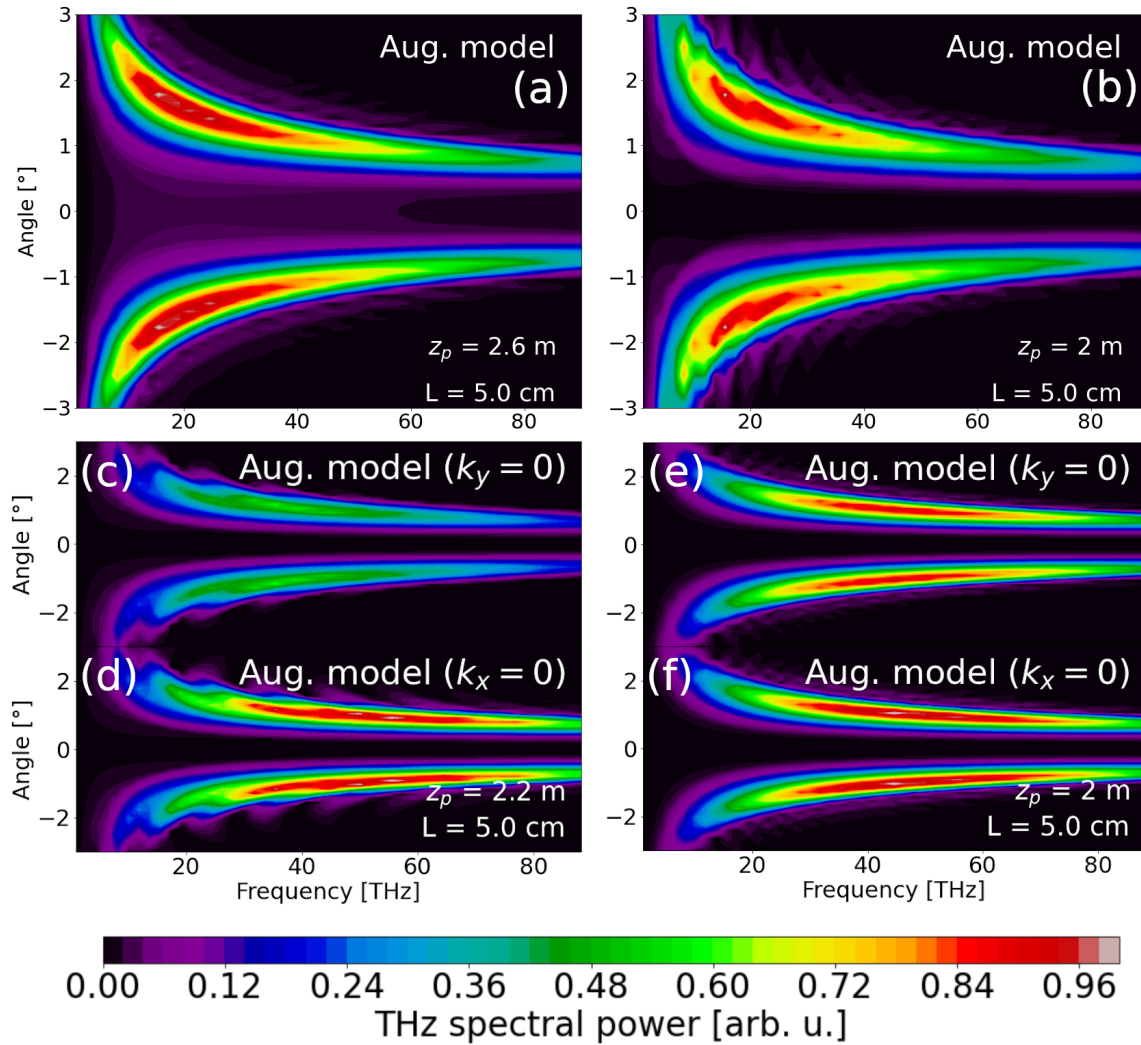


FIGURE 5.21: Spectres THz angulo-fréquentiels selon (a,b,c,e) \vec{e}_x et (d,f) \vec{e}_y estimés à l'aide de notre modèle d'émission conique pour une propagation laser affectée par (a) aucune aberration optique (lentille de focale 2.6 m), (b) de la sphéricité, (c,d) de l'astigmatisme et (e,f) de l'aberration de coma. Les paramètres employés sont résumés dans le tableau 5.2.

Nous avons commencé par présenter le principe des aberrations optiques : chacune d'entre elles, caractérisée par une phase spatiale affectée au front d'onde laser, peut être modélisée dans la base des polynômes de Zernike. Elles peuvent être introduites ou, plus couramment, corrigées, à l'aide d'un miroir déformable.

En régime focalisé, nous avons montré que les aberrations optiques sont généralement néfastes pour le rayonnement THz, car elles tendent à réduire le rendement de conversion laser-THz et peuvent diminuer la largeur spectrale de l'onde rayonnée. L'aberration de coma introduit également des asymétries visibles dans les distributions spatiales des rayonnements basse-fréquence

émis. Nous avons également retrouvé que le rendement de conversion est plus élevé dans le cas CP-S que dans le cas LP-P, conformément aux conclusions du chapitre 3. Pour cet état de polarisation laser, les impulsions THz générées apparaissent particulièrement dégradées par les aberrations optiques. Notre modèle d'émission conique a permis de retrouver de manière satisfaisante l'influence des ces aberrations et de la polarisation laser sur l'émission conique du rayonnement THz, bien qu'il peut légèrement surestimer les asymétries spectrales dues à l'astigmatisme et à l'aberration de coma.

Enfin, en régime de filamentation laser, les aberrations optiques doivent être corrigées pour générer un rayonnement THz nominal. Nous avons observé que ces effets réduisent l'énergie THz produite de manière non-négligeable en altérant la propagation laser. Les aberrations optiques n'ont cependant pas modifié de façon conséquente la répartition spatiale du rayonnement THz.

Chapitre 6

Conclusion

Ce travail de doctorat a été principalement consacré à l'optimisation de la génération de rayonnement térahertz (THz) par une impulsion laser femtoseconde à deux harmoniques (aussi nommées "couleurs") se propageant dans l'air. L'étude du spectre THz est un sujet florissant dans la littérature car sa compréhension et son contrôle ouvrent la voie à de nombreuses applications intéressantes dans le domaine de l'identification de matériaux organiques, explosifs ou de drogues. Chacune des macro-molécules composant ce type de matières comporte un spectre qui lui est propre dans le domaine THz. L'acquisition de ses nombreuses signatures spectrales permet la détection de ces matériaux par spectroscopie THz résolue en temps. Le caractère pénétrant des ondes THz permet également de sonder un objet en profondeur. Cette technologie représente ainsi une source prometteuse de progrès technologiques dans de nombreux secteurs : la lutte contre les trafics de drogues, la conservation de l'art, l'archéologie, l'imagerie médicale, ou encore la surveillance de la flore.

Pour réaliser une telle spectroscopie, il est nécessaire de disposer d'impulsions THz suffisamment intenses et à large bandes. Ces besoins justifient l'utilisation du procédé étudié ici, qui est capable de délivrer un rayonnement THz pouvant s'étendre de 1 à 100 THz avec un rendement de conversion laser-THz généralement voisin de 10^{-4} . De plus, la source d'émission basse-fréquence étant l'air ambiant, les détériorations matérielles associées à cette méthode sont limitées. Ces caractéristiques s'opposent aux spécificités des sources plus communes, qui produisent des rayonnements THz à spectre étroit produits dans des milieux solides ou par émission stimulée. Le procédé étudié ici consiste en la propagation dans l'air d'une impulsion laser fem-

toseconde intense (10^{13-15} W/cm²) à laquelle est superposée son harmonique deux, formée à l'aide d'un cristal doubleur. Proche du foyer, un plasma d'air est formé par photo-ionisation en régime tunnel. Les électrons ainsi libérés induisent des courants, appelés "photo-courants". L'accélération des électrons ionisés par le champ laser peut produire, selon le profil temporel de ce dernier, un champ électromagnétique situé dans le domaine THz et se propageant de manière conique, pouvant ensuite être collecté pour une application donnée.

Cette thèse a été réalisée au Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives. Elle a eu pour cadre le projet ANR/MATURATION ALTESSE2 ("Air-Laser Based TeraHertz Spectroscopy of Explosives"). Les objectifs principaux de ce projet étaient de fiabiliser la technologie de spectroscopie THz résolue en temps, d'améliorer la compréhension des mécanismes physiques régissant la production du rayonnement THz et ses interactions avec des échantillons de divers cristaux, et de développer un dispositif de spectroscopie THz de matières explosives à longue distance en exploitant le régime de filamentation laser. Dans ce contexte, mes études devaient apporter des résultats analytiques et numériques permettant d'approfondir les connaissances sur l'émissivité du plasma d'air selon la configuration laser, de proposer de nouvelles pistes permettant d'augmenter les performances du rayonnement émis, et de retrouver les mesures expérimentales au moyen de modèles physiques.

Le premier chapitre de ce manuscrit a présenté les caractéristiques du domaine THz et a établi une liste des sources et applications communes liées à ces ondes électromagnétiques. Après avoir comparé ces différents émetteurs et leurs performances aux besoins technologiques visés, nous y avons résumé les résultats majeurs obtenus lors du projet ALTESSE2. Tout d'abord, une étude numérique à base de simulations *ab initio* a permis de caractériser plus précisément les signatures spectrales des molécules de thymine et de TATB. Il a été possible de relier les pics d'absorption majeurs de ces molécules dans le domaine THz à certains de leurs mouvements vibrationnels et rotationnels. Un second travail a consisté à comparer les spectres de transmission THz d'échantillons composés de différents matériaux avec les spectres de ces molécules isolées. Il a été montré que ces spectres composites conservent les raies d'absorption propres des molécules individuelles, ce qui permet leur identification. La dérivation de leurs concentrations respectives reste une piste d'amélioration. Une troisième étude a permis de valider la fiabilité du dispositif expérimental de spectroscopie THz à longue distance employé lors du projet ALTESSE2, en particulier en exploitant le régime de filamentation laser. Les spectres THz obtenus à l'aide de

plasmas formés à 30 cm (régime focalisé classique) et à 3 m (régime de filamentation) de la source laser comportaient des caractéristiques similaires, bien que les mesures à partir de plasmas plus étendus se soient révélées plus instables. L'impact de la géométrie de l'échantillon et de sa concentration en matériau à analyser a également été caractérisé lors de cette campagne expérimentale, bornant ainsi les capacités d'un démonstrateur pour des applications de sécurité civile.

Le deuxième chapitre de cette thèse a été dédié au processus physique de génération d'impulsions térahertz. L'équation de Helmholtz, qui régit la propagation non-linéaire du faisceau laser, a été dérivée à partir des équations de Maxwell. Cette équation contient, entre autres, la réponse non-linéaire des électrons liés aux noyaux des molécules d'air au passage de l'impulsion optique. Cette réponse est composée de l'effet Kerr et de la diffusion Raman stimulée (SRRS), dont les polarisations associées ont été explicitées. Différents modèles de photo-ionisation ont été traités afin de décrire l'accroissement de la densité des électrons libres. Dans l'air et aux intensités concernées (10^{13-15} W/cm²), l'ionisation s'effectue par effet tunnel, et s'applique majoritairement aux molécules d'O₂. L'équation de Vlasov et ses moments, qui décrivent la dynamique du plasma électronique ainsi formé, ont alors été dérivés pour intégrer l'expression du terme source principal des impulsions THz : les photo-courants. Le modèle de courant local, abrégé modèle LC (pour "Local Current"), néglige tout effet de propagation et suppose que le volume plasma est suffisamment petit pour donner une relation de proportionnalité entre les variations temporelles des photo-courants et le champ THz rayonné. Bien qu'il ne puisse pas délivrer de résultats quantitatifs sur l'énergie THz produite, ce modèle permet de comparer de manière rapide les ordres de grandeurs des amplitudes THz générées entre différentes configurations laser. Le modèle LC a été ici généralisé pour prendre en compte la contribution au spectre THz de la réponse Kerr et de la diffusion Raman stimulée (SRRS). Nous l'avons ainsi employé afin de comparer les ordres de grandeurs de ces contributions, qui ont confirmé que la réponse des électrons liés aux noyaux contribue peu, voire marginalement, au rayonnement THz. Le modèle de propagation unidirectionnelle de l'impulsion laser (abrégé modèle UPPE), plus riche en physique mais également plus complexe, a enfin été développé. Le code de calcul CUP3D, qui l'intègre numériquement en simulant la propagation non-linéaire d'une impulsion laser, a été rappelé. C'est ce code qui a été utilisé tout le long de ce travail de doctorat pour effectuer les simulations tridimensionnelles présentées dans les chapitres suivants. Selon nos nécessités, nous

avons pu employer un pré-processeur que j'ai écrit en langage Python, dont le rôle est de calculer la partie linéaire de la propagation laser et d'affiner la résolution spatiale dès l'apparition des premières non-linéarités, ce qui allège notablement les contraintes numériques. Le code CUP3D a été validé de nombreuses fois par le passé à l'aide de comparaisons de ses données numériques avec des résultats expérimentaux.

Le troisième chapitre de ce manuscrit a concerné des résultats nouveaux acquis durant mes recherches doctorales. Un premier travail a porté sur l'effet de la polarisation laser sur le rayonnement THz produit. En particulier, quatre états de polarisation ont été étudiés : les cas où les harmoniques laser sont polarisées linéairement selon le même axe (LP-P) et selon des axes orthogonaux (LP-O), et les cas où ces composantes spectrales sont polarisées circulairement, où leurs axes d'orientation tournent dans le même sens (CP-S) ou dans des sens opposés (CP-C). Nous rapportons, à l'appui du modèle LC, de simulations UPPE et de résultats expérimentaux, que les configurations laser LP-P, LP-O et CP-S produisent des champs THz polarisés linéairement. Dans les deux premières configurations, le rayonnement THz est orienté selon l'axe de polarisation laser, et dans le cas CP-S, l'axe de polarisation est tourné d'un angle correspondant à la phase relative entre les deux couleurs, conformément à la bibliographie. La configuration CP-C, quant à elle, annule toute émission basse-fréquence, bien qu'une légère perturbation dans cet état de polarisation génère à nouveau une énergie THz conséquente. Nous montrons également qu'une impulsion laser CP-S accroît le rendement de conversion d'un facteur d'au plus 6 selon les conditions d'étude. Ce travail a fait l'objet d'une publication en référence [139].

Par ailleurs, de précédents résultats théoriques avaient prédit qu'ajouter des harmoniques laser, de sorte que le champ optique adopte un profil temporel en dents de scie, devrait permettre d'augmenter le rendement de conversion laser-THz d'un facteur supérieur à 10 en configuration LP-P [112]. Motivé par cette propriété, j'ai généralisé ce champ dit "Sawtooth" à un état de polarisation CP-S. De manière surprenante, les simulations LC et CUP3D ont révélé que le champ Sawtooth LP-P idéal est plus performant que sa contrepartie CP-S pour la génération d'ondes THz pour un nombre suffisant d'harmoniques laser. Plus précisément, la configuration LP-P devient plus efficace que le cas CP-S au-delà de $\approx 5 - 6$ couleurs. Cette étude a été publiée en référence [183]. En pratique, la conception de champs laser à plus de deux couleurs reste difficilement accessible par la technologie actuelle. Cependant, les quelques expériences menées

dans ce domaine, combinant deux cristaux doubleurs ou utilisant des OPAs, s'accordent pour confirmer que l'ajout d'harmoniques laser à l'impulsion fondamentale est bien bénéfique pour le rendement de conversion ainsi que pour l'étendue spectrale du champ THz généré.

La motivation de simuler des impulsions laser CP-S dans le code CUP3D m'a aussi mené à généraliser la formulation de la polarisation SRRS, jusqu'alors établie uniquement pour une impulsion laser polarisée linéairement. En partant du modèle décrit en référence [128], une expression de cette polarisation a pu être développée et intégrée au code CUP3D. Nous avons alors pu caractériser l'impact de la SRRS sur la propagation non-linéaire d'impulsions laser en configuration CP-S et les comparer à leur contrepartie LP-P au moyen de simulations tridimensionnelles. Celles-ci ont montré d'une part que la SRRS s'oppose à l'effet d'auto-focalisation Kerr, donnant alors lieu à des filaments moins denses mais plus longs et réguliers, et d'autre part que la polarisation laser affecte peu la SRRS. Ces travaux ont été le sujet d'un troisième article présenté en référence [195].

Une caractéristique du rayonnement THz produit est l'émission typiquement conique de ces ondes, qui a été le sujet du chapitre 4. Dans le chapitre précédent, nous avons établi que la polarité des impulsions THz générées dépend du déphasage local entre les deux harmoniques laser, qui n'ont pas la même vitesse de groupe à cause de la dispersion optique et plasma. De fait, ce déphasage, et donc la polarité du champ THz, varient le long du canal plasma. Si ce dernier est suffisamment long, des interférences destructives tendent à annuler le rayonnement basse-fréquence sur l'axe optique pour favoriser une émission hors-axe. Ce sont les travaux de You et al. [47, 48] qui ont mis en lumière ce phénomène, et qui constituent la base de notre étude. Nous avons commencé par décrire le modèle établi par cette équipe pour un canal plasma supposé cylindrique et uniforme en densité électronique. Ce modèle implique que la distribution spatiale du rayonnement THz dépend de trois paramètres clé :

- La longueur du plasma. Au-delà d'une valeur-seuil, l'émission THz s'annule sur l'axe optique. Plus précisément, l'émission devient conique lorsque la longueur du plasma est plus grande que la longueur de déphasage, correspondant à la distance que l'impulsion laser doit parcourir pour que des deux harmoniques se déphasent de π .
- La densité électronique du plasma. Cette quantité conditionne la dispersion plasma et donc à la longueur de déphasage. La densité plasma modifie donc l'angle d'émission

conique privilégié ainsi que la longueur de plasma seuil pour que l'émission conique apparaisse.

- La fréquence de l'onde THz. L'angle d'émission conique théorique fourni par le modèle de You et al. décroît avec la fréquence du rayonnement THz considéré.

J'ai ensuite décrit une expérience menée dans le cadre du projet ALTESSE2, ayant eu pour objectif de mesurer l'étendue transverse d'un rayonnement THz généré en régime de focalisation laser. La plateforme expérimentale employée était semblable à celles utilisées lors d'expériences typiques de spectroscopie THz résolue en temps. La technique dite de la lame de couteau, occultant de manière contrôlée une partie de l'impulsion THz générée, a permis de mesurer à l'aide d'une caméra l'évolution de la puissance THz collectée en variant la position de la lame. Les expérimentateurs ont ainsi reconstruit le profil spatial du rayonnement THz, émis de manière conique selon un angle privilégié décroissant effectivement avec la fréquence. En parallèle, une simulation CUP3D a été réalisée afin de retrouver ces résultats expérimentaux. Bien qu'elle présentait des écarts avec l'expérience (attribués à des imperfections du faisceau laser réel), le spectre angulo-fréquentiel THz ainsi calculé comportait des motifs similaires à la mesure. Mon travail a été de retrouver les spectres THz mesuré et simulé en intégrant de manière judicieuse le modèle de You et al. La subtilité de ce problème a résidé dans l'estimation de la longueur du plasma et de sa densité électronique aux instants où les impulsions THz sont générées pour un filament supposé cylindrique et homogène en densité. Bien que les estimations de ces paramètres sont, par nature, imprécises par rapport aux simulations 3D et aux données expérimentales, le modèle de You et al. a été en mesure de retrouver de manière satisfaisante les spectres recherchés. La prise en compte de la distribution fréquentielle de l'amplitude spectrale THz, bien qu'omise par commodité technique dans les articles [47, 48], a été ici essentielle pour mener à bien cette étude, qui a été publiée en référence [199].

Afin de pouvoir décrire des plasmas plus proches de la réalité, j'ai alors généralisé le modèle de You et al. pour qu'il prenne en compte les variations transverses du canal plasma. Après avoir établi une chronologie succincte des modèles proposés dans la littérature, j'ai développé l'équation-maîtresse de notre nouveau modèle en supposant, entre autres, que le plasma reste invariant selon l'axe de propagation laser. Les apports de ce modèle, appelé "modèle augmenté", par rapport au modèle de You et al. sont multiples :

- Il prend en compte les variations transverses de l'amplitude et de la phase des termes

sources de rayonnement THz. Plus précisément, nous propageons linéairement l'impulsion laser jusqu'à un plan (x, y) où sa géométrie est représentative de celle atteinte à l'apparition du plasma dans un cas réaliste. A l'aide du modèle LC appliqué en chaque point de ce plan, nous calculons ensuite les profils spatiaux des termes sources, puis leur transformée de Fourier transverse.

- Le profil spectral des termes sources peut être pris en compte soit par une estimation LC, soit à partir de distributions tests calculées en amont à partir de profils typiques du régime de propagation étudié.
- Ce modèle permet également d'étudier l'influence de la polarisation laser sur le spectre THz angulo-fréquentiel, dans la continuité des résultats du chapitre précédent.
- Il inclut la contribution au rayonnement total de la réponse Kerr.
- Enfin, il traite de manière analytique l'influence des effets dus aux enveloppes transverses et temporelles des harmoniques laser, ainsi que de leur décalage respectif.

Ce modèle augmenté a été éprouvé en comparant ses résultats aux spectres délivrés par trois simulations CUP3D : une première en régime focalisé pour laquelle seuls les photo-courants participent au spectre THz, une deuxième dans une configuration similaire où l'effet Kerr est grandement favorisé afin que sa contribution au spectre émis soit conséquente, et une troisième en régime de filamentation laser. Dans les trois cas, notre modèle a été en mesure de restituer les dynamiques spectrales associées à l'allongement progressif du plasma. Nous notons que dans la première et dans la troisième simulation, où les hypothèses du modèle de You et al. sont plutôt bien respectées, les résultats des deux modèles étaient semblables. Cependant, notre modèle a été plus précis lors de l'estimation des spectres THz aux lieux où l'émission conique commence à apparaître (i.e., où la longueur plasma est proche de la longueur de déphasage) grâce aux points d'amélioration cités plus haut. D'ailleurs, les spectres THz angulaires rapportés dans la littérature se situent fréquemment dans ce régime [49], ce qui justifie l'utilisation de notre modèle augmenté.

Pour conclure ce travail de thèse, j'ai cherché, dans le chapitre 5, à mettre en lumière l'impact des aberrations optiques pouvant survenir au sein de la chaîne optique expérimentale sur la propagation laser, sur le canal plasma et sur le rayonnement THz. Ces effets sont liés à des distorsions de la phase spatiale du front de l'onde pompe laser, décomposables dans la base des

polynômes de Zernike [210], qui permettent leur modélisation dans un code de propagation laser. Nous avons étudié les aberrations les plus courantes : l'astigmatisme, la coma et la sphéricité. En pratique, ces effets sont généralement corrigés, ou plus rarement déclenchés, à l'aide d'un instrument d'optique adaptative nommé "miroir déformable", qui est composé d'une membrane souple sous laquelle sont positionnées des électrodes permettant de contrôler par ordinateur la surface du miroir. Cette dernière est cependant "pixellisée" et de résolution limitée à cause du nombre fini d'actionneurs. Cet instrument permet ainsi de modifier la phase spatiale de l'impulsion incidente. Ce sujet nous a permis de valider davantage notre modèle d'émission conique : par nature, ces aberrations modifient de manière conséquente la distribution transverse du plasma, de sorte que le spectre THz généré est modulé par la diffraction transverse au sein du filament d'une part, et par les variations radiales de la phase des photo-courants d'autre part. Nous avons alors effectué trois séries de simulations CUP3D, permettant de comparer l'impact de l'astigmatisme, de la coma et de la sphéricité par rapport à un cas de référence focalisé sans aberration optique. Pour chacune de ces simulations, nous avons employé notre modèle d'émission conique afin d'en comparer les résultats avec les spectres THz calculés par le code CUP3D. Le premier groupe de simulations, qui a porté sur la propagation atmosphérique d'une impulsion laser LP-P à deux couleurs en régime focalisé (ce qui correspond à la configuration d'une expérience typique de spectroscopie THz) a mis en évidence les propriétés suivantes :

- La sphéricité tend généralement à réduire l'énergie THz produite, bien qu'elle ait peu d'impact sur l'émission conique.
- L'astigmatisme, influant de manière asymétrique sur la propagation laser, produit un rayonnement THz plutôt axisymétrique. Cette aberration diminue la densité électronique et la longueur du plasma, et réduit légèrement l'énergie THz générée ainsi que son étendue spectrale.
- La coma, qui est également une aberration asymétrique, provoque de légères asymétries dans la distribution angulaire du rayonnement THz. Elle diminue significativement la réponse plasma et est donc particulièrement néfaste pour l'énergie THz produite. Cette aberration réduit également la largeur fréquentielle du spectre THz.

Notre modèle a pu retrouver de manière satisfaisante les spectres calculés par CUP3D dans les quatre cas d'étude. Il tend cependant à surestimer les asymétries spectrales associées à l'astigmatisme. Nous attribuons ce défaut à la prise en compte imparfaite des variations trans-

verses et longitudinales du plasma dans notre modèle : celles-ci sont simplement évaluées à l'aide d'une propagation linéaire, qui ne prend pas en compte les effets propagatifs non-linéaires (auto-focalisation Kerr, défocalisation plasma) qui altèrent localement l'amplitude et la forme de l'impulsion laser. Une amélioration possible serait d'inclure un terme de diffraction plus précis, par exemple à partir d'une carte transverse de fluence laser prélevée dans les simulations CUP3D en un lieu représentatif de la géométrie globale du canal plasma.

La deuxième série de simulations reprend les paramètres laser-gaz de la précédente, mais pour des impulsions laser CP-S. Elles montrent que les aberrations optiques réduisent plus fortement l'énergie THz dans cette configuration que pour des impulsions LP-P, bien que les propagations laser et les géométries des plasmas observés soient peu affectés par ce changement de polarisation laser. Nous avons aussi remarqué que l'état de polarisation de l'impulsion d'entrée a peu d'impact sur l'émission conique, ce qui a été correctement restitué par notre modèle. Des accords de phase THz apportés par la seconde composante vectorielle peuvent cependant influencer sur la contribution sur l'axe pour $L \approx l_d$. L'amélioration du rendement de conversion laser-THz due à la polarisation CP-S a été retrouvée même en présence d'aberrations optiques.

Enfin, la troisième série de simulations CUP3D a porté sur la génération d'ondes THz en régime de filamentation laser pour des impulsions laser LP-P. Une nouvelle fois, nous avons observé que les aberrations optiques détériorent le canal plasma (plus court, densité électronique plus faible) et réduisent significativement l'énergie THz produite. Les spectres THz calculés par CUP3D sont représentatifs de ce régime de propagation et sont caractérisés par une répartition fréquentielle plutôt plate dans le domaine THz et des angles d'émission valant $\approx 2^\circ$. Dans ces configurations, notre modèle a permis de retrouver de manière satisfaisante ces spectres, bien qu'il surestime toujours les asymétries spectrales potentiellement causées par l'astigmatisme.

Pour conclure, ce travail de doctorat a permis d'approfondir la compréhension du procédé de génération de rayonnement THz par des plasmas d'air ; ses atouts, ses améliorations possibles mais aussi ses limitations ont été largement explorés. Une avancée conséquente a consisté en l'utilisation d'impulsions laser polarisées circulairement capable de délivrer des émission THz plus performantes pour la spectroscopie. A mon sens, la prochaine étape à franchir pour optimiser cette méthode est la maturation des techniques permettant de former des champs optiques à plus de deux harmoniques. Compte tenu de l'évolution récente de la littérature sur ce sujet, une telle

avancée pourrait être réalisée dans les prochaines années. Les résultats du projet ALTESSE ont aussi mené à des résultats encourageants pour l'avenir de la spectroscopie THz, en particulier pour effectuer une spectroscopie à distance. Au fil des ans, il semble que cette technologie se répande et devienne de plus en plus utilisée dans de nombreux domaines et par de nombreux laboratoires. Un tel élan devrait logiquement mener à une popularisation de cette physique et à davantage d'applications potentielles.

Annexes

Annexe A Théorie Fonctionnelle de la Densité

La théorie fonctionnelle de la densité repose sur l'équation de Schrödinger qui décrit la structure électronique d'un matériau donné :

$$\left[-\sum_i^N \frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_i^2 + \sum_{i < i'} \frac{e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_{i'}|} - \sum_{i,j} \frac{Z_j e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} + E_{\text{noy}} \right] = E\Psi \quad (\text{A.1})$$

où Ψ est la fonction d'onde de la structure étudiée. Le premier terme représente l'énergie cinétique des électrons (indexés $i \in [1, N]$). Les trois autres termes décrivent respectivement les potentiels d'interaction électron-électron, électron-noyau et noyau-noyau. Cette équation prend en compte l'approximation de Born-Oppenheimer, qui suppose que les noyaux atomiques (indexés $j \in [1, M]$) sont fixes : leur énergie cinétique est donc négligeable et le potentiel d'interaction noyau-noyau vu par les électrons est une constante notée E_{noy} .

L'équation (A.1) est trop complexe pour être résolue analytiquement. La théorie DFT fait appel dès lors aux théorèmes de Hohenberg et Kohn [216] pour reformuler le problème en exprimant l'énergie totale de la structure comme une fonctionnelle de sa densité électronique $n(\vec{r})$, définie par

$$P = n(\vec{r})d\vec{r}, \quad (\text{A.2})$$

avec P la probabilité de trouver un des N électrons de la structure dans l'élément de volume $d\vec{r}$. Le premier théorème de Hohenberg et Kohn stipule que l'énergie totale du système $E[n(\vec{r})]$ est une fonctionnelle unique (à une constante près) et universelle de la densité électronique $n(\vec{r})$, valide pour tout potentiel externe $V_{\text{ext}}(\vec{r})$ que subit le système, car la fonction d'onde Ψ est elle-même une fonctionnelle de $n(\vec{r})$:

$$E[n(\vec{r})] = \int V_{\text{ext}}(\vec{r})n(\vec{r})d\vec{r} + F[n(\vec{r})], \quad (\text{A.3})$$

avec F une fonctionnelle de la densité.

Leur second théorème montre qu'en admettant que le nombre de particules du système reste constant, l'énergie de l'état fondamental E_0 correspond au minimum de cette fonctionnelle, atteint pour la densité électronique exacte de l'état fondamental $n_0(\vec{r})$.

$$E_0 = \min_n \left[\int V_{\text{ext}}(\vec{r})n(\vec{r})d\vec{r} + F[n(\vec{r})] \right] = V_{\text{ext}}(\vec{r})n_0(\vec{r})d\vec{r} + F[n_0(\vec{r})] \quad (\text{A.4})$$

Il est donc nécessaire de connaître à la fois la densité électronique du système et la fonctionnelle $F[n]$ pour résoudre l'équation (A.1). Cependant, cette dernière reste inconnue car elle est liée au terme de potentiel d'interaction électron-électron. Pour surmonter ce problème, on utilise la méthode de Kohn-Sham [217], qui reformule le système étudié comme un ensemble de N électrons indépendants et soumis à un potentiel extérieur effectif $V_{\text{eff}}(\vec{r})$ prenant en compte les interactions électron-électron. Dans ce formalisme, on peut décomposer la densité électronique de l'état fondamental comme la somme des orbitales $\phi_i(\vec{r})$ des électrons :

$$n(\vec{r}) = \sum_{i=1}^N |\phi_i(\vec{r})|^2. \quad (\text{A.5})$$

La reformulation du problème mène à une réécriture de l'équation de Schrödinger non-résolvable analytiquement à un système d'équations plus simples, nommées équations de Kohn-Sham :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_e} \nabla_i^2 + V_{\text{eff}}(\vec{r}) \right] \phi_i(\vec{r}) = \epsilon_i(\vec{r}) \phi_i(\vec{r}), \quad (\text{A.6})$$

le premier terme représentant l'énergie cinétique de l'électron i et $\epsilon_i(\vec{r})$ étant l'énergie de la solution propre $\phi_i(\vec{r})$, appelée orbitale de Kohn-Sham.

Le terme de potentiel effectif peut être détaillé :

$$V_{\text{eff}}(\vec{r}) = V_{\text{ext}}(\vec{r}) + \int \frac{n(\vec{r}')n(\vec{r})}{|\vec{r} - \vec{r}'|} d\vec{r}' + V_{\text{xc}}[n(\vec{r})], \quad (\text{A.7})$$

où le potentiel dit d'échange-corrélation V_{xc} contient les interactions électrons-électrons difficiles à caractériser.

La résolution du problème tient donc à l'expression du terme d'échange-corrélation V_{xc} . En pratique, on utilise différentes hypothèses afin d'approcher cette fonctionnelle. Les chercheurs de l'ILM ont employé l'approximation dite du gradient généralisé (abrégée GGA, pour "Generalized Gradient Approximation"), qui suppose que V_{xc} est une fonctionnelle dépendant de la densité $n(\vec{r})$ et de son gradient $\nabla n(\vec{r})$. Le choix de la fonctionnelle utilisée pour représenter V_{xc} reste libre, mais celles utilisées ici sont des fonctionnelles dites hybrides, appartenant aux familles PBE (pour Perdew-Burke-Ernzerhof [218]) et LYP (pour Lee-Yang-Parr [219]). Elles incluent le

suffixe "D3" lorsqu'elles prennent en compte des corrections dispersives.

Annexe B Calcul des t_n et $\vec{v}_f(t_n)$ en configurations LP-P, LP-O, CP-S et CP-C à deux couleurs

B.1 Calcul des instants d'ionisation t_n

Nous nous proposons de déterminer les expressions des instants d'ionisation t_n des impulsions laser à deux couleurs en état de polarisation LP-P, LP-O, CP-S et CP-C dont les champs sont décrits par les relations (3.2) à (3.5). Formellement, ces instants correspondent aux temps pour lesquels le champ laser $\vec{E}_L(t)$ atteint un optimum :

$$\frac{d|E_L|}{dt}(t = t_n) = 0. \quad (\text{B.1})$$

Configuration LP-P

Calculons les instants d'ionisation dans le cas d'un champ laser polarisé linéairement (LP-P). Pour cela, nous allons appliquer une approche perturbative. Dans un premier temps, la majorité de l'énergie laser est supposée réservée au fondamental, i.e., $r \ll 1$. Ainsi, les instants d'ionisation ne dépendent que de la première couleur de l'impulsion laser :

$$E_L(t) \sim E_0 \cos(\omega_0 t). \quad (\text{B.2})$$

Sous cette approximation, il vient directement

$$t_n = \frac{n\pi}{\omega_0}. \quad (\text{B.3})$$

Nous introduisons la suite (ϵ_n) permettant d'exprimer l'influence de la seconde couleur sur les t_n , dont les éléments sont définis tels que

$$t_n = \frac{n\pi}{\omega_0} + \frac{\epsilon_n}{\omega_0}. \quad (\text{B.4})$$

Puisque $r \ll 1$, les termes de la suite étudiée vérifient $\epsilon_n \ll 1$. Or, le développement de $d_t E_L(t_n)$ donne aux extrema du champ laser :

$$\frac{dE_L}{dt}(t_n) \approx E_0 [(-1)^n \epsilon_n \sqrt{1-r} + 2\sqrt{r}(\sin(\phi) - 2\cos(\phi)\epsilon_n)] = 0. \quad (\text{B.5})$$

La relation (B.1) mène alors à l'expression des ϵ_n :

$$\epsilon_n = \frac{2\sqrt{r} \sin \phi}{4\sqrt{r} \cos \phi + (-1)^n \sqrt{1-r}} \approx (-1)^{n+1} 2\sqrt{\frac{r}{1-r}} \sin \phi. \quad (\text{B.6})$$

Les instants d'ionisation associés à un champ LP-P à deux couleurs dans le cas $r \ll 1$ s'écrivent donc

$$t_n^{LP-P} = \omega_0^{-1} \left(n\pi + (-1)^{n+1} 2\sqrt{\frac{r}{1-r}} \sin \phi \right). \quad (\text{B.7})$$

Configuration LP-O

Les grandeurs t_n se trouvent de manière similaire dans le cas LP-O. En gardant l'hypothèse $r \ll 1$, les instants d'ionisation s'écrivent :

$$t_n = \frac{n\pi}{\omega_0} + \frac{\epsilon_n}{\omega_0} \quad (\text{B.8})$$

avec $\epsilon_n \ll 1$.

Les calculs des zéros de $d_t|E_L|^2(t)$ sont plus commodes que ceux de $d_t|E_L|(t)$ car ce dernier contient une racine carrée. D'après l'expression du champ laser LP-O, nous trouvons :

$$\frac{d|E_L|^2}{dt}(t) = -\frac{E_0^2}{\omega_0} [(1-r) \sin(2\omega_0 t) + 2r \sin(4\omega_0 t + \phi)]. \quad (\text{B.9})$$

En appliquant la décomposition (B.8), cette relation se développe comme :

$$\frac{d|E_L|^2}{dt}(t_n) = -\frac{E_0^2}{\omega_0} [(1-r) \sin(2\epsilon_n) + 2r \sin(4\epsilon_n + \phi)] \quad (\text{B.10})$$

$$\approx -\frac{2E_0^2}{\omega_0} [(1-r)\epsilon_n + 2r \sin \phi + 4\epsilon_n \cos \phi] = 0. \quad (\text{B.11})$$

Nous obtenons alors directement :

$$\epsilon_n = -\frac{r \sin \phi}{1-r + 4r \cos \phi} \approx -r \sin \phi. \quad (\text{B.12})$$

Les instants d'ionisation en configuration LP-O s'écrivent donc

$$t_n^{\text{LP-O}} = \omega_0^{-1} (n\pi - r \sin \phi). \quad (\text{B.13})$$

Configurations CP-S et CP-C

Calculons maintenant les instants d'ionisation pour une impulsion laser polarisée circulairement. De la même manière que pour la configuration LP-O, nous les déduirons à partir de l'équation $d_t |E_L|^2(t = t_n) = 0$. Les modules au carré des champs s'expriment de manière simple :

$$\left| E_L^{\text{CP-S}}(t) \right|^2 = E_0 \left| \alpha^2 + \beta^2 + 4\alpha\beta \cos(\omega_0 t + \phi) \right|, \quad (\text{B.14})$$

$$\left| E_L^{\text{CP-C}}(t) \right|^2 = E_0 \left| \alpha^2 + \beta^2 + 4\alpha\beta \cos(3\omega_0 t + \phi) \right|. \quad (\text{B.15})$$

Ces relations mènent directement aux instants d'ionisation :

$$t_n^{\text{CP-S}} = \omega_0^{-1} (2n\pi - \phi), \quad (\text{B.16})$$

$$t_n^{\text{CP-C}} = \omega_0^{-1} \left(\frac{2n\pi}{3} - \frac{\phi}{3} \right). \quad (\text{B.17})$$

B.2 Calcul des grandeurs $\vec{v}_f(t_n)$

Déduisons-en les expressions des vecteurs $\vec{v}_f(t_n)$ pour les quatre états de polarisation étudiés. Nous supposons par commodité technique que le plasma est non-collisionnel. La fonction $\vec{v}_f(t)$ se simplifie alors telle que

$$\vec{v}_f(t) = -\frac{e}{m_e} \int_{-\infty}^t \vec{E}_L(t') dt'. \quad (\text{B.18})$$

Configuration LP-P

Dans le cas LP-P, sous l'hypothèse $r \ll 1$, la vitesse de dérive électronique $\vec{v}_f(t_n)$ se développe comme

$$v_f^{\text{LP-P}}(t_n) = -\frac{eE_0}{m_e\omega_0} \left[\sqrt{1-r} \sin(n\pi + \epsilon_n^{\text{LP-P}}) + \frac{\sqrt{r}}{2} \sin(2n\pi + 2\epsilon_n^{\text{LP-P}} + \phi) \right] \quad (\text{B.19})$$

$$= -\frac{eE_0}{m_e\omega_0} \left[(-1)^n \sqrt{1-r} \sin \epsilon_n^{\text{LP-P}} + \frac{\sqrt{r}}{2} \sin(2\epsilon_n^{\text{LP-P}} + \phi) \right] \quad (\text{B.20})$$

$$\approx -\frac{eE_0}{m_e\omega_0} \left[-2\sqrt{r} \sin \phi + \frac{\sqrt{r}}{2} \sin \phi \right] \quad (\text{B.21})$$

$$\approx \frac{3eE_0}{2m_e\omega_0} \sqrt{r} \sin \phi. \quad (\text{B.22})$$

Configuration LP-O

Le développement de $\vec{v}_f(t_n)$ dans le cas LP-O se déroule de manière analogue :

$$\vec{v}_f^{\text{LP-O}}(t_n) = -\frac{eE_0}{m_e\omega_0} \begin{pmatrix} \sqrt{1-r} \sin(n\pi + \epsilon_n^{\text{LP-O}}) \\ \sqrt{r}/2 \sin(2n\pi + 2\epsilon_n^{\text{LP-O}} + \phi) \end{pmatrix} \quad (\text{B.23})$$

$$= -\frac{eE_0}{m_e\omega_0} \begin{pmatrix} (-1)^n \sqrt{1-r} \sin \epsilon_n^{\text{LP-O}} \\ \sqrt{r}/2 \sin(2\epsilon_n^{\text{LP-O}} + \phi) \end{pmatrix} \quad (\text{B.24})$$

$$\approx -\frac{eE_0}{m_e\omega_0} \sin \phi \begin{pmatrix} (-1)^{n+1} r \sqrt{1-r} \\ \sqrt{r}/2 \end{pmatrix}. \quad (\text{B.25})$$

Configurations CP-S et CP-C

Un développement similaire dans les cas CP-S et CP-C mène directement à

$$\vec{v}_f^{\text{CP-S}}(t_n) = \frac{eE_0}{\sqrt{2}m_e\omega_0} \begin{pmatrix} \sqrt{1-r} + \frac{\sqrt{r}}{2} \\ \sin \phi \\ \cos \phi \end{pmatrix}, \quad (\text{B.26})$$

$$\vec{v}_f^{\text{CP-C}}(t_n) = \frac{eE_0}{\sqrt{2}m_e\omega_0} \begin{pmatrix} \sqrt{1-r} - \frac{\sqrt{r}}{2} \\ \sin(\phi/3 - 2n\pi/3) \\ \cos(\phi/3 - 2n\pi/3) \end{pmatrix}. \quad (\text{B.27})$$

Annexe C Calcul des t_n pour un champ laser Sawtooth LP-P à N couleurs

Nous calculons ici les instants d'ionisation t_n^N associés aux champs laser Sawtooth à N couleurs en état de polarisation LP-P. Pour rappel, les instants t_n^N sont les solutions de l'équation :

$$\frac{\partial |\vec{E}_L|}{\partial t}(t = t_n^N) = 0 \quad (\text{C.1})$$

où $\vec{E}_L(t)$ décrit le champ laser.

De plus, le calcul de la dérivée du champ laser donné par la relation (3.50) mène à

$$\partial_t E_L(t) = \frac{E_0 \omega_0}{\sqrt{\sum_{j=1}^N j^{-2}}} \sum_{k=1}^N (-1)^{k+1} \cos(k\omega_0 t). \quad (\text{C.2})$$

La figure C.1 montre l'évolution temporelle de $E_L(t)$ pour $N = 2$ (courbe bleue), $N = 5$ (courbe rouge) et $N = 100$ (courbe noire). Elle indique que pour $N < 100$, l'équation ci-dessus comporte plusieurs extrema locaux par période laser. Cependant, au vu des fortes non-linéarités du taux d'ionisation avec $|E_L|$, seuls les maxima globaux apportent une contribution non-négligeable à l'ionisation. Ce sont donc ces solutions qui doivent être employées pour représenter les instants t_n^N .

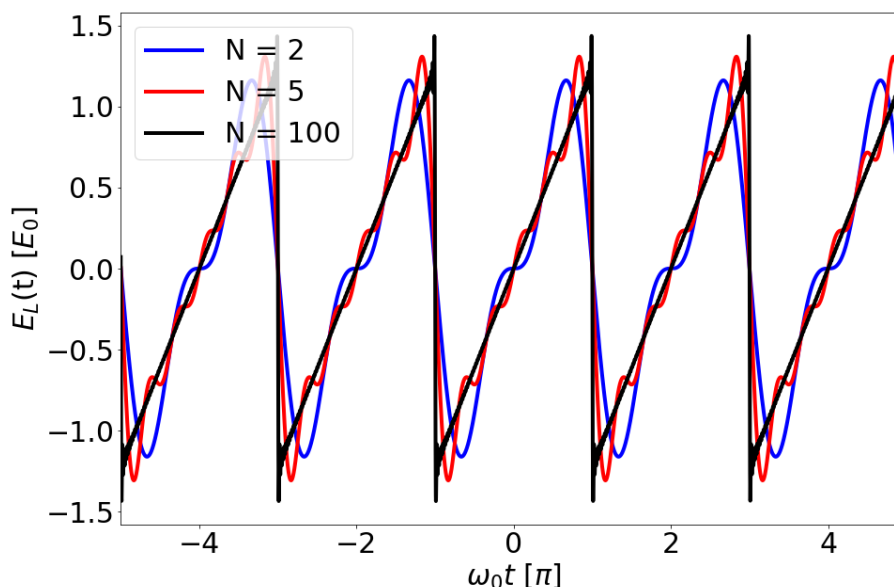


FIGURE C.1: Profils temporels du champ laser Sawtooth LP-P tronqué à $N = 2$ (courbe bleue), $N = 5$ (courbe rouge) et $N = 100$ (courbe noire).

La figure C.1 permet également d'identifier les instants d'ionisation lorsque $N \gg 1$:

$$\omega_0 t_n^{N \gg 1} = (2n + 1)\pi. \quad (\text{C.3})$$

Afin de trouver l'expression des temps t_n^N lorsque N ne vérifie pas cette condition (typiquement $N < 10$), nous introduisons ϵ_N tel que

$$\omega_0 t_n^N = (2n + 1)\pi + \epsilon_N. \quad (\text{C.4})$$

En injectant cette expression dans la relation (C.2), nous trouvons

$$\partial_t E_L(t_n^N) = \frac{E_0 \omega_0}{\sqrt{\sum_{j=1}^N j^{-2}}} \sum_{k=1}^N (-1)^{k+1} \cos(k \omega_0 t_n^N) \quad (\text{C.5})$$

$$= \frac{E_0 \omega_0}{\sqrt{\sum_{j=1}^N j^{-2}}} \sum_{k=1}^N (-1)^{k+1} \cos(2kn\pi + k\pi + k\epsilon_N) \quad (\text{C.6})$$

$$= - \frac{E_0 \omega_0}{\sqrt{\sum_{j=1}^N j^{-2}}} \underbrace{\sum_{k=1}^N \cos(k\epsilon_N)}_{S_N}. \quad (\text{C.7})$$

Afin de résoudre $S_N = 0$, nous développons son expression sous la forme de deux sommes géométriques :

$$S_N = \sum_{k=1}^N \cos(k\epsilon_N) \quad (\text{C.8})$$

$$= \frac{1}{2} \left(\sum_{k=1}^N (e^{i\epsilon_N})^k + \sum_{k=1}^N (e^{-i\epsilon_N})^k \right) \quad (\text{C.9})$$

$$= \frac{1}{2} \left(\frac{1 - e^{i\epsilon_N(N+1)}}{1 - e^{i\epsilon_N}} + \frac{1 - e^{-i\epsilon_N(N+1)}}{1 - e^{-i\epsilon_N}} - 2 \right). \quad (\text{C.10})$$

Les développements mènent à

$$2S_N = \frac{\cos(N\epsilon_N) - \cos((N+1)\epsilon_N)}{1 - \cos(\epsilon_N)} - 1 = 0. \quad (\text{C.11})$$

Les coefficients ϵ_N vérifient donc l'équation trigonométrique :

$$\cos(N\epsilon_N) - \cos((N+1)\epsilon_N) = 1 - \cos(\epsilon_N). \quad (\text{C.12})$$

Remarquons qu'en posant $\epsilon_N = \pm 2\pi/N$, nous trouvons

$$\begin{cases} \cos(N\epsilon_N) = 1 \\ \cos((N+1)\epsilon_N) = \cos(\epsilon_N). \end{cases} \quad (\text{C.13})$$

Alternativement, en posant $\epsilon_N = \pm \pi/(N+1)$, il vient :

$$\begin{cases} \cos(N\epsilon_N) = -\cos(\epsilon_N) \\ \cos((N+1)\epsilon_N) = -1. \end{cases} \quad (\text{C.14})$$

Les coefficients $\epsilon_N = \pm 2\pi/N$ et $\epsilon_N = \pm \pi/(N+1)$ sont donc plusieurs solutions de l'équation $S_N = 0$ (il existe aussi d'autres solutions qui ne sont pas mentionnées ici). Pour rappel, nous cherchons les ϵ_N correspondant aux maxima globaux de $|E_L(t)|$. Suivant la référence [112], la suite de solutions satisfaisant cette condition est donnée par $\epsilon_N = \pm \pi/(N+1)$. Les instants d'ionisation t_n^N s'écrivent donc de manière exacte pour un champ laser Sawtooth LP-P à N couleurs :

$$t_n^N = \omega_0^{-1} \left(2n\pi \pm \frac{N}{N+1} \pi \right). \quad (\text{C.15})$$

Annexe D Calcul de la polarisation Raman LP-P

Nous calculons ici la contribution THz de la polarisation associée à la SRRS à partir de l'équation (2.43) :

$$P_{\text{Raman}}(t) = \frac{3}{2} x_K \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t) \tau_1 (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}) \underbrace{\int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-\tau}{\tau_2}} \sin\left(\frac{t-\tau}{\tau_1}\right) E^2(\tau) d\tau}_{I(t)} \quad (\text{D.1})$$

La partie délicate du développement correspond au traitement de l'intégrale $I(t)$, dont l'intégrande inclut le carré de $E_L^{LP-P}(\tau)$, d'expression :

$$\left[E_L^{LP-P}(\tau) \right]^2 = \frac{E_0^2}{2} \begin{cases} 1 \\ + 2\sqrt{r(1-r)} \cos(\omega_0\tau + \phi) \\ + (1-r) \cos(2\omega_0\tau) \\ + 2\sqrt{r(1-r)} \cos(3\omega_0\tau + \phi) \\ + r \cos(4\omega_0\tau + 2\phi). \end{cases} \quad (\text{D.2})$$

Nous introduisons les fonctions $I_{a,b}(t)$ définies par :

$$I_{a,b}(t) = \int_{-\infty}^t \sin\left(\frac{t-\tau}{\tau_1}\right) e^{-\frac{t-\tau}{\tau_2}} \cos(a\omega_0\tau + b\phi) d\tau. \quad (\text{D.3})$$

L'intégrale se reformule donc comme suit :

$$I(t) = \frac{E_0^2}{2} \begin{cases} I_{0,0}(t) \\ + 2\sqrt{r(1-r)} I_{1,1}(t) \\ + (1-r) I_{2,0}(t) \\ + 2\sqrt{r(1-r)} I_{3,1}(t) \\ + r I_{4,2}(t) \end{cases} \quad (\text{D.4})$$

Le calcul de $I_{0,0}$ mène à :

$$I_{0,0} = \tau_1^{-1} (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2})^{-1}. \quad (\text{D.5})$$

Calculons désormais les termes en $a \neq 0$. Les fonctions $I_{a \neq 0, b}(t)$ se développent de manière générale :

$$I_{a,b}(t) = \frac{1}{2}\tau_1\tau_2 \left(\frac{\alpha_- \cos(a\omega_0 t + b\phi) + \tau_1 \sin(a\omega_0 t + b\phi)}{\alpha_-^2 + \tau_1^2} + \frac{\alpha_+ \cos(a\omega_0 t + b\phi) - \tau_1 \sin(a\omega_0 t + b\phi)}{\alpha_+^2 + \tau_1^2} \right) \quad (\text{D.6})$$

avec les grandeurs α_{\pm} définies par

$$\alpha_{\pm} = \tau_2(1 \pm a\omega_0\tau_1). \quad (\text{D.7})$$

Les valeurs numériques de ω_0 , τ_1 et τ_2 vérifient $a\omega_0\tau_{1,2} \gg 1$. Nous posons donc $h_{1,2} = (a\omega_0\tau_{1,2})^{-1} \ll$

1. Pour commencer, nous exprimons les fonctions à développer sous la forme :

$$I_{a,b}(t) = \frac{1}{2}\tau_1\tau_2 (T_1 \cos(a\omega_0 t + b\phi) + T_2 \sin(a\omega_0 t + b\phi)) \quad (\text{D.8})$$

avec $T_{1,2}$ définis par

$$T_1 = \frac{\alpha_-}{\tau_1^2 + \alpha_-^2} + \frac{\alpha_+}{\tau_1^2 + \alpha_+^2}, \quad (\text{D.9})$$

$$T_2 = \frac{\tau_1}{\tau_1^2 + \alpha_-^2} - \frac{\tau_1}{\tau_1^2 + \alpha_+^2}. \quad (\text{D.10})$$

Par commodité, nous adoptons la notation $\gamma = a\omega_0\tau_1\tau_2$. α_{\pm} se réécrit donc :

$$\alpha_{\pm} = \gamma(\pm 1 + h_1). \quad (\text{D.11})$$

Le développement limité de α_{\pm}^2 en h_1 s'écrit, au premier ordre :

$$\alpha_{\pm}^2 \approx \gamma^2(1 \pm 2h_1). \quad (\text{D.12})$$

Il vient donc :

$$\frac{\alpha_{\pm}}{\tau_1^2 + \alpha_{\pm}^2} \approx \frac{\pm\gamma + \gamma h_1}{\tau_1^2 + \gamma^2 \left(1 \pm \frac{2\gamma^2}{\tau_1^2 + \gamma^2} h_1\right)} \approx \pm \frac{\gamma}{\tau_1^2 + \gamma^2} + \left[\frac{\gamma}{\tau_1^2 + \gamma^2} - \frac{2\gamma^3}{(\tau_1^2 + \gamma^2)^2} \right] h_1. \quad (\text{D.13})$$

Le terme T_1 se simplifie donc en

$$T_1 \approx 2 \left[\frac{\gamma}{\tau_1^2 + \gamma^2} - \frac{2\gamma^3}{(\tau_1^2 + \gamma^2)^2} \right] h_1. \quad (\text{D.14})$$

Remarquons que $\gamma^2/\tau_1^2 = (a\omega_0\tau_2)^2 = h_2^{-2} \gg 1$, d'où $\gamma \gg \tau_1$. On simplifie alors l'expression précédente :

$$T_1 \approx \left[\frac{2}{\gamma} - \frac{4}{\gamma^4} \right] h_1 \approx -\frac{2h_1}{\gamma} = \frac{-2}{a^2\omega_0^2\tau_1^2\tau_2}. \quad (\text{D.15})$$

Le calcul de T_2 , défini par l'équation (D.10), est similaire. Commençons par :

$$\frac{\tau_1}{\tau_1^2 + \alpha_{\pm}^2} \approx \frac{\tau_1}{\tau_1^2 + \gamma^2} \mp \frac{2\gamma^2\tau_1}{(\tau_1^2 + \gamma^2)^2} h_1. \quad (\text{D.16})$$

Nous trouvons alors immédiatement

$$T_2 \approx -\frac{4\gamma^2\tau_1}{(\gamma^2 + \tau_1^2)^2} h_1 \approx -\frac{4\tau_1}{\gamma^2} h_1. \quad (\text{D.17})$$

Remarquons que $T_2/T_1 \approx 2\tau_1/\gamma \ll 1$. Il vient donc $T_1 \gg T_2$, et nous pouvons donc négliger T_2 .

Finalement, les fonctions $I_{a,b}(t)$ peuvent être approchées, pour $a \neq 0$, par :

$$I_{a,b}(t) \approx -\frac{\cos(a\omega_0 t + b\phi)}{a^2\omega_0^2\tau_1}. \quad (\text{D.18})$$

Comparons l'ordre de grandeur des fonctions $I_{a \neq 0, b}(t)$ avec celui de $I_{0,0}$. Pour rappel, $\tau_1 \approx 62.5$ fs et $\tau_2 \approx 77$ fs. Pour une longueur d'onde fondamentale de $0.8 \mu\text{m}$, $\omega_0 = 2.35$ rad/fs. Nous trouvons alors :

$$I_{0,0} = \tau_1^{-1} (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2})^{-1} \approx 37.7 \text{ fs} \quad (\text{D.19})$$

$$|I_{a \neq 0, b}(t)| < \frac{1}{\omega_0^2\tau_1} \approx 2.88 \times 10^{-3} \text{ fs}. \quad (\text{D.20})$$

Il y a donc environ 4 ordres de grandeurs entre $I_{0,0}$ et les autres intégrales. En accord avec les observations réalisées en section 2.1.3, la polarisation Raman se sépare donc en deux termes : un terme d'amplitude dominante, associé à $I_{0,0}$ et noté $P_{\text{Raman}}^{\text{P}}(t)$, et un second de plus faible ampleur, relié aux fonctions $I_{a > 0, b}(t)$ et noté $P_{\text{Raman}}^{\text{m}}(t)$. Nous réécrivons donc :

$$P_{\text{Raman}}^{\text{LP-P}}(t) = P_{\text{Raman}}^{\text{P}}(t) + P_{\text{Raman}}^{\text{m}}(t). \quad (\text{D.21})$$

Le calcul de $P_{\text{Raman}}^{\text{P}}(t)$ est immédiat :

$$P_{\text{Raman}}^{\text{P}}(t) = \frac{3}{2} x_K \epsilon_0 \chi^{(3)} E_L^{\text{LP-P}}(t) \tau_1 (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}) \frac{E_0^2}{2} I_{0,0} \quad (\text{D.22})$$

$$= \frac{3}{4} x_K \epsilon_0 \chi^{(3)} E_0^2 E_L^{\text{LP-P}}(t). \quad (\text{D.23})$$

Le terme $P_{\text{Raman}}^{\text{P}}(t)$ oscille à ω_0 et $2\omega_0$, comme prédit en section 2.1.3. Remarquons que son ordre de grandeur s'approche de celui de la polarisation Kerr.

Calculons maintenant $P_{\text{Raman}}^{\text{m}}(t)$. Pour cela, nous développons l'expression de $I^m(t) = I(t) - I_{0,0}$ [car $I_{0,0}$ est traité dans le terme $P_{\text{Raman}}^{\text{P}}(t)$] :

$$I^m(t) = -\frac{E_0^2}{2\omega_0^2 \tau_1} \begin{cases} 2\sqrt{r(1-r)} \cos(\omega_0 t + \phi) \\ + (1-r)/4 \cos(2\omega_0 t) \\ + 2\sqrt{r(1-r)}/9 \cos(3\omega_0 t + \phi) \\ + r/16 \cos(4\omega_0 t + 2\phi) \end{cases} \quad (\text{D.24})$$

Le calcul de $I^m(t) \times E_L^{\text{LP-P}}(t)$ mène à :

$$I^m(t) \times E_L^{\text{LP-P}}(t) = -\frac{E_0^3}{4\omega_0^2 \tau_1} \begin{cases} 9/4\sqrt{r(1-r)} \cos \phi \\ + \sqrt{1-r}(1/4 - 89r/36) \cos(\omega_0 t) \\ + \sqrt{r}(20/9 - 311r/144) \cos(2\omega_0 t + \phi) \\ + (1-r)^{3/2}/4 \cos(3\omega_0 t) + 33/16r\sqrt{1-r} \cos(3\omega_0 t + 2\phi) \\ + 17/36\sqrt{r(1-r)} \cos(4\omega_0 t + \phi) \\ + 41/144r\sqrt{1-r} \cos(5\omega_0 t + 2\phi) \\ + r^{3/2}/16 \cos(6\omega_0 t + 3\phi) \end{cases} \quad (\text{D.25})$$

qui peut être injecté dans la relation :

$$P_{\text{Raman}}^{\text{m}}(t) = \frac{3}{2} x_K \epsilon_0 \chi^{(3)} \tau_1 (\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}) E_L^{\text{LP-P}}(t) \times I^m(t) \quad (\text{D.26})$$

pour obtenir l'expression finale de la polarisation Raman. Remarquons que ce terme de faible amplitude contient une contribution au spectre THz ainsi que des fréquences allant jusqu'à $6\omega_0$, à l'instar de la polarisation Kerr. En particulier, le terme basse-fréquence prend pour expression :

$$P_{\text{Raman,THz}}^{\text{LP-P}} = -\frac{27}{32} x_K \epsilon_0 \chi^{(3)} \frac{\tau_1^{-2} + \tau_2^{-2}}{\omega_0^2} E_0^3 \sqrt{r} (1-r) \cos \phi. \quad (\text{D.27})$$

C'est ce terme qui est utilisé en section 2.2.3 [Eq. (2.168)] pour comparer les contributions au spectre THz des photo-courants, de l'effet Kerr et de la diffusion Raman.

Bibliographie

- [1] H. C. Ørsted, Experimenta circa effectum conflictus electrici in acum magneticam, Journal für Chemie und Physik **XXIX**, pp. 275 (1820).
- [2] M. Faraday, V. experimental researches in electricity, Phil. Trans. R. Soc. **122**(122), pp. 125 (1831).
- [3] J. C. Maxwell, Viii. a dynamical theory of the electromagnetical field, Phil. Trans. R. Soc. **155**, pp. 459 (1865).
- [4] H. Hertz, Die kräfte electrischer schwingungen, behandelt nach der maxwell'schen theorie, Annalen der Physik **272**(1), pp. 1 (1889).
- [5] L. Bergé, K. Kaltenecker, S. Engelbrecht, A. Nguyen, S. Skupin, L. Merlat, B. Fischer, B. Zhou, I. Thiele, P. U. Jepsen, Terahertz spectroscopy from air plasmas created by two-color femtosecond laser pulses : The ALTESSE project, EPL **126**, 24001 (2019).
- [6] K. Fukunaga et M. Picollo, Terahertz spectroscopy applied to the analysis of artists' materials, Appl. Phys. A **100**, pp. 591 (2010).
- [7] R. A. Lewis, A review of terahertz sources, J. Phys. D : Appl. Phys. **47**(37), 374001 (2014).
- [8] M. Asada et S. Suzuki, Terhaertz emitter using resonant-tunneling diode and applications, Sensors **21**(4), 1384 (2021).
- [9] I. Mehdi, J. V. Siles, C. Lee, E. Schlecht, Thz diode technology : Status, prospects, and applications, Proceedings of the IEEE **105**(6), pp. 990 (2017).

- [10] A. S. Hajo, O. Yilmazoglu, A. Dadgar, F. Küppers, T. Kusserow, Reliable gan-based thz gunn diodes with side-contact and field-plate technologies, *IEEE Access* **8**, pp. 84116 (2020).
- [11] A. Acharyya et J. P. Banerjee, Prospects of impatt devices based on wide bandgap semiconductors as potential terahertz sources, *Applied Nanoscience* **4**, pp. 1 (2014).
- [12] S. Balasekaran, K. Endo, T. Tanabe, Y. Oyama, Patch antenna coupled 0.2 thz tunnel oscillators, *Solid-State Electronics* **54**, pp. 1578 (2010).
- [13] J.-S. Rieh, D. Yoon, J. Yun, An overview of solid-state electronic sources and detectors for terahertz imaging, 12th IEEE International Conferences on Solid-State and Integrated Circuit Technology (ICSICT) **00** (2014).
- [14] T. W. Crowe, W. L. Bishop, D. W. Perterfield, J. L. Hesler, R. M. Weikle, Opening the terahertz window with integrated diode circuits, *IEEE Journal of Solid-State Circuits* **40**(10), pp. 2104 (2005).
- [15] C. Evain, C. Szwarz, E. Roussel, J. Rodriguez, M. Le Parquier, M.-A. Tordeux, F. Ribeiro, M. Labat, N. Hubert, J.-B. Brubach, P. Roy, S. Bielawski, Stable coherent terahertz synchrotron radiation from controlled relativistic electron bunches, *Nature Physics* **15**, pp. 635 (2019).
- [16] T. S. Hearne, M.-H. Mammez, D. Mammez, M.-A. Martin-Drumel, P. Roy, O. Pirali, S. Eliet, S. Barbieri, F. Hindle, G. Mouret, J.-F. Lampin, Unlocking synchrotron sources for thz spectroscopy at sub-mhz resolution, *Optics Express* **30**(5), pp. 7372 (2022).
- [17] A. Fisher, Y. Park, M. Lenz, A. Ody, R. Agustsson, T. Hodgetts, A. Murokh, P. Musumeci, Single-pass high-efficiency terahertz free-electron laser, *Nature Photonics* **16**, pp. 441 (2022).
- [18] P. Shumyatsky et R. R. Alfano, Terahertz sources, *Journal of Biomedical Optics* **16**(3), 033001 (2011).
- [19] D. H. Auston, Picosecond optoelectronic switching and gating in silicon, *Appl. Phys. Lett.*

- 26**(3), pp. 101 (1975).
- [20] D. H. Auston, K. P. Cheung, P. R. Smith, Picosecond photoconducting hertzian dipoles, *Appl. Phys. Lett.* **45**, pp. 284 (1984).
- [21] G. Mourou, C. V. Stancampiano, A. Antonetti, A. Orszag, Picosecond microwave pulses generated with a subpicosecond laser-driven semiconductor switch, *Appl. Phys. Lett.* **39**, pp. 295 (1981).
- [22] N. M. Burford et M. O. El-Shenawee, Review of terahertz photoconductive antenna technology, *Optical Engineering* **56**(1), 010901 (2017).
- [23] S. Lepeshov, A. Gorodetsky, A. Krasnok, N. Toropov, T. A. Vartanyan, P. Belov, A. Alù, E. U. Rafailov, Boosting terahertz photoconductive antenna performance with optimised plasmonic nanostructures, *Scientific Reports* **8**(6624) (2018).
- [24] M. Bashirpour, M. Forouzmehr, S. E. Hosseiniadjad, M. Kolahdouz, M. Neshat, Improvement of terahertz photoconductive antenna using optical antenna array of zno nanorods, *Scientific Reports* **9**(1414) (2019).
- [25] S. Park, Y. Choi, Y. Oh, K. Jeong, Terahertz photoconductive antenna with metal nanoislands, *Optics Express* **20**(23), pp. 25530 (2012).
- [26] X.-C. Zhang, Y. Jin, X. F. Ma, Coherent measurement of thz optical rectification from electro-optic crystal, *Appl. Phys. Lett.* **61**(2764) (1992).
- [27] X.-C. Zhang, X. F. Ma, Y. Jin, T.-M. Lu, Terahertz optical rectification from a nonlinear organic crystal, *Appl. Phys. Lett.* **61**(3080) (1992).
- [28] M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward, G. Weinreich, Optical rectification, *Physical Review Letters* **9**(11), pp. 446 (1962).
- [29] R. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, San Diego, 2008).
- [30] J. A. Fülöp, L. Pálfavi, S. Klingbiel, G. Almási, F. Krausz, S. Karsch, J. Hebling, Generation of sub-mj terahertz pulses by optical rectification, *Optics Letters* **37**(4), pp. 557 (2012).

- [31] N. A. Nikolaev, Y. M. Andreev, V. D. Antsygin, T. B. Bekker, D. M. Ezhov, A. E. Kokh, K. A. Kokh, G. V. Lanskiy, A. A. Mamrashev, V. A. Svetlichnyi, Optical properties of β -bbo and potential for thz applications, *J. Phys. : Conf. Ser.* **951**, 012003 (2018).
- [32] W. Shi, M. Leigh, J. Zong, S. Jiang, Single-frequency terahertz source pumped by q-switched fiber lasers based on difference-frequency generation in gas crystal, *Optics Letters* **32**(8), pp. 949 (2007).
- [33] K. Miyamoto, S. Ohno, M. Fujiwara, H. Minamide, H. Hashimoto, H. Ito, Optimized terahertz-wave generation using bna-dfg, *Optics Express* **17**(17), pp. 14832 (2009).
- [34] A. Crocker, H. A. Gebbie, M. F. Kimmitt, L. E. S. Mathias, Stimulated emission in the far infra-red, *Nature* **201**, pp. 250 (1964).
- [35] K. Zhong, W. Shi, D. Xu, P. Liu, Y. Wang, J. Mei, C. Yan, S. Fu, J. Yao, Optically pumped terahertz sources, *Sci. China Tech. Sci.* **60**(12), pp. 1801 (2017).
- [36] E. R. Mueller, J. Fontanella, R. W. Henschke, Stabilized, integrated, far-infrared laser system for nasa/goddards space flight center, *Proc. of 10th Int. Symp. Space Terahertz Technol.* **00** (2000).
- [37] J. Zhi-Xian, Z. Du-Luo, M. Liang, Q. Chun-Chao, C. Zu-Hai, An efficient pulsed ch_3oh terahertz laser pumped by a tea co_2 laser, *Chinese Phys. Lett.* **27**, 024211 (2010).
- [38] B. S. Williams, Terahertz quantum-cascade lasers, *Nature Photonics* **1**, pp. 517 (2007).
- [39] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtoti, A. L. Hutchinson, A. Y. Cho, Quantum cascade laser, *Science* **264**(5158), pp. 553 (1994).
- [40] R. Kohler, A. Tredicucci, F. Beltram, H. E. Beere, E. H. Linfield, A. G. Davies, D. A. Ritchie, R. C. Lotti, F. Rossi, Terahertz semiconductor-heterostructure laser, *Nature* **417**, pp. 156 (2002).
- [41] L. Li, L. Chen, J. Zhu, J. Freeman, P. Dean, A. Valavanis, A. G. Davies, E. H. Linfield, Terahertz quantum cascade lasers with $>1w$ output powers, *Electronic Letters* **50**(4), pp. 309 (2014).

- [42] E. Bründermann, H. P. Röser, A. V. Muravjov, S. G. Pavlov, V. N. Shastin, Mode fine structure of the p-ge intervalanceband laser measured by heterodyne mixing spectroscopy with an optically pumped ring gas laser, *Infrared Phys. Technol.* **36**(1), pp. 59 (1995).
- [43] M. A. Obnolyudov, A. A. Prokofiev, I. N. Yassievich, K. A. Chao, Theory of a strained p-ge resonant-state terahertz laser, *Phys. Rev. B* **70**, 115209 (2004).
- [44] H. Krömer, Proposed negative-mass microwave amplifier, *Phys. Rev.* **109**, pp. 1858 (1958).
- [45] I. L. Ivanov et I. V. Vasilev, Submillimeter emission from hot holes in germanium in a transverse magnetic field, *Sov. Tech. Phys. Lett.* **9**, pp. 264 (1983).
- [46] A. A. Andronov, I. V. Zverev, V. A. Kozlov, Y. N. Nozdrin, S. A. Pavlov, V. N. Shastin, Stimulated emission in the long-wavelength ir region from hot holes in ge in crossed electric and magnetic fields, *Sov. Phys. JETP Lett.* **40**, pp. 804 (1984).
- [47] Y. S. You, T. I. Oh, K. Y. Kim, Off-axis phase-matched terahertz emission from two-color laser-induced plasma filaments, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 183902 (2012).
- [48] T. I. Oh, Y. S. You, N. Jhajj, E. W. Rosenthal, H. M. Milchberg, K. Y. Kim, Intense terahertz generation in two-color laser filamentation : energy scaling with terawatt laser systems, *New J. Phys.* **15**, 075002 (2013).
- [49] V. A. Andreeva, O. G. Kosareva, N. A. Panov, D. E. Shipilo, P. M. Solyankin, M. N. Esaulkov, P. González de Alaiza Martínez, A. P. Shkurinov, V. A. Makarov, L. Bergé, S. L. Chin, Ultrashort terahertz spectrum generation from an air-based filament plasma, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 063902 (2016).
- [50] C. D'Amico, A. Houard, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, Conical forward thz emission from femtosecond-laser-beam filamentation in air, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 235002 (2007).
- [51] I. Thiele, R. Nuter, B. Bousquet, V. Tikhonchuk, S. Skupin, X. Davoine, L. Gremillet, L. Bergé, Theory of terahertz emission from femtosecond-laser-induced microplasmas, *Phys. Rev. E* **94**, 063202 (2016).

- [52] H. Hamster et R. W. Falcone, Proposed source of sub-picosecond far infrared radiation, International Conference on Ultrafast Phenomena **00**, Paper PDP22 (1990).
- [53] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, R. W. Falcone, Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction, Phys. Rev. Lett. **71**(17), pp. 2725 (1993).
- [54] C. D'Amico, A. Houard, S. Akturk, Y. Liu, J. Le Bloas, M. Franco, B. Prade, A. Couairon, V. T. Tikhonchuk, A. Mysyrowicz, Forward thz radiation emission by femtosecond filamentation in gases : theory and experiment, New J. Phys. **10**, 013015 (2008).
- [55] D. J. Cook et R. M. Hochstrasser, Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air, Optics Letters **25**(16), pp. 1210 (2000).
- [56] K. Y. Kim, A. J. Taylor, J. H. Glowina, G. Rodriguez, Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser-gas interaction, Nature Photonics **2**, pp. 605 (2008).
- [57] C. Tailliez, Sources térahertz intenses produites par des interactions laser-plasma relativistes en présence de champ magnétique, Thèse de Doctorat Université Paris-Saclay (2023).
- [58] J. Neu et C. A. Schmuttenmaer, Tutorial : An introduction to terahertz time domain spectroscopy (thz-tds), J. Appl. Phys **124**, 231101 (2018).
- [59] C. Fattinger et D. Grischkowsky, Point source terahertz optics, Appl. Phys. Lett. **53**, 1480 (1988).
- [60] M. van Exter, C. Fattinger, D. Grischkowsky, Terahertz time-domain spectroscopy of water vapor, Optics Letters **14**(20), pp. 1128 (1989).
- [61] D. J. Cook et R. M. Hochstrasser, Study on the thz spectrum of methamphetamine, Optics Letters **25**(16), pp. 1210 (2000).
- [62] C. J. Strachan, P. F. Taday, D. A. Newnham, K. C. Gordon, J. A. Zeitler, M. Pepper, T. Rades, Using terahertz pulsed spectroscopy to quantify pharmaceutical polymorphism

- and cristallinity, *Journal of Pharmaceutical Sciences* **94**(4), pp. 837 (2005).
- [63] L. Wei, L. Yu, H. Jiaoqi, H. Guorong, Z. Yang, F. Weiling, Application of terahertz spectroscopy in biomolecule detection, *Frontiers in Laboratory Medecine* **2**(4), pp. 127 (2018).
- [64] A. G. Davies, A. D. Burnett, W. Fan, E. H. Linfield, J. E. Cunningham, Terahertz spectroscopy of explosives and drugs, *Materials today* **11**(3), pp. 18 (2008).
- [65] J. Bianca Jackson, J. Bowen, G. Walker, J. Labaune, G. Mourou, M. Menu, K. Fukunaga, A survey of terahertz applications in cultural heritage conservation science, *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology* **1**, pp. 220 (2011).
- [66] X. Yin, S. Hadjiloucas, B. M. Fischer, B. W.-H. Ng, H. M. Paiva, R. K. H. Galvao, G. C. Walker, J. W. Bowen, D. Abbott, Classification of lactose and mandelic acid thz spectra using subspace and wavelet-packet algorithms, *SPIE* **6798**, 679814 (2007).
- [67] T. Yasui, T. Tasuda, K. Sawanaka, T. Araki, Terahertz paintmeter for noncontact monitoring of thickness and drying progress in paint film, *Appl. Opt.* **44**, pp. 6849 (2005).
- [68] L. Thrane, R. H. Jacobsen, P. U. Jepsen, S. R. Keiding, Thz reflection spectroscopy of liquid water, *Chem. Phys. Lett.* **240**, pp. 330 (1995).
- [69] C. Rønne, P. Åstrand, S. R. Keiding, THz spectroscopy of Liquid H₂O and D₂O, *Phys. Rev. Lett.* **84**(14), pp. 2888 (1999).
- [70] E. Pickwell et V. P. Wallace, Biomedical applications of terahertz technology, *J. Phys. D : Appl. Phys.* **39**, pp. R301 (2006).
- [71] M. Tonouchi, Cutting-edge terahertz technology, *Nature Photonics* **1**, pp. 97 (2007).
- [72] N. C. Currie, F. J. Demma, D. D. Ferris Jr., R. W. McMillan, M. C. Wicks, K. Zyga, Imaging sensor fusion for concealed weapon detection, *Investigative Image Processing* **2942** (1997).
- [73] J. F. Federici, Thz imaging and sensing for security applications - explosives, weapons and drugs, *Semicond. Sci. Technol.* **20**, pp. S266 (2005).

- [74] K. Fukunaga, Y. Ogawa, S. Hayashi, I. Hosako, Terahertz spectroscopy for art conservation, *IEICE Electronics Express* **4**(8), pp. 258 (2007).
- [75] S. Krimi, J. Klier, J. Jonuscheit, G. von Freymann, R. Urbansky, R. Beigang, Highly accurate thickness measurement of multi-layered automotive paints using terahertz technology, *Appl. Phys. Lett.* **109**, 021105 (2016).
- [76] H. Lindley-Hatcher, R. I. Stantchev, X. Chen, A. I. Hernandez-Serrano, J. Hardwicke, E. Pickwell-MaxPherson, Real time thz imaging - opportunities and challenges for skin cancer detection, *Appl. Phys. Lett.* **118**, 230501 (2021).
- [77] B. E. Cole, R. M. Woodward, D. A. Crowley, V. P. Wallace, D. D. Arnone, M. Pepper, Terahertz imaging and spectroscopy of human skin in vivo, *Commercial and Biomedical Applications of Ultrashort Pulse Lssers* **4276** (2001).
- [78] E. Pickwell, B. E. Cole, A. J. Fitzgerald, M. Pepper, V. P. Wallace, In vivo study of human skin using pulsed terahertz radiation, *Phys. Med. Biol.* **49**, pp. 1595 (2004).
- [79] Z. Vafapour, A. Keshavarz, H. Ghahraloud, The potential of terahertz sensing for cancer diagnosis, *Heliyon* **6**, e05623 (2020).
- [80] L. Wang, Terahertz imaging for breast cancer detection, *Sensors* **21**, 6465 (2021).
- [81] W. Limin, L. Bin, X. Degang, W. Yuye, G. Meilan, Z. Chaonan, L. Jiahua, S. Zhongcheng, C. Tunan, F. Hua, Y. Jianquan, Study of in-vivo breasts cancer in a subcutaneous xenograft mouse model using terahertz imaging, *J. Infrared Millim. Waves* **39**(5), pp. 553 (2020).
- [82] R. M. Woodward, V. P. Wallace, D. D. Arnone, E. H. Linfield, M. Pepper, Terahertz pulsed imaging of skin cancer in the time and frequency domain, *Journal of Biological Physics* **29**, pp. 257 (2003).
- [83] G. Gallot, Terahertz sensing in biology and medicine, *Photoniques* **101**, pp. 53 (2020).
- [84] E. H. Choi, A. Daruwalla, S. Suh, H. Leinonen, K. Palczewski, Retinoids in the visual cycle : role of the retinal g protein-coupled receptor, *Journal of Lipid Research* **62**, 100040 (2021).

- [85] M. Walther, B. Fischer, M. Schall, H. Helm, P. U. Jepsen, Far-infrared vibrational spectra of all-trans, 9-cis and 13-cis retinal measured by thz time-domain spectroscopy, *Chem. Phys. Lett.* **332**(3 - 4), pp. 389 (2000).
- [86] K. Izutsu, T. Koide, N. Takata, Y. Ikeda, M. Ono, M. Inoue, T. Fukami, E. Yonemochi, Characterization and quality control of pharmaceutical cocrystals, *Chemical and Pharmaceutical Bulletin* **64**(10), pp. 1421 (2016).
- [87] D. G. Allis, P. M. Hakey, T. M. Korter, The solid-state terahertz spectrum of mdma (ecstasy) - a unique test for molecular modeling assignments, *Chem. Phys. Lett.* **463**, pp. 353 (2008).
- [88] P. Bawuah, D. Markl, D. Farrell, M. Evans, A. Portieri, A. Anderson, D. Goodwin, R. Lucas, J. A. Zeitler, Terahertz-based porosity measurement of pharmaceutical tablets : a tutorial, *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves* **41**, pp. 450 (2020).
- [89] D. Alves-Lima, J. Song, X. Li, A. Portieri, Y. Shen, J. A. Zeitler, H. Lin, Review of terahertz-pulsed imaging for pharmaceutical film coating analysis, *Sensors* **20**(5), 1441 (2020).
- [90] P. Bawuah et J. A. Zeitler, Advances in terahertz time-domain spectroscopy of pharmaceutical solids : A review, *TrAC Trends in Analytical Chemistry* **139**, 116272 (2021).
- [91] J. A. Zeitler, Y. Shen, C. Baker, P. F. Taday, M. Pepper, T. Rades, Analysis of coating structures and interfaces in oral dosage forms by three dimensional terahertz pulsed imaging, *Journal of Pharmaceutical Sciences* **96**(2), pp. 330 (2007).
- [92] M. Chakraborty, P. Bawuah, N. Tan, T. Ervasti, P. Pääkkönen, J. A. Zeitler, J. Ketolainen, K.-E. Peiponen, On the correlation of effective terahertz refractive index and average surface roughness of pharmaceutical tablets, *J. Infrared. Milli. Terahz. Waves* **37**, 776 (2016).
- [93] R. Gente, A. Rehn, T. Probst, E.-M. Stübling, E. C. Camus, A. A. Covarrubias, J. C. Balzer, M. Koch, Outdoor measurements of leaf water content using thz quasi time-domain spectroscopy, *J. Infrared Milli. Terahz Waves* **39**, pp. 943 (2018).

- [94] R. Gente, N. Born, N. Voß, W. Sannemann, J. Léon, M. Koch, Evaluation of leaf water content from terahertz time-domain spectroscopic data, *J. Infrared Milli. Terahz Waves* **34**(3-4), pp. 316 (2013).
- [95] C. Jördens, M. Scheller, B. Breitenstein, D. Selmar, M. Koch, Evaluation of leaf water status by means of permittivity at terahertz frequencies, *Journal of Biological Physics* **35**(3), pp. 255 (2009).
- [96] H. J. Liebe, G. A. Hufford, T. Manabe, A model for the complex permittivity of water at frequencies below 1 thz, *International Journal of Infrared and Millimeter Waves* **12**, pp. 659 (1991).
- [97] C. Rønne, L. Thrane, P.-O. Åstrand, A. Wallqvist, K. V. Mikkelsen, S. R. Keiding, Investigation of the temperature dependence of dielectric relaxation in liquid water by thz reflection spectroscopy and molecular dynamics simulation, *J. Chem. Phys.* **107**, pp. 5319 (1997).
- [98] R. Gente et M. Koch, Monitoring leaf water content with thz and sub-thz waves, *Plant Methods* **00**, pp. 11 (2015).
- [99] J.-F. Daigle, F. Théberge, M. Henriksson, W. T.-J., S. Yuan, M. Châteauneuf, J. Dubois, M. Piché, S. L. Chin, Remote thz generation from two-color filamentation : long distance dependence, *Opt. Express* **20**(6), pp. 6825 (2012).
- [100] M. D. Segall, P. J. D. Lindan, P. M. J., C. J. Pickard, P. J. Hasnip, S. J. Clark, M. C. Payne, First-principles simulation : ideas, illustrations and the castep code, *J. Phys. : Condens. Matter* **14**, pp. 2717 (2002).
- [101] 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 terahertz pulse energies delivered by two-color air plasmas, *Optics Letters* **44**(6), pp. 1488 (2019).
- [102] N. Karpowicz, H. Zhong, J. Xu, K.-I. Lin, J.-S. Hwang, X.-C. Zhang, Comparison between pulsed terahertz time-domain imaging and continuous wave terahertz imaging, *Semicond.*

- Sci. Technol. **20**, pp. S293 (2005).
- [103] J. Dai, X. Xie, X.-C. Zhang, Detection of broadband terahertz waves with a laser-induced plasma in gases, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 103903 (2006).
- [104] E. Prost, V. Lorient, E. Constant, I. Compagnon, L. Bergé, F. Lépine, S. Skupin, Air-photonics terahertz platform with versatile micro-controller based interface and data acquisition, *Rev. Sci. Instrum.* **93**(3), 033004 (2022).
- [105] E. Prost, V. Lorient, E. Constant, I. Compagnon, L. Bergé, F. Lépine, S. Skupin, Air-photonics based terahertz source and detection system, *Eur. Phys. J. Spec. Top.* **00** (2022).
- [106] J. Hutter, M. Iannuzzi, F. Schiffmann, J. VandeVondele, Cp2k : Atomistic simulations of condensed matter systems, *WIREs Comput. Mol. Sci.* **4**(1), pp. 15 (2014).
- [107] L. Bergé, S. Skupin, R. Nuter, J. Kasparian, J.-P. Wolf, Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media, *Reports on Progress in Physics* **70**, 1633 (2007).
- [108] 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, *Optics Express* **25**(5), pp. 4720 (2017).
- [109] S. Engelbrecht, L. Bergé, S. Skupin, T. Wang, P. U. Jepsen, B. M. Fischer, Ultrabroadband spectroscopy for security applications, 40th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz waves (IRMMW-THz) **00** (2015).
- [110] Y. Abe, T. Seki, Y. Ohki, M. Mizuno, Identification of vibrational modes in thymine bases by broadband far-infrared absorption spectroscopy, *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, 052002 (2019).
- [111] T. R. Juliano, M. D. King, T. M. Korter, Evaluating london dispersion force corrections in crystalline nitroguanidine by terahertz spectroscopy, *Jpn. J. Appl. Phys.* **3**(3), pp. 281 (2013).

- [112] P. González de Alaiza Martínez, I. Babushkin, L. Bergé, S. Skupin, E. Cabrera-Granado, C. Köhler, U. Morgner, A. Husakou, J. Herrmann, Boosting terahertz generation in laser-field ionized gases using a sawtooth wave shape, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 183901 (2015).
- [113] T. Tajima et J. M. Dawson, Laser electron accelerator, *Phys. Rev. Lett.* **43**(4), 267 (1979).
- [114] P. Rawat, V. Rawat, B. Gaur, G. Purohit, Generation of terahertz radiation by intense hollow gaussian laser beam in magnetised plasma under relativistic-ponderomotive regime, *Physics of Plasmas* **24**(7), 073113 (2017).
- [115] P. Sprangle, J. R. Peñano, B. Hafizi, C. A. Kapetanacos, Ultrashort laser pulses and electromagnetic pulse generation in air and on dielectric surfaces, *Phys. Rev. E* **69**, 066415 (2004).
- [116] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, San Diego, 2001).
- [117] E. R. Peck et K. Reeder, Dispersion of air, *J. Opt. Soc. Am. A* **62**, 958 (1972).
- [118] C. Rullière, *Femtosecond Laser Pulses (Second Edition)* (Springer, New York, 2005).
- [119] D. Kartashov, S. Ališauskas, A. Pugžlys, A. A. Voronin, A. M. Zheltikov, A. Baltuška, Third- and fifth-harmonic generation by mid-infrared ultrashort pulses : beyond the fifth-order nonlinearity, *Optics Letters* **37**(12), pp. 2268 (2012).
- [120] S. Zahedpour, J. K. Wahlstrand, H. M. Milchberg, Measurement of the nonlinear refractive index of air constituents at mid-infrared wavelengths, *Optics Letters* **40**, 5794 (2015).
- [121] G. Méchain, *Etude de la filamentation d'impulsions laser femtosecondes dans l'air*, Thèse de Doctorat Ecole Polytechnique (2005).
- [122] G. Yang et Y. R. Shen, Spectral broadening of ultrashort pulses in a nonlinear medium, *Optics Letters* **9**(11), pp. 510 (1984).
- [123] J. H. Marburger, Self-focusing : Theory, *Prog. Quant. Electr.* **4**, pp. 35 (1975).
- [124] V. S. Averbakh, A. I. Makarov, V. I. Talanov, Stimulated raman scattering on rotational and vibrational transitions in nitrogen gas, *Sov. J. Quantum Electron.* **8**, pp. 472 (1978).

- [125] M. A. Henesian, C. D. Swift, J. D. Murray, Stimulated rotational raman scattering in nitrogen in long air paths, *Optics Letters* **10**(11), pp. 565 (1985).
- [126] A. Nguyen, Contrôle de rayonnements térahertz intenses produits par lasers femtosecondes et applications à la détection de molécules, Thèse de Doctorat Université Paris-Saclay (2019).
- [127] M. D. Skeldon et R. Bahr, Stimulated rotational raman scattering in air with a high-power broadband laser, *Optics Letters* **16**(6), pp. 366 (1991).
- [128] P. Sprangle, J. R. Peñano, B. Hafizi, Propagation of intense short laser pulses in the atmosphere, *Phys. Rev. E* **66**, 046418 (2002).
- [129] J. R. Peñano, P. Sprangle, P. Serafim, B. Hafizi, A. Ting, Stimulated raman scattering of intense laser pulses in air, *Phys. Rev. E* **68**, 056502 (2003).
- [130] T. A. Pitts, T. S. Luk, J. K. Gruetzner, T. R. Nelson, A. McPherson, S. M. Cameron, A. C. Bernstein, Propagation of self-focusing laser pulses in atmosphere : experiment versus numerical simulation, *J. Opt. Soc. Am. B* **21**, 2008 (2004).
- [131] A. I. Nikishov et V. I. Ritus, Ionization of atoms by an electromagnetic-wave field, *Sov. Phys. JETP* **25**, 145 (1967).
- [132] J. S. Cohen, Reexamination of over-the-barrier and tunneling ionization of the hydrogen atom in an intense field, *Phys. Rev. A* **64**(4), 043412 (2001).
- [133] Q. Zhang, P. Lan, P. Lu, Empirical formula for over-barrier strong-field ionization, *Phys. Rev. A* **90**(4), 043410 (2014).
- [134] 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).
- [135] A. Talebpour, J. Yang, S. L. Chin, Semi-empirical model for the rate of tunnel ionization in N₂ and O₂ molecule in an intense Ti:Saphir laser pulse, *Opt. Commun.* **163**, 29 (1999).

- [136] L. V. Keldysh, Ionization in the field of a strong electromagnetic wave, *Sov. Phys. JETP* **20**(5), 1307 (1965).
- [137] V. S. Popov, Tunnel and multiphoton ionization of atoms and ions in a strong laser field (keldysh theory), *Phys.-Usp.* **47**(9), 855 (2004).
- [138] L. D. Landau et E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics* (Pergamon, New York, 1965).
- [139] C. Tailliez, A. Stathopoulos, S. Skupin, D. Buožius, I. Babushkin, V. Vaižaitis, L. Bergé, Terahertz pulse generation by two-color laser fields with circular polarization, *New J. Phys.* **22**(10), 103038 (2020).
- [140] A. M. Perelomov, V. S. Popov, M. V. Teret'ev, Ionization of atoms in an alternating electric field : I, *Sov. Phys. JETP* **23**(5), 924 (1966).
- [141] X. M. Tong, Z. X. Zhao, C. D. Lin, Theory of molecular tunneling ionization, *Phys. Rev. A* **66**, 033402 (2002).
- [142] R. Nuter et L. Bergé, Pulse chirping and ionization of O₂ molecules for the filamentation of femtosecond laser pulses in air, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**(5), pp. 874 (2006).
- [143] K. C. Kulander, Multiphoton ionization of hydrogen : A time-dependant theory, *Phys. Rev. A* **35**, 445 (1987).
- [144] L. V. Keldysh, Multiphoton ionization by a very short pulse, *Phys.-Usp.* **60**(11), 1187 (2017).
- [145] M. V. Ammosov, N. B. Delone, V. P. Krainov, Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field, *Sov. Phys. JETP* **64**(6), 1191 (1986).
- [146] D. M. Volkov, Über eine klasse von lösungen der diraschen gleichung, *Z. Phys.* **94**, 250 (1935).
- [147] V. B. Berestetskii, E. M. Lifshitz, L. P. Pitaevskii, *Relyativistskaya Kvantovaya Teoriya* (Nauka, Moscow, 1968).

- [148] M. V. Ammosov, N. B. Delone, V. P. Krainov, Nonadiabatic tunnel ionization : Looking inside a laser cycle, *Phys. Rev. A* **64**(1), 013409 (2001).
- [149] NIST Atomic Spectra Database.
- [150] A. Debayle, P. González de Alaiza Martínez, L. Gremillet, L. Bergé, Nonmonotonic increase in laser-driven thz emissions through multiple ionization events, *Phys. Rev. A* **91**, 041801 (2015).
- [151] R. Nuter, L. Gremillet, E. Lefebvre, A. Lévy, T. Ceccotti, P. Martin, Field ionization model implemented in particle in cell code and applied to laser-accelerated carbon ions, *Phys. Plasmas* **18**, 033107 (2011).
- [152] P. González de Alaiza Martínez et L. Bergé, Influence of multiple ionization in laser filamentation, *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **47**, 204017 (2014).
- [153] C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, O. V. Chefonov, C. P. Hauri, Multi-octave spectrally tunable strong-field terahertz laser, *arXiv* **00**, 1608.05319 (2016).
- [154] J.-M. Rax, *Physique des Plasmas* (Dunod, Paris, 2005).
- [155] P. González de Alaiza Martínez, Generation of intense terahertz sources by ultrashort laser pulses, Thèse de Doctorat Université Paris-Saclay (2016).
- [156] O. D. Jefimenko, *Electricity and Magnetism : An Introduction to the Theory of Electric and Magnetic Fields* (Appleton-Century-Crofts, New York, 1966).
- [157] K. Y. Kim, J. H. Glowina, A. J. Taylor, G. Rodriguez, Terahertz emission from ultrafast ionizing air in symmetry-broken laser fields, *Optics Express* **15**(8), pp. 4577 (2007).
- [158] I. Babushkin, S. Skupin, A. Husakou, C. Köhler, E. Cabrera-Granado, L. Bergé, J. Herrman, Tailoring terahertz radiation by controlling tunnel photoionization events in gases, *New J. Phys.* **13**(12), 123029 (2011).
- [159] L. Bergé, Self-compression of 2 μ m laser filaments, *Opt. Express* **16**, 21529 (2008).

- [160] 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).
- [161] C. Meng, W. Chen, X. Wang, Z. Lü, Y. Huang, J. Liu, D. Zhang, Z. Zhao, J. Yuan, Enhancement of terahertz radiation by using circularly polarized two-color laser fields, *Appl. Phys. Lett.* **109**(13), 131105 (2016).
- [162] M. Kolesik, J. V. Moloney, M. Mlejnek, Unidirectional optical pulse propagation equation, *Phys. Rev. Lett.* **89**(28), 283902 (2002).
- [163] M. Kolesik et J. V. Moloney, Nonlinear optical pulse propagation simulation : From maxwell's to unidirectional equations, *Phys. Rev. E* **70**(3), 036604 (2004).
- [164] I. Babushkin, W. Kuehn, C. Köhler, S. Skupin, L. Bergé, K. Reimann, M. Woerner, J. Herrmann, T. Elsaesser, Ultrafast spatiotemporal dynamics of terahertz generation by ionizing two-color femtosecond pulses in gases, *Phys. Rev. Lett.* **105**(5), 053903 (2010).
- [165] S. Skupin, Nonlinear dynamics of trapped beams, Thèse de Doctorat Friedrich-Schiller-Universität Jena (2005).
- [166] N. Karpowicz et X.-C. Zhang, Coherent terahertz echo of tunnel ionization in gases, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 093001 (2009).
- [167] J. Dai, N. Karpowicz, X.-C. Zhang, Coherent polarization control of terahertz waves generated from two-color laser-induced gas plasma, *Phys. Rev. Lett.* **103**(2), 023001 (2009).
- [168] M. Li, W. Li, Y. Shi, P. Lu, H. Pan, H. Zeng, Verification of the physical mechanism of thz generation by dual-color ultrashort laser pulses, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 161104 (2012).
- [169] L.-L. Zhang, W.-M. Wang, T. Wu, R. Zhang, S.-J. Zhang, C.-L. Zhang, Y. Zhang, Z.-M. Sheng, X.-C. Zhang, Observation of terahertz radiation via the two-color laser scheme with uncommon frequency ratio, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 235001 (2017).
- [170] W.-M. Wang, Z.-M. Sheng, Y.-T. Li, Y. Zhang, J. Zhang, Terahertz emission driven by two-color laser pulses at various frequency ratios, *Phys. Rev. A* **96**, 023844 (2017).

- [171] F. Buccheri et X.-C. Zhang, Terahertz emission from laser-induced microplasma in ambient air, *Optica* **2**, 366 (2015).
- [172] M. Clerici, M. Peccianti, B. E. Schmidt, L. Caspiani, M. Shalaby, M. Giguère, A. Lotti, A. Couaïron, F. Légaré, T. Ozaki, D. Faccio, R. Morandotti, Wavelength scaling of terahertz generation by gas ionization, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 253901 (2013).
- [173] A. Nguyen, P. González de Alaiza Martínez, I. Thiele, S. Skupin, L. Bergé, Broadband terahertz radiation from two-color mid- and far-infrared laser filaments in air, *Phys. Rev. A* **97**, 063839 (2018).
- [174] V. Y. Fedorov et S. Tzortzakis, Optimal wavelength for two-color filamentation-induced terahertz sources, *Opt. Express* **26**, 31150 (2018).
- [175] D. Jang, R. M. Schwartz, D. Woodbury, J. Griff-McMahon, A. H. Younis, H. M. Milchberg, K.-Y. Kim, Efficient terahertz and brunel harmonic generation from air plasma via mid-infrared coherent control, *Optica* **6**, 1338 (2019).
- [176] A. D. Koulouklidis, C. Gollner, V. Shumakova, V. Y. Fedorov, A. Pugžlys, A. Baltuška, S. Tzortzakis, Observation of extremely efficient terahertz generation from mid-infrared two-color laser filaments, *Nat. Commun.* **11**, 292 (2020).
- [177] M. Esaulkov, O. Kosareva, V. Makarov, N. Panov, A. Shkurinov, Simultaneous generation of nonlinear optical harmonics and terahertz radiation in air : polarization discrimination of various nonlinear contributions, *Front. Optoelectron.* **8**, 73 (2015).
- [178] O. Kosareva, Polarization control of terahertz radiation from two-color femtosecond gas breakdown plasma, *Opt. Lett.* **43**, 90 (2018).
- [179] F. Théberge, N. Aközbek, W. Liu, A. Becker, S. L. Chin, Tunable ultrashort laser pulses generated through filamentation in gases, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 023904 (2006).
- [180] V. Loriot, E. Hertz, O. Faucher, B. Lavorel, Measurement of high order kerr refractive index of major air components, *Opt. Express* **17**, 13429 (2009).

- [181] H. Zhong, N. Karpowicz, X.-C. Zhang, Terahertz emission profile from laser-induced air plasma, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 261103 (2006).
- [182] V. Vaičaitis, M. Ivanov, K. Adomavičius, v. Svirskas, U. Morgner, I. Babushkin, Influence of laser-performed plasma on thz wave generation in air by bichromatic laser pulses, *Laser Phys.* **28**, 095402 (2018).
- [183] A. Stathopoulos, S. Skupin, L. Bergé, Terahertz pulse generation by multi-color laser fields with linear versus circular polarization, *Optics Letters* **46**(23), pp. 5906 (2021).
- [184] D. Ma, L. Dong, M. Zhang, T. Wu, Y. Zhao, L. Zhang, C. Zhang, Enhancement of terahertz waves from two-color laser-field induced air plasma excited using a third-color femtosecond laser, *Opt. Express* **28**, 20598 (2020).
- [185] D. Ma, L. Dong, R. Zhang, C. Zhang, Y. Zhao, L. Zhang, Enhancement of terahertz wave emission from air plasma excited by harmonic three-color laser fields, *Opt. Commun.* **481**, 126533 (2021).
- [186] H. Alirezaee, M. Sharifian, S. M. R. Darbani, M. Saeed, A. E. Majd, A. R. Niknam, Terahertz radiation emission from three-color laser-induced air plasma, *Eur. Phys. J. Plus* **135**, 342 (2020).
- [187] H. Wang, W. Fan, X. Chen, H. Yan, Polarization control of terahertz waves generated by a femtosecond three-color pulse scheme, *J. Opt. Soc. Am. B* **40**(6), pp. 1375 (2023).
- [188] P. B. Petersen et A. Tokmakoff, Source for ultrafast continuum infrared and terahertz radiation, *Opt. Lett.* **35**(12), pp. 1962 (2010).
- [189] C. Lu, C. Zhang, L. Zhang, X. Wang, S. Zhang, Modulation of terahertz-spectrum generation from an air plasma by tunable three-color laser pulses, *Phys. Rev. A* **96**, 053402 (2017).
- [190] S. Liu, Z. Fan, C. Lu, J. Gui, C. Luo, S. Wang, Q. Liang, B. Zhou, A. Houard, A. Mysyrowicz, V. Kostin, Y. Liu, Coherent control of boosted terahertz radiation from air plasma pumped by a femtosecond three-color sawtooth field, *Phys. Rev. A* **102**, 063522 (2020).

- [191] J. D. Bagley, C. D. Moss, S. A. Sorenson, J. A. Johnson, Laser-induced plasma generation of terahertz radiation using three incommensurate wavelength, *J. Phys. B* **51**, 144004 (2018).
- [192] V. Vaičaitis, O. Balachninaite, U. Morgner, I. Babushkin, Terahertz radiation generation by three-color laser pulses in air filament, *Journal of Applied Physics* **125**(17), 173103 (2019).
- [193] H. Enqvist, A setup for efficient frequency tripling of high-power femtosecond laser pulses (Lund Reports on Atomic Physics, LRAP-330, Lund, 2004).
- [194] S. Champeaux et L. Bergé, Postionization regimes of femtosecond laser pulses self-channeling in air, *Phys. Rev. E* **71**, 046604 (2005).
- [195] A. Stathopoulos, S. Skupin, L. Bergé, A raman-delayed nonlinearity for elliptically polarized ultrashort optical pulses, *Eur. Phys. J. Spec. Top.* **1** (2022).
- [196] P. Klarskov, A. C. Strikwerda, K. Iwaszczuk, P. U. Jepsen, Experimental three-dimensional beam profiling and modeling of a terahertz beam generated from a two-color air plasma, *New J. Phys.* **15**, 075012 (2013).
- [197] A. Gorodetsky, A. D. Koulouklidis, M. Massaouti, S. Tzortzakis, Physics of the broadband terahertz emission from two-color laser-induced plasma filaments, *Phys. Rev. A* **89**, 033838 (2014).
- [198] A. A. Ushakov, P. A. Chizhov, V. A. Andreeva, N. A. Panov, D. E. Shipilo, M. Matoba, N. Nemoto, N. Kanda, K. Konishi, V. V. Bukin, M. Kuwata-Gonokami, O. G. Kosareva, S. V. Garnov, A. B. Savel'ev, Ring and unimodal angular-frequency distribution of thz emission from two-color femtosecond plasma spark, *Opt. Express* **26**(14), pp. 18202 (2018).
- [199] M. Rasmussen, O. Nagy, S. Skupin, A. Stathopoulos, L. Bergé, P. U. Jepsen, B. Zhou, Frequency-resolved characterization of broadband two-color air-plasma terahertz beam profiles, *Optics Express* **31**(6), pp. 9287 (2023).
- [200] F. Théberge, W. Liu, P. T. Simard, A. Becker, S. L. Chin, Plasma density inside a

- femtosecond laser filament in air : Strong dependance on external focusing, *Phys. Rev. E* **74**, 036406 (2006).
- [201] I. A. Nikolaeva, D. E. Shipilo, N. A. Panov, W. Liu, A. B. Savel'ev, O. G. Kosareva, Scaling Law of THz Yield from Two-Color Femtosecond Filament for Fixed Pump Power, *Photonics* **9**(12), 974 (2022).
- [202] 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**(5) (2017).
- [203] J. R. Peñano, P. Sprangle, B. Hafizi, D. Gordon, P. Serafim, Terahertz generation in plasmas using two-color laser pulses, *Phys. Rev. E* **81**, 026407 (2010).
- [204] A. V. Balakin, A. V. Borodin, I. A. Kotelnikov, A. P. Shkurinov, Terahertz emission from a femtosecond laser focus in a two-color scheme, *J. Opt. Soc. Am. B* **27**(1), pp. 16 (2010).
- [205] I. S. Gradshteyn et I. M. Ryzhik, *Table of Integrals, Series, and Products*, Eighth Edition (Academic Press, San Diego, 2014).
- [206] L. Bergé, S. Skupin, C. Köhler, I. Babushkin, J. Herrmann, 3D Numerical Simulations of THz Generation by Two-Color Laser Filaments, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 073901 (2013).
- [207] S. Akturk, C. D'Amico, M. Franco, A. Couairon, A. Mysyrowicz, A simple method for determination of nonlinear propagation regimes in gases, *Opt. Express* **15**(23), pp. 15260 (2007).
- [208] M. Mlejnek, M. Kolesik, J. V. Moloney, E. M. Wright, Optically turbulent femtosecond light guide in air, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2938 (1999).
- [209] M. Born et E. Wolf, *Principles of Optics* (Pergamon, New York, 1959).
- [210] R. J. Noll, Zernike polynomials and atmospheric turbulence, *J. Opt. Soc. Am.* **66**(3) (1976).
- [211] A. A. Ionin, N. G. Iroshnikov, O. G. Kosareva, A. V. Larichev, D. V. Mokrousova, N. A. Panov, L. V. Seleznev, D. V. Sinitsyn, E. S. Sunchugasheva, Filamentation of femtosecond

- laser pulses governed by variable wavefront distortions via a deformable mirror, *J. Opt. Soc. Am. B* **30**(8) (2013).
- [212] D. V. Apeksimov, Y. E. Geints, A. A. Zemlyanov, A. M. Kabanov, V. K. Oshlanov, A. V. Petrov, G. G. Matvienko, Controlling tw-laser pulse long-range filamentation in air by a deformable mirror, *Applied Optics* **57**(33) (2018).
- [213] P. S. Salter et M. J. Booth, Adaptive optics in laser processing, *Light : Science & Applications* **8**(110) (2019).
- [214] E. J. Fernández et P. Artal, Membrane deformable mirror for adaptive optics : performance limits in visual optics, *Opt. Express* **11**(9) (2003).
- [215] M. Brossard, J.-F. Sauvage, M. Perrin, E. Abraham, Terahertz adaptive optics with a deformable mirror, *Optics Letters* **43**(7) (2018).
- [216] P. Hohenberg et W. Kohn, Inhomogeneous electron gas, *Phys. Rev.* **136**, pp. B864 (1964).
- [217] W. Kohn et L. J. Sham, Self-consistent equations including exchange and correlation effects, *Phys. Rev.* **140**, pp. A1133 (1965).
- [218] J. P. Perdew, K. Burke, M. Ernzerhof, Generalized gradient approximation for the exchange-correlation hole of a many-electron system, *Phys. Rev. B* **54**, pp. 16533 (1996).
- [219] C. Lee, W. Yang, R. G. Parr, Development of the colle-salvetti correlation-energy formula into a functional of the electron density, *Phys. Rev. B* **37**, pp. 785 (1988).

