

THÈSE

présentée

devant l'UNIVERSITÉ CLAUDE BERNARD - LYON I

pour l'obtention

du DIPLÔME de DOCTORAT

(arrêté du 30 mars 1992)

présentée et soutenue publiquement le

28 juin 2005

par

Guillaume MÉJEAN

Propagation d'impulsions TéraWatts femtosecondes dans l'atmosphère et applications

Directeur de thèse : Jean-Pierre Wolf

Jury :

Président :	M. G.	BOULON
Rapporteurs :	M. A.	MYSYROWICZ
	M. L.	WÖSTE
Examineurs :	M. L.	BERGÉ
	M. J.-P.	WOLF

THÈSE

présentée

devant l'UNIVERSITÉ CLAUDE BERNARD - LYON I

pour l'obtention

du DIPLÔME de DOCTORAT

(arrêté du 30 mars 1992)

présentée et soutenue publiquement le

28 juin 2005

par

Guillaume MÉJEAN

Propagation d'impulsions TéraWatts femtosecondes dans l'atmosphère et applications

Directeur de thèse : Jean-Pierre Wolf

Jury :

Président :	M. G.	BOULON
Rapporteurs :	M. A.	MYSYROWICZ
	M. L.	WÖSTE
Examineurs :	M. L.	BERGÉ
	M. J.-P.	WOLF

UNIVERSITE CLAUDE BERNARD LYON I

Président de l'Université

Vice-Président du Conseil Scientifique

Vice-Président du Conseil d'Administration

Vice-Président du Conseil des Etudes et de la Vie Universitaire

Secrétaire Général

M. le Professeur D. DEBOUZIE

M. le Professeur J.F. MORNEX

M. le Professeur R.GARRONE

M. Le Professeur G. ANNAT

M. J.P. BONHOTAL

SECTEUR SANTE

Composantes

UFR de Médecine Lyon R.T.H. Laënnec

UFR de Médecine Lyon Grange-Blanche

UFR de Médecine Lyon-Nord

UFR de Médecine Lyon-Sud

UFR d'Odontologie

Institut des Sciences Pharmaceutiques et Biologiques

Institut Techniques de Réadaptation

Directeur : M. le Professeur D. VITAL-DURAND

Directeur : M. le Professeur X. MARTIN

Directeur : M. le Professeur F. MAUGUIERE

Directeur : M. le Professeur F.N. GILLY

Directeur : M. O. ROBIN

Directeur : M. le Professeur F. LOCHER

Directeur : M. le Professeur L. COLLET

Département de Formation et Centre de Recherche en Biologie Humaine

Directeur : M. le Professeur P. PARGE

Département de Production et Réalisation Assistance Conseil en Technologie pour l'Education

Directrice : Mme. le Professeur M. HEYDE

SECTEUR SCIENCES

Composantes

UFR de Physique

UFR de Biologie

UFR de Mécanique

UFR de Génie Electrique et des Procédés

UFR Sciences de la Terre

UFR de Mathématiques

UFR d'Informatique

UFR de Chimie Biochimie

UFR STAPS

Observatoire de Lyon

Institut des Sciences et des Techniques de l'Ingénieur de Lyon

IUT A

IUT B

Institut de Science Financière et d'Assurances

Directeur : M. le Professeur A. HOAREAU

Directeur : M. le Professeur H. PINON

Directeur : M. le Professeur H. BEN HADID

Directeur : M. le Professeur A. BRIGUET

Directeur : M. le Professeur P. HANTZPERGUE

Directeur : M. le Professeur M. CHAMARIE

Directeur : M. le Professeur M. EGEA

Directeur : M. le Professeur J.P. SCHARFF

Directeur : M. le Professeur R. MASSARELLI

Directeur : M. le Professeur R. BACON

Directeur : M. le Professeur J. LIETO

Directeur : M. le Professeur C. COULET

Directeur : M. le Professeur R. LAMARTINE

Directeur : M. le Professeur J.C. AUGROS

Remerciements

Avant de commencer les remerciements, tâche au combien délicate, je tiens immédiatement à m'excuser auprès des différentes personnes que j'aurais pu oublier bien malgré moi. Cette tâche s'avère d'autant plus délicate que j'ai participé au cours de ce travail de thèse à de nombreuses et fructueuses collaborations, ce qui représente un grand nombre de personnes que je vais m'efforcer de ne pas oublier!!!!

Tout d'abord, je tiens à remercier Jean-Pierre Wolf, mon directeur de thèse. J'ai eu la chance de suivre plusieurs de ses cours, où il m'a transmis une part de son enthousiasme contagieux pour la recherche. Ensuite, au cours de mes trois années de thèse son enthousiasme ne s'est jamais démenti, mais mon travail a également été facilité par sa disponibilité, sa gentillesse ainsi que par le million d'idées qui ont germé dans son esprit. Pour toutes ces raisons et les autres, je tiens à t'exprimer, Jean-Pierre, toute ma gratitude :

Merci

Merci

Merci.

Je tiens également à remercier tout particulièrement Jérôme Kasparian, pour sa patience à répondre à toutes mes questions jour après jour, pour avoir lu et relu ce manuscrit, pour faire des soupes comme personne le soir après une longue journée de manip. Ton entrain et ta gentillesse font du travail un plaisir, alors je ne dirai plus qu'une chose :

Merci

Merci

Merci.

Je remercie également Michel Broyer et Christian Bordas, les directeurs successifs du laboratoire pour m'avoir accueilli au sein du LASIM pour mon stage de DEA ainsi que pour ma thèse. Je tiens également à vous remercier pour la promptitude avec laquelle vous avez toujours rempli les différents formulaires pour lesquelles j'étais en retard en vous les présentant.

Merci

Merci

Merci.

Merci aussi aux membres de mon jury de thèse, Luc Bergé, André Mysyrowicz, Georges Boulon et Ludger Wöste pour avoir amélioré mon manuscrit par vos remarques pertinentes. Je tiens également à vous remercier au titre des différentes collaborations que j'ai eu avec nombre d'entre vous. J'en profite pour remercier à cette occasion les membres de vos équipes respectives qui ont contribué aux expériences et à l'analyse des résultats de ce manuscrit. Je commence par les anciens (c'est à dire ceux qui étaient déjà quand je suis arrivé), à savoir Riad, venu m'aider à porter la Médox à la sortie du train à Jena,

et Miguel dont la minutie m’a beaucoup apporté. Merci à Bernard avec qui j’ai attendu l’orage au Nouveau-Mexique sous un ciel d’un magnifique bleu et à Grégoire dont j’ai lu les notes sur le cahier de manip (si seulement j’étais capable de tenir aussi bien le mien!!!). Merci également à Philipp et Kamil. On aura non-seulement bâti une jolie tour Eiffel et j’aurais particulièrement apprécié vos conseils pour visiter Berlin et m’avoir dit d’aller à Postdam : je suis tout à fait d’accord c’est très très beau. Je tiens également à remercier Stefan, Rachel et Stéphanie qui ont su faire des simulations donnant les mêmes résultats que nos manip.

Merci

Merci

Merci.

Un grand Merci également aux autres membres des différentes collaborations avec qui j’ai eu le plaisir de travailler, au CEAT avec Christian Davoise ainsi que les autres membres de son équipe. J’ai vu alors pour la première fois en votre compagnie des étincelles d’allume-gaz de plusieurs mètres et toutes droites en plus!!!

Je tiens également à remercier toutes les personnes de l’université technique de Berlin avec qui j’ai travaillé et en particulier Kay et Lars. Merci également à Bill & Bill, Graydon et Sandy du New-Mexico Tech ainsi qu’à Claude, Luc et Christophe. l’équipe de CNRS images grâce à qui j’ai si bien mangé. Je me souviens notamment de pomme terre au lard et au vin blanc, c’était top!!!

Je tiens également à dire Merci aux membres de l’observatoire de Tautenbourg avec qui il était très agréable de travailler dans un lieu si reposant le jour. Alors merci à Artie, Aleks, Jochen, Holger, Briegfried, Uwe.

Merci

Merci

Merci.

Enfin je tiens à remercier chaleureusement les téramobilistes lyonnais sans qui je n’aurais rien pu faire, c’est à dire, Estelle qui règle le laser à la vitesse femtoseconde et qui travaille à la puissance Térawatt, Jin qui transmet son inventivité des montages, sa patience devant de longues séries où on ne comprend pas toujours tout (mais on cherche), et pour son enthousiasme contagieux. Merci à toi aussi Roland pour la justesse de tes commentaires et ta rigueur. Un grand merci également à Véronique, François et Laurent pour leur disponibilité, le prêt de leur matériel, pour leurs commentaires avisés sur mes prestations orales, et pour des midi conviviaux. Merci aussi aux petits nouveaux, Mathieu, Mathieu et Pierre qui débutent leur thèse et bonne chance. Merci également à Jérôme et Vincent, les champions de la CRDS (il est pour quand le record du monde?), pour les pauses cafés que j’ai eu le plaisir de partager avec vous tout au long de ces années.

Enfin un immense Merci à Francisco qui a la patience de résoudre tous mes problèmes informatiques, à Marc qui fait des pièces non-seulement jolies mais aussi incroyablement pratiques (sincèrement je suis toujours épaté), à Marc Barbaire et Michel Kerlerou dont j'ai admiré certains de leurs travaux dans le Téramobile ou au labo. Merci également à Aurélie, Yvette et Anne pour faire les ordres de mission à l'échelle femtoseconde.

Merci

Merci

Merci.

Je finirai ces remerciements par les amis et la famille qui m'ont supporté pendant ces trois dernières années. Vu que ce sont les plus susceptibles je n'en citerai aucun, mais sachez que je vous remercie tous, alors pour une dernière fois, je vous dit à tous :

Merci

Merci

Merci

Merci

Merci.

Résumé

Les impulsions laser ultra-brèves (fs) et ultra-intenses (TW) forment, au cours de leur propagation non-linéaire dans l'atmosphère, des structures auto-guidées, d'une centaine de microns de diamètre, appelées filaments. Ces filaments résultent d'un équilibre dynamique entre l'effet Kerr qui focalise le faisceau et la défocalisation due au plasma généré au sein de ceux-ci.

Au cours de mon travail de thèse, nous avons mesuré que le spectre de lumière blanche issue de l'automodulation de phase et de la génération de troisième harmonique s'étend de l'ultra-violet (230 nm) à l'infrarouge ($4,5 \mu m$). De même, la propagation dans l'air, sous différentes conditions (pluie, brouillard, turbulence), des faisceaux térawatts femto-secondes a été caractérisée afin de développer des applications atmosphériques.

Il nous a ainsi été possible de développer le Lidar à lumière blanche pour réaliser des mesures préliminaires d'ozone et d'aérosols simultanément.

De même, grâce à la propagation fortement non-linéaire du faisceau qui permet de transporter des hautes intensités sur de longue distance, nous avons pu détecter et identifier, à distance, des aérosols biologiques et des cibles solides (LIBS) en induisant *in situ* des effets non-linéaires.

Enfin, nous avons montré que le déclenchement et le guidage de décharges de haute tension par une impulsion laser femtoseconde sous la pluie reste possible avec une efficacité comparable à l'atmosphère sèche. D'autre part, une configuration à double impulsion laser augmente l'efficacité de déclenchement des décharges. Ces résultats nous rapproche de la perspective de déclenchement et guidage de foudre par laser.

Table des matières

Remerciements	iv
Résumé	viii
Table des matières	xi
Introduction	1
1 État de l’art et méthodes utilisées	5
1.1 Filamentation dans l’air	5
1.1.1 Processus linéaires de la propagation	6
1.1.1.1 La diffraction	6
1.1.1.2 Dispersion de vitesse de groupe	7
1.1.2 Effet Kerr	8
1.1.3 Ionisation multiphotonique	9
1.1.4 La filamentation	9
1.1.5 Automodulation de phase	10
1.1.6 Distribution angulaire de la lumière blanche	12
1.1.7 Multi-filamentation et puissance critique	13
1.1.8 Modélisation de la filamentation	15
1.2 Le système Téramobile	17
1.2.1 Chaîne laser	17
1.2.2 Contrôle de la durée d’impulsion	18
1.2.3 Télescope d’émission	21
1.2.4 Salle de contrôle	21
1.3 Techniques LIDAR	22
1.3.1 Diffusion Rayleigh et diffusion Mie dans l’atmosphère	22
1.3.2 Principe du LIDAR	25
1.3.3 Compression géométrique	27
1.3.4 Inversion du signal LIDAR par la méthode des pentes	28
1.3.5 Du DIAL au LIDAR à lumière blanche	28
1.3.6 L’observatoire de Tautenburg	30

1.4	Conclusion	34
2	Propagation dans l'air d'impulsions femtosecondes térawatts	37
2.1	Multi-filamentations dans l'air d'impulsions femtosecondes térawatts	38
2.1.1	Naissance des filaments	39
2.1.2	Des filaments continus	41
2.1.3	Conclusions	43
2.2	Propagation des filaments sous diverses conditions atmosphériques	44
2.2.1	Propagation dans le régime multi-filaments à travers un nuage	46
2.2.1.1	Dispositif expérimental	46
2.2.1.2	Résultats et Discussions	46
2.2.1.3	Analyses numériques	49
2.2.1.4	Génération des filaments sous la pluie	51
2.2.1.5	Conclusion	53
2.2.2	Propagation sous pression réduite	53
2.2.2.1	Dispositif expérimental	54
2.2.2.2	Résultats et discussion	54
2.2.2.3	Conclusion	57
2.2.3	Effet de la turbulence	57
2.2.3.1	Dispositif expérimental	57
2.2.3.2	Détermination du paramètre de structure de l'indice de réfraction C_n^2	58
2.2.3.3	Résultats et discussion	59
2.2.4	Conclusion	62
2.3	Lumière blanche générée par troisième harmonique	62
2.3.1	Dispositif expérimental	63
2.3.2	Résultats	63
2.3.3	Analyse des résultats et comparaison avec les simulations	64
2.3.4	Conclusion	65
3	Le Lidar à lumière blanche	69
3.1	Spectre ultraviolet à longue distance	69
3.1.1	Dispositif expérimental	69
3.1.2	Des mesures préliminaires de la concentration d'ozone	70
3.1.3	Supercontinuum dans l'ultraviolet généré par la propagation non- linéaire à longue distance	72
3.1.4	Émission conique du supercontinuum UV	73
3.2	LIDAR infrarouge	75
3.2.1	Dispositif expérimental	75

3.2.2	Analyses des résultats	76
3.2.3	Comparaison avec le spectre mesuré en laboratoire	77
3.2.3.1	La diffusion Mie	78
3.2.3.2	Diffusion multiple Mie	78
3.2.3.3	Procédure de modélisation	79
3.2.3.4	Résultats et discussion	80
3.2.4	Du spectre ultraviolet au spectre infrarouge à longue distance . . .	82
3.3	Un LIDAR multi-paramètres pour caractériser les nuages	84
3.3.1	Le dispositif expérimental	85
3.3.2	Détermination de la distribution en taille des gouttes d'eau à partir de l'analyse angulaire de la diffusion multiple Mie	86
3.3.3	Détermination de l'humidité relative	91
3.3.4	Conclusion et perspectives	96
4	Les filaments pour s'affranchir de la limite de diffraction	99
4.1	Le LIDAR non-linéaire : détection et identification d'aérosols biologiques .	99
4.1.1	Dispositif expérimental	100
4.1.2	Analyse des résultats	101
4.1.3	Comparaison des performances du LIDAR non-linéaire avec celles du LIDAR linéaire	103
4.1.4	Conclusion et perspectives	106
4.2	La méthode "R-FIBS"	107
4.2.1	La technique "LIBS"	107
4.2.2	L'apport des impulsions femtosecondes à la technique LIBS	108
4.2.2.1	Dispositif expérimental	108
4.2.2.2	Une ablation avec un moindre dommage	109
4.2.2.3	Des spectres "propres" non pollués par l'environnement . .	110
4.2.2.4	Décroissance du signal "LIBS" excité par des impulsions femtosecondes et picosecondes	112
4.2.2.5	Conclusions et perspectives de cette étude	113
4.2.3	La technique R-FIBS	114
4.2.3.1	Dispositif expérimental	114
4.2.3.2	Une ablation sans cratère	115
4.2.3.3	Analyse de l'émission plasma induite par les filaments . .	116
4.2.3.4	Influence de la distance sur le signal FIBS	117
4.2.3.5	Vers la télédétection du signal FIBS à l'échelle kilométrique	118
4.2.3.6	Les filaments induisent un signal plasma jusqu'à au moins 180 m	120
4.2.4	Conclusions et perspectives	121

5	Vers un paratonnerre laser ?	125
5.1	Introduction	125
5.2	Les différentes approches laser et principe du guidage par des filaments . .	127
5.2.1	Différentes approches	127
5.2.2	Principe du guidage par des filaments	127
5.3	Déclenchement de décharges de haute tension sous la pluie	130
5.3.1	Dispositif expérimental	131
5.3.2	Analyses des résultats	132
5.3.2.1	Calcul de l'intervalle de confiance	133
5.3.2.2	Influence de la pluie sur le taux des décharges libres	134
5.3.2.3	Efficacité du guidage et du déclenchement de décharge de haute tension par laser sous la pluie	135
5.3.2.4	Discussion	136
5.3.3	Conclusion	138
5.4	Augmentation de l'efficacité de déclenchement	138
5.4.1	Dispositif expérimental	139
5.4.2	Résultats	140
5.4.3	Élément de l'effet de la deuxième impulsion	141
5.4.3.1	Évaluation de l'ionisation par avalanche	142
5.4.3.2	Évaluation de l'effet du chauffage de plasma	143
5.4.3.3	Estimation de l'effet du photodétachement	143
5.4.4	Conclusion et perspectives	144
5.5	Guider et déclencher la foudre à l'échelle atmosphérique ?	145
	Conclusion	149
	Bibliographie	153
	Liste des tableaux	167
	Liste de publications	169

Introduction

Avec l'avènement des lasers femtosecondes amplifiés [1], les faisceaux lasers d'énergie inférieure au Joule atteignent des puissances de plusieurs térawatts. La propagation dans l'air de tels faisceaux est alors fortement non-linéaire et se fait sous la forme de structures autoguidées : des filaments qui permettent de s'affranchir de la limite de diffraction. La figure 1 montre la propagation des filaments de lumière blanche générés dans l'atmosphère par un laser femtoseconde térawatt émis à 800 nm. Alors que l'émission laser est dans l'infrarouge, la propagation du faisceau génère de nouvelles fréquences et se fait sous la forme d'un "laser blanc" [2], visible à l'oeil nu (cf. Fig. 1). Les filaments, d'un diamètre d'une centaine de microns, peuvent se propager sur plusieurs centaines de mètres et transportent des hautes intensités entre 10^{13} W/cm^2 et 10^{14} W/cm^2 .

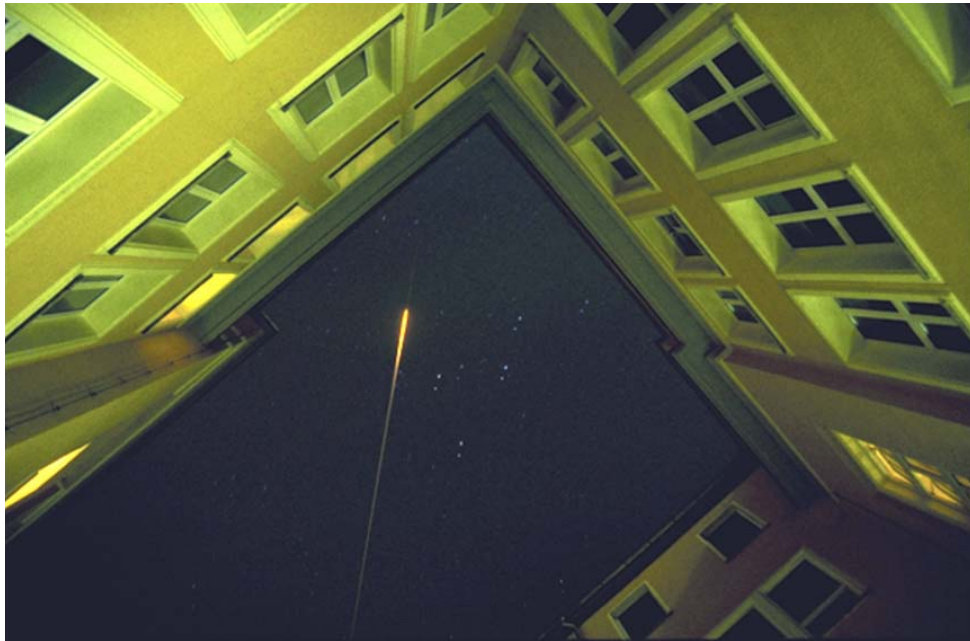


Fig. 1 – Filament de lumière blanche généré dans l'atmosphère par un laser femtoseconde térawatt émis à 800 nm (Photo K. Wedekind).

Les propriétés originales de ces filaments ouvrent de nouvelles perspectives quant aux développements d'applications atmosphériques [3]. En particulier, nous avons tenté de dépasser les limitations de la technique LIDAR (Light Detection And Ranging) classique qui sert à cartographier en 3 dimensions la concentration d'un polluant, en développant le

LIDAR non-linéaire qui permet d'envisager la détection de nombreux polluants en même temps, la caractérisation de la distribution en taille et la composition des aérosols. De plus, grâce aux canaux de plasma générés au sein des filaments, le déclenchement de foudre par laser, qui a été testé sans succès dès les années 1980, va peut-être enfin, être rendu possible.

Les applications envisagées nécessitent de caractériser, sur plusieurs centaines de mètres, voire plusieurs kilomètres, la propagation non-linéaire des impulsions lasers ultra-brèves et de haute intensité. À cet effet, des expériences de terrain, dans des conditions atmosphériques difficiles, orages, pluies, brouillards, températures extrêmes sont nécessaires. C'est pour remplir cet objectif que la collaboration TéraMobile, un projet franco-allemand qui réunit quatre laboratoires¹, a réalisé un véritable exploit technique en construisant le premier laser térawatt femtoseconde mobile au monde. C'est ainsi qu'un laser femtoseconde et ultra-intense, habituellement de grand encombrement et délicat à manier, a pu sortir des laboratoires où ce type de lasers était cantonné jusque là.

Cette mobilité nous a permis de réaliser diverses campagnes de mesures, de deux à trois mois, parfois dans des conditions extrêmes comme à 3200 m d'altitude au Nouveau Mexique au sommet du mont South Baldy. La propagation horizontale non-linéaire des impulsions femtosecondes térawatts a pu être caractérisée sur plusieurs centaines de mètres, et même jusqu'à plusieurs kilomètres, et ceci sous diverses conditions atmosphériques, telles que le brouillard, la pluie, ou encore à pression réduite. Des outils exceptionnels comme le laser TéraMobile et un télescope astronomique ont pu être associés en un même lieu, pour étudier la propagation verticale du faisceau.

En parallèle aux expériences de terrain et à grande échelle qui nécessitent la chaîne laser du TéraMobile, des expériences dans des conditions expérimentales de laboratoire, ont été réalisées au LASIM. Le faisceau d'un laser ultra-bref de quelques millijoules se propageait alors sur quelques mètres de distance. C'est ainsi que la génération de troisième harmonique a pu être mesurée et comparée au modèle théorique. L'effet de la turbulence de l'air sur la propagation des filaments a pu être également caractérisée en laboratoire.

D'autres campagnes de mesures ont permis de développer des techniques Lidar innovantes. Nous avons ainsi démontré qu'à partir du même laser, la température et l'humidité relative et la distribution en taille des gouttes d'un nuage pouvaient être déterminés si-

¹Il s'agit de :

- le Laboratoire d'Optique Appliquée de l'École Nationale Supérieure des Techniques Avancées à Palaiseau (France), A. Mysyrowicz ;
- l'Institut für Quantenelektronik de l'université Friedrich Schiller de Jéna (Allemagne), R. Sauerbrey ;
- l'Institut für Experimentalphysik de l'université libre de Berlin (Allemagne), L. Wöste ;
- le Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire de l'université Lyon 1 (France), J.-P. Wolf ;

multanément. Grâce à la génération de troisième harmonique, des mesures préliminaires de la concentration d’ozone et d’aérosols ont été obtenues.

Grâce à la propagation non-linéaire d’un faisceau laser femtoseconde ultra-intense, pour la première fois, des aérosols biologiques ont pu être détectés et identifiés à distance en excitant *in situ* la fluorescence à plusieurs photons de fluorophores naturels. De plus, nous avons développé une nouvelle méthode, tirant partie des hautes intensités transportées par les filaments, pour analyser à longue distance des cibles solides par la technique “LIBS” (Laser Induced Breakdown Spectroscopy, spectroscopie de plasma créé par laser).

Le TéraMobile a également pu être placé dans un laboratoire haute tension de manière à tester le déclenchement de décharges de haute tension sur quelques mètres. Une campagne de déclenchement de foudre a pu être menée à l’Observatoire Langmuir à 3200 m d’altitude au Nouveau Mexique près de Socorro.

Après avoir introduit dans le premier chapitre la filamentation, les méthodes utilisées ainsi que les dispositifs expérimentaux, ces différentes applications seront développées successivement au cours de ce manuscrit.

Chapitre 1

État de l’art et méthodes utilisées

Ce premier chapitre servira d’abord à introduire les lois qui régissent la propagation dans l’air des impulsions lasers femtosecondes térawatts. Lors de mon travail de thèse, ces impulsions lasers étaient générées par la chaîne laser du TéraMobile, le seul laser femtoseconde térawatt mobile au monde que je décrirai succinctement. Sa mobilité nous a permis de réaliser des expériences de terrain, irréalisables en laboratoire. Il a notamment été possible de rassembler en un même lieu des outils exceptionnels comme un télescope astronomique et un laser térawatt. C’est ce qui a été réalisé à l’observatoire de Tautenburg, près de Jena, en Allemagne afin d’étudier la propagation verticale à très grande distance (plusieurs kilomètres) et pour développer de nouvelles méthodes LIDAR (LIght Detection And Ranging). Cette technique étant utilisée sous de nombreuses formes au cours de mon travail de thèse, je la décrirai en détail au cours de ce chapitre. Je décrirai également les installations de l’observatoire de Tautenburg que nous avons utilisées à cet effet.

1.1 Filamentation dans l’air

Depuis les années 1970, les non-linéarités de la propagation d’impulsions lasers de haute puissance crête dans les milieux denses et transparents ont été largement étudiées. C’est le cas, par exemple, du mélange à quatre ondes (Four Wave Mixing (FWM) [4]), de l’autofocalisation [5], de l’automodulation de phase (Self Phase Modulation (SPM) [6, 7, 8]), etc. Cependant, c’est avec l’avènement des lasers de très haute puissance, grâce à la technique d’amplification à dérive de fréquence (Chirped Pulse Amplification (CPA) [1]), que les mêmes phénomènes ont pu être observés dans des milieux dilués tels que l’air avec la propagation d’impulsions femtosecondes térawatts. Nous allons ici passer en revue les différents processus impliqués dans la propagation dans l’air de telles impulsions en commençant par les phénomènes linéaires. Cela me permettra de définir un grand nombre de grandeurs physiques que je réutiliserai par la suite.

1.1.1 Processus linéaires de la propagation

1.1.1.1 La diffraction

Comme toute onde qui se propage, une impulsion laser collimatée est soumise à la diffraction qui l'élargit spatialement. Cet élargissement est caractérisé par la longueur de Rayleigh $L_R = kw_0^2/2$ où k est le nombre d'onde et w_0 le rayon minimum du faisceau laser. L_R représente la distance de propagation sur laquelle les caractéristiques du plan d'onde peuvent être considérées comme constantes ou encore la distance sur laquelle le rayon du laser est multiplié par $\sqrt{2}$ par la diffraction. Pour un faisceau de rayon minimum de $100 \mu m$ à 800 nm (typiquement un filament), la longueur de Rayleigh est $L_R \approx 1 \text{ cm}$. Cela signifie que l'élargissement par la diffraction naturelle d'un faisceau collimaté de diamètre $100 \mu m$ s'observe sur 1 cm et devrait interdire l'existence de structures autoguidées stables telles que les filaments.

La diffraction limite la focalisation et la propagation collimatée d'un faisceau laser linéaire. De ce fait, le diamètre de la tache focale augmente linéairement avec la distance de focalisation pour un système donné. En effet, la propagation d'un faisceau gaussien est décrite par [9] :

$$I(z, \rho) = I_0 \exp\left(-\frac{\rho^2}{R^2(z)}\right) = I_0 \exp\left(-\frac{\rho^2}{w_0^2 \left(1 + \frac{(z-f)^2}{L_R^2}\right)}\right) \quad (1.1)$$

où ρ est la distance par rapport à l'axe z , $R(z)$ le rayon du faisceau au point z , f la distance focale et $z = 0$ la position du laser.

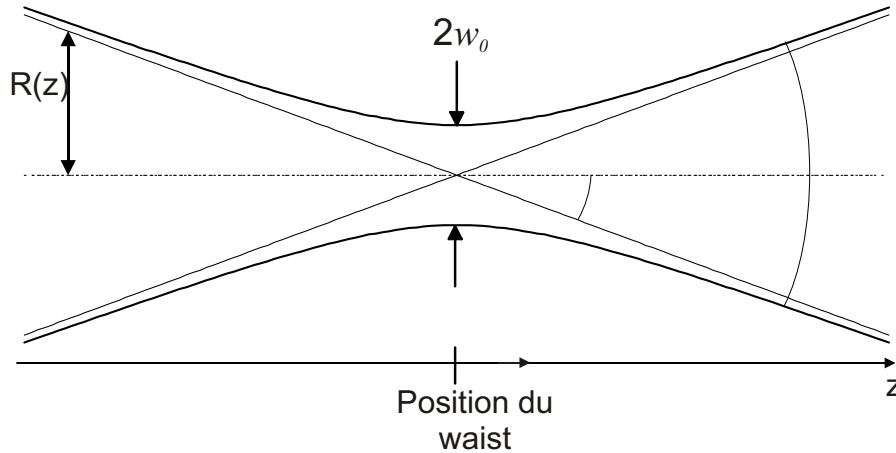


Fig. 1.1 – Caractéristiques géométriques de la propagation linéaire d'un faisceau gaussien

Cela signifie que lorsque l'on focalise un faisceau laser gaussien à la distance $f \gg L_R$, à partir d'un miroir de rayon $R = R(z = 0)$, on a :

$$R^2 = w_0^2 \left(1 + \frac{f^2}{L_R^2}\right) \quad (1.2)$$

En réalisant un développement limité au premier ordre en L_R/f , on trouve que le rayon du laser dans la tache focale est relié à la distance de focalisation, à la longueur d'onde du laser et au rayon initial du faisceau qui est limité par les bords du miroir de rayon R :

$$w_0 = \frac{\lambda f}{R\pi} \quad (1.3)$$

Cette expression montre que la tache focale du laser augmente linéairement avec la distance de focalisation et donc que l'intensité du faisceau au foyer décroît en $1/f^2$. Pour atteindre de hautes intensités à longue distance, il faut augmenter de façon déraisonnable la taille des optiques de focalisation et en particulier le diamètre du miroir sphérique ou de la lentille utilisée pour focaliser le faisceau. On peut considérer que le coût, les contraintes pratiques et les aberrations limitent le diamètre à 20 cm, soit $w_0 = 0,8$ mm à $\lambda = 532$ nm et à la distance $f = 1000$ m. Un diamètre de 0,8 mm est un minorant. En effet, le profil du faisceau n'est jamais parfaitement gaussien ce qui empêche une telle focalisation. Cependant, la dépendance linéaire en f ne dépend pas du profil du laser. La propagation linéaire montre ainsi ses limites à longue distance. Nous verrons au chapitre 4 qu'il est possible de s'affranchir de la limite de la diffraction grâce à des effets non-linéaires.

1.1.1.2 Dispersion de vitesse de groupe

Une autre limitation au transport de puissance crête est la dispersion de vitesse de groupe (DVG). En effet, les impulsions femtosecondes, comme le montre la relation de Fourier $\Delta\nu\Delta\tau = K$ (où $\Delta\nu$ est la largeur spectrale de l'impulsion, $\Delta\tau$ la durée d'impulsion et K une constante de l'ordre de l'unité), ont nécessairement un spectre large ($\Delta\lambda > 15$ nm pour une impulsion de 60 fs à 800 nm). Or l'indice de réfraction de l'air dépend de la longueur d'onde. Cette dépendance est bien décrite par la formule empirique de Rank [10], où k est le nombre d'onde et s'exprime en μm^{-1} :

$$(n_0 - 1) \times 10^8 = 6432,8 + \frac{294810}{146 - k^2} + \frac{25540}{41 - k^2} \quad (1.4)$$

Cette variation d'indice avec la longueur d'onde, bien que très faible ($\Delta n_0 = 4 \times 10^{-5}$ entre $\lambda_1 = 790$ nm et $\lambda_2 = 805$ nm), doit être prise en compte lorsqu'il s'agit d'étudier la propagation des faisceaux femtosecondes sur de longues distances (environ 1 km). On introduit à cet effet $k'' = \partial^2 k / \partial \omega^2 = 0,2 \text{ fs}^2/\text{cm}$. Ainsi, une impulsion initiale de 60 fs à 800 nm, est élargie à 1 ps après un kilomètre de propagation dans l'air. Il est donc impossible de propager élastiquement une impulsion ultra-brève sur de grandes distances : l'impulsion s'étalerait temporellement et sa puissance crête diminuerait. Cependant, nous verrons au paragraphe 1.2.2, comment cette dispersion de vitesse de groupe peut être compensée à notre avantage.

1.1.2 Effet Kerr

Passons maintenant aux processus non-linéaires de la propagation mis en jeu, lors de la propagation des impulsions femtosecondes térawatts. L'intérêt des impulsions ultra-brèves est leur propagation non-linéaire. Le premier processus non-linéaire rencontré est l'effet Kerr. Les hautes intensités conduisent à une modification de l'indice de réfraction du milieu, qui peut s'exprimer comme une série de Taylor de l'intensité. Aux puissances usuelles, seul l'ordre 0 est significatif, ce qui correspond à un indice constant. Cependant aux hautes intensités atteintes lors de la propagation dans l'air d'une impulsion laser femtoseconde térawatt, on doit considérer un développement à l'ordre 2, en ce qui concerne le champ électrique E , ce qui correspond à l'ordre 1 pour l'intensité I . L'indice s'écrit alors :

$$n = n_0 + n_2 I \quad (1.5)$$

où $n_2 = \left(3\Re \left(\chi^{(3)}(\omega, -\omega, \omega) \right) \right) / (4n_0^2 \epsilon_0 c)$ est l'indice non-linéaire du deuxième ordre et I l'intensité de l'impulsion. Si l'impulsion incidente présente un profil spatial non uniforme (par exemple une gaussienne), le chemin optique parcouru par le centre de l'impulsion sera plus grand que celui qui est parcouru par les ailes de l'impulsion. Le faisceau crée ainsi sa propre lentille convergente, appelée lentille de Kerr qui focalise la faisceau sur lui-même. Introduisons la puissance du faisceau P_{crit} pour laquelle l'effet Kerr compense la défocalisation due à la diffraction :

$$P_{crit} = \frac{3,77 \cdot \lambda^2}{8 \cdot \pi \cdot n_0 \cdot n_2} \quad (1.6)$$

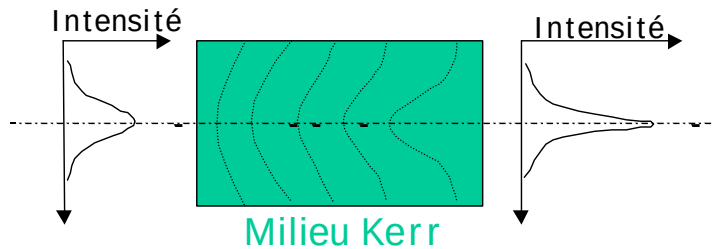


Fig. 1.2 – Principe de la lentille à effet Kerr où le chemin parcouru par le centre de l'impulsion est supérieur à celui parcouru par les ailes du faisceau ce qui conduit à une courbure de plus en plus en grande du front d'onde et à l'effondrement du faisceau sur lui-même

Si la puissance dépasse cette puissance critique, alors le faisceau commence à se focaliser sous l'action de la lentille de Kerr. Cependant la lentille de Kerr n'est pas une simple lentille mince en raison de l'effet cumulatif. Comme le faisceau se focalise, l'intensité augmente et la lentille Kerr devient plus forte. En l'absence d'autre processus limitant l'effet Kerr, cela conduirait à un "effondrement catastrophique", où toute l'énergie du faisceau serait focalisée en un point (cf. Fig. 1.2) [11].

1.1.3 Ionisation multiphotonique

Cependant l'autofocalisation ne peut pas se poursuivre jusqu'à l'effondrement du faisceau. L'effet Kerr génère en effet au centre du faisceau une telle intensité que des effets non-linéaires d'ordres supérieurs entrent en jeu. Les hautes intensités lasers donnent naissance à l'ionisation multiphotonique. A 800 nm, 8 et 11 photons sont respectivement nécessaires pour la première ionisation de O_2 et de N_2 , ce qui requiert des intensités de $10^{13} - 10^{14} W/cm^2$. L'ionisation rapide du milieu conduit à la formation d'un plasma le long du faisceau laser. À l'aide du modèle de Drude [12], la modification de l'indice de réfraction due au plasma s'exprime par :

$$\Delta n = \left(-1 + i \frac{\nu}{\nu_e} \right) \cdot \frac{N_e}{2N_{crit}} \quad (1.7)$$

où

- ν est la fréquence de l'impulsion laser ;
- ν_e est la fréquence de collisions électrons-ions ;
- N_e est la densité d'électrons libres ;
- m_e est la masse des électrons
- et $N_{crit} = \epsilon_0 m_e 4\pi^2 \nu^2 / e^2$ représente la densité critique d'électrons libres au-delà de laquelle se produit une augmentation drastique du coefficient d'absorption. À 800 nm, $N_{crit} \approx 1,7 \times 10^{21} cm^{-3}$ soit 100 fois la densité des molécules dans l'air.

L'expression 1.7 est seulement valable pour un plasma peu dense, c'est à dire quand $N_e \ll N_{crit}$. Cette hypothèse de quasi-transparence est bien vérifiée car la variation de l'indice de réfraction réel devient négative et donc le faisceau tend à être défocalisé par le plasma. Dans les filaments, des mesures donnent typiquement que $N_e \approx 10^{16} cm^{-3}$ [13]. C'est ce mécanisme d'ionisation de l'air qui augmente sa conductivité électrique. Les filaments sont ainsi utilisés pour le déclenchement de la foudre. Je détaillerai cet aspect, lors du dernier chapitre consacré à ce type d'expériences.

1.1.4 La filamentation

Lorsque que l'autofocalisation par effet Kerr, la défocalisation induite par le plasma, la diffraction et la dispersion de vitesse de groupe sont considérées individuellement, la propagation à longue distance d'impulsions laser de forte puissance (de l'ordre du GW à quelques TW) dans l'air ne paraît pas possible. Mais la combinaison de ces phénomènes, sous la forme d'un équilibre dynamique entre l'autofocalisation par effet Kerr, la défocalisation due au plasma et la diffraction, peut conduire à une ou plusieurs structures autoguidées, appelées filaments qui peuvent se propager sur plusieurs centaines de mètres, soit 10 000 fois la longueur de Rayleigh pour un filament.

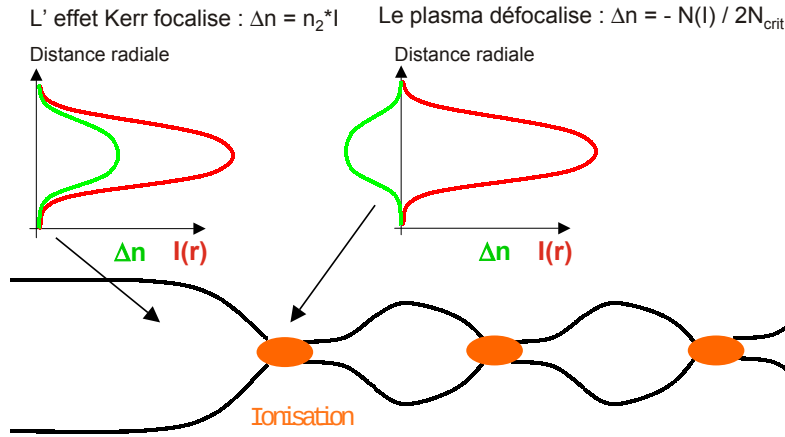


Fig. 1.3 – Équilibre entre la focalisation par effet Kerr, la défocalisation par le plasma et la diffraction naturelle conduisant à une structure autoguidée appelée filament

Pour expliquer la filamentation, trois modèles reposant sur cette idée d'équilibre ont été proposés :

- le “moving focus” [14] où les différentes tranches de temps de l'impulsion se focalisent à différentes distances en raison de leurs puissances respectives.
- l'auto-guidage [15, 16] où l'effet Kerr et la défocalisation sur plasma se combinent pour former une structure analogue à un guide d'onde qui consiste en un coeur faiblement ionisé entouré d'une couche d'indice plus élevée.
- le réapprovisionnement dynamique [11] qui est issu de simulations numériques et qui suppose des échanges d'énergie entre la globalité du faisceau avec le ou les filament(s). Je reviendrai sur ce modèle dans le chapitre consacré à la propagation.

Pour ces trois modèles, la filamentation débute par l'autofocalisation due à l'effet Kerr. Une fois que l'intensité du faisceau laser a atteint la valeur nécessaire pour induire une ionisation partielle de l'air, le faisceau tend à se défocaliser en raison de la décroissance de l'indice de réfraction due au plasma. Le diamètre du faisceau augmentant, l'intensité du faisceau retombe, la densité de plasma diminue et l'effet de défocalisation dû au plasma se réduit. Le processus d'autofocalisation reprend alors le dessus et le cycle précédent recommence. La figure 1.3 représente les effets non-linéaires qui régissent la propagation d'un faisceau femtoseconde térawatt.

1.1.5 Automodulation de phase

L'analogie de l'effet Kerr se manifeste aussi dans l'espace temporel. En effet, l'indice de réfraction non-linéaire, dans les ailes de l'impulsion (au début et à la fin de l'impulsion), où l'intensité du faisceau est plus faible, n'est pas la même qu'au sommet de l'impulsion où l'intensité est grande. Il se produit alors un déphasage dépendant du temps : l'au-

tomodulation de phase (self phase modulation (SPM)). La fréquence instantanée étant proportionnelle à la dérivée de la phase, cela se traduit par la génération de nouvelles fréquences ν sur le front montant ($\Delta\nu < 0$) et sur le front descendant ($\Delta\nu > 0$) de l'impulsion comme le traduisent les équations ci-dessous écrites dans le référentiel attaché à l'impulsion où Φ représente la phase de l'impulsion, ω_0 la pulsation propre de l'impulsion et O_z l'axe de propagation.

$$\Phi(t) = \omega_0 t - \frac{\omega_0 z}{c} n(t) = \omega_0 t - \frac{\omega_0 z}{c} (n_0 - n_2 I(t)) \quad (1.8)$$

$$\omega(t) = \frac{d\Phi}{dt} = \omega_0 - \frac{\omega_0 n_2 z}{c} \frac{dI}{dt} \quad (1.9)$$

Dans le domaine temporel, l'enveloppe et la pulsation de l'impulsion sont modifiées comme le montre la figure 1.4.

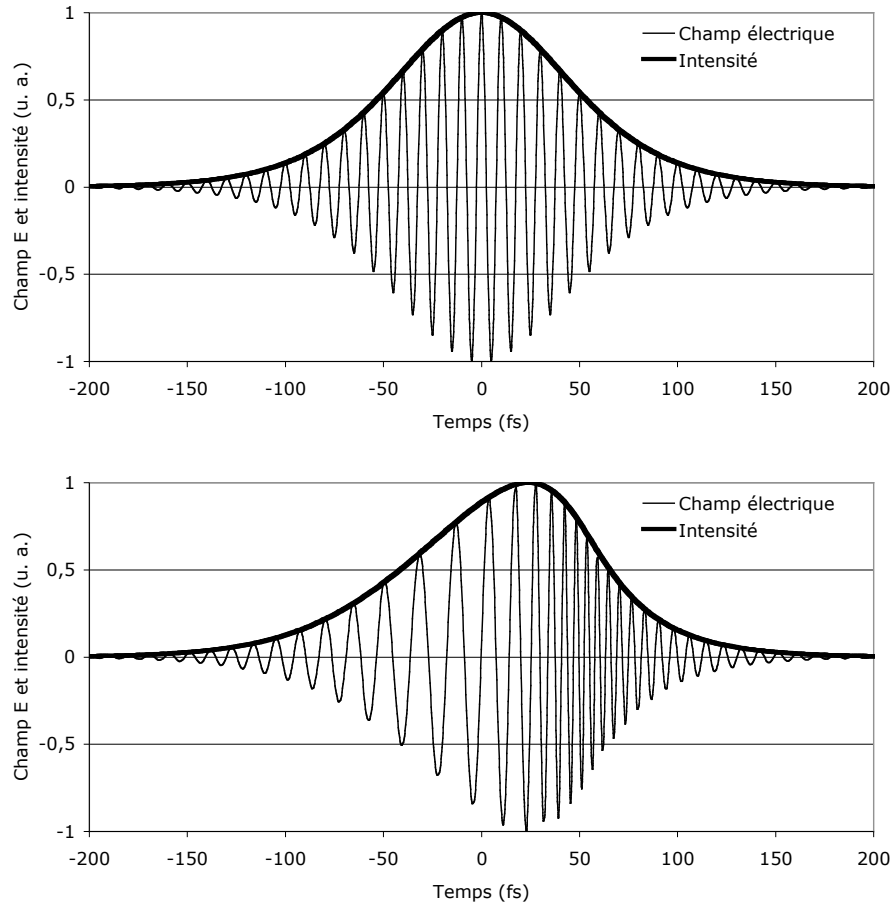


Fig. 1.4 – Génération de basses et hautes fréquences sur le front montant et respectivement sur le front descendant de l'impulsion par automodulation de phase

Cela se traduit sur le spectre de l'impulsion laser par la génération de nouvelles fréquences et donc un fort élargissement du spectre. De nombreux polluants comme le méthane à $1,6 \mu m$ sont couverts par ce spectre. Après la propagation du faisceau d'un laser

femtoseconde térawatt sur quelques mètres, l'équipe du TéraMobile a pu mesurer un élargissement spectral entre 400 nm et $4,5\ \mu\text{m}$ (cf. fig 1.5) [17].

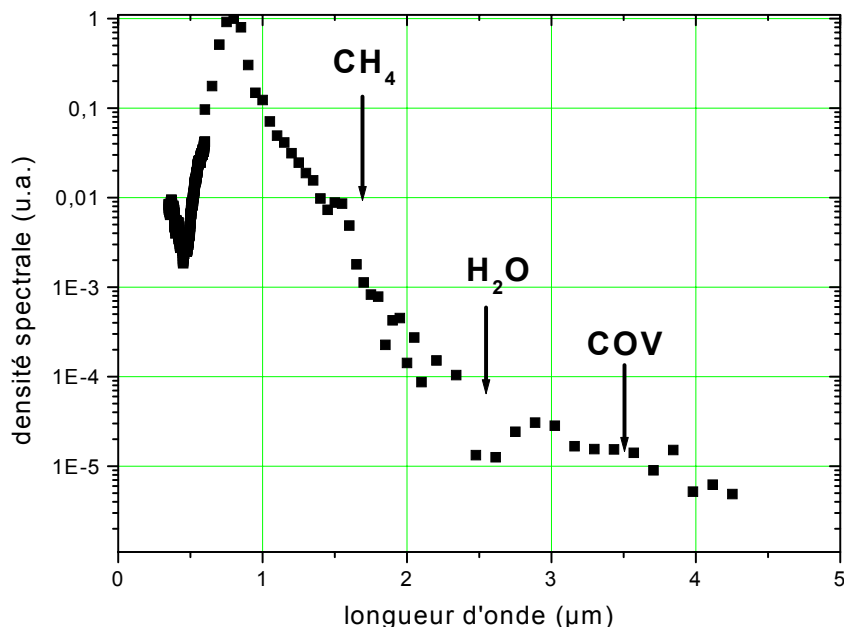


Fig. 1.5 – Spectre du faisceau femtoseconde térawatt élargi entre 400 nm et $4,5\ \mu\text{m}$ par l'automodulation de phase après quelques mètres de propagation

Le spectre de la lumière blanche couvre les bandes d'absorption de nombreux polluants pointés sur la courbe. Cependant, la densité spectrale, du côté infrarouge du spectre, décroît rapidement avec la longueur d'onde (3 ordres de grandeur par μm). Les mesures de spectroscopie d'absorption (notamment les mesures "LIDAR") paraissent donc difficiles dans le domaine de l'infrarouge moyen, en particulier pour les composés organiques volatils (COV) à $3,5\ \mu\text{m}$.

1.1.6 Distribution angulaire de la lumière blanche

La lumière blanche émise est essentiellement dirigée vers l'avant, en partie colinéaire avec le filament sous forme d'un "laser blanc". C'est à dire que la lumière blanche est cohérente, on peut observer des processus d'interférence, comme on peut s'y attendre par une génération de lumière blanche par un processus cohérent comme l'automodulation de phase [18]. Elle est également émise en partie sous forme d'émission conique [19, 20]. Ce sont ces anneaux de différentes couleurs qui entourent le filament, qui constituent l'émission conique (cf. Fig. 1.6a). Cette émission s'explique par la réfraction de la lumière blanche générée par l'avant de l'impulsion sur le profil d'indice spatial généré par le plasma

dans les filaments [19] ce qui donne un ordre inversé des anneaux par rapport à celui de la diffraction.

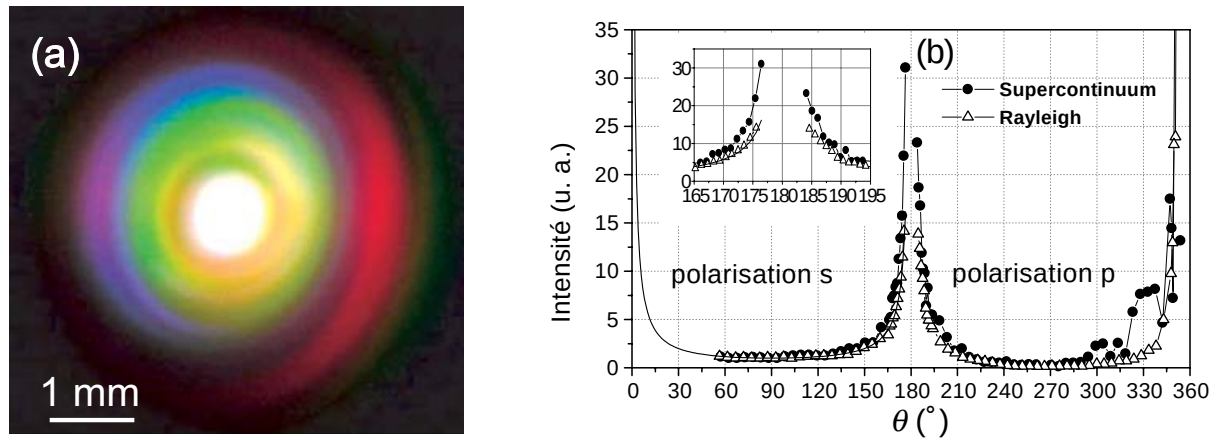


Fig. 1.6 – (a) Filament blanc au centre entouré par les anneaux de l'émission conique. (b) Distribution angulaire de la lumière blanche comparée avec la distribution d'un faisceau de faible énergie ajustée par la distribution angulaire en intensité de la diffusion Rayleigh.

La répartition de l'énergie entre les anneaux et le filament est très difficile à mesurer à cause des petits angles ($\approx 0,1^\circ$) et donc de la faible répartition spatiale du filament et des anneaux de l'émission conique qu'il génère. Cependant des mesures à distance réalisées à l'observatoire de Tautenburg ont montré que la part de l'énergie de la lumière blanche émise dans l'émission conique est de 65% alors que dans les filaments proprement dits, seulement 35% de l'énergie est présente.

Il a été également montré, qu'une part significative de la lumière blanche est émise vers l'arrière [21]. À 179° , l'intensité relative de la rétrodiffusion est déjà un ordre de grandeur plus élevée que dans le cas linéaire (diffusion Rayleigh). Un effet encore plus grand est attendu à 180° mais le dispositif expérimental ne permettait pas de le mesurer. Cette émission piquée vers l'arrière peut être interprétée comme provenant d'un gradient longitudinal de l'indice de réfraction, dû à des variations de la densité de plasma généré par l'impulsion laser elle-même, et sur lequel le laser est réfléchi. Une telle auto-réflexion, combinée à l'autoguidage présente un réel avantage pour des mesures LIDAR puisqu'une part importante de la lumière est réémise vers le détecteur LIDAR.

1.1.7 Multi-filamentation et puissance critique

Les observations expérimentales montrent que l'intensité dans un filament dans l'air a une valeur typique à peu près constante [22] qui permet l'équilibre entre l'effet Kerr d'un côté, la défocalisation due au plasma et la diffraction de l'autre. Celle-ci est de l'ordre de $I_{\text{filament}} \approx 5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$. De plus, le diamètre d'un filament est typiquement de

1.1. Filamentation dans l'air

150 μm . Un simple calcul nous permet d'estimer la puissance dans un filament :

$$P_{\text{filament}} = \pi r^2 I_{\text{filament}} \approx 10 \text{ GW} \quad (1.10)$$

La puissance du filament peut être comparée à la puissance critique définie au paragraphe 1.1.2 de l'ordre de 2 GW dans l'air. Ceci confirme que dans un filament, la focalisation par effet Kerr est équilibrée par la diffraction sur le plasma induit par le laser et la diffraction naturelle.

Par ailleurs, il a été montré que la puissance d'un filament est limitée. C'est pourquoi quand la puissance du faisceau dépasse plusieurs puissances critiques, plusieurs filaments sont générés.

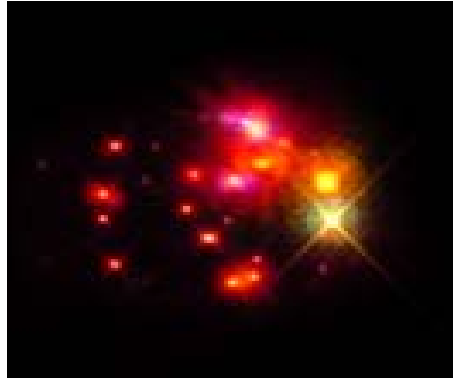


Fig. 1.7 – Observation de la multi-filamentation

La formation d'un filament individuel nécessite le dépassement local d'une puissance critique et est due à des modulations de l'intensité dans le profil spatial du faisceau. Nous reviendrons sur cet aspect au cours du chapitre 2 où nous détaillerons des expériences réalisées au cours de ma thèse et qui précisent la manière dont se réalise la multifilamentation.

À longue distance, bien après la fin de la filamentation, lorsque le faisceau est émis focalisé, on n'observe plus un profil de faisceau analogue à celui de la photo 1.7. Le faisceau apparaît alors comme un "laser blanc" et la divergence $\theta_{LB}(\lambda)$ des différentes longueurs d'onde de ce "laser blanc" est la convolution de la divergence de la fondamentale du faisceau à 800 nm $\theta_{Bouquet}$ avec l'angle de l'émission conique pour la longueur d'onde considérée $\theta_{EC}(\lambda)$. L'angle de divergence s'écrit alors :

$$\theta_{LB}(\lambda) = \theta_{Bouquet} \otimes \theta_{EC}(\lambda) \quad (1.11)$$

La structure du faisceau est représentée par la figure 1.8.

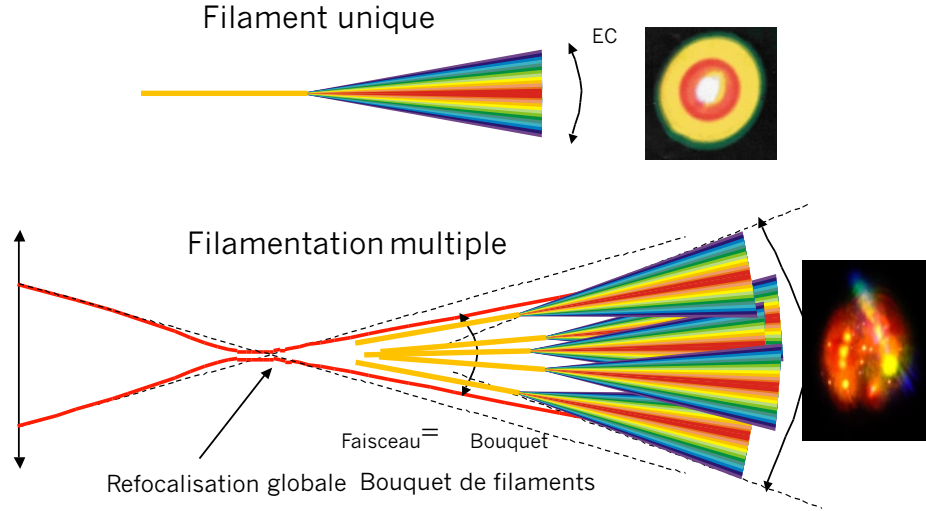


Fig. 1.8 – Structure d'un faisceau térawatt focalisé se propageant dans l'atmosphère

1.1.8 Modélisation de la filamentation

Parallèlement aux expériences, l'exploitation de faisceaux femtosecondes térawatts pour les applications atmosphériques nécessite une modélisation adéquate. Or, au vu des processus non-linéaires de nature différente mis en jeu, la modélisation est très complexe. De nombreux groupes se sont intéressés à simuler la propagation non-linéaire d'impulsions laser de forte puissance dans l'air, aussi bien dans le régime mono-filament [23, 24, 25, 26, 27, 28, 29] que dans le régime multi-filaments [30, 31, 32, 33, 34]. L'air étant un milieu centrosymétrique, les premières non-linéarités possibles sont liées au $\chi^{(3)}$, c'est à dire au mélange à 4 ondes. C'est le cas de l'effet Kerr, et de l'automodulation de phase. Lors de la propagation d'impulsions térawatts dans l'atmosphère, l'absorption due à l'ionisation à 8 photons pour l'oxygène et à 11 photons pour l'azote doit être aussi considérée. Les équations de Maxwell non- linéaires conduisent à l'équation d'onde :

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \sigma \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (1.12)$$

où σ est la conductivité et représente les pertes, et $\vec{P}$ la polarisation du milieu. Le milieu étant isotrope et le champ $\vec{E}$ polarisé linéairement, on peut passer de l'écriture vectorielle à l'écriture scalaire. Pour décrire la propagation des impulsions femtosecondes térawatts, on pose l'approximation de l'enveloppe ϵ lentement variable :

$$E(x, y, z, t) = \epsilon(x, y, z, t) (\exp(i(kz - \omega t)) + cc) \quad (1.13)$$

Pour décrire l'évolution du plasma $\rho(x, y, z, t)$, on utilise le modèle de Drude en ne considérant que l'ionisation multiphonique de l'oxygène dont le potentiel d'ionisation est plus faible que pour l'azote. L'équation de propagation dans le référentiel attaché à l'impulsion

devient : [2, 31, 34, 35, 36, 37, 38] :

$$\frac{\partial \epsilon}{\partial z} = \frac{i}{2k_0} \nabla_{\perp}^2 \epsilon - \frac{ik''}{2} \frac{\partial^2 \epsilon}{\partial t^2} + ik_0 n_2 \Re(t) \epsilon - \left(\frac{\sigma}{2} + \frac{ik_0}{2\rho_c} \right) \rho \epsilon - \frac{\beta^K}{2} |\epsilon|^{2K-2} \epsilon \quad (1.14)$$

$$\Re(t) = (1 - \theta) |\epsilon|^2 + \frac{\theta}{\tau_K} \int_{-\infty}^t \exp \left(-\frac{t-t'}{\tau_K} |\epsilon(t')|^2 dt' \right) \quad (1.15)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \sigma_K \rho_{nt} |\epsilon|^{2K} + \frac{\sigma}{U_i} \rho |\epsilon|^2 \quad (1.16)$$

Ces équations sont écrites dans le référentiel de l'impulsion où $t \rightarrow t - z/v_g$ et les différentes notations sont :

- k_0 est le nombre d'onde et vaut $k_0 = 2\pi/\lambda_0$ avec $\lambda_0 = 800$ nm ;
- n_2 est l'indice non-linéaire de l'air et on prend $n_2 = 3,2 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$ [34] ;
- z est l'axe de propagation ;
- $\nabla_{\perp}^2 = \partial^2 / \partial x^2 + \partial^2 / \partial y^2$;
- k'' est le coefficient traduisant la dispersion de vitesse de groupe (cf. paragraphe 1.1.1) et vaut $k'' = 0,2 \text{ fs}^2/\text{cm}$;
- l'équation 1.15 traduit la réponse Kerr totale composée d'une contribution instantanée et d'une contribution retardée θ de temps de relaxation $\tau_K = 70$ fs ;
- $\rho_c = 1,8 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ la densité critique d'électron au-delà de laquelle l'absorption plasma empêche le faisceau de se propager ;
- $\beta^{K=8} = 4,5 \times 10^{-98} \text{ cm}^{13}/\text{W}^7$ caractérise l'absorption due à l'ionisation multiphotonique [35, 38] ;
- l'équation 1.16 représente la défocalisation due au plasma induit par l'ionisation des molécules d'oxygène dont le potentiel d'ionisation $U_i = 12,1$ eV [38] ;
- $\rho_{nt} = 5,4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ est la densité des molécules neutres d'oxygène ;
- $K = 8$ correspond au nombre de photons nécessaire à l'ionisation de l'oxygène ;
- $\sigma_{K=8} = 2,88 \times 10^{-99} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{16}/\text{W}^8$ est la section efficace à 8 photons de l'ionisation de l'oxygène ;
- σ est la section efficace d'absorption du plasma et vaut $\sigma = 5,44 \times 10^{-20} \text{ cm}^2$.

Les deux premiers termes de l'équation 1.14 décrivent un faisceau gaussien soumis à la diffraction qui se propage linéairement dans l'hypothèse de l'enveloppe lentement variable. Le troisième terme traduit la dispersion de l'air. Comme nous l'avons vu au paragraphe 1.1.1 , une impulsion femtoseconde de 80 fs a une largeur spectrale de 15 nm à la sortie du laser, et les différentes composantes spectrales n'ont pas la même vitesse de phase. Cette différence de célérité est prise en compte par ce terme. Le quatrième terme décrit l'effet Kerr. L'équation 1.15 traduit le fait qu'il peut y avoir une composante retardée de l'effet Kerr. En fait, seul l'effet Kerr électronique a un temps de réponse suffisamment court pour être considéré comme instantané à l'échelle de la durée de l'impulsion. Pour les gaz non atomiques tels que N_2 et O_2 , la rotation de la molécule ajoute une composante

retardée à l'effet Kerr [39]. Cette composante retardée décroît exponentiellement sur la durée τ_K [16]. Le signe moins devant le terme en $ik_0/(2\rho_c)\rho\epsilon$, traduit la défocalisation due au plasma. Le terme en $\sigma/2\rho\epsilon$ traduit l'absorption du faisceau due au plasma et le dernier terme traduit l'absorption due à l'ionisation à 8 photons de l'oxygène.

Cependant le système d'équations 1.14 à 1.16 est lourd et dépasse les capacités informatiques disponibles dès qu'il s'agit de propager le faisceau sur de longues distances, c'est à dire plus de quelques mètres. Ce sera l'objet du paragraphe 2.1 au chapitre 2 où sera exposé la description de modèles réduits de propagation permettant de simuler la propagation du faisceau jusqu'à une centaine de mètres. Ces modèles doivent être validés et nécessitent d'étudier expérimentalement la propagation de ces faisceaux.

1.2 Le système TéraMobile

C'est notamment pour étudier la propagation dans l'atmosphère d'un faisceau laser femtoseconde térawatt à grande distance (quelques kilomètres) que le projet TéraMobile a été lancé. La construction du système TéraMobile, le premier, et le seul laser femtoseconde térawatt mobile à ce jour, est née du besoin de pouvoir étudier la propagation dans l'air sous toutes les conditions atmosphériques : pluie, brouillard, pression réduite... À cet effet, des expériences de terrain hors des laboratoires étaient nécessaires. Il était également utile d'associer un laser femtoseconde térawatt à un autre équipement spécifique tel qu'un télescope astronomique pour étudier la propagation verticale du faisceau. Cependant, en raison des problèmes de coût, associés à de tels équipements, cela n'avait pour l'instant pas été possible. Nous allons maintenant décrire les principaux composants du système TéraMobile.

1.2.1 Chaîne laser

La réalisation de la chaîne laser du TéraMobile est une vraie réussite de ce projet. En effet, habituellement pour un tel laser, une surface de 50 à 100 m^2 est nécessaire alors que la salle ici mesure seulement 3 m $\times$ 2,10 m.

La chaîne laser du TéraMobile est un laser commercial réalisé par Thales sur une demande spécifique du projet TéraMobile. Il est composé des éléments habituels d'un laser femtoseconde térawatt à dérive de fréquence : oscillateur, étireur, amplificateurs et compresseur. L'oscillateur Ti : Sa crée les impulsions ultra-brèves, qui sont étirées temporellement, pour être ensuite amplifiées et enfin recompressées : c'est le principe de l'amplification à dérive de fréquence (Chirped Pulse Amplifier (CPA)) [1](cf. Fig. 1.9). L'intérêt d'étirer les impulsions est de pouvoir les amplifier sans endommager les différents éléments optiques que comporte la chaîne amplificatrice, en particulier les cristaux

λ	800 nm
Durée de l'impulsion	70 à 600 fs
Largeur spectral	16 nm
énergie	350 mJ
Puissance crête max d'une impulsion	5 TW
Taux de répétition	10 Hz

Tab. 1.1 – Résumé des performances du laser TéraMobile

laser. L'impulsion est ensuite recomprimée afin d'obtenir une puissance crête maximale en sortie de chaîne. Les caractéristiques du laser sont résumées au tableau 1.1.

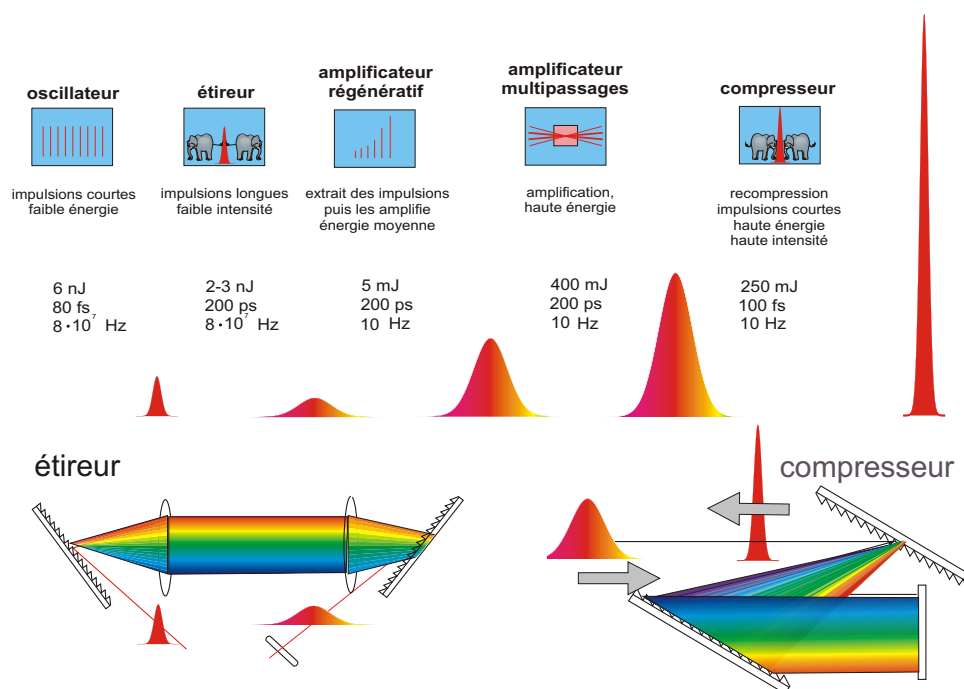


Fig. 1.9 – Principe de l'amplification à dérive de fréquence (CPA)

Nous allons maintenant décrire les éléments qui nous permettent de choisir les caractéristiques du faisceau de sortie, c'est à dire le compresseur et le télescope d'émission.

1.2.2 Contrôle de la durée d'impulsion

Après la génération des impulsions femtosecondes dans l'oscillateur, les impulsions sont étirées temporellement à l'aide d'un élément dispersif constitué d'un système de réseaux. Les différentes composantes spectrales sont ainsi séparées temporellement à la sortie de l'étireur par une relation de phase connue. Le rôle du compresseur est de compenser cette

relation de phase pour recomprimer l'impulsion en rassemblant les différentes composantes spectrales pour obtenir en sortie de chaîne une puissance crête maximale. Le compresseur dans la chaîne laser du Téra-mobile est composé de deux réseaux (cf. Fig. 1.10). Il permet d'obtenir des impulsions de 70 fs avec une énergie de 350 mJ à 10 Hz, soit 5 TW de puissance crête.

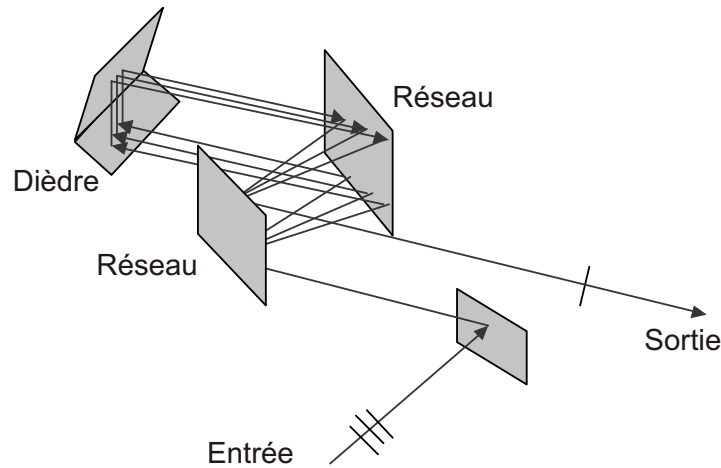


Fig. 1.10 – Schéma de principe du compresseur

Le deuxième réseau est placé sur une platine de translation afin de modifier la dispersion du compresseur de manière à ajuster la durée de l'impulsion en émettant dans l'air les composantes spectrales de grandes longueurs d'onde en avance par rapport à celles de courtes longueurs d'onde ou réciproquement. Cette possibilité nous permet d'utiliser à notre avantage la dispersion de vitesse de groupe de l'air. En effet, dans l'atmosphère, comme nous l'avons décrit au paragraphe 1.1.1.2, les composantes spectrales de grandes longueurs d'onde se propagent plus vite que celles de courtes longueurs d'onde.

Aussi, si à la sortie du compresseur les composantes spectrales de grandes longueurs d'onde sont en retard par rapport aux plus courtes, toutes les composantes vont se retrouver rassemblées à plusieurs mètres ou plusieurs centaines de mètres de distance (cf. Fig. 1.11). La position de l'intensité crête maximale est ainsi contrôlée. On peut parler de "focalisation temporelle" de l'impulsion.

On peut aussi générer dans le compresseur des impulsions de même durée mais avec un ordre inversé des composantes spectrales de l'impulsion. Alors que le faisceau a la même puissance initiale, cette mise en forme temporelle des impulsions affecte fortement la propagation du faisceau. C'est ce qui a été démontré à Tautenburg par la prise de photographies avec le télescope astronomique dans la configuration Schmidt. Les deux images

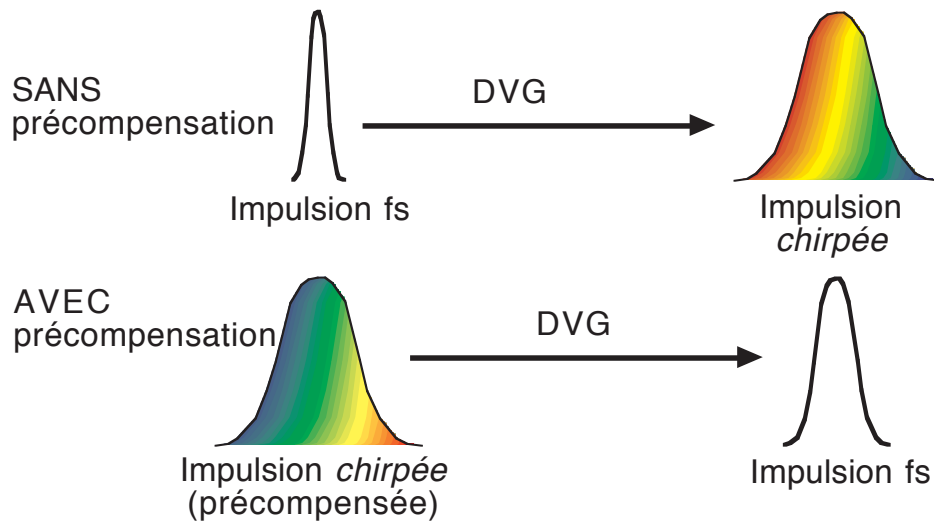


Fig. 1.11 – Mise en forme de l'impulsion

montrent que l'efficacité de génération de la lumière blanche dépend non seulement de la puissance initiale du faisceau mais aussi de l'arrangement des longueurs d'onde à l'intérieur de l'impulsion. Sur la photo de gauche, l'impulsion ne fait que s'étaler davantage au cours de la propagation alors que sur la photo de droite, la dispersion de vitesse de groupe de l'air rassemble l'impulsion au cours de la propagation, augmentant ainsi la génération de lumière blanche.

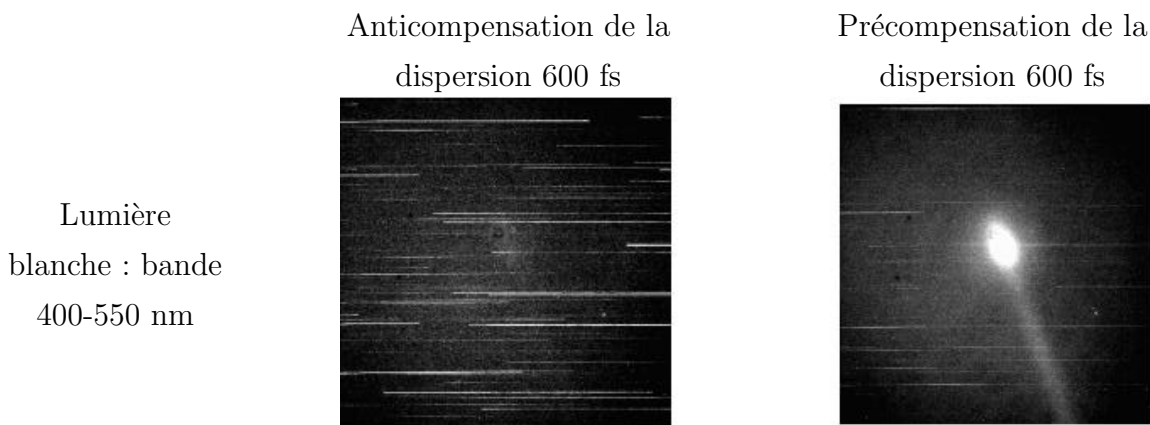


Fig. 1.12 – Effet de la précompensation de la vitesse de groupe sur la génération de lumière blanche.

La distance de recombinaison dépend de la mise en forme temporelle initiale de l'impulsion et en augmentant la durée d'impulsion et en profitant de la dispersion de vitesse de groupe de l'air, la présence de filaments après 2 km de propagation a pu être démontrée dans le cas de la propagation verticale [40] et horizontale [30]. Des simulations théoriques vont dans la même voie [41].

1.2.3 Télescope d'émission

Pour réaliser des expériences avec diverses focalisations et divers diamètres de faisceau, à la sortie du compresseur, un télescope d'émission assure un contrôle géométrique du faisceau (cf. fig 1.13). Il permet de choisir son diamètre initial et éventuellement de le focaliser ou non. Il est constitué seulement de miroirs, de manière à préserver toutes les caractéristiques temporelles et spectrales de l'impulsion. De plus, le faisceau peut être émis verticalement ou horizontalement selon les expériences effectuées.

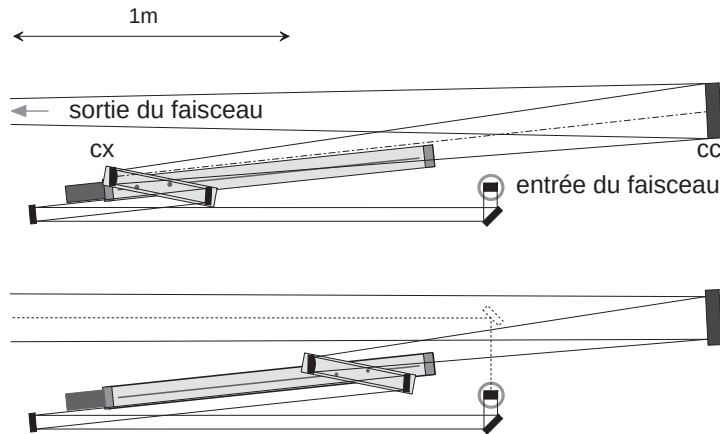


Fig. 1.13 – Télescope d'émission

1.2.4 Salle de contrôle

Le système Téramobile dispose d'une salle de contrôle qui sert de sas pour la thermalisation de la salle laser et qui la protège également des poussières extérieures. Elle est équipée d'un système de détection LIDAR. Ce système est composé d'un télescope de 1200 mm de focale avec un miroir primaire de 400 mm de diamètre. Il peut détecter le faisceau horizontalement ou verticalement. Un système de transport du faisceau permet d'imager le foyer du télescope sur la fente d'entrée d'un spectromètre (cf. Fig. 1.14).

Un système de détection LIDAR est ainsi joint au laser Téramobile, rendant le système indépendant d'équipement de détection extérieure. La mobilité du système laser Téramobile a permis de profiter de grandes installations comme l'observatoire de Tautenburg qui possède le plus grand télescope d'Allemagne, ou encore de se rendre au Centre d'Essais Aéronautiques de Toulouse pour utiliser leur installation de haute tension. Le système a même pu être transporté aux États-Unis, au Langmuir Observatory pour tester le déclenchement de foudre au sommet du mont South Baldy.

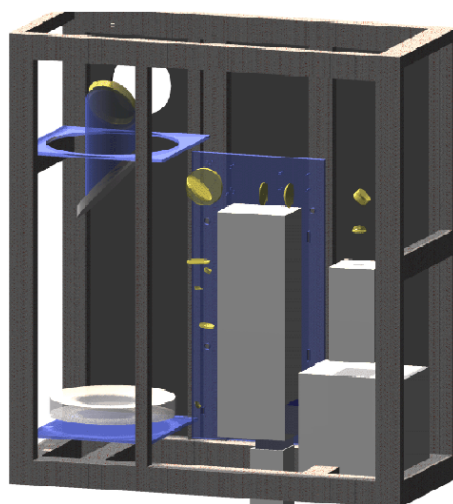


Fig. 1.14 – Système de détection du TéraMobile

1.3 Techniques LIDAR

Ayant utilisé la technique LIDAR sous diverses formes au cours de mon travail de thèse, je vais maintenant la décrire. Parallèlement aux développements des lasers, l'intérêt pour les problèmes environnementaux liés à la pollution atmosphérique n'a cessé de croître. C'est donc naturellement que l'idée de sonder l'atmosphère avec un laser est née et que la technique LIDAR (Light Detection And Ranging) s'est développée [42] (cf. Fig. : 1.16). Cette technique repose sur les propriétés de propagation de la lumière dans l'atmosphère qui est un milieu complexe. L'un des objectifs de la collaboration TéraMobile est d'étendre les possibilités du LIDAR classique reposant sur la diffusion élastique de la lumière, par la réalisation d'un LIDAR non-linéaire qui permettrait de détecter plusieurs polluants en même temps, de mesurer et de caractériser la distribution en taille des aérosols... Les résultats que nous avons obtenus dans cette voie seront détaillés aux chapitres 3 et 4. Afin d'éclairer ces travaux, nous décrivons dans ce paragraphe le principe du LIDAR.

1.3.1 Diffusion Rayleigh et diffusion Mie dans l'atmosphère

L'atmosphère naturelle est un milieu chimiquement complexe. Si elle est majoritairement composée d'azote et d'oxygène, de nombreux gaz à l'état de traces comme la vapeur d'eau, le méthane, et le dioxyde de carbone qui ont des incidences environnementales importantes, et en particulier le réchauffement par effet de serre, s'ajoutent à sa composition.

À cette composition globale de l'atmosphère, des polluants locaux émis par l'industrie ou la circulation automobile viennent s'ajouter. Il s'agit ici des polluants comme le dioxyde de soufre, les oxydes d'azote, les composés organiques volatiles (COV), ou des polluants

qui proviennent de réactions secondaires comme l'ozone. Par l'analyse LIDAR, on cherche notamment à pouvoir mesurer la concentration de ces polluants. Ces molécules sont caractérisées par leur spectre d'absorption. La dimension de ces molécules étant très inférieure à la longueur d'onde, la diffusion Rayleigh est la description adaptée. Une molécule soumise à une onde plane monochromatique de longueur d'onde λ , oscille sous l'action du champ électrique de cette onde créant ainsi un rayonnement électromagnétique à l'instar d'un dipôle oscillant de dimension r . L'intensité diffusée dans le plan de l'onde incidente $I_{diff,||}$ à une distance R dans la direction θ pour une lumière incidente polarisée I_{in} est :

$$I_{diff,||}(\theta, R) = \frac{16\pi^4 r^6}{\lambda^4 R^2} \left| \frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} \right|^2 \cos^2(\theta) I_{in}, \quad (1.17)$$

et l'intensité diffusée dans le plan perpendiculaire $I_{diff,\perp}$ est :

$$I_{diff,\perp}(\theta, R) = \frac{16\pi^4 r^6}{\lambda^4 R^2} \left| \frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} \right|^2 I_{in} \quad (1.18)$$

Ceci permet de remonter aux sections efficaces d'absorption σ_{abs}^{mol} , de diffusion σ_{diff}^{mol} et au coefficient de rétrodiffusion β^{mol} de la molécule :

$$\sigma_{abs}^{mol} = \frac{8\pi^2 r^3}{\lambda} \Im \left(\frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} \right) \quad (1.19)$$

$$\sigma_{diff}^{mol} = \frac{128\pi^5 r^6}{3\lambda^4} \left| \frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} \right|^2 \quad (1.20)$$

$$\beta^{mol} = \frac{16\pi^4 r^6}{\lambda^4} \left| \frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} \right|^2 \quad (1.21)$$

La caractéristique essentielle de la diffusion Rayleigh est sa dépendance en $1/\lambda^4$ qui favorise la transmission des grandes longueurs d'onde dans l'atmosphère.

Mais l'atmosphère ne contient pas uniquement des gaz. On y trouve de nombreux aérosols, c'est à dire des particules solides, liquides ou mixtes en suspension dans l'atmosphère. Ces aérosols sont de nature et de forme très diverses : des pollens, des poussières minérales, des gouttes d'eau, des suies... Leur taille pouvant aller, jusqu'à $100 \mu m$ de rayon, la contribution des aérosols à la diffusion de l'atmosphère est loin d'être négligeable. Pour les particules de forme sphérique, le formalisme adapté à la description de la diffusion de la lumière est alors la théorie de Mie développée en 1908 [43]. Les équations de Maxwell sont résolues analytiquement, en considérant les discontinuités à l'interface de l'aérosol supposé sphérique.

La particule sphérique de rayon r est caractérisée par un paramètre de taille $a = 2\pi r/\lambda$ et son indice complexe de réfraction n_0 . Les sections efficaces d'extinction $\sigma_{ext}^{aéro}$, de diffusion $\sigma_{diff}^{aéro}$, d'absorption $\sigma_{abs}^{aéro}$, et de rétrodiffusion $\beta^{aéro}$ sont :

$$\sigma_{ext}^{aéro} = \pi r^2 Q_{ext}(a, n_0) \quad (1.22)$$

$$\sigma_{diff}^{aéro} = \pi r^2 Q_{diff}(a, n_0) \quad (1.23)$$

$$\sigma_{abs}^{aéro} = \sigma_{aéro_{ext}} - \sigma_{diff}^{aéro} \quad (1.24)$$

$$\beta^{aéro} = \pi r^2 Q_{\theta=\pi}(a, n_0) \quad (1.25)$$

où les coefficients Q_{ext} et Q_{diff} et $Q_{\theta=\pi}$ sont définis à partir des fonctions de Ricatti-Bessel et de Hankel, de l'indice complexe de réfraction n_0 et du paramètre de taille a . Les fonctions de Ricatti-Bessel qui interviennent dans les expressions induisent des problèmes de convergence numérique. La question est cependant désormais maîtrisée et de nombreux auteurs ont proposé des algorithmes stables [44, 45, 46]. Le calcul montre une grande complexité de la figure de diffusion dès que la taille de la particule augmente. Cette progression est mise en évidence sur la figure 1.15.

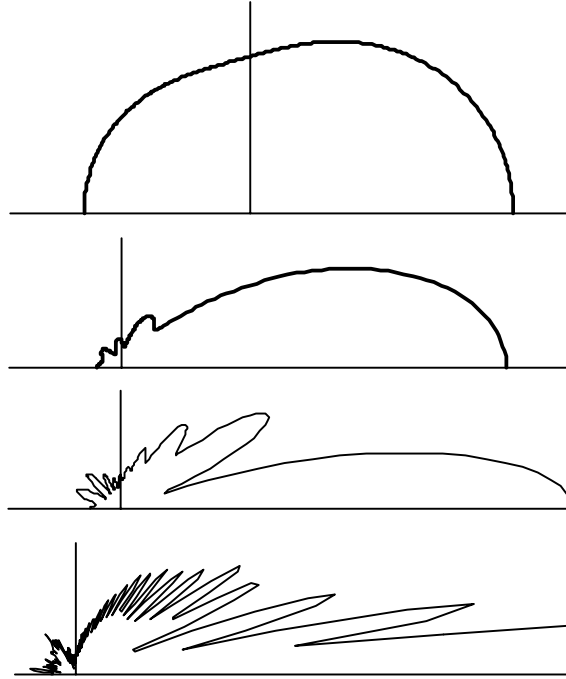


Fig. 1.15 – Diagramme polaire de la distribution d'intensité (normalisée) diffusée par une goutte d'eau d'indice $n_0 = 1,334$ sous une lumière non-polarisée à une longueur d'onde $\lambda = 0,633$ nm. De haut en bas : $r = 0,1 \mu m$, $r = 0,5 \mu m$, $r = 1 \mu m$ et $r = 5 \mu m$, calculé à l'aide de la théorie de Mie.

La richesse des figures de diffusion permet de les utiliser pour caractériser les particules sphériques. En effet, la figure de diffusion d'une sphère est caractéristique de son paramètre de taille et de son indice.

Dans les mesures LIDAR, les propriétés optiques des aérosols apparaissent dans le coefficient de rétrodiffusion β de l'atmosphère et sous forme intégrée dans le coefficient d'extinction α_{ext} . Ces coefficients correspondent pour chaque processus à la somme des sections efficaces totales des espèces présentes dans un volume unitaire en un point donné.

Leur valeur en un point repéré par $\vec{R}$ pour une longueur d'onde λ est donc :

$$\alpha_{ext}(\vec{R}, \lambda) = \int_{r=0}^{\infty} \pi r^2 Q_{ext}(r, \lambda) N(\vec{R}, r) dr \quad (1.26)$$

$$\beta(\vec{R}, \lambda) = \int_{r=0}^{\infty} \pi r^2 Q_{\theta=\pi}(r, \lambda) N(\vec{R}, r) dr \quad (1.27)$$

$N(\vec{R}, r)$ étant la distribution de taille des particules au point $\vec{R}$. α_{ext} et β , tout comme les efficacités Q_{ext} et $Q_{\theta=\pi}$ qui entrent dans leur expression, dépendent fortement de la longueur d'onde et de la taille des particules entrant dans la composition de l'aérosol. Ils permettront ainsi de caractériser l'atmosphère à distance.

Les expressions 1.26 et 1.27 données ci-dessus, correspondent à une seule classe d'aérosols, mais le résultat se généralise si des particules de plusieurs types sont présentes dans l'atmosphère. Dans ce cas, il suffit d'additionner les contributions de chaque espèce de particules. Ainsi, dans l'atmosphère, on doit tenir compte de la diffusion Rayleigh sur les molécules gazeuses, de l'absorption moléculaire, de la diffusion Mie et de l'absorption par les aérosols :

$$\alpha_{ext}^{total} = \alpha_{ext}^{Rayleigh} + \alpha_{abs}^{mol} + \alpha_{ext}^{Mie} + \alpha_{abs}^{aéro} \quad (1.28)$$

$$\beta^{total} = \beta^{Rayleigh} + \beta^{Mie} \quad (1.29)$$

Dans les mesures LIDAR, les coefficients propres correspondant à la distribution des aérosols interviennent dans des paramètres sommés. Déterminer la composition en taille des aérosols est donc un problème difficile car généralement sous-déterminé. Nous verrons au chapitre 3 comment le continuum de lumière blanche fournie par un laser femtoseconde permet d'aborder ce problème sous un nouveau jour en fournissant une information beaucoup plus riche que le LIDAR classique.

1.3.2 Principe du LIDAR

La technique LIDAR consiste à envoyer des impulsions lasers dans l'atmosphère et à mesurer au niveau du laser la lumière rétrodiffusée en fonction du temps. Le faisceau laser, au cours de sa propagation, est absorbé et diffusé par les gaz et les aérosols de l'atmosphère. Une partie de cette lumière est rétrodiffusée vers l'émetteur. Pour collecter cette lumière, un télescope est placé colinéairement au laser.

L'intérêt de cette technique est qu'elle est résolue spatialement grâce au temps de parcours de la lumière. L'intensité lumineuse rétrodiffusée $I(z, \lambda)$, à la longueur d'onde λ nous renseigne sur la composition de l'atmosphère à la distance z du laser. Elle a pour expression dans le cas d'une diffusion élastique (la diffusion multiple est ici négligée) :

$$I(z, \lambda) = I_0(\lambda) \frac{A_0}{z^2} \beta(z, \lambda) \frac{c\Delta\tau}{2} \kappa(\lambda) Y(z) \exp\left(-2 \int_0^z \alpha_{ext}(z', \lambda) dz'\right) \quad (1.30)$$

où

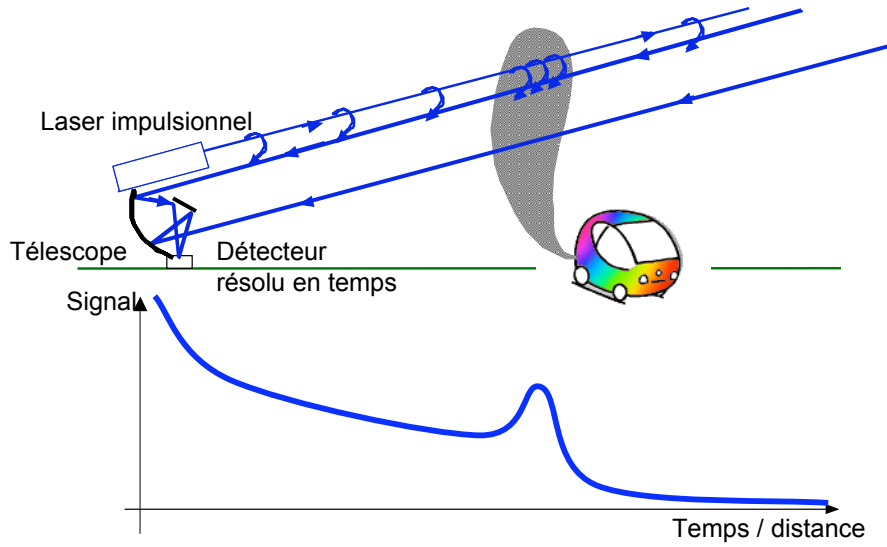


Fig. 1.16 – Principe du LIDAR. L'analyse du signal rétrodiffusé en fonction du temps par l'atmosphère permet de cartographier le nuage de pollution et de mesurer sa densité.

- $I_0(\lambda)$ est l'intensité lumineuse émise à la longueur d'onde λ par le laser ;
- A_0 est la surface du miroir primaire du télescope ;
- $\beta(z, \lambda)$ est le coefficient volumique de rétrodiffusion ;
- c est la célérité de la lumière ;
- $\Delta\tau$ est la durée de l'impulsion laser ;
- $\kappa(\lambda)$ représente l'efficacité de la détection (transmission du système de détection) ;
- $Y(z)$ est le facteur de compression géométrique qui représente le recouvrement spatial entre les champs de vision du récepteur et de l'émetteur (nous reviendrons sur ce facteur au paragraphe 1.3.3) ;
- $\alpha_{ext}(z, \lambda)$ est le coefficient d'extinction atmosphérique total.

Dans l'équation LIDAR 1.30, β et α_{ext} sont représentatifs de l'atmosphère qui est un milieu complexe. Obtenir une information pertinente sur la composition de l'atmosphère à partir d'un signal LIDAR n'est donc pas une chose aisée et diverses méthodes ont été mises en place. En effet à partir d'une seule équation il faut déterminer 2 termes α_{ext} et β . Des hypothèses vont donc être nécessaires. Nous allons détailler deux techniques : la méthode des pentes et la technique DIAL (Differential Absorption LIDAR) qui permettent d'inverser le signal LIDAR.

Par ailleurs, en préalable la compression géométrique $Y(z)$ doit être prise en compte dans l'analyse des données. Nous allons donc préciser ce terme de l'équation LIDAR 1.30.

1.3.3 Compression géométrique

Pour inverser le signal LIDAR à faible distance, il est nécessaire de corriger le signal de l'effet de la compression géométrique $Y(z)$. Il s'agit de l'évolution du recouvrement spatial entre la divergence θ du faisceau et le champ de vue Φ du système de détection. Le schéma 1.17a montre les paramètres qui entrent en jeu dans la compression géométrique. Le champ de vue Φ dépend de la distance focale f du télescope ainsi que du rayon a du détecteur par la relation $\Phi = a/f$. Quant au recouvrement spatial, il dépend également de la distance D qui sépare le laser du système de détection, et de l'inclinaison du laser par rapport au télescope. Sur la figure 1.17b est représenté un exemple de l'évolution de la compression géométrique dans un cas d'un recouvrement spatial médiocre entre le laser et le champ de vue du télescope. Ce recouvrement croît fortement jusqu'à 600 m de propagation, puis décroît lorsque le champ de vue du télescope et le faisceau laser se croisent.

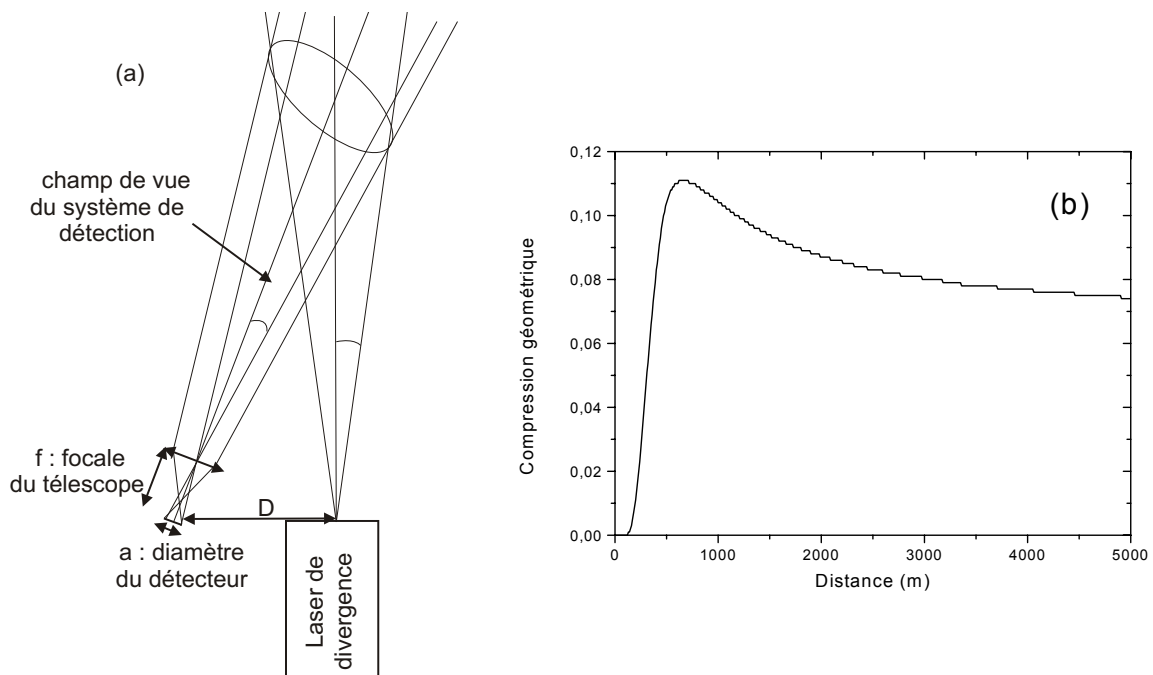


Fig. 1.17 – (a) Visualisation des paramètres de la compression géométrique. (b) Compression géométrique calculé pour un télescope de 1200 mm de focale, un miroir primaire de 400 mm, un miroir secondaire de 200 mm, un détecteur de 1 mm, une inclinaison entre le télescope et le faisceau laser de 2 mrad, et une divergence laser θ de 5 mrad

À de faibles distances, les variations de compression sont fortes, alors qu'à grande distance, la compression géométrique reste constante. On peut donc négliger sa variation lorsque l'on inverse des signaux LIDAR à longue distance. À courte distance, la divergence du faisceau, l'inclinaison du système de détection par rapport au laser doivent être connues pour corriger la variation de la compression géométrique.

1.3.4 Inversion du signal LIDAR par la méthode des pentes

La méthode des pentes constitue la méthode d'inversion LIDAR la plus simple. Pour cela, il suffit de multiplier les deux membres de l'équation LIDAR 1.30 par z^2 , et d'en prendre la dérivée logarithmique par rapport à la distance z . Nous obtenons alors :

$$\frac{d(z^2 I(z, \lambda))}{dz} = \frac{1}{Y(z)} \cdot \frac{dY(z)}{dz} + \frac{1}{\beta(z, \lambda)} \cdot \frac{d\beta(z, \lambda)}{dz} - 2\alpha_{ext}(z, \lambda) \quad (1.31)$$

Pour la méthode des pentes, l'atmosphère est supposée homogène par zone, et donc que $\beta(z, \lambda)$ ne dépend pas de l'altitude. L'équation devient alors :

$$\frac{d(z^2 I(z, \lambda))}{dz} = \frac{1}{Y(z)} \cdot \frac{dY(z)}{dz} - 2\alpha_{ext}(z, \lambda) \quad (1.32)$$

À longue distance, la compression géométrique étant constante, le signal LIDAR ne dépend plus de celle-ci. Cependant à courte distance, le signal doit être corrigé de la compression géométrique comme le montrent les figures 1.18a et 1.18b. À partir du signal LIDAR corrigé, l'analyse est possible par la méthode des pentes, même à de faibles altitudes, dès 150 m.

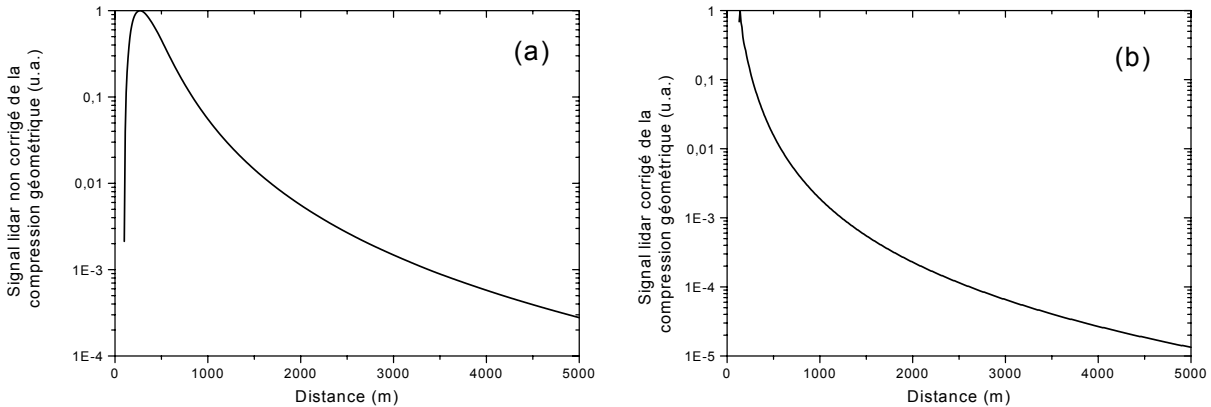


Fig. 1.18 – (a) Signal LIDAR simulé non corrigé de la compression géométrique pour une atmosphère homogène. (b) Même signal LIDAR corrigé de la compression géométrique.

Par ailleurs, la méthode des pentes est limitée à une atmosphère homogène, hors de conditions climatiques de brouillard, nuage, ou panache de poussières où le paramètre $\beta(z, \lambda)$ varie fortement avec z . Cependant sa simplicité et la qualité satisfaisante des résultats pour des conditions atmosphériques stables la rendent utile, en particulier pour des évaluations préliminaires de résultats en cours de campagne.

1.3.5 Du DIAL au LIDAR à lumière blanche

La méthode des pentes possède deux limitations principales : d'une part il faut connaître la compression géométrique et d'autre part l'atmosphère est supposée homogène. Or si on

veut cartographier tridimensionnellement des gaz de concentration à l'état de traces, il existe une alternative efficace pour s'affranchir de ces 2 termes : la technique DIAL (Differential Absorption LIDAR). Elle consiste à émettre deux longueurs d'onde très proches λ_{on} et λ_{off} pour lesquelles l'atmosphère a le même comportement vis à vis de la diffusion de la lumière et qui ne diffère que par l'absorption du polluant qui est mesuré. En particulier, cela permet d'écrire que :

$$\beta(z, \lambda_{on}) = \beta(z, \lambda_{off}) = \beta(z) \quad (1.33)$$

$$\alpha_{ext}(z, \lambda_{on}) - \alpha_{ext}(z, \lambda_{off}) = N_{polluant}(z) [\sigma_{polluant}(\lambda_{on}) - \sigma_{polluant}(\lambda_{off})] \quad (1.34)$$

En faisant le rapport entre les deux signaux LIDAR obtenus, nous obtenons :

$$\frac{I(z, \lambda_{on})}{I(z, \lambda_{off})} = \frac{I_0(\lambda_{on})\kappa(\lambda_{on})}{I_0(\lambda_{off})\kappa(\lambda_{off})} \exp \left(-2 [\sigma_{polluant}(\lambda_{on}) - \sigma_{polluant}(\lambda_{off})] \int_0^z N_{polluant}(z') dz' \right) \quad (1.35)$$

La seule inconnue qui intervient alors dans l'équation 1.35 est la concentration du polluant. En posant $\Delta\sigma = \sigma_{polluant}(\lambda_{on}) - \sigma_{polluant}(\lambda_{off})$ et en dérivant par rapport à z l'expression 1.35, la concentration du polluant s'exprime par :

$$N_{polluant}(z) = -\frac{1}{2\Delta\sigma} \frac{d}{dz} \left(\ln \left(\frac{I(z, \lambda_{on})}{I(z, \lambda_{off})} \right) \right) \quad (1.36)$$

Cette approche simple présente de nombreux avantages. Elle permet de faire une cartographie tridimensionnelle des polluants, possède une grande sensibilité (détection de traces sur quelques kilomètres) et permet de détecter des aérosols. Cependant elle présente aussi de nombreuses limitations. Elle est applicable seulement à un petit nombre de polluants ayant des raies d'absorption sans interférence (oxydes d'azote, de soufre, ozone), ne permet pas de différencier deux espèces absorbantes ayant des raies communes (problèmes d'interférences) et ne permet que de mesurer un polluant à la fois. De plus, il n'est pas possible de mesurer la composition des aérosols et ainsi que leur distribution en taille par la technique DIAL.

Pour dépasser ces limitations, nous avons proposé d'utiliser toutes les longueurs d'onde disponibles dans le spectre d'un faisceau laser térawatt femtoseconde grâce à la génération de lumière blanche et de réaliser ainsi un LIDAR à lumière blanche (cf. Fig. 1.19). Une autre variante du LIDAR non-linéaire est d'induire des effets non-linéaires à distance sur des cibles à détecter et de les identifier, en profitant de la capacité des filaments à transporter de hautes intensités à distance. À cet effet, il faut déterminer le signal rétro-diffusé en fonction du temps comme pour le LIDAR classique mais aussi en fonction de la longueur d'onde. Le détecteur résolu en temps d'un LIDAR classique (un photomultiplicateur) est donc remplacé par un spectrophotomètre résolu en temps (spectromètre suivi d'un photomultiplicateur). Au chapitre 3 et 4, nous détaillerons des expériences basées sur ce dispositif expérimental.

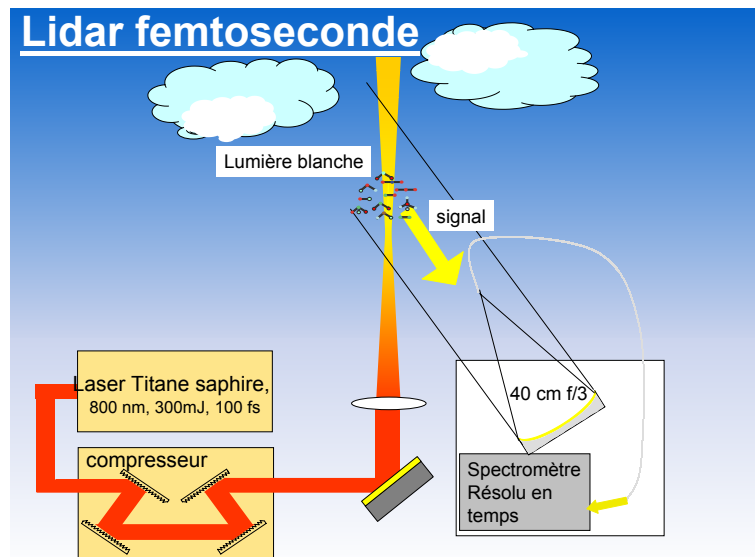


Fig. 1.19 – LIDAR à lumière blanche

1.3.6 L'observatoire de Tautenburg

Nous avons utilisé le télescope de l'observatoire de Tautenburg (Thüringer Landesternwarte) pour plusieurs expériences au cours de ma thèse : l'étude de la propagation verticale du faisceau décrite au chapitre 1, et les mesures du signal rétrodiffusé dans l'infrarouge et la réalisation d'un LIDAR multi-paramètres décrit au chapitre 3. D'ailleurs, les photographies du paragraphe 1.2.2 ont été prises avec les installations de l'observatoire.

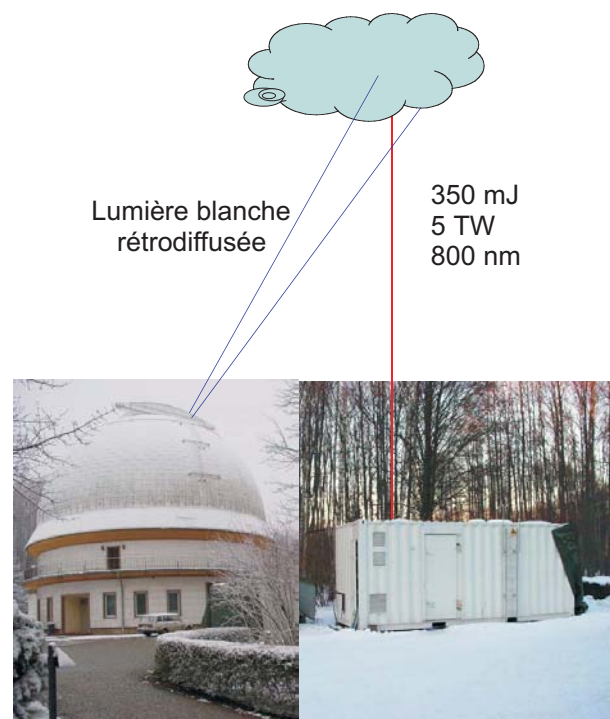


Fig. 1.20 – Principe des expériences utilisant le télescope de l'observatoire de Tautenburg

D'un point de vue expérimental, les configurations Schmidt et Coudé du télescope de 2 m de diamètre, le plus grand d'Allemagne nous ont servi à :

- observer le faisceau lors de la propagation verticale dans l'atmosphère claire jusqu'à 25 km ou à plus faible distance lorsque le faisceau était diffusé par une couche de brume ou un nuage à plus faible altitude (configuration Schmidt) (cf. Fig.1.23b) ;
- mesurer le spectre de transmission de l'atmosphère et sa distribution spectrale (configuration Coudé) (cf. Fig. 1.23a) ;
- mesurer le retour LIDAR dans l'infrarouge en optimisant la lumière rétrodiffusée (configuration Coudé).

Afin de ne pas alourdir les chapitres concernés, nous décrivons ici les systèmes de détection communs à plusieurs expériences. Le TéraMobile et le télescope étaient éloignés de 30 m et la configuration générale pour ces expériences est schématisée sur la figure 1.20.



Fig. 1.21 – (a) coupole de l'observatoire de Tauntenburg qui possède le plus grand télescope d'Allemagne avec un miroir primaire de 2 m de diamètre.

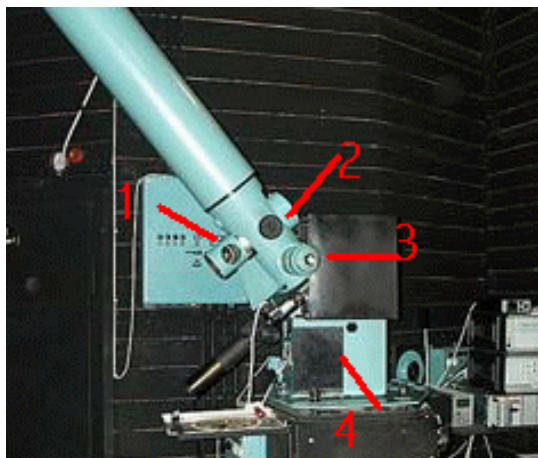


Fig. 1.22 – Salle de mesure en configuration Coudé : (1) miroir amovible de l'oculaire ; (2) axe du miroir ; (3) oculaire ; (4) fente d'entrée du spectromètre Échelle.

Dans la configuration Coudé 1.23a, le télescope a une ouverture apparente $f/92$. La

1.3. Techniques LIDAR

lumière collectée est déviée par un miroir plan pour être envoyée vers la fente d'un spectromètre échelle située dans une salle en dessous de celle du télescope. Le champ de vue du système constitué du télescope et du spectromètre est de $1,2''$ d'arc pour une fente de $0,52$ mm. Le spectre est enregistré sur une caméra CCD ayant une dynamique de 16 bits et un temps de pause variable entre 1 s et plusieurs heures. La résolution spectrale est de $0,1$ Ångstrom sur la plage de longueurs d'ondes d'intérêt choisie entre 538 et 927 nm. Ce système nous a permis de mesurer le spectre de transmission de l'atmosphère rétrodiffusé sur un nuage afin de déterminer la température, le rapport de mélange de la vapeur d'eau et avoir ainsi accès à l'humidité relative. Les détails de cette expérience seront décrits au chapitre 3.

Dans cette configuration Coudé, la lumière collectée peut encore être déviée dans la salle d'observation, au niveau de l'oculaire de contrôle (point 3 de la figure 1.22), vers des détecteurs rapides. Cette dernière configuration a été utilisée pour mesurer le signal LIDAR dans l'infrarouge à l'aide d'un photomultiplicateur rapide infrarouge sensible de 300 nm à $1,5 \mu\text{m}$, refroidi à l'azote liquide (Hamamatsu R 5509-72). Le champ de vue du télescope est alors de $1,2$ mrad soit $6'$ et $7,5''$ d'arc compte tenu du diamètre de la photocathode de 8 mm. Les bandes de longueur d'onde observées ont été choisies par un jeu de 4 filtres qui seront décrits au paragraphe 3.2 consacré à cette expérience.

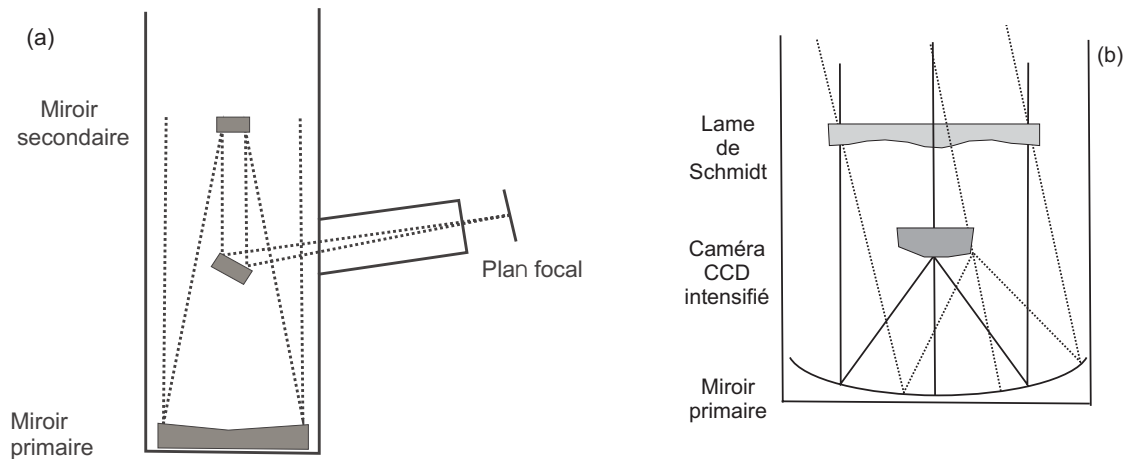


Fig. 1.23 – (a) Télescope en configuration Coudé. Le faisceau est dévié à l'aide d'un miroir plan vers la salle d'observation ou le spectromètre Échelle. (b) Télescope en configuration Schmidt pour imager le faisceau. Une lame de Schmidt correctrice en tête de télescope est utilisée pour adapter le front d'onde à la caméra CCD intensifiée

Dans la configuration Schmidt 1.23b, dédiée à l'imagerie, le télescope a une distance focale de 4 m et un champ de vue maximal de $0,6^\circ \times 0,6^\circ$. Cette configuration permet d'imager le faisceau à l'aide d'une caméra CCD de 2048×2048 pixels, ce qui correspond à une résolution angulaire de $6 \mu\text{rad/pixel}$. La caméra CCD était sensible entre 350 et 1000 nm, avec une dynamique de 16 bits, et les temps de pause possibles allaient de 1

seconde à 1 heure. Les images ont été enregistrées dans plusieurs bandes spectrales en plaçant devant la caméra différents filtres en verre coloré de manière à pouvoir observer le comportement de l'ensemble du spectre de lumière blanche. La description des filtres est donnée au tableau 1.2.

Symbole	Filtre	50% de T_{max} en nm du système CCD + filtres	Contribution de la fondamentale au signal reçu (%)	Description
B	Johnson B (8 mm) + BG (2 mm)	390-480	-	Lumière blanche (bleu)
BG	BG 39 (3 mm)	370-580	-	Lumière blanche (bleu-vert)
I	Johnson I (8 mm)	770-950	50	fondamentale (800 nm)
RG	RG 850 (3 mm)	840-970	15	Lumière blanche (infrarouge)

Tab. 1.2 – Jeu de filtres utilisés dans la configuration Schmidt du télescope de Tautenburg

Sur les photos présentées, le faisceau était émis collimaté, avec un diamètre initial de 3 cm. Deux images typiques en fausses couleurs (la couleur représente l'intensité) prises avec ce système sont représentées sur les figures 1.24a et 1.24b. La figure 1.24a représente la fondamentale du faisceau, alors que la figure 1.24b, visualise la bande B, c'est à dire lumière blanche générée dans le bleu lors de la propagation du faisceau. La position du télescope et du TéraMobile étant parfaitement connue, l'altitude des pixels des images était déterminée par triangulation. Des mesures LIDAR réalisées en parallèle à ces photographies avec le système de détection du TéraMobile permettaient de calibrer et de contrôler cette triangulation.

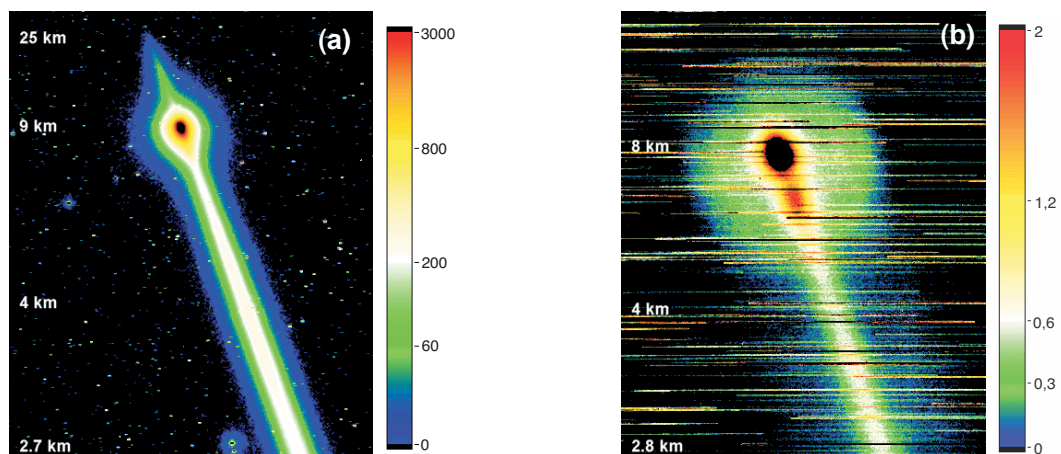


Fig. 1.24 – Images du faisceau en fausses couleurs. (a) montre la propagation de la fondamentale du faisceau à 800 nm (filtre I), alors que (b) montre la propagation de la lumière blanche (filtre B).

Sur les deux photos 1.24a et 1.24b, dans la partie basse, la lumière est diffusée par les molécules de l'air (diffusion Rayleigh). Vers 9 km, le halo correspond à la diffusion du faisceau sur des gouttelettes d'eau d'une couche d'aérosols (diffusion Mie). Pour la fondamentale, l'intensité lumineuse est grande ce qui permet des temps de pause courts (1 s) alors que pour la lumière blanche le temps de pause est plus long (60 s). C'est pourquoi, des traits horizontaux sont visibles sur l'image. Ils correspondent au mouvement des étoiles pendant le temps de pause.

Le traitement détaillé de ces photos a été réalisé en grande partie par Miguel Rodriguez, un doctorant allemand de la collaboration TéraMobile. Les résultats de son étude sont rapportés dans sa thèse [47] ainsi que dans l'article [40]. Pour ma part, j'ai participé à ces expériences et je me suis intéressé au traitement de la partie infrarouge ainsi qu'à la manière dont on pouvait déterminer la distribution en taille des gouttelettes du nuage à partir du signal de diffusion multiple contenu dans ces images. Je développerai cette étude au paragraphe 3.3 du chapitre 3.

1.4 Conclusion

Nous avons décrit au paragraphe 1.1 que la propagation dans l'atmosphère d'un faisceau femtoseconde térawatt est régie par des effets non-linéaires. Nous avons vu qu'il était possible de générer des filaments à 2 km d'altitude. La précompensation de la dispersion de vitesse de groupe, ainsi que la focalisation du faisceau sont des paramètres clés qui permettent un très bon contrôle de la localisation du début de la filamentation et de l'efficacité de la génération de lumière blanche. Cela est favorable aux applications LIDAR dont nous verrons divers exemples aux chapitre 3 et 4.

Pour développer ces applications, nous devons compléter nos connaissances de la propagation des faisceaux. C'est ce que nous allons maintenant aborder.

Chapitre 2

Propagation dans l'air d'impulsions femtosecondes térawatts

Pour développer les applications LIDAR, ou de déclenchement de foudre que nous verrons dans les prochains chapitres, nous avons besoin d'améliorer nos connaissances sur la propagation d'impulsions femtosecondes. C'est pourquoi, l'un des objectifs de mon travail de thèse a été d'approfondir nos connaissances sur les propriétés régissant la propagation des filaments. Il est nécessaire de contrôler, selon les applications, la distance de filamentation, la longueur des filaments, la densité spectrale de lumière blanche produite dans des filaments, etc. Pour comprendre et prédire les propriétés de la propagation des faisceaux femtosecondes térawatts, la modélisation peut nous aider. Cependant, la modélisation de la propagation de ce type de faisceaux est difficile et nécessite de longs temps de calculs. Afin de les perfectionner, des développements sont nécessaires et nécessitent des validations expérimentales. Nous travaillons dans cette direction en collaboration avec le groupe de Luc Bergé du Département de Physique Théorique et Appliquée du CEA/DAM à Bruyères-le-Chatel qui développe des nouveaux modèles pour comprendre la filamentation et être capable de simuler la propagation des faisceaux dans l'atmosphère sur les plus grandes longueurs possibles, de l'ordre de la centaine de mètres.

Par ailleurs, l'atmosphère n'est pas un simple milieu homogène. Avec l'altitude, des gradients de pression et de température peuvent modifier la propagation du faisceau. Pour étudier, la propagation sous pression réduite, nous avons mené une campagne d'expériences à 3 200 m d'altitude à l'observatoire Langmuir au Nouveau Mexique.

De plus, les filaments subissent aussi des variations d'indice dues à la turbulence de l'air, aux fluctuations de température, et aux aérosols présents dans l'air. Il est nécessaire de connaître le comportement des filaments sous les diverses conditions atmosphériques comme la pluie, le brouillard, le vent pour développer les diverses applications possibles dans l'atmosphère où les conditions de propagation ne sont pas contrôlées comme en laboratoire. L'analyse et la comparaison avec des modèles de propagation théorique permet

de comprendre les processus mis en jeu et ainsi de prévoir le comportement des filaments dans des conditions similaires et de développer ainsi des applications. Pour cette étude, nous nous appuyerons alors en partie sur une étude menée au laboratoire par François Courvoisier, un autre doctorant du groupe dirigé par Jean-Pierre Wolf ainsi que sur des expériences que j'ai réalisées avec la chaîne laser du TéraMobile.

Comme nous l'avons évoqué dans le chapitre 1 au paragraphe 1.3, certaines applications LIDAR nécessitent un continuum de lumière blanche dans divers domaines spectraux. Nous avons donc étudié les caractéristiques spectrales de la filamentation avec la génération d'un supercontinuum de lumière blanche entre 230 nm et $4,5\ \mu\text{m}$. Ce supercontinuum s'explique par l'élargissement de la fondamentale par automodulation de phase et la génération de troisième harmonique dans l'air. Nous détaillerons le mécanisme et les résultats obtenus avec le laser femtoseconde du laboratoire fournissant des impulsions de 100 fs et de quelques millijoules. Nous verrons au chapitre 3 comment utiliser ce supercontinuum de lumière blanche pour des mesures LIDAR.

2.1 Multi-filamentations dans l'air d'impulsions femtosecondes térawatts

Dans ce premier paragraphe, nous nous intéressons d'abord à l'aspect spatial de la multi-filamentations en vue de valider des modèles numériques développés par Luc Bergé *et al* [34]. Lors de la propagation d'un faisceau térawatt, la puissance crête dépasse les 100 puissances critiques et de nombreux filaments sont générés. Nous allons ici étudier le mécanisme de génération des filaments et l'interaction des filaments entre eux et avec le reste du faisceau. Cette étude a été menée en s'appuyant sur la comparaison avec des simulations des profils expérimentaux d'un faisceau femtoseconde térawatt sur les 50 premiers mètres de propagation réalisées par Luc Bergé *et al* [34, 48]. La comparaison avec les profils expérimentaux permet de valider le modèle utilisé et d'interpréter le mécanisme de filamentation. La taille réduite des filaments vis à vis du diamètre du faisceau et les variations longitudinales de la densité de plasma imposent une haute résolution spatiale (quelques μm) et temporelle. Dans ce modèle, on est passé de la description décrite au chapitre 1 au paragraphe 1.1.8 à 3 dimensions spatiales et une dimension temporelle (3D + 1), à une description à 2 dimensions spatiales et une dimension temporelle (2D + 1). Pour se faire, à chaque instant, on se débarrasse de l'extension spatiale longitudinale (selon z) de l'impulsion en réalisant une moyennisation temporelle de l'impulsion, sous l'hypothèse qu'une bande temporelle de petite taille domine la propagation de l'impulsion. Luc Bergé *et al* [48, 34] ont développé ce modèle pour réduire la capacité de mémoire nécessaire aux

simulations et pouvoir ainsi calculer la propagation du faisceau sur environ une centaine de mètres au lieu des quelques mètres possibles avec la première description.

2.1.1 Naissance des filaments

Pour valider ce modèle, les simulations sont comparées aux les résultats expérimentaux obtenus avec le TéraMobile.

Pour obtenir les profils expérimentaux, des photos du faisceau sont prises sur un écran blanc perpendiculaire à celui-ci. L'écran est ensuite déplacé le long du faisceau pour suivre l'évolution du profil spatial tout au long de la propagation. On mesure le profil du faisceau à 800 nm pour faciliter la comparaison avec les simulations. Pour cela, un filtre est positionné devant l'appareil photo de manière à couper la lumière visible de l'émission conique où le capteur CCD est très sensible, mais dont l'interprétation, en particulier, de la distribution spatiale est plus délicate. Le dispositif enregistré ne permet pas d'enregistrer simultanément le profil du faisceau à toutes les distances de propagation. Il est donc nécessaire de s'assurer de la reproductibilité tir à tir du profil du faisceau. Les figures 2.1 présentent des photos du faisceau prises à quelques secondes d'intervalle après 35 m de propagation d'une impulsion de 100 fs, et de 230 mJ, soit 700 puissances critiques.

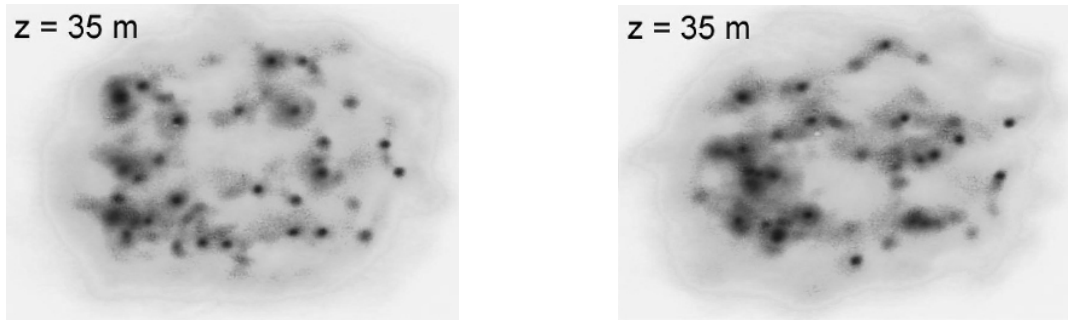


Fig. 2.1 – Fluctuations tir à tir du profil du faisceau après 35 m de propagation d'une impulsion de durée de 100 fs et de 230 mJ.

Ces photos montrent que la distribution des filaments dans le faisceau est qualitative-ment la même d'un tir à l'autre. Le nombre de filaments peut légèrement varier mais les zones dans lesquelles les filaments sont générés et les motifs qu'ils forment sont les mêmes. Les zones où se forment les filaments ont en effet pour origine les modulations initiales d'intensité du profil spatial du faisceau qui reste stable tir à tir. Les fluctuations dans le nombre et la position précise des filaments s'expliquent par les turbulences de l'air ou la diffusion sur des poussières qui affectent la propagation globale du faisceau.

On peut donc considérer que des profils enregistrés sur différentes impulsions après différentes distances de propagation comme représentatives de l'évolution du profil du faisceau au cours de la propagation et donc les comparer aux simulations numériques. Ces simulations sont réalisées à partir du profil initial du faisceau (après 1 m de propagation)

2.1. Multi-filamentations dans l'air d'impulsions femtosecondes térawatts

comme conditions initiales et en utilisant le modèle $(2D + 1)$ de propagation décrit ci-dessus. La figure 2.2 compare l'évolution des profils expérimentaux aux profils issus des simulations.

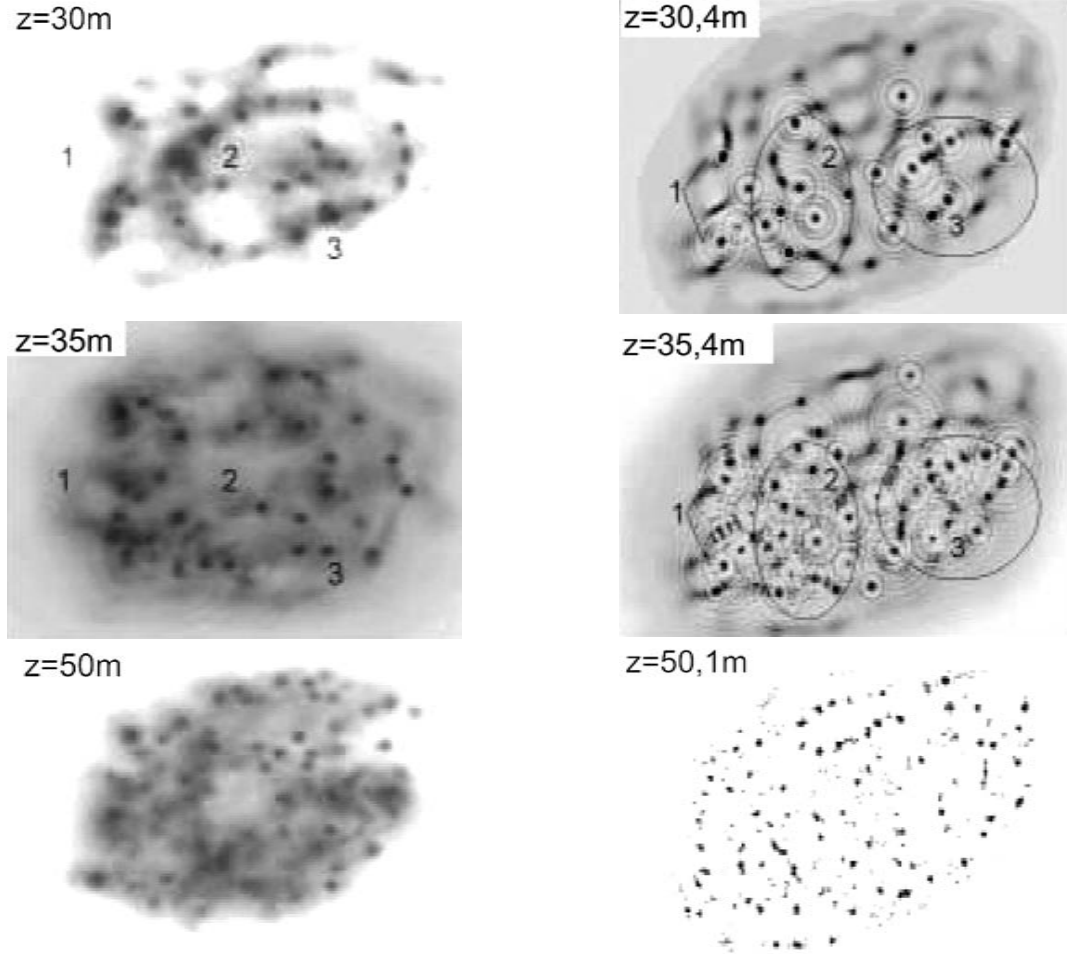


Fig. 2.2 – À gauche, les profils expérimentaux du faisceau en fonction de la distance de propagation où les filaments sont identifiables comme des surintensités locales (points noirs) dans le profil. Ils sont comparés avec les profils de droite, issus des simulations numériques calculées à partir du profil initial expérimental initial et des mêmes paramètres initiaux du faisceau (impulsion de 230 mJ et de 100 fs soit 700 puissance critique, et un diamètre de 3 cm).

L'accord entre les profils expérimentaux et les résultats numériques est tout à fait satisfaisant. Les labels 1, 2 et 3 sur les photos ainsi que sur les profils simulés mettent en relief des zones actives du faisceau et les motifs formés par les filaments. La zone 1 correspond à deux filaments robustes qui vont survivre sur de longues distances. Dans la zone 2, de nombreux filaments sont présents mais peu survivent sur de longues distances donnant naissance à d'autres filaments dans la même zone, et la zone 3 identifie une zone où des filaments survivent sur plus de 5 m.

En conclusion, pour des faisceaux collimatés, les filaments sont initiés dans les zones de grandes fluctuations du faisceau. Ces filaments peuvent atteindre des longueurs de

la dizaine de mètre, alors que dans d'autres zones des filaments meurent et leur énergie donne naissance à d'autres filaments. C'est ainsi que grâce au modèle développé par Luc Bergé *et al*, l'évolution de la distribution des filaments et des zones de hautes intensités a pu être reproduite.

2.1.2 Des filaments continus

Nous disposons donc d'un modèle efficace pour simuler la propagation du faisceau sur 50 m, voire 100 m [48, 34]. Cependant l'interprétation détaillée des profils expérimentaux est rendue délicate en raison des fluctuations tir à tir. En particulier, la longueur des filaments ne peut pas être déterminée à partir d'observations ponctuelles mais nécessite de suivre la propagation d'une impulsion donnée de manière continue. À cet effet, nous avons visualisé la propagation des filaments sur 40 m en une photo unique. Un générateur d'aérosols (constitué de pistolets à peinture), dispersait des gouttelettes d'eau, qui poussées par un vent régulier soufflant face à la direction de propagation du laser, formaient un brouillard qui permettait de visualiser le faisceau grâce à la diffusion de lumière blanche sur ces gouttelettes (cf. Fig. 2.3). Les fluctuations d'intensité sur la photo correspondent à celles de la concentration des gouttelettes.

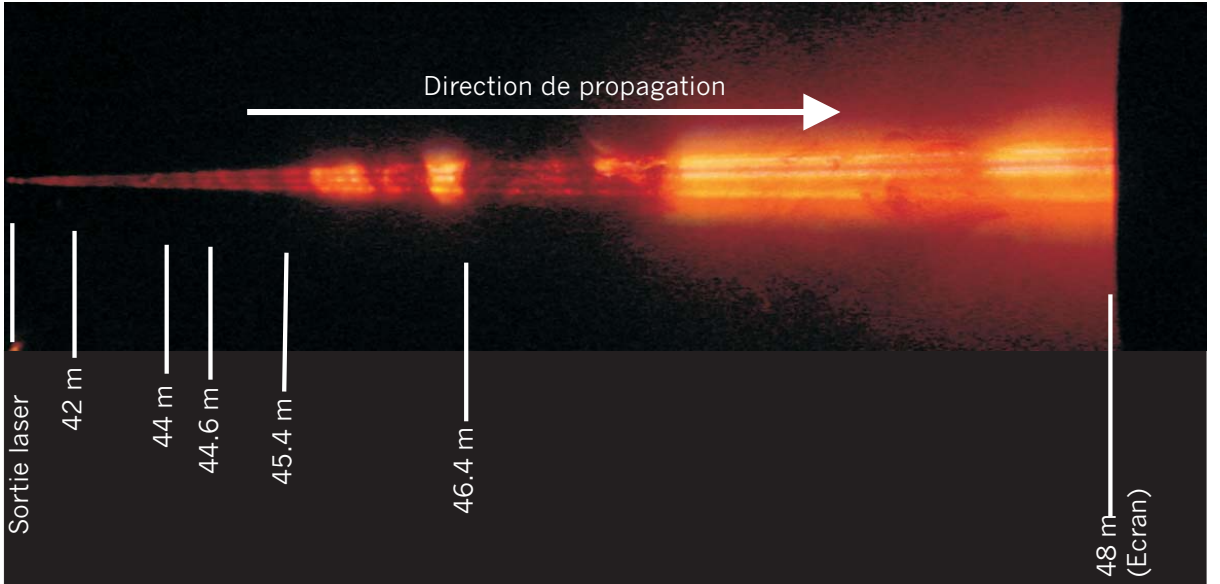


Fig. 2.3 – Trois filaments robustes, générés par une impulsion laser de 250 mJ de 100 fs, focalisée à 40 m et un diamètre initial de faisceau de 9 cm, se propageant sur plusieurs mètres à partir du foyer du faisceau à 40 m du laser.

Pour cette photo, une impulsion laser de 100 fs, de 250 mJ, soit $760 P_{crit}$ et de 9 cm de diamètre initial est focalisée à 40 m. La photo est prise comme précédemment avec un appareil numérique standard, placé au niveau du générateur d'aérosols, soit à 50 m du laser et 25 cm au-dessus du faisceau (cf. Fig. 2.4). Le temps de pause de la photo est

de 0,125 s et correspond donc à un seul tir laser. Grâce à des points de référence mis en place le long du faisceau, la photo est calibrée en distance par triangulation. En raison de la forte parallaxe, l'échelle est fortement non-linéaire ce qui explique le faible écart sur la photo entre la sortie du laser à 0 m et la première distance de propagation indiquée à 42 m.

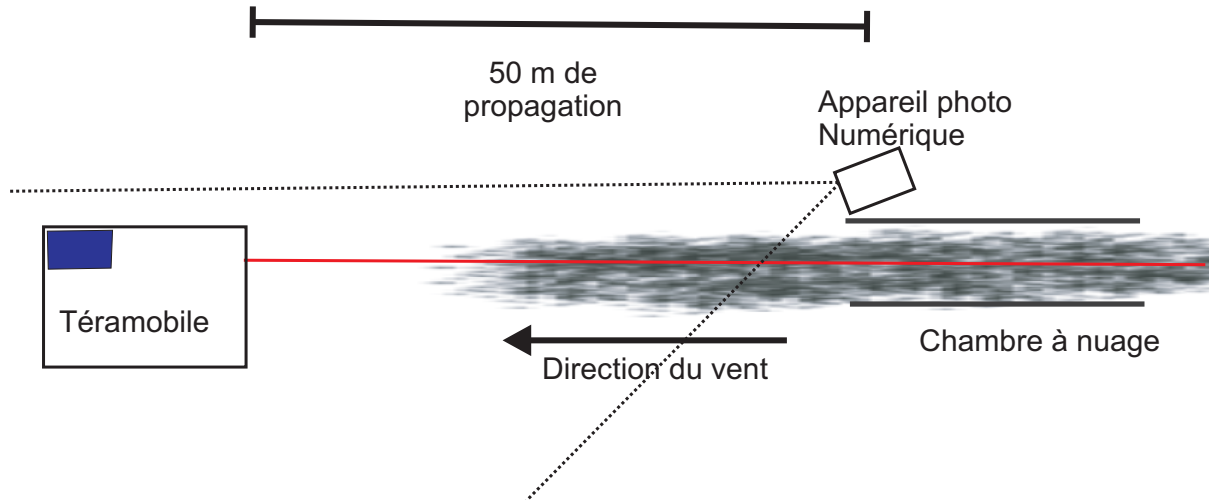


Fig. 2.4 – Dispositif expérimental pour la photo des filaments continus.

Sur cette photo, trois filaments robustes émergent à partir du foyer optique et s'étendent sur plusieurs mètres, au minimum 8 m. Il s'agit de la première preuve expérimentale de l'existence de filaments individuels continus de cette longueur dans un faisceau térawatt. En effet, les résultats antérieurs concernaient au contraire la longueur de filamentation, c'est à dire l'intervalle où les filaments sont observés, mais sans indication sur leur longueur individuelle.

Ces résultats sont reproduits par le modèle $(2D + 1)$ de propagation développé par le groupe de L. Bergé validé précédemment (cf. Fig. 2.5).

Sur cette simulation, après les 40 m de propagation, soit après le foyer optique du faisceau, trois zones de surintensité se propageant dans la même direction et de manière quasi-continue sur environ 10 m se dégagent du reste du faisceau. L'écartement de ces filaments est dû à la divergence globale du faisceau au-delà du foyer optique.

Au cours des 40 premiers mètres de propagation, la focalisation du faisceau rapproche les filaments, et concentre l'intensité du faisceau favorisant l'émergence de "piliers optiques", des zones de surintensités, qui vont être à l'origine des filaments après le foyer optique du faisceau. En s'appuyant sur ce modèle, on peut comprendre la formation de ces "piliers optiques" qui résulte de "l'étranglement" du faisceau au niveau du foyer.

Cette simulation exhibe donc deux modes de propagation. Avant le plan focal, un premier mode de propagation présente une structure globale chaotique conformément

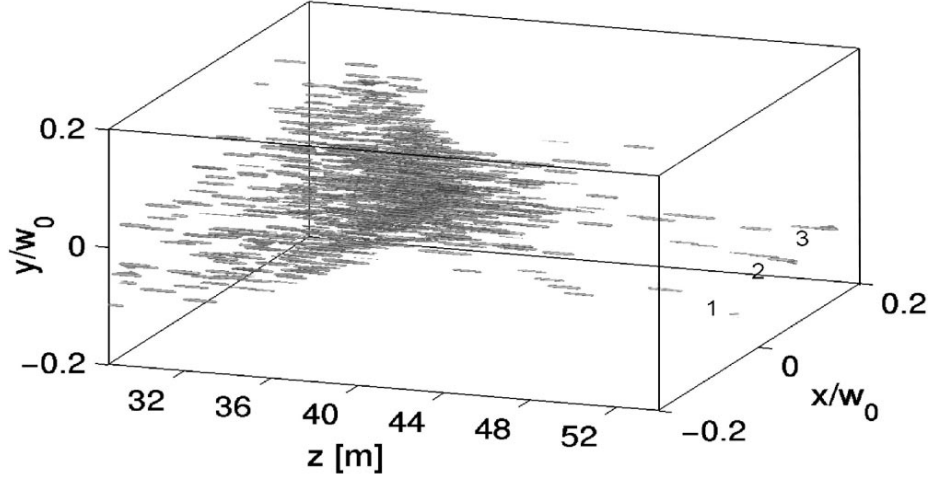


Fig. 2.5 – Simulation à 3 dimensions d’une impulsion femtoseconde dans des conditions identiques à la photo 2.3. Après le foyer optique du faisceau, 3 zones de forte intensité se développent de manière quasi-continue sur environ 10 m. Ces structures filamentaires sont indiquées par les repères 1, 2 et 3.

au modèle prévu par Mlejnek *et al* [31, 37]. Des filaments courts disparaissent et leur énergie avec celle du réservoir d’énergie que constitue le faisceau reforment des filaments un peu plus loin. Après le plan focal, un deuxième mode de propagation est observé, où quelques filaments robustes se propagent continuellement sur plusieurs mètres dans les “piliers optiques” stables résultant de “l’étranglement” du faisceau.

2.1.3 Conclusions

La comparaison des profils expérimentaux du faisceau avec les profils issus des simulations ont permis de valider le modèle développé par le groupe de Luc Bergé [34, 48]. Ce modèle est le seul à ce jour à pouvoir simuler la propagation dans divers régimes de faisceau sur des longueurs de 100 m et au-delà avec la résolution spatiale suffisante du faisceau ($\Delta x = \Delta y < 10\mu m$, $\Delta x = \Delta y = 3\mu m$), ce qui est un atout pour préparer des expériences dans l’atmosphère. Il reste toute fois limité par l’absence de dépendance temporelle de l’impulsion.

Dans le cas d’un faisceau focalisé, après une première phase chaotique où de nombreux filaments à des distances proches interagissent, meurent et donnent naissance à de nouveaux filaments, la photographie ainsi que la simulation expérimentale mettent en évidence l’existence d’un autre mode de propagation où quelques filaments longs de 1 à 2 m se propagent de manière indépendante des autres filaments. Cette expérience montre qu’il est possible de modifier de manière contrôlée la propagation du faisceau en jouant sur la focalisation du faisceau.

2.2 Propagation des filaments sous diverses conditions atmosphériques

Les filaments ouvrent de nombreuses perspectives d'applications à l'atmosphère. Par exemple, nous développons des mesures LIDAR à lumière blanche, ce qui suppose la propagation à haute altitude et donc sous pression réduite. Nous nous intéressons au déclenchement et au guidage la foudre grâce aux filaments, ce qui se fera dans des conditions atmosphériques difficiles, en présence de vent et de pluie. Les filaments permettent la spectroscopie de plasma à distance ("LIBS") qui permet d'identifier la composition des matériaux à distance. Cette technique repose sur la faculté à transporter de hautes intensités à distance. De plus, la transmission optique à travers le brouillard et les nuages est un paramètre clé pour les communications satellites ou pour la télédétection de polluants par des mesures LIDAR [49]. Les filaments, par leur propagation sous forme de quasi-solitons semblent être de bons candidats pour dépasser les limitations atmosphériques imposées à la propagation linéaire des faisceaux laser. En effet, les filaments sont des structures stables qui subissent déjà des variations d'indice dues à l'effet Kerr et à l'ionisation multiphonique. Pour toutes ces applications, il est nécessaire de connaître les propriétés de la propagation des filaments sous les conditions atmosphériques réelles et non sous atmosphère claire comme dans un laboratoire.

Pour tester la faisabilité de ce type d'applications, nous avons étudié la propagation d'impulsions femtosecondes térawatts sous la pluie ou à travers un nuage, dans le régime multi-filaments.

L'équilibre entre l'autofocalisation par effet Kerr et la défocalisation due au plasma mettent en jeu des processus fortement non-linéaires. Pourtant, il a été montré, par François Courvoisier *et al* [50, 51], un autre doctorant du groupe de Jean-Pierre Wolf, qu'une goutte de $50\ \mu\text{m}$ placée dans un filament n'affecte pas la propagation d'un filament. Des résultats équivalents ont été obtenus avec des gouttes de plus grand diamètre ($95\ \mu\text{m}$) qui bloquent plus de la moitié des filaments de $150\ \mu\text{m}$ de diamètre. Pas de différences notables n'ont également pu être mises en évidence entre l'effet d'une simple goutte d'eau et une goutte d'encre fortement absorbante.

Lorsqu'une partie de l'énergie du filament est perdue par la rencontre avec un obstacle, le filament regagne de l'énergie grâce au "bain de photons" du faisceau qui transporte l'essentiel de l'énergie. C'est notamment ce qui permet d'expliquer que des longueurs de filaments supérieures au mètre (environ 8 m) ont pu être mises en évidence dans la partie précédente. En effet une partie de l'énergie des filaments était diffusée par des aérosols et cette énergie devait être regagnée par les filaments pour qu'ils puissent continuer à se propager. Cette explication est également cohérente avec le fait que les filaments se

finissent lorsqu'un diaphragme empêche la propagation du faisceau entourant le filament.

Par ailleurs, lorsqu'un filament, après sa formation, se propage à travers une chambre à nuage de 35 cm de longueur, le filament traverse celle-ci jusqu'à des concentrations de 4×10^5 gouttes/cm³. Cette concentration est très supérieure à un nuage très dense : 1000 gouttes/cm³ [42]. Cependant, quelques centimètres après la fin de la chambre à nuage, la filamentation s'arrête en raison de la trop grande perte d'énergie du faisceau (cf. Fig. 2.6).

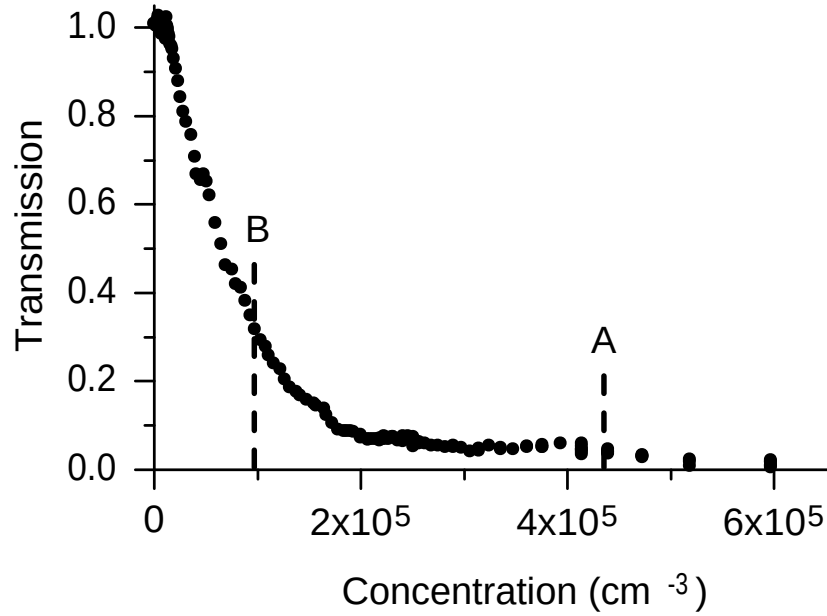


Fig. 2.6 – Transmission des filaments à travers un nuage composé de gouttes de $4 \mu\text{m}$ de diamètre moyen. Pour une concentration supérieure à 4×10^5 gouttes/cm³, (repère A), le filament traverse la chambre à nuage mais se termine quelques centimètres après le nuage. Pour une concentration inférieure à $1,2 \times 10^5$ gouttes/cm³, (repère B), la propagation du filament n'est pas affectée par la présence du nuage.

En revanche, pour une concentration de $1,2 \times 10^5$ gouttes/cm³, la longueur de filamentation n'est pas affectée et le filament se propage de la même manière que dans l'air libre.

Par ailleurs la transmission du nuage décroît exponentiellement avec la concentration des gouttes, conformément à la loi de Beer-Lambert. Ceci montre que la perte d'énergie par l'extinction Mie à l'intérieur du nuage constitue la principale limitation de la transmission des filaments à travers les nuages. Ces expériences réalisées avec un laser de seulement 7 mJ dans le régime monofilament sont prometteuses. Nous avons cherché à étendre ces résultats au régime multifilaments et à des grandes longueurs de propagation à l'intérieur d'un nuage.

2.2.1 Propagation dans le régime multi-filaments à travers un nuage

2.2.1.1 Dispositif expérimental

À 45 m du TéraMobile, un générateur d'aérosols composé de pistolets à peinture générant un nuage à l'intérieur d'un tube de 3 m de longueur. La distribution en taille des gouttes mesurée par un analyseur optique (Grimm G 1-108) était centrée à $1 \mu m$, soit un rayon beaucoup plus faible que celui des filaments. La densité optique du nuage était estimée par la transmission optique d'un laser He : Ne de faible puissance.

Ainsi, les filaments générés par 40 m de propagation libre d'un faisceau collimaté de diamètre initial de 3 cm, à 800 nm, et d'énergie par impulsion de 220 mJ, traversaient un nuage homogène de 10 m de longueur. La durée d'impulsion a été choisie à 600 fs de manière à ce que les filaments démarrent peu avant l'entrée dans le nuage.

Pour caractériser l'effet de la propagation à travers les 10 m de nuage, le profil du faisceau a été enregistré en le photographiant comme décrit au paragraphe 2.1.1, avec un filtre qui sélectionnait la fondamentale du faisceau à 800 nm. Les photos ont été prises dans une deuxième configuration, où la lumière blanche était visualisée en enlevant le filtre placé devant l'objectif.

2.2.1.2 Résultats et Discussions

La puissance du faisceau transmise à travers le nuage nécessaire à l'existence d'au moins un filament est de 28 GW, soit environ 9 fois la puissance critique P_{crit} . L'énergie initiale par impulsion était de 220 mJ, l'énergie transmise était alors de 25 mJ et la longueur de nuage traversée était de $z = 10$ m, d'où une transmission $T = 12\%$, ce qui correspond à un nuage dense avec une extinction α_{ext} égale à :

$$\alpha_{ext} = -\frac{T}{z} \approx 0,21 m^{-1} \quad (2.1)$$

et une concentration moyenne N de gouttes :

$$N = \frac{\alpha}{\pi R^2 Q_{diff}} = 1,9 \times 10^4 \text{ gouttes/cm}^3 \quad (2.2)$$

où Q_{diff} est l'efficacité de diffusion Mie (cf. paragraphe 1.3.1) et R le rayon moyen des gouttes. Le libre parcours moyen pour un photon $L_{lp,photon}$, c'est à dire la distance moyenne parcourue par un photon entre deux diffusions successives à travers le nuage, est calculé par :

$$L_{lp,photon} = \frac{1}{\pi R^2 Q_{diff} N} = 1,43 m. \quad (2.3)$$

Pour un filament, le libre parcours moyen $L_{lp,filament}$ est la distance moyenne entre 2 gouttes rencontrées par le filament de rayon r . Cette distance est calculée par :

$$L_{lp,filament} = \frac{1}{\pi (R\sqrt{Q_{diff}} + r)^2 N} \quad (2.4)$$

Cette distance est seulement de 0,5 mm si on prend ($r = 100 \mu m$). Un filament rencontre donc 2 000 gouttes par mètre de propagation. Cependant, le rayon des gouttes est 100 fois plus petit que le rayon d'un filament et on sait que la présence d'une goutte même beaucoup plus grosse ($95 \mu m$) ne gêne en rien la progression du filament. L'effet d'une grande concentration de fines gouttelettes n'a donc pas non plus d'effet sur la filamentation. Comme dans le régime mono-filament, la principale limitation des filaments à travers le nuage semble due à l'extinction linéaire du faisceau.

Pour confirmer cette hypothèse, les profils du faisceau ont été enregistrés dans le cas d'une propagation libre et dans le cas d'une propagation à travers un nuage de 50 % de transmission. Pour cette transmission, l'extinction linéaire du faisceau est de $\alpha_{ext} = 0,07 m^{-1}$ ce qui correspond à une concentration de $6,3 \times 10^3$ gouttes/ cm^3 et un libre parcours moyen pour les photons de 4 m. Cette expérience a été faite pour deux impulsions d'énergies respectives, 220 mJ et 90 mJ. Les figures 2.7a et 2.7c montrent leurs profils expérimentaux dans le cas de la propagation libre alors que les figures 2.7b et 2.7d représentent les profils expérimentaux dans le cas de la propagation à travers le nuage pour les mêmes conditions laser.

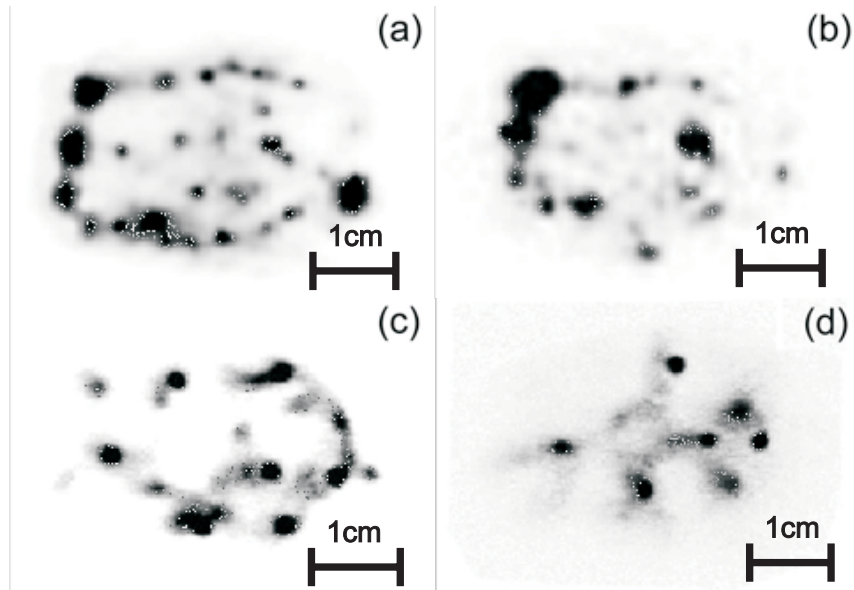


Fig. 2.7 – Profils du faisceau **expérimentaux** à la fin de la chambre à nuage dans le cas de la propagation libre (a,c) aux puissances respectives de 366 GW (impulsion de 600 fs et de 220 mJ) et de 150 GW (impulsion de 600 fs et de 90 mJ) et dans le cas de la propagation à travers le nuage (b,d) avec les mêmes puissances respectives

La figure 2.7 montre que l'énergie transmise affecte significativement le nombre de filaments générés dans le profil du faisceau. Ce nombre apparaît proportionnel à l'énergie transmise à profil temporel estimé constant. Ainsi, le profil correspondant à la propagation libre du faisceau pour une impulsion de 90 mJ est très similaire au profil du faisceau

2.2. Propagation des filaments sous diverses conditions atmosphériques

de 220 mJ ayant traversé le nuage de 50% de transmission et qui correspond donc à un profil d'énergie transmise de 110 mJ (cf. Fig. 2.7b et Fig. 2.7b). Par ailleurs la structure du faisceau est semblable. Elle montre des filaments disposés principalement sur un anneau qui entoure le faisceau. Seuls quelques sites de nucléations des filaments ont disparu entre la propagation libre et la propagation à travers le nuage (cf. Fig. 2.7(a,b) et Fig. 2.7(c,d)). Ceci suggère que le nuage agit principalement comme un absorbant linéaire sur l'ensemble du faisceau tant que celui-ci n'affecte pas significativement le profil temporel de l'impulsion.

Pour quantifier cet aspect, le nombre de filaments pour les différentes configurations de la figure 2.7 a été compté sur 4 à 6 photos prises dans chaque condition expérimentale. Les résultats sont rassemblés au tableau 2.1.

P_{in}/P_{crit}	123		51	
Propagation	libre	brouillard	libre	brouillard
Nombre de filaments compté	24	13	11	6
Nombre de filaments simulés	25	12-15	12	6

Tab. 2.1 – Nombre de filaments après 50 m de propagation. Les dix derniers mètres sont parcourus dans une atmosphère libre ou dans un nuage. On peut comparer le nombre de filaments pour les profils expérimentaux au nombre de filaments issus des profils simulés numériquement.

On considère généralement que le nombre de filaments est proportionnel à la puissance critique nécessaire à la filamentation et que le coefficient de proportionnalité est supérieur à 1. Pour chaque cellule où se forment les filaments, la puissance de celle-ci doit dépasser, selon les sources, entre 3 et 10 P_{crit} [48, 52]. En négligeant l'absorption par le plasma de faible densité, la puissance transmise P_{tr} dans la cas de la propagation libre vaut $P_{tr} \approx P_{in}$ où P_{in} est la puissance incidente du laser.

Comme le montre La figure 2.8, que la propagation ait lieu ou non à travers le nuage, le nombre de filaments ne dépend que de la puissance transmise, et un ajustement linéaire des points expérimentaux montre qu'il faut 15 GW par cellule, soit 5 fois la puissance critique, pour former un filament. Cette valeur est intermédiaire aux modèles théoriques.

Par ailleurs, outre l'atténuation linéaire du faisceau, la présence d'un nuage dense de gouttelettes d'eau est susceptible de réduire la puissance crête via la dispersion modale, c'est à dire la diffusion multiple, qui allonge la durée d'impulsion. Nous avons estimé cet effet par la technique du "tracé de rayon" et des simulations Monte-Carlo. Seule la diffusion élastique proche de l'axe a été considérée, les rayons atteignant l'enceinte de la chambre à nuage étant considérés comme perdus. Pour le nuage de 50% de transmission

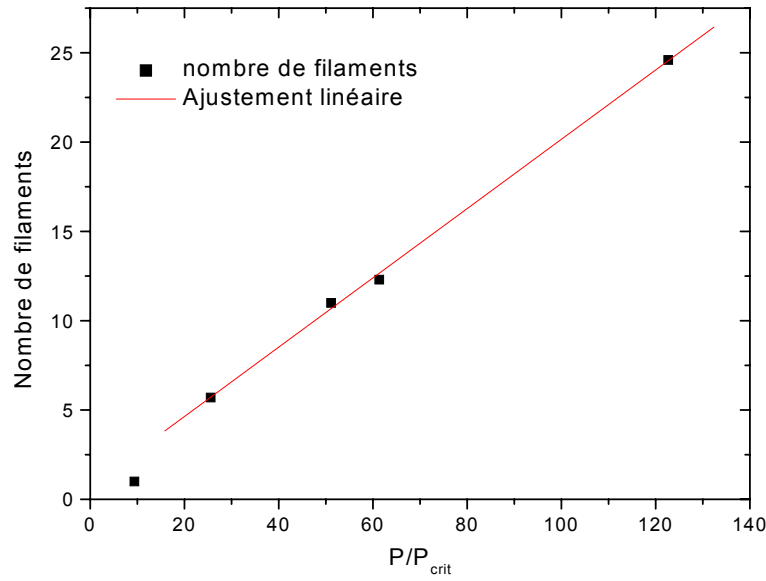


Fig. 2.8 – Nombre de filaments en fonction de la puissance transmise.

considérée précédemment, le calcul montre que l'impulsion est étirée d'environ 100 fs ce qui est négligeable devant la durée d'impulsion initiale de 600 fs. Il est donc légitime de considérer comme nous l'avons fait que la puissance est essentiellement réduite par l'extinction linéaire de l'impulsion. En revanche, lorsque la transmission n'est que de 12%, l'étirement de l'impulsion due à la diffusion multiple est de 500 fs ce qui double pratiquement la durée de l'impulsion. En conclusion de cette partie expérimentale, nous pouvons affirmer que la limitation du nombre de filaments transmis à travers un nuage est due à la perte d'énergie par absorption linéaire du faisceau tant que le profil temporel du faisceau n'est pas modifié significativement et que le processus de filamentation proprement dit n'est pas affecté.

2.2.1.3 Analyses numériques

Afin de compléter cette analyse expérimentale, nous avons comparé les résultats expérimentaux avec ceux obtenus par des simulations numériques réalisées en collaboration avec le groupe de Luc Bergé [53]. Pour caractériser le rôle de l'extinction linéaire à la propagation des filaments, deux modèles ont été testés simultanément, l'un prenant en compte la diffusion sur des gouttes, l'autre considérant uniquement l'extinction linéaire correspondante à la concentration des gouttes dans le nuage.

La concentration des gouttes est prise homogène sur l'ensemble des 10 m de propagation du faisceau et la position des gouttes d'eau est calculée de manière aléatoire, à chaque étape de la propagation. La prise en compte des 50% de transmission du faisceau

2.2. Propagation des filaments sous diverses conditions atmosphériques

à travers le nuage s'est faite par deux processus différents. Soit, une extinction linéaire de $\alpha = 0,07 \text{ m}^{-1}$ a été considérée, ce qui assure 50% de transmission du faisceau après 10 m de propagation, soit l'extinction linéaire a été prise nulle, l'extinction étant assurée par la distribution aléatoire des gouttes. Cependant, en raison de limites informatiques, les simulations ont été faites avec des gouttes de grand rayon R supérieur à $17,6 \text{ } \mu\text{m}$ et la concentration N des gouttes est calculée de manière à reproduire l'extinction linéaire α tel que $\alpha_{ext} = N\pi R^2 Q_{diff}$. Pour des gouttes de $17,6 \text{ } \mu\text{m}$, la concentration des gouttes est $N = 35 \text{ gouttes/cm}^3$ et pour des gouttes de $35,3 \text{ } \mu\text{m}$, la concentration N vaut $N = 9 \text{ gouttes/cm}^3$. Pour prendre en compte l'effet de collision entre le faisceau et les gouttes d'eau du nuage, elles ont été modélisées comme des écrans noirs, de transmission nulle, de surface S équivalente à la section efficace des gouttes, c'est à dire $S = \pi R^2 Q_{diff}$, où R est le rayon des gouttes et Q_{diff} , l'efficacité de diffusion Mie. Cette hypothèse est justifiée par le fait que le coefficient Mie d'extinction $Q_{ext} \approx Q_{diff}$ pour des gouttes de grande taille. Cela se traduit également par le comportement de l'interaction entre un filament et une goutte d'eau qui est le même que celui d'un filament et une goutte d'encre de même diamètre.

La propagation proprement dite, est modélisée comme au paragraphe 2.1.

Dans une première étape, on compare après 4 m de propagation, pour un faisceau de faible diamètre, le rôle de l'extinction linéaire de $\alpha_{ext} = 0,07 \text{ m}^{-1}$ avec la propagation à travers un nuage composé de gouttes de $R = 17,6 \text{ } \mu\text{m}$, ou encore à travers un nuage composé de gouttes de rayon $R = 35,3 \text{ } \mu\text{m}$. La puissance transmise d'un faisceau térawatt après 4 m de propagation est la même dans les trois cas (à 5% près), et les profils simulés sont tout à fait similaires [53]. En d'autres termes, l'action de collisions aléatoires entre les gouttes de rayon R et de concentration N et les photons de l'impulsion peut être reproduite par l'extinction α_{ext} due à une dissipation linéaire agissant sur l'enveloppe du faisceau du moment que l'égalité suivante est respectée $\alpha_{ext} = \pi R^2 Q_{ext} N$.

C'est pourquoi, dans un deuxième temps, pour comparer les profils expérimentaux aux profils issus de la simulation, ces derniers ont été calculés en ne prenant en compte que l'extinction linéaire du nuage. Les résultats sont présentés sur la figure 2.9 où dans un premier cas, les profils (a) et (c) correspondent aux profils après 50 m de propagation libre d'impulsions respectives de $123 P_{crit}$ et de $51 P_{crit}$, dans un deuxième cas les profils (b) et (d) correspondent à des impulsions de même puissance qui se sont propagées dans une atmosphère libre pendant 40 m et dans un nuage d'extinction linéaire de $\alpha = 0,07 \text{ m}^{-1}$ au cours des dix derniers mètres.

L'aspect des profils simulés est tout à fait comparable aux profils expérimentaux. De plus, le nombre de filaments obtenu dans les différents cas est lui aussi conforme à l'ex-

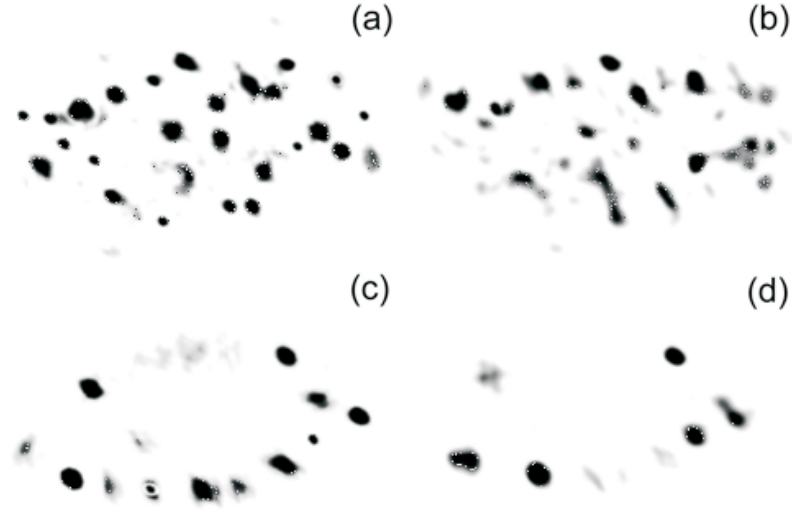


Fig. 2.9 – Profils du faisceau **simulés** à la fin de la chambre à nuage dans le cas de la propagation libre (a,c) aux puissances respectives de 366 GW (impulsion de 600 fs et de 220 mJ) et de 150 GW (impulsion de 600 fs et de 90 mJ) et dans le cas de la propagation à travers le nuage (b,d) avec les mêmes puissances respectives. La simulation a été réalisée en utilisant une extinction linéaire $\alpha_{ext} = 0,07 \text{ m}^{-1}$

périence (cf. Tab. 2.1). Cette statistique sur le nombre de filaments permet de valider l'estimation expérimentale de 5 puissances critiques par filament. Dans le cas de la propagation libre, cela met aussi en évidence la très forte corrélation entre le nombre de filaments et le nombre initial de puissances critiques contenues dans le faisceau. Cela confirme également que l'effet d'un nuage dont les gouttes ont un diamètre suffisamment faible devant le diamètre des filaments est équivalent à l'effet d'une même extinction linéaire de l'énergie du faisceau.

2.2.1.4 Génération des filaments sous la pluie

Contrairement aux expériences précédentes décrites au paragraphe 2.2.1 [50, 54] où les filaments étaient déjà formés avant de rencontrer les gouttes d'eau d'un nuage, ici nous nous intéressons à la formation des filaments sous la pluie. Nous savons que les filaments survivent à l'interaction avec un nuage mais pour des expériences en vraie grandeur c'est l'ensemble du faisceau qui est sous la pluie. Nous nous sommes attachés à caractériser la formation des filaments sous la pluie. Pour cela, nous avons tiré parti d'un épisode pluvieux à l'observatoire Langmuir à 3200 m d'altitude (Nouveau Mexique). La propagation s'effectuait donc sous pression réduite. La pluie était composée de faibles gouttes de diamètre inférieur à 0,5 mm et avec un débit de quelques mm par heure. La visibilité a été estimée à 150 m, c'est à dire une extinction linéaire $\alpha_{ext} = 6,6 \text{ km}^{-1}$, soit une transmission de 37% après 150 m de propagation. La concentration de gouttes dans la pluie a été estimée de $1,7 \times 10^4 \text{ m}^{-3}$ de sorte que le faisceau de 3 cm de diamètre rencontre une goutte tous les centimètres de propagation.

2.2. Propagation des filaments sous diverses conditions atmosphériques

La figure 2.10 compare les profils du faisceau après 75 m de propagation en air sec et sous la pluie. Ces profils sont obtenus à l'aide de papier photosensible (Kodak Linagraph 1895) dont le brunissement caractérise l'intensité du profil du faisceau alors que le cratère d'ablation est le signe de la présence d'un filament. Dans les deux cas, la présence des filaments est avérée par ces cratères qui sont observés autour des maxima d'intensité sur ces profils (cf. Fig. 2.10). Cela constitue la preuve que des filaments peuvent être générés sous la pluie. La comparaison entre les deux profils montre que la filamentation n'est pas interdite par la pluie, même sous pression réduite de 30%, c'est à dire dans des conditions où l'effet Kerr est plus faible. Des filaments ont pu également être observés après 150 m de propagation sous la pluie (cf. Fig. 2.11).

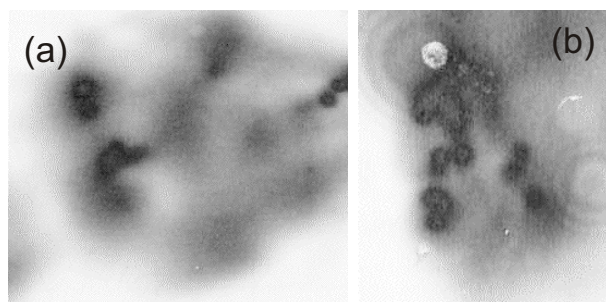


Fig. 2.10 – Profils du faisceau, sur du papier photosensible, après 75 m de propagation sous atmosphère sèche (a) et sous la pluie (b) sous une pression d'air de 0,67 atm. Les formes d'anneaux vues sur le profil du faisceau sont dues à la diffraction du faisceau par les gouttes de pluie.

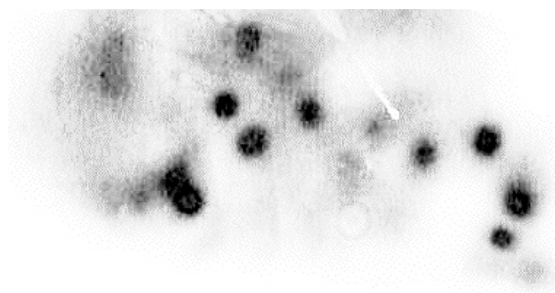


Fig. 2.11 – Profil du faisceau enregistré sur du papier impact après 150 m de propagation sous la pluie.

La pluie n'empêche donc pas la génération de filaments lors de la propagation d'impulsions lasers ultra-brèves et de très hautes puissances, bien supérieure à la puissance critique. Pour de tels faisceaux, les pertes induites par la diffusion sur les gouttes d'eau qui composent la pluie dans la phase d'autofocalisation, ne sont pas suffisantes pour empêcher le mécanisme d'autofocalisation. De plus, il est possible que la diffraction due aux gouttes déforme le profil expérimental du faisceau et induise des modulations du profil d'intensité. Ces modulations de l'intensité pourraient favoriser la nucléation des filaments. Et

les filaments une fois établis, se propagent dans le nuage comme nous l'avons caractérisé en détail au paragraphe 2.2.1. Les filaments peuvent donc démarrer et se propager sous la pluie tant que la puissance transmise du faisceau est supérieure à quelques puissances critiques.

2.2.1.5 Conclusion

Nous avons donc étudié expérimentalement la propagation d'un faisceau femtoseconde térawatt à travers un nuage. La transmission à travers un nuage n'est pas uniquement possible à l'échelle du laboratoire en régime monofilament. Les résultats s'étendent au régime de la multi-filamentation sur des grandes distances, la distance de visibilité du nuage. Nous avons également mis en évidence que le processus de filamentation n'est pas affecté par la présence du nuage. Seul le nombre de filaments est modifié et diminue de façon quasi-linéaire. Les simulations mettent en évidence que cette décroissance du nombre de filaments est due à la perte de puissance du faisceau. Cela signifie que tant que la densité des nuages est suffisamment faible pour que la puissance transmise soit supérieure à quelques puissances critiques, un certain nombre de filaments pourront traverser celui-ci. Pour un nuage dense de 100 gouttes/cm^3 , de $4 \mu\text{m}$ de rayon, il faut 600 mètres de propagation pour que la puissance transmise à travers le nuage empêche la filamentation de la chaîne laser TéraMobile. Ainsi les applications mettant en jeu les propriétés des filaments sont possible même en atmosphère nuageuse. Grâce aux hautes intensités des filaments la spectroscopie de plasma (LIBS) à distance [55] est rendue possible quelque soit les conditions météorologiques. Cela permet aussi d'espérer de pouvoir déclencher des éclairs et décharger ainsi les nuages grâce aux filaments dont les propriétés ne sont pas modifiées par la pluie.

2.2.2 Propagation sous pression réduite

Par ailleurs, pour développer les mesures LIDAR, nous avons besoin de connaître les propriétés de la propagation des filaments sous pression réduite, c'est à dire l'atmosphère rencontrée par les filaments à haute altitude Ce point sera l'objet de ce paragraphe.

Pour déterminer les propriétés de propagation des filaments sous pression réduite, des études expérimentales dans des gaz rares ont été menées à l'échelle du laboratoire, c'est à dire quelques mètres [56, 57, 58, 59, 60]. Une étude dans l'air est en cours de publication [61] mais elle concerne la propagation à courte distance.

Le changement de la pression modifie la dispersion de vitesse de groupe, l'indice non-linéaire de l'air n_2 et la densité des molécules d'oxygène et d'azote susceptible d'être ionisée. De plus la modification de la pression p affecte les processus de formation du

plasma ainsi que l'interaction entre le laser et le plasma, qui sont essentiellement des processus non-linéaires modifiés principalement par la variation du coefficient d'absorption collisionnel qui varie en $1/p^2$ [62]. À l'échelle du laboratoire, la pression réduite affecte principalement le taux d'ionisation, ainsi que l'intensité transportée par les filaments. À grande distance, peu d'études dédiées à la propagation sous pression réduite ou à la propagation soumise à des gradients de pression [40] ont été effectuées en raison de la difficulté à mener de telles expériences. Cependant des simulations théoriques faites par Sprangle *et al* [29] prédisent des mécanismes intéressants comme une refocalisation du faisceau attendue après quelques kilomètres de propagation verticale. Pour étudier cet effet dû à une pression réduite, nous avons réalisé une campagne de mesures sur la propagation des filaments à haute altitude (3 200 m) à l'observatoire Langmuir (Nouveau Mexique).

2.2.2.1 Dispositif expérimental

Pour ces expériences, les impulsions étaient délivrées par le système TéraMobile positionné à l'observatoire Langmuir (Nouveau Mexique) à 3 200 m d'altitude. La pression à cette altitude est alors de 0,67 atm, c'est à dire $6,8 \times 10^4$ Pa. Le faisceau était émis horizontalement et collimaté, avec un diamètre initial de 3 cm. L'énergie par impulsion était de 280 mJ avec la durée d'impulsion de 150 fs. La propagation du faisceau était caractérisée comme précédemment à l'aide de papier photosensible (cf. paragraphe 2.2.1.4) (Kodak Linagraph 1895).

2.2.2.2 Résultats et discussion

La figure 2.12 montre des profils de propagation entre 1 et 30 m. Ces profils sont qualitativement similaires aux profils obtenus au niveau de la mer [30, 34, 48]. Plus spécifiquement, des zones de hautes intensités en forme de trident apparaissent sur les profils et donnent naissance un peu plus loin à des filaments.

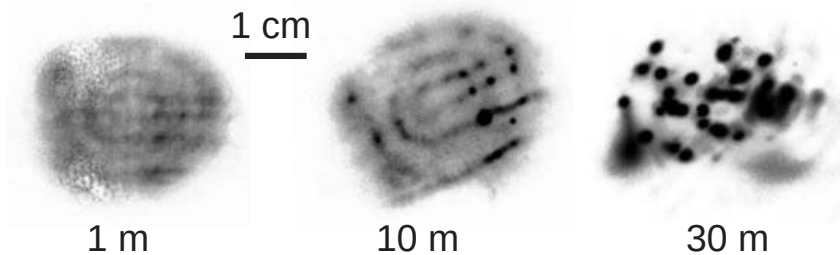


Fig. 2.12 – Profils d'intensité du faisceau laser sur un écran à 3 distances de propagation

La distance de filamentation z_f fournit un bon critère pour caractériser la première phase de la filamentation qui est dominée par l'autofocalisation par effet Kerr. Cette

distance est calculée par l'expression établie par Marburger [63] :

$$\frac{1}{z_f(P)} = -\frac{1}{R} \pm \frac{\sqrt{(\sqrt{P/P_{crit}} - 0,852)^2 - 0,0219}}{0,367ka^2} \quad (2.5)$$

où R est le rayon de courbure initial du front d'onde (dans notre cas R correspond à la distance focale du faisceau qui vaut 50 m), P est la puissance du laser, k est le nombre d'onde, a est le rayon initial du faisceau défini comme la demi-largeur à $1/e^2$. Dans cette région d'autofocalisation, la propagation est gouvernée par l'effet Kerr, d'où l'importance de l'indice de réfraction non linéaire de l'air n_2 , qui est proportionnel à la pression [64]. C'est pourquoi la puissance critique P_{crit} est inversement proportionnelle à la pression de l'air et la distance de filamentation z_f est fortement affectée à basse puissance, c'est à dire quand $P \approx P_{crit}$. Le comportement asymptotique de l'équation 2.5, c'est à dire pour P très supérieure à la puissance critique, montre que la distance de filamentation $z_f(p)$ doit se réduire à $z_f(p) = z_f(p_0)\sqrt{p/p_0}$, où p est la pression atmosphérique et l'indice 0 correspond à la pression atmosphérique standard. À 3 200 m d'altitude la réduction de la pression est de 30%, on s'attend donc à un raccourcissement de la distance de filamentation. de 15%. Malheureusement la résolution spatiale de 5 m n'a pas pu mettre en évidence une telle réduction de la distance de filamentation.

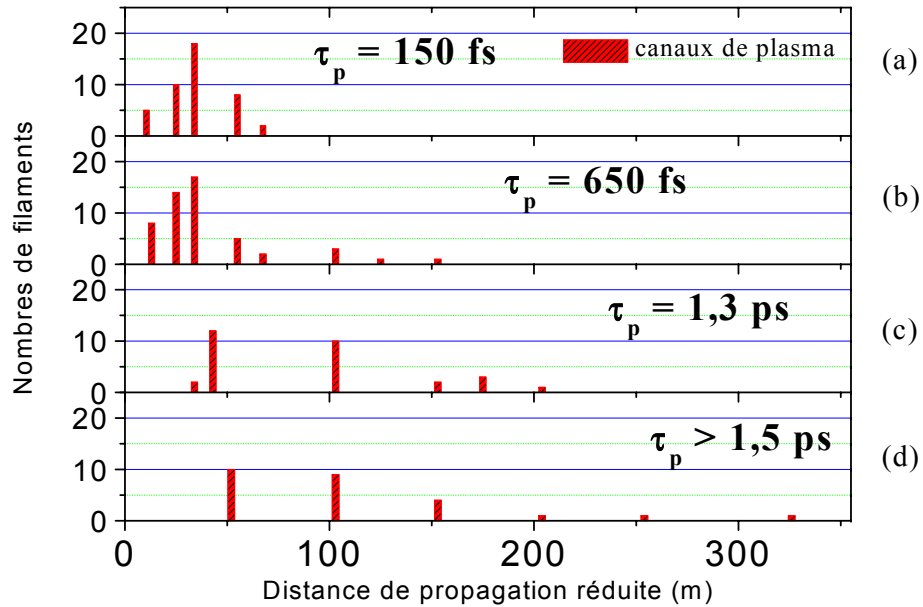


Fig. 2.13 – Nombre de filaments en fonction de la distance pour des impulsions de 280 mJ d'énergie, et de durée d'impulsion (a) $\tau_p = 150$ fs, (b) $\tau_p \approx 650$ fs, (c) $\tau_p \approx 1,3$ ps et (d) $\tau_p \approx 1,5$ ps

Par ailleurs, ce rapprochement des filaments sous pression réduite n'affecte pas la longueur de filamentation. La figure 2.13 montre que la longueur de filamentation mesurée

2.2. Propagation des filaments sous diverses conditions atmosphériques

est similaire à la longueur de filamentation observée au niveau de la mer [65]. Ce résultat suggère que les pertes dues à l'ionisation multiphotonique ainsi que l'absorption due au plasma généré par les filaments sont du même ordre de grandeur qu'au niveau de la mer.

Un autre paramètre clé est le nombre de filaments. En effet, un faisceau térawatt se divise en des cellules de quelques puissances critiques P_{crit} (typiquement entre 1 et 10) [54]. C'est pourquoi le nombre de filaments est inversement proportionnel à la puissance critique P_{crit} , et donc proportionnel à la pression. La figure 2.14 compare le nombre de filaments généré par une impulsion de 2,5 TW à 3 200 m d'altitude et au niveau de la mer. Pour comparer le nombre de filaments à des stades de propagation identique, le nombre de filaments est indiqué en fonction de la distance réduite de propagation $\hat{z} = z/\sqrt{p/p_0} = z.z_f(p)/z_f(p_0)$. La racine carrée provient toujours du comportement asymptotique de l'équation 2.5.

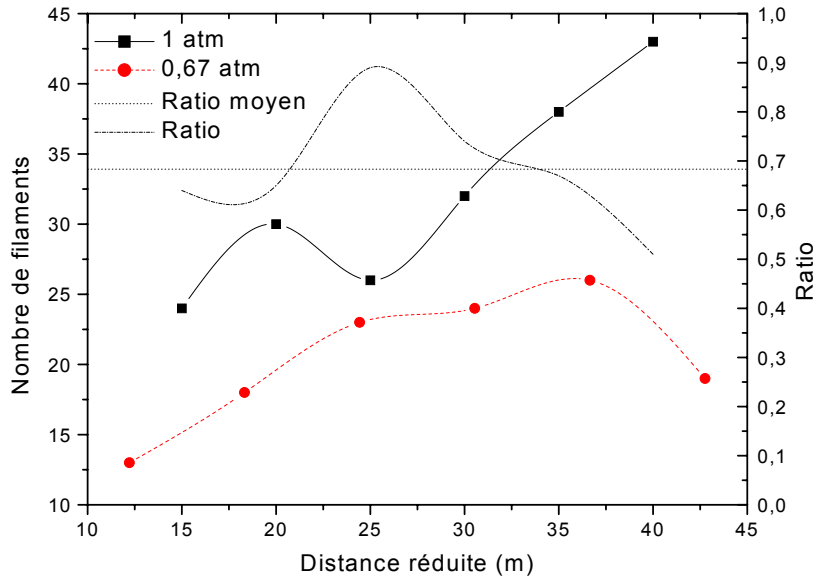


Fig. 2.14 – Comparaison entre le nombre de filaments générés par des impulsions de 2,5 TW à la pression de 0,67 atm (à 3 200 m d'altitude) avec celui à 1 atm (au niveau de la mer) en fonction de la distance réduite. Le rapport du nombre de filaments entre les deux conditions est indiqué sur l'échelle de droite

Le nombre de filaments à la pression atmosphérique de 0,67 atm comparé au nombre de filaments à la pression atmosphérique standard présente une diminution moyenne de 32%, c'est à dire dans la même proportion que la réduction de la pression. Cela montre que, comme au niveau de la mer, le faisceau se divise en des cellules qui contiennent le même nombre de puissances critiques P_{crit} .

L'influence de la compensation de la dispersion de vitesse de groupe sur le nombre de

filaments et la longueur de filamentation a également été étudiée. La figure 2.13 montre le nombre de filaments en fonction de la durée de l'impulsion et de la distance. Pour l'impulsion de plus faible puissance, c'est à dire l'impulsion la plus longue, le plus grand nombre de filaments est obtenu à la distance de 50 m, et des filaments ont pu être observés jusqu'à des distances de 325 m. Ceci s'explique par le fait, que pour l'impulsion la plus longue entre 1,5 et 1,8 ps, le nombre de filaments est réduit ce qui conduit à de moindres pertes d'énergie au cours de la filamentation vu que la plus grande part de l'énergie se trouve dans le "bain de photons".

De plus, l'existence de filaments jusqu'à 0,2 atm, vue en laboratoire [61], ce qui correspond à une altitude de 11 km, ainsi que les observation de filaments longs sur plusieurs centaines de mètres, à 3200 m d'altitude, montrent que les applications atmosphériques des filaments ne seront pas limitées par l'altitude. De plus le fait que le comportement des filaments n'est pas modifié, montre que la plus faible concentration d'électrons dans les canaux de plasma existant au sein des filaments, n'a pas d'effets significatifs.

2.2.2.3 Conclusion

Pour la première fois, nous avons présenté une caractérisation de la filamentation sur plusieurs centaines de mètres sous pression réduite. La propagation des filaments n'est pas affectée par cette pression plus faible. L'effet limité de la pression et de la pluie, permet d'envisager favorablement des applications des filaments sous des conditions atmosphériques hostiles, comme c'est le cas pour le déclenchement de foudre.

2.2.3 Effet de la turbulence

En atmosphère claire, la principale perturbation à la propagation d'un faisceau provient de la turbulence de l'air, qui affecte son profil et sa stabilité de pointé. Dans le cas de la filamentation, étant donné que les variations de l'indice de réfraction dues à l'effet Kerr sont plus grandes que celles induites par la turbulence, on s'attend à ce que la propagation des filaments ne soit que peu affectée par la turbulence de l'air. Des études théoriques et expérimentales ont été menées sur cet aspect [66, 67, 67, 68, 69], mais aucune ne caractérise jusqu'ici l'effet de la turbulence systématiquement. C'est à cet aspect que nous nous sommes attardés. En particulier, nous avons caractérisé en laboratoire le seuil de turbulence pour lequel le filament peut survivre en fonction de la position de la zone turbulente par rapport au stade de la filamentation.

2.2.3.1 Dispositif expérimental

Cette expérience a été menée en laboratoire. Un laser à dérive de fréquence, du même type que celui du TéraMobile mais avec un étage d'amplification en moins, délivrait des

2.2. Propagation des filaments sous diverses conditions atmosphériques

impulsions de 300 fs et d'énergie de 8 mJ au taux de répétition de 22,5 Hz à 810 nm. Le diamètre initial du faisceau était approximativement de 1 cm (à $1/e^2$). Il était focalisé par un miroir sphérique de focale $f = 5$ m (cf. Fig 2.15). Le foyer non-linéaire, c'est à dire le point de démarrage de la filamentation, était situé 2,5 m après le miroir sphérique. Ce point est pris pour origine des mesures ($z = 0$ m) selon l'axe de propagation z . Le filament s'étendait sur 2 m de long.

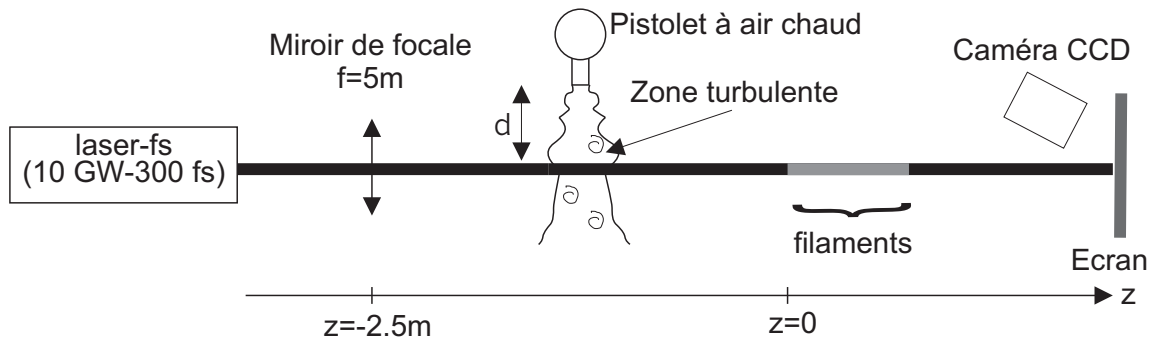


Fig. 2.15 – Dispositif expérimental de l'étude de la turbulence sur la propagation des filaments

À une position z donnée, le faisceau traverse une zone turbulente générée par un pistolet à air chaud soufflant perpendiculairement au faisceau laser. Le débit d'air de ce pistolet est de 500 L/min, l'ouverture angulaire de la buse est de 20° , et les vitesses atteintes par le souffle d'air de l'ordre de 20 m/s à la sortie de la buse à des températures de l'ordre de 500°C . La distance d entre le pistolet à air chaud et le faisceau était ajustée entre 1 mm et 2 m afin de modifier les conditions de perturbation du faisceau. Ce dispositif permettait d'atteindre des valeurs de 10^{-9} à $10^{-7} \text{ m}^{-2/3}$ pour le paramètre de structure de l'indice de réfraction C_n^2 qui caractérise la turbulence. Nous reviendrons dans le paragraphe 2.2.3.2 sur la détermination de ce paramètre.

Dans le but de caractériser une éventuelle stabilisation du pointé du faisceau lors de la propagation à travers une zone turbulente par des effets non-linéaires, la stabilité de pointé a été déterminée pour divers types de faisceau laser, pour la même position du pistolet à air chaud :

1. une impulsion laser qui filamente ;
2. la même impulsion ultra-brève mais avec une énergie moindre (1 mJ) pour empêcher les processus non-linéaires qui demandent une puissance critique de 3 GW ;
3. un laser He : Ne continu de 10 mW.

2.2.3.2 Détermination du paramètre de structure de l'indice de réfraction C_n^2

La détermination du coefficient C_n^2 est réalisée indirectement par la mesure de la stabilité de pointé du faisceau transmis à travers la région turbulente, sur un écran blanc situé

à la distance $z = 7,6$ m. Afin d'autoriser un traitement statistique, 50 images sont prises pour chaque condition expérimentale. Chaque image correspond à un seul tir laser. Pour chaque image, le profil du faisceau et sa position sont enregistrés à l'aide d'un appareil photographique numérique couleur, avec une résolution de $10,6 \mu\text{m}$ par pixel. Ce dispositif offre une résolution typique de 10^{-3} mrad sur la stabilité de pointé. Pour éviter les interférences de l'émission conique, un filtre RG 780 qui laisse passer la fondamentale à 800 nm est placé devant l'objectif. Pour protéger la photocathode et empêcher la saturation de la plaque CCD, un deuxième filtre atténuateur de transmission 1% est ajouté à ce premier filtre. La couche rouge des images couleur RGB (rouge, vert, bleu), qui imprime la totalité du faisceau, est utilisée pour calculer le centre du faisceau, défini comme le centre de gravité du profil. Pour limiter l'influence du bruit de fond dans le positionnement du centre, seuls les pixels dont l'intensité est au-dessus de 70% de l'intensité maximale sont considérés. Cette procédure fournit une précision sur le centre du faisceau de quelques pixels, limitée par la stabilité de pointé du faisceau non perturbé. Les écarts-types σ_x^2 et σ_y^2 sur la position en x et en y du centre du faisceau sont calculés sur 50 tirs laser. Il a été montré que le paramètre de structure de l'indice de réfraction C_n^2 s'obtient alors par [70] :

$$C_n^2 = \sigma_\theta^2 \frac{\Phi^{1/3}}{2,91 \cdot l} \quad (2.6)$$

où Φ est le diamètre du faisceau, l la longueur de la zone turbulente traversée par le faisceau, $\sigma_\theta^2 = (\sigma_x^2 + \sigma_y^2)/L_p$ est l'écart type de la stabilité de pointé exprimée en radians et L_p est la longueur de propagation. C_n^2 est exprimée ici en $m^{-2/3}$ [70].

2.2.3.3 Résultats et discussion

Pour les trois lasers utilisés, la stabilité de pointé est la même pour des perturbations identiques. On en déduit donc que la propagation non-linéaire ultra-brève n'améliore pas la stabilité de pointé de l'ensemble du faisceau. Par ailleurs, pour caractériser la turbulence, on pourra choisir arbitrairement le faisceau considéré. Cependant, l'écran étant situé en dehors de la zone de filamentation, plus de 5 m après celle-ci, aucune conclusion ne peut être tirée sur la stabilité des filaments proprement dit à l'intérieur du faisceau.

La robustesse du processus de filamentation aux fluctuations d'indice dues à la turbulence, a été étudiée en fonction de la position z de la zone de turbulence au cours de la propagation ainsi qu'en fonction de l'intensité de la turbulence. L'existence des filaments malgré la perturbation est caractérisée par un seuil d'intensité de la couleur verte des profils du faisceau enregistrés en couleur RGB. Nous avons vérifié que ce critère automatique correspondait bien à l'observation *de visu* des filaments. Nous avons choisi de mesurer la turbulence simultanément avec l'existence des filaments en utilisant le faisceau laser femtoseconde pour caractériser la turbulence. On peut donc déterminer simultanément

2.2. Propagation des filaments sous diverses conditions atmosphériques

l'existence des filaments et caractériser la turbulence sur la même image, ce qui est important pour étudier un processus stochastique où il faut éviter tout risque de biais et de dérive.

Nos mesures montrent clairement que l'influence de la turbulence décroît au fur et à mesure que l'on se rapproche du foyer non-linéaire. Alors qu'une turbulence de $C_n^2 = 1,5 \times 10^{-9} \text{ m}^{-2/3}$ à la sortie du laser, soit 5 m avant le foyer non-linéaire peut empêcher la filamentation, il faut au contraire une très forte perturbation supérieure à $C_n^2 = 10^{-7} \text{ m}^{-2/3}$ pour détruire le filament une fois formé. C'est ce que montre la figure 2.16 où sont notés les seuils respectifs de turbulence nécessaire à une réduction respective des probabilités de génération de filaments de 10%, 50% et 90% en fonction de la position de la zone turbulente.

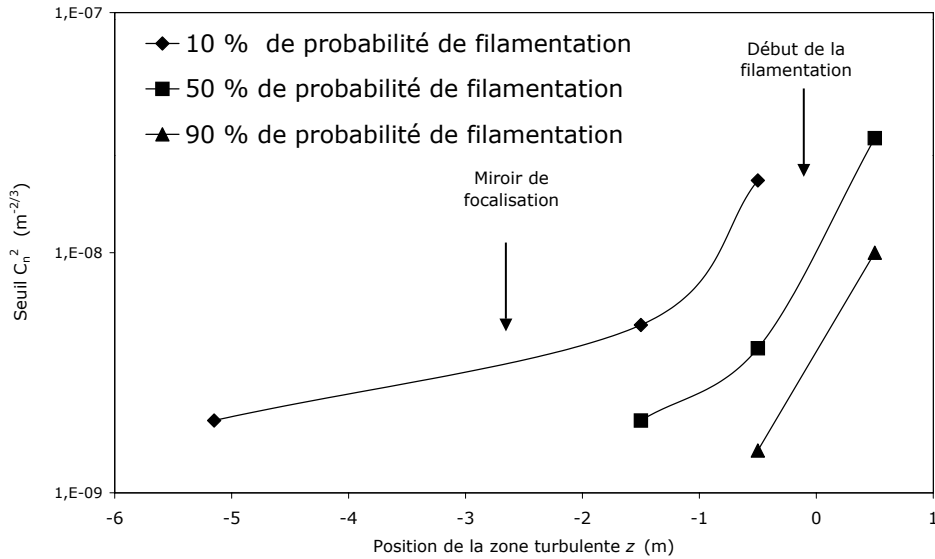


Fig. 2.16 – Seuils respectifs de turbulence caractérisée par le paramètre de structure C_n^2 pour une réduction de les probabilités de génération de filamentation de 10%, 50% et 90% en fonction de la position de la zone de turbulence.

Il est cependant à remarquer que le seuil de turbulence permettant la formation ou la survie de 90% des filaments est de plusieurs ordres de grandeur plus haut que pour toute condition atmosphérique possible (C_n^2 compris entre 10^{-15} et $10^{-13} \text{ m}^{-2/3}$). Bien que les applications atmosphériques requièrent des distances de propagation beaucoup plus grandes que dans nos expériences, nos résultats montrent que la turbulence n'est pas un facteur limitant pour les applications supposant la propagation des filaments sur de longues distances à travers l'atmosphère.

De plus, le seuil extrêmement haut du paramètre de structure de l'indice de réfraction ouvre la voie d'applications de la propagation des filaments dans des zones hautement turbulentes où le paramètre de structure de l'indice de réfraction prend des valeurs beau-

coup plus élevées que dans l'atmosphère [70]. Par exemple, la spectroscopie de plasma induite par les filaments (R-FIBS) [71, 72] (cf. paragraphe 4.10) permettrait d'analyser des espèces en sortie de cheminée, dans un milieu hautement turbulent [73].

L'effet faible de la turbulence sur un filament déjà formé est à rapprocher de la stabilité intrinsèque des filaments dont on a vu qu'ils peuvent même survivre à l'interaction avec un aérosol, une goutte d'eau de $95 \mu m$ de rayon, voire traverser un nuage (cf. paragraphe 2.2.1 et paragraphe 2.2.1.4). L'origine de cette stabilité peut être interprétée en comparant les fluctuations des gradients d'indice dues d'une part à la turbulence $|\vec{\nabla}n_T|$ et d'autre part aux filaments $|\vec{\nabla}n_{fil}|$:

$$|\vec{\nabla}n_{fil}| = n_2 I / d \quad (2.7)$$

$$|\vec{\nabla}n_T| = 9,1 \times 10^{-5} T_s / (T \bar{\Delta}r) \quad (2.8)$$

où $I = 5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, c'est à dire l'intensité typique à l'intérieur d'un filament, $d \approx 150 \mu m$ est le diamètre d'un filament, $T_s = 288,15 \text{ K}$ est la température standard, et $\bar{\Delta}r$ est l'échelle typique du gradient de température à l'intérieur d'un flux d'air chaud. Le facteur $9,1 \times 10^{-5}$ provient de la formule de Rank [10] évaluée à 800 nm . En considérant que la température maximale atteinte est $T = 500^\circ\text{C}$, ce qui est une valeur limite supérieure, et une décroissance de la température sur 1 cm ($\bar{\Delta}r = 1 \text{ cm}$), on obtient que $|\vec{\nabla}n_T| \approx 6 \times 10^{-3} \text{ m}^{-1} \ll |\vec{\nabla}n_{fil}| = 0,3 \text{ m}^{-1}$. On en déduit donc que la variation du gradient d'indice due à une turbulence même très forte, caractérisée par une grande valeur du paramètre de structure de l'indice de réfraction $C_n^2 = 10^{-7} \text{ m}^{-2/3}$ est négligeable devant la variation d'indice induite par effet Kerr dans les filaments.

En revanche, une perturbation du profil du faisceau en amont du processus de filamentation, c'est à dire avant que les processus non-linéaires entrent en jeu, vont donner naissance à des cellules qui vont évoluer indépendamment des unes des autres, à l'intérieur du faisceau. Ces cellules ne seront à l'origine d'un filament que si la puissance contenue dans ces cellules dépassent plusieurs puissances critiques. C'est pourquoi, dans le cas d'un faisceau de quelques dizaines de GW, c'est à dire de seulement quelques puissances critiques, si le faisceau se divise en plusieurs cellules, très rapidement la puissance de celles-ci n'est plus suffisante pour induire la filamentation.

En conclusion, nous avons montré que la filamentation n'est pas affectée par les intensités de turbulence thermique rencontrées dans l'atmosphère. Pour des niveaux de turbulence plus élevés, très supérieurs aux intensités rencontrées dans l'atmosphère, la génération de filaments peut être stoppée ou empêchée. La transition est brutale entre un taux de turbulence qui n'affecte pas la propagation du faisceau ou au contraire qui stoppe sa propagation. Par ailleurs, l'effet de la perturbation augmente lorsque la zone turbulente

se rapproche des premiers stades de la propagation du faisceau.

2.2.4 Conclusion

Nous avons caractérisé la propagation spatiale des faisceaux térawatts femtosecondes sous diverses conditions atmosphériques : brouillard, pluie, haute altitude (pression réduite), vent ou gradient thermique (turbulence). Nous avons vu que le mécanisme de filamentation n'était pas affecté par ces conditions hostiles de propagation. En particulier la longueur de filamentation est limitée par la puissance transmise du faisceau dans ces diverses conditions. Par conséquent, la stabilité des filaments offre de nombreuses perspectives quant à leurs applications atmosphériques auxquelles nous nous intéresserons : spectroscopie de plasma à longue distance, déclenchement de foudre, LIDAR non-linéaire, dont le LIDAR à lumière blanche. Ces applications seront détaillées dans les chapitres suivants.

2.3 Lumière blanche générée par troisième harmonique

Le développement du LIDAR à lumière blanche, outre la caractérisation spatiale de la propagation des filaments, nécessite également une caractérisation spectrale de la filamentation. Or il a été montré par divers groupes, qu'à l'aide d'un laser femtoseconde focalisé, on peut générer de hautes harmoniques dans différents gaz [74, 75, 76, 77, 78, 79], et notamment dans l'air [74], avec une efficacité de conversion de 0,1% dans la troisième harmonique. Plus récemment, la génération de troisième harmonique au cours de la propagation des filaments a été mise en évidence théoriquement et expérimentalement [80] sur une dizaine de centimètres. Si les efficacités de génération et de largeur de bande sont suffisantes, ceci ouvre la voie de la mesure de pollution à l'ozone grâce au LIDAR à lumière blanche. En effet, la bande d'absorption de l'ozone se trouve autour de 260 nm, c'est à dire dans la même zone spectrale que la génération de lumière blanche par la troisième harmonique. Dans le but de développer cette technique, nous nous sommes donc intéressés à la génération de troisième harmonique (THG). Des expériences réalisées en laboratoire ont été comparées à des simulations numériques réalisées par le groupe de Luc Bergé, et nous verrons au prochain chapitre la caractérisation de la génération de la troisième harmonique à grande distance grâce à la technique LIDAR.

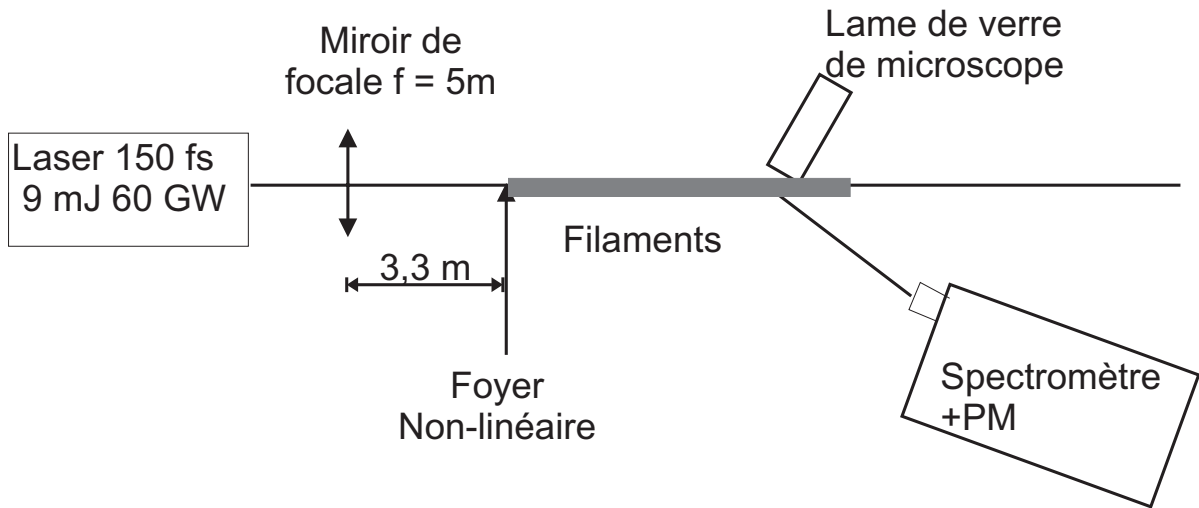


Fig. 2.17 – Dispositif expérimental utilisé pour la caractérisation spectrale de la génération de lumière blanche entre 200 et 500 nm. La lumière est déviée par la tranche d'une lame mince de microscope vers la fente d'un spectromètre.

2.3.1 Dispositif expérimental

Un laser à dérive de fréquence, le même que celui décrit pour mesurer l'effet de la turbulence (cf. paragraphe 2.2.3), génère des impulsions de 150 fs et de 9 mJ, soit 60 GW à 810 nm. Le faisceau de 12 mm de diamètre se propage librement sur 6,1 m avant d'être focalisé par un miroir de 5 m de focale. Le foyer non-linéaire est situé 3,3 m après le miroir sphérique. Il est marqué par le début d'un filament de 2 m de longueur (cf. Fig. 2.17).

La lumière blanche générée au cours de la propagation du filament est diffusée par la tranche dépolie d'une lame de microscope placée tangentielle au faisceau, vers un monochromateur suivi d'un photomultiplicateur. La résolution spectrale du système de détection est de 7 nm. Nous avons vérifié que la diffusion sur la lame de verre ne génère pas elle-même de la lumière blanche. L'évolution du spectre de lumière blanche générée au cours de la propagation d'un faisceau femtoseconde térawatt est enregistrée entre 200 et 500 nm en fonction de la distance.

2.3.2 Résultats

La figure 2.18a montre l'évolution du spectre expérimental de la lumière blanche en fonction de la distance de propagation. Au niveau du foyer non-linéaire, après 3,3 m de propagation, la fondamentale du faisceau à 800 nm est élargie par automodulation de phase. À 4,26 m, on observe l'émergence de la troisième harmonique autour de 270 nm, avec une largeur spectrale de 20 nm (cf. Fig. 2.18a). Cet élargissement spectral est du même ordre de grandeur que celui observé précédemment sur quelques centimètres [81].

2 m après, les composantes spectrales comprises entre 300 et 500 nm sont intensifiées alors que la troisième harmonique est atténuée. La propagation linéaire au-delà de la longueur de filamentation conserve la forme du spectre qui présente un plateau de lumière blanche entre 300 et 500 nm.

2.3.3 Analyse des résultats et comparaison avec les simulations

Afin de comprendre les résultats expérimentaux, nous les avons comparés à des simulations théoriques qui permettent de les interpréter (cf. Fig. 2.18). Le modèle utilisé est très proche du modèle radial introduit précédemment par N. Aközbek *et al* [80], mais il inclut l'effet Kerr retardé subit par l'impulsion infrarouge, et l'ionisation par avalanche. Par ailleurs pour accélérer le calcul, un petit faisceau de diamètre initial de 0,5 mm est considéré.

La simulation décrit l'évolution d'un spectre entre 300 et 500 nm généré par une impulsion de 150 fs transportant 4 puissances critiques. Pour un tel faisceau, le foyer non-linéaire est à 0,4 m (cf. Fig. 2.18b). Au début de la propagation, le faisceau s'élargit spectralement sous l'action de l'automodulation de phase. Puis, après 1,37 m de propagation, la génération de troisième harmonique crée un pic autour de 266 nm. Au-delà de trois mètres de propagation, la filamentation s'arrête. On constate alors que l'efficacité de conversion vers les composantes spectrales comprises entre 300 et 500 nm est augmentée de l'ordre d'une décade alors que la troisième harmonique est atténuée. Les simulations reproduisent ainsi très correctement l'évolution du spectre mesuré expérimentalement. L'émergence du plateau entre 300 et 500 nm, est due à l'élargissement spectral de la troisième harmonique par automodulation de phase et le mélange de fréquences entre la fondamentale du faisceau et la troisième harmonique.

L'importance de la contribution du mélange de fréquences est attestée par la courbe en pointillés sur la figure 2.18b. Le spectre a été calculé en négligeant la génération de troisième harmonique. Dans ce cas le spectre obtenu sous-estime gravement le continuum de lumière blanche, montrant au contraire que la troisième harmonique participe activement à la génération de lumière blanche.

De plus, les simulations numériques ont montré que grâce à la génération de cette troisième harmonique, la longueur de filamentation était augmentée d'environ 1 m. Cela augmente encore l'élargissement spectral par automodulation de phase au cours du mécanisme de filamentation [82]. En effet l'impulsion de troisième harmonique stabilise la filamentation en jouant le rôle d'une non-linéarité d'ordre 5, avec une contribution négative à l'indice de réfraction.

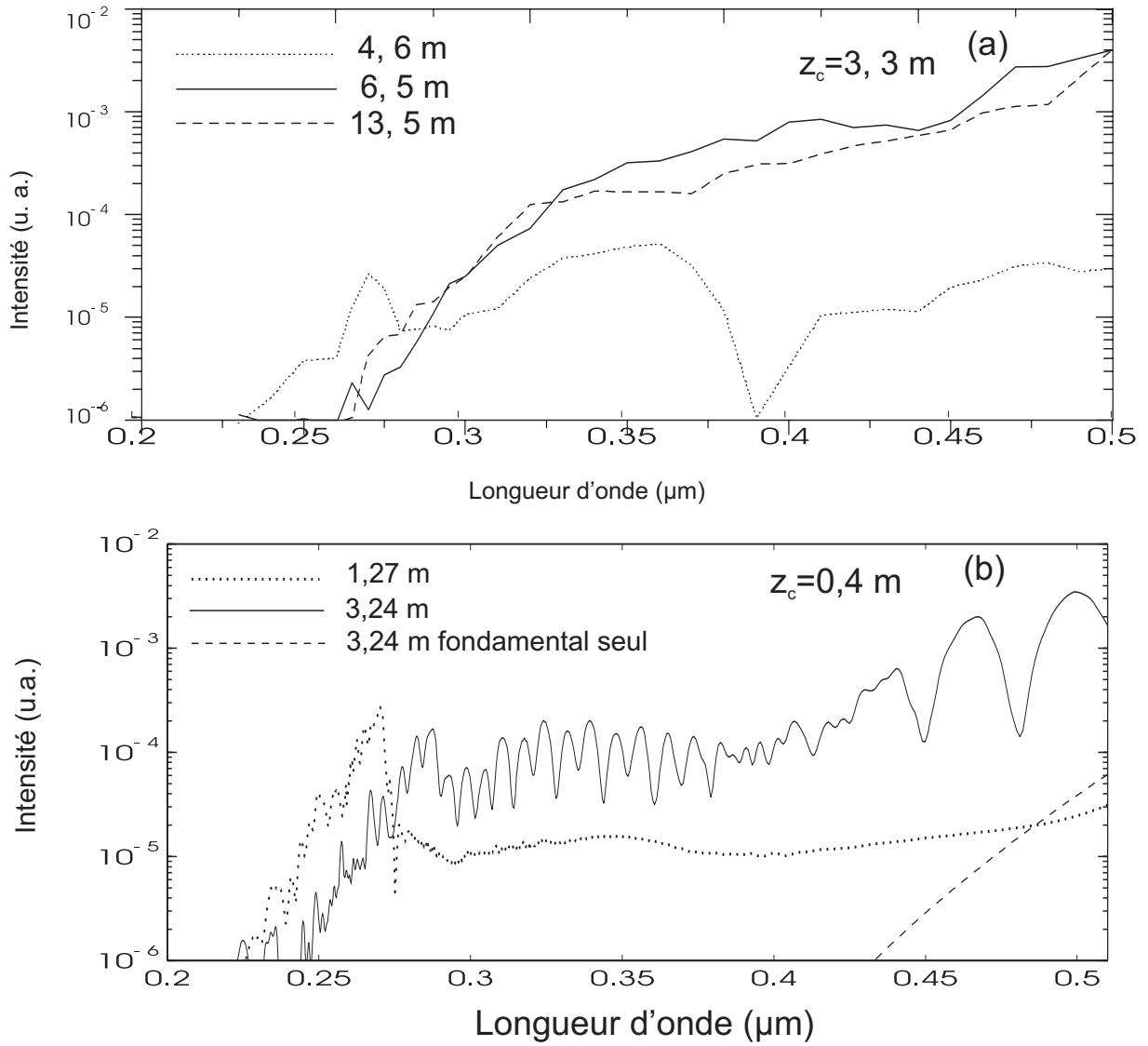


Fig. 2.18 – Évolution du spectre expérimental de lumière blanche entre 200 et 500 nm générée par un faisceau femtoseconde en fonction de la distance de propagation (a). Ce spectre est comparé à des simulations numériques (b).

2.3.4 Conclusion

Nous avons caractérisé la génération de troisième harmonique. Un supercontinuum de lumière blanche entre 230 nm et 500 nm a ainsi pu être mesuré. L'interprétation des résultats expérimentaux a été éclairée par les simulations numériques. Elle met en évidence que le plateau entre 300 et 500 nm est dû au mélange de fréquences entre la fondamentale du faisceau à 800 nm et la troisième harmonique générée par le filament. Notamment, nous avons un blocage de phase constructif entre l'impulsion ultra-violette et infrarouge qui permet l'émergence du plateau par modulation de phase croisées entre la fondamentale du faisceau, élargie elle-même par autodomulation de phase, et la troisième harmonique.

2.3. Lumière blanche générée par troisième harmonique

Cette saturation non-linéaire en $\chi^{(5)}$ n’empêche pas la génération de plasma. Un allongement de la longueur de filamentation a également été démontré par les simulations numériques, ce qui renforce l’élargissement spectral du faisceau par automodulation de phase.

Nos résultats expérimentaux ont permis à l’équipe de Luc Bergé de valider un modèle de propagation (2D+1) qui permet de simuler la propagation des filaments sur une centaine de mètres. Pour la première fois, des filaments individuels de quelques mètres de longueur se développant sur des “piliers optiques” ont été mis en évidence. Par ailleurs, nous avons montré que les filaments peuvent se propager dans des conditions de propagation hostile, sous la pluie, dans le brouillard, ou soumis à de fortes turbulences.

Ces propriétés des filaments et leurs caractérisations permettent de développer diverses applications atmosphériques, comme le LIDAR à lumière blanche qui sera vu au chapitre 3. Nous étendrons alors à grande distance les résultats obtenus sur la génération de troisième harmonique.

La propagation non-linéaire du faisceau permet également de s’affranchir de la limite de diffraction. Cette propriété a rendu possible la télédétection et l’identification d’aérosols biologiques, de cibles solides par la technique “LIBS” qui seront décrits au chapitre 4. La propagation sous la pluie a permis également d’envisager le déclenchement de décharges de haute tension par les filaments. Nous reviendrons sur ce dernier aspect au chapitre 5.

Chapitre 3

Le Lidar à lumière blanche

Après un chapitre décrivant le processus de la filamentation et essayant de mettre en relief les principales caractéristiques de ce phénomène, nous allons maintenant davantage nous intéresser aux applications atmosphériques que permet la filamentation. En particulier, ce chapitre sera dédié au LIDAR à lumière blanche. Dans un premier temps, cette technique servira à étudier à longue distance la génération du continuum de lumière blanche, lors de la propagation dans l'air d'impulsions femtosecondes térawatts. Les résultats concernant la troisième harmonique seront étendus aux cas des longues distances.

Dans un deuxième temps, la génération du continuum de lumière blanche sera caractérisée à longue distance dans l'infrarouge. Étant donné la décroissance rapide du signal de ce côté du spectre, cette étude a été menée à l'observatoire de Tautenburg pour disposer d'un système de détection très performant avec un télescope de miroir primaire de 2 m de diamètre.

Et enfin, nous donnerons un exemple d'application du LIDAR à lumière blanche en la réalisation d'un LIDAR multi-paramètres permettant de caractériser entièrement les paramètres météorologiques impliqués dans la nucléation des nuages et de leurs précipitations. En particulier, nous verrons qu'à partir de la même chaîne laser, la distribution en taille des gouttes du nuage peut être caractérisée et que les paramètres thermodynamiques, la température, le rapport de mélange de la vapeur d'eau et l'humidité relative peuvent être déterminés.

3.1 Spectre ultraviolet à longue distance

3.1.1 Dispositif expérimental

Les impulsions femtosecondes térawatts étaient générées à l'aide de la chaîne laser du système TéraMobile. Les paramètres étaient ajustés pour optimiser le signal LIDAR.

3.1. Spectre ultraviolet à longue distance

L'impulsion initiale était préfocalisée à 60 mètres et durait 150 fs, de manière à précompenser légèrement la dispersion de vitesse de groupe dans l'atmosphère, et maximiser ainsi la génération de lumière blanche. Il y a donc un changement d'échelle entre l'expérience en laboratoire réalisée sur quelques mètres, avec un faisceau de puissance crête de 60 GW, dans un régime monofilament et, l'expérience réalisée avec la chaîne laser du TéraMobile, avec un faisceau de puissance crête supérieure à 2 TW, dans un régime multifilaments et sur plusieurs centaines de mètres.

Le système LIDAR utilisait le télescope du système de détection propre au TéraMobile (cf. paragraphe : 1.2.4). Le signal LIDAR était enregistré, tous les 10 nm entre 200 et 500 nm, grâce à un spectromètre suivi d'un photomultiplicateur relié à un oscilloscope. La résolution spectrale était de 2 nm et la résolution spatiale était de 10 mètres. Le signal LIDAR a pu être mesuré à partir de 100 mètres de distance. En dessous de cette hauteur, le signal était inexploitable en raison de la compression géométrique.

3.1.2 Des mesures préliminaires de la concentration d'ozone

La figure 3.1 montre quelques signaux LIDAR enregistrés entre 230 nm et 500 nm. Pour alléger la figure, nous avons représenté les signaux LIDAR seulement toutes les 30 nm. Dès 230 nm, nous avons obtenu un signal jusqu'à 200 m et jusqu'à 1 km à 260 nm.

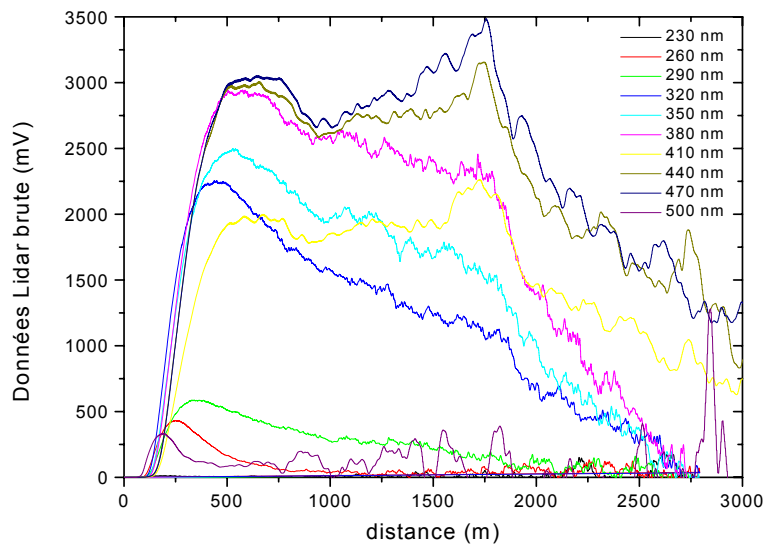


Fig. 3.1 – Quelques signaux LIDAR multispectraux bruts enregistrés de l'ultraviolet au visible entre 230 nm et 500 nm (le 26 juillet 2002 à 2h00). Les signaux sont moyennés sur 100 tirs laser.

Ce résultat est très prometteur car il montre qu'en dépit d'un champ de vue du télescope de 0,8 mrad, inadapté à la divergence du faisceau focalisé à 60 mètres, des mesures

LIDAR dans l’ultraviolet doivent permettre de déterminer la concentration de nombreux polluants tels que les oxydes d’azote et l’ozone qui présentent des bandes d’absorption dans cette zone spectrale. Le fait de détecter l’ensemble du spectre permettra de corriger les mesures des interférences existantes entre les larges bandes d’absorption qui se recouvrent. En outre, une mesure complète du spectre d’absorption permet d’affiner les mesures de concentration des différents polluants vis à vis d’une mesure DIAL à 2 longueurs d’onde seulement. De plus, la concentration des aérosols dans l’atmosphère peut être mesurée grâce aux nombreuses composantes spectrales présentes dans le continuum. En effet, l’absorption due aux aérosols pourra être retranchée aux longueurs d’onde spécifiques qui sont utilisées pour mesurer l’absorption des polluants. Malheureusement, cela n’a pas été possible lors de la campagne de mesures réalisées à Lyon en juillet 2002. Nous avons en effet découvert à cette occasion que la partie principale du spectre ultraviolet est émis dans un cône très ouvert. C’est pourquoi le champ de vue étroit du télescope nous a empêché de mesurer la concentration d’ozone. Il induisait une compression géométrique trop importante qui dépendait des longueurs d’onde utilisées, ce qui a dégradé la qualité des signaux reçus et donc l’inversion des signaux LIDAR. Nous allons donc seulement illustrer ici une partie de toutes les potentialités de cette technique.

La figure 3.2 présente un exemple d’extinction atmosphérique pour les différentes longueurs d’onde enregistrées, corrigées de l’absorption Rayleigh à 350 m d’altitude (cf. Fig. 3.2). Cette extinction a été obtenue à partir des signaux LIDAR précédents en utilisant la méthode des pentes décrite au chapitre 1.

Au-delà de 320 nm, l’absorption de l’ozone est négligeable et l’extinction restante est seulement due aux aérosols de l’atmosphère. Ces longueurs d’onde peuvent être utilisées pour modéliser l’extinction due à la diffusion Mie par les aérosols et extrapoler leur extinction dans l’ultraviolet. Cela nous donne ainsi accès à la contribution de l’extinction des aérosols dans cette bande et à la détermination de la contribution due à l’ozone pour ces mêmes longueurs d’onde. Je vais illustrer cette méthode en modélisant l’extinction des aérosols par la forme classique de type “paramètre d’Angstrom” [83] :

$$\alpha_{ext}^{aéro}(z, \lambda) = K(z)(1/\lambda)^{q(z)} \quad (3.1)$$

Aux longueurs d’onde élevées, l’extinction n’est due qu’aux aérosols, il est donc facile de déterminer les deux paramètres $K(z)$ et $q(z)$ en réalisant un ajustement de puissance. Puis dans une deuxième étape, la contribution des aérosols est extrapolée et son extinction est retranchée à l’extinction atmosphérique $\alpha_{ext}^{total}(z, \lambda)$ aux longueurs d’onde diffusées à la fois par ces aérosols et absorbées par l’ozone, ce qui nous donne :

$$N_{O_3}(z)\sigma_{O_3}(\lambda) = \alpha_{ext}^{total}(z, \lambda) - K(z)(1/\lambda)^{q(z)} \quad (3.2)$$

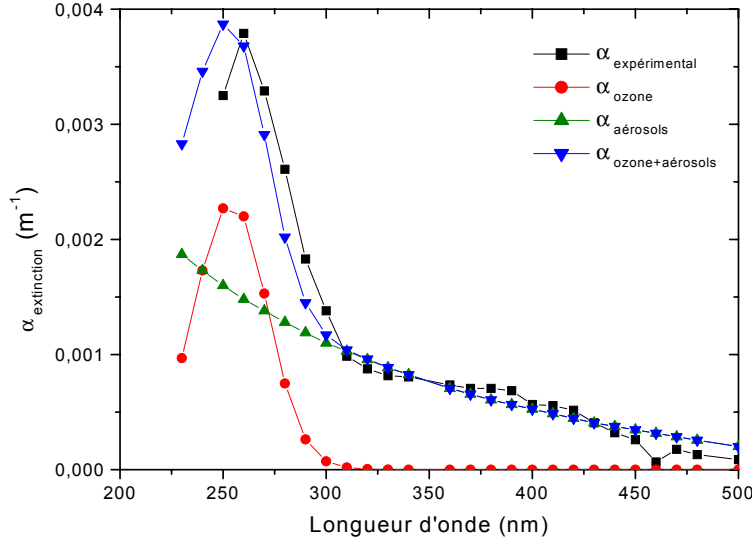


Fig. 3.2 – Extinction expérimentale déterminée par la méthode des pentes. Cette extinction est ajustée pour déterminer l'extinction due à l'ozone et l'extinction Mie due à la présence d'aérosols.

En réalisant un ajustement linéaire, on détermine la concentration de l'ozone. A 350 m d'altitude, une concentration en ozone de $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ est ainsi trouvée et $\alpha_{\text{ext}}^{\text{aéro}}(350 \text{ m}, 250 \text{ nm}) = 0,0015 \text{ m}^{-1}$. Les résultats de cet ajustement sont représentés sur la figure 3.2. L'extinction due à l'ozone et aux aérosols est trop élevée. La raison de cette extinction trop élevée a été identifiée par la suite : l'ultraviolet est émis dans un cône de grand angle (cf. paragraphe 3.1.4) de sorte qu'une partie de la lumière sort du champ de vue du télescope. Ces angles sont supérieurs au champ de vue du télescope, ce qui induit une compression géométrique très forte, qui dépend de la longueur d'onde du signal.

Une nouvelle campagne est en cours de réalisation à Paris. Elle profite de l'expérience acquise au cours de cette précédente campagne. C'est pourquoi, le dispositif expérimental a été spécialement conçu avec un champ de vue de télescope adapté aux angles importants de l'émission conique dans l'ultraviolet. De plus, pour minimiser l'effet de la compression géométrique, la distance entre le laser et le télescope a été réduite, passant de 0,85 m à 0,25 m.

3.1.3 Supercontinuum dans l'ultraviolet généré par la propagation non-linéaire à longue distance

Si au cours de cette première campagne en 2002, la mesure de la concentration en ozone n'a pas pu donner de résultats probants, en revanche elle nous a permis de mesurer à longue distance les caractéristiques d'émission de la partie UV du spectre du continuum

de lumière blanche. Les résultats de l'évolution du spectre à longue distance entre 200 et 500 nm sont rassemblés sur la figure 3.3. Ils sont corrigés de la concentration en ozone supposée constante de $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$, valeur moyenne de la concentration en ozone mesurée au sol par le réseau COPARLY ce jour là à Lyon. Ainsi avec la section efficace d'absorption de l'ozone σ_{O_3} et la loi de Beer-Lambert, l'intensité transmise après la distance z s'écrit :

$$I(z, \lambda) = I_0 \exp(-N_{O_3} \sigma_{O_3}(\lambda) z) \quad (3.3)$$

Pour corriger de l'absorption de l'ozone, le spectre obtenu, il suffit donc de diviser les données expérimentales de la distance z , à la longueur d'onde λ par le facteur : $\exp(-2N_{O_3} \sigma_{O_3}(\lambda) z)$ (2 est pour le chemin aller et retour).

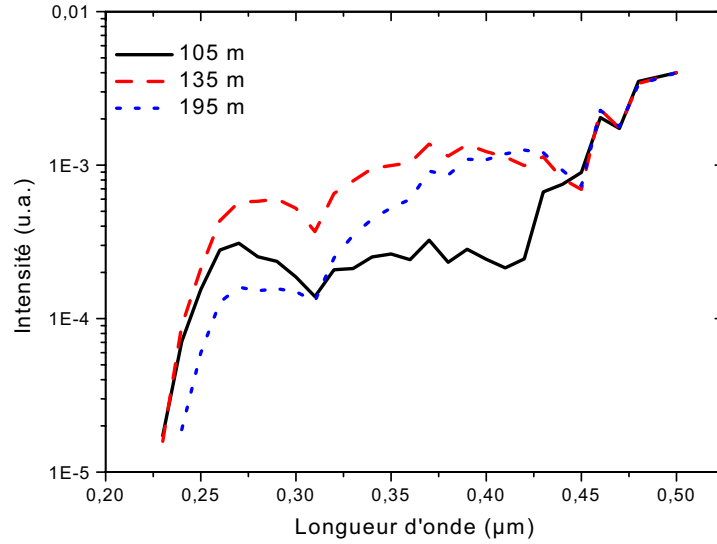


Fig. 3.3 – L'évolution du spectre de lumière blanche entre 200 et 500 nm

La figure 3.3 montre que le spectre a qualitativement la même évolution que pour le filament unique sur quelques mètres. La densité spectrale de la troisième harmonique est cependant, plus grande que pour l'expérience réalisée en laboratoire sur plus courte distance. La plus grande efficacité de la génération de lumière blanche est attribuée à un effet cumulatif dû à une longueur de filamentation plus grande grâce à une focalisation plus faible et une puissance plus grande du faisceau. Cependant comme en laboratoire le mélange de fréquences entre les composantes spectrales autour de 800 nm et de la troisième harmonique conduit à l'émergence d'un plateau entre 300 et 500 nm.

3.1.4 Émission conique du supercontinuum UV

En inversant les signaux LIDAR, nous avons pu déterminer les facteurs de compression géométrique, et donc déterminer les angles de l'émission conique pour le visible et l'UV.

3.1. Spectre ultraviolet à longue distance

En effet, le début du signal LIDAR ainsi que le maximum du signal sont des données qui dépendent majoritairement de la distribution angulaire du laser, de l'inclinaison du télescope par rapport au laser, de la distance entre le laser et le télescope, et du champ de vue du système de détection (télescope + spectromètre) (cf. paragraphe 1.3.3). La distance entre le laser et le télescope est connue de 0,825 m, les diamètres du miroir primaire et secondaire sont de 400 mm et de 200 mm, la distance focale du miroir primaire est de 1200 mm, la fente du spectromètre est de 1 mm par 1 cm. J'ai ensuite modélisé la distribution angulaire pour les différentes longueurs d'onde par une distribution angulaire gaussienne de l'intensité émise autour de 0° en considérant la divergence du faisceau mesurée préalablement à Tautenburg [40]. À ce lobe d'émission central, une distribution conique contenant les 2/3 de l'énergie du faisceau est ajoutée. L'angle d'ouverture de ce cône, ainsi que l'inclinaison du faisceau global par rapport au télescope sont ajustés de manière à reproduire les courbes expérimentales. Nous obtenons ainsi l'angle d'émission conique θ_{tot} du faisceau qui correspond à la convolution de la divergence de la fondamentale du faisceau à 800 nm, avec l'émission conique θ_{CE} d'un filament unique (cf. chapitre 1 au paragraphe 1.3.3 et Figure 1.17a). Nous avons donc :

$$\theta_{tot} = \theta_{CE} \otimes \theta_{800nm} \quad (3.4)$$

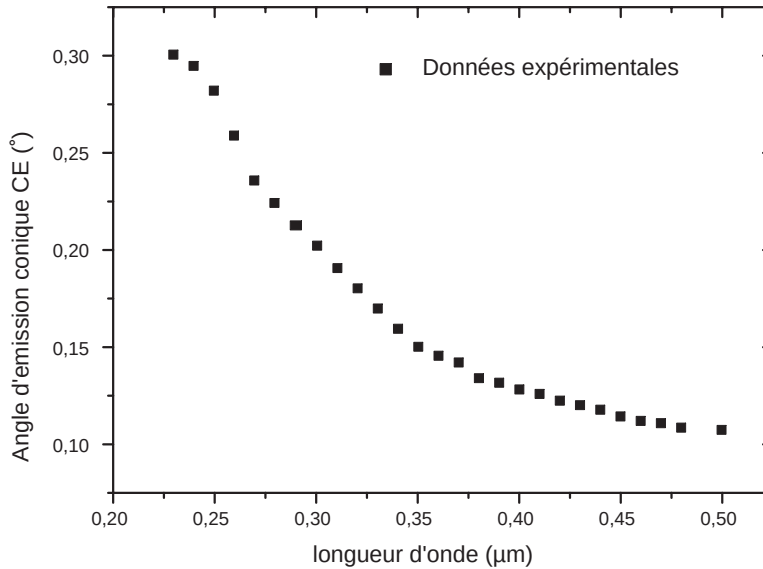


Fig. 3.4 – Angles d'émission conique en fonction de la longueur d'onde

À 600 nm, l'angle d'émission conique θ_{CE} [19] est connu, ainsi que l'angle d'émission total θ_{tot} , ce qui nous permet de calibrer la courbe $\theta_{tot}(\lambda)$ afin de déterminer l'angle d'émission conique pour les différentes longueurs d'onde. Nous avons ainsi mesuré pour la première fois l'émission conique du supercontinuum dans l'ultraviolet (cf. Fig. 3.4).

Ces angles d'émission conique élevés pour la troisième harmonique et le supercontinuum UV sont en accord avec des simulations numériques faites en collaboration par l'équipe de Luc Bergé au CEA. Ces simulations ont de plus confirmé le mécanisme d'interaction, vu au chapitre 2, expliquant la génération de troisième harmonique et le supercontinuum UV. Ces simulations ont permis de montrer de surcroît que la troisième harmonique stabilise les filaments qui se propagent sur de plus grandes longueurs.

On a observé, pour la première fois, un spectre UV, continu, intense et on a caractérisé ce supercontinuum. Ceci nous permettra de réaliser à Paris la mesure de l'ozone corrigé de la concentration d'aérosols dans l'atmosphère.

3.2 LIDAR infrarouge

Outre l'ultraviolet, nous avons aussi étudié grâce à des mesures LIDAR, la partie infrarouge du spectre de lumière blanche à longue distance en vue de développer des applications LIDAR pour mesurer le méthane, les Composés Organiques Volatiles (COV) qui ont des bandes d'absorption spécifiques dans cette région. Un des buts de la collaboration TéraMobile est d'exploiter l'élargissement spectral des impulsions femtosecondes térawatts pour tester la faisabilité de mesures LIDAR dans l'infrarouge. Cela est d'un intérêt capital car il est nécessaire d'atteindre des grandes longueurs d'onde pour pouvoir observer les bandes d'absorption du méthane (vers $1,6 \mu m$) ou encore des COV (vers $3,5 \mu m$).

3.2.1 Dispositif expérimental

Pour cette expérience, nous utilisons l'observatoire en configuration Coudé (cf. paragraphe 1.3.6) en déviant la lumière au niveau de l'oculaire de contrôle vers un photomultiplicateur rapide sensible dans l'infrarouge (PMT, Hamamatsu R 5509-72, sensible de 300 nm à $1,7 \mu m$) relié à un oscilloscope. Un jeu de filtres interférentiels et des filtres en verre coloré Schott nous ont permis de sélectionner les bandes spectrales à mesurer. Les caractéristiques des photomultiplicateurs et des filtres sont présentées aux figures (3.5a à 3.5d), ce qui permet de corriger les mesures de la réponse spectrale des instruments d'optique. La combinaison des filtres Schott UG7 + VG12 a été réalisée dans le but d'avoir un point de mesure intermédiaire entre le filtre à $1 \mu m$ et $1,5 \mu m$ (ouverture progressive à partir de $1,2 \mu m$). D'autre part, nous avons choisi un photomultiplicateur ayant une grande surface sensible ($8 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$) afin d'augmenter au maximum le champ de vue du télescope. Cela est d'autant plus important que le champ de vue d'un télescope astronomique est adapté à l'observation d'une étoile à grande distance (infinie devant la distance focale du

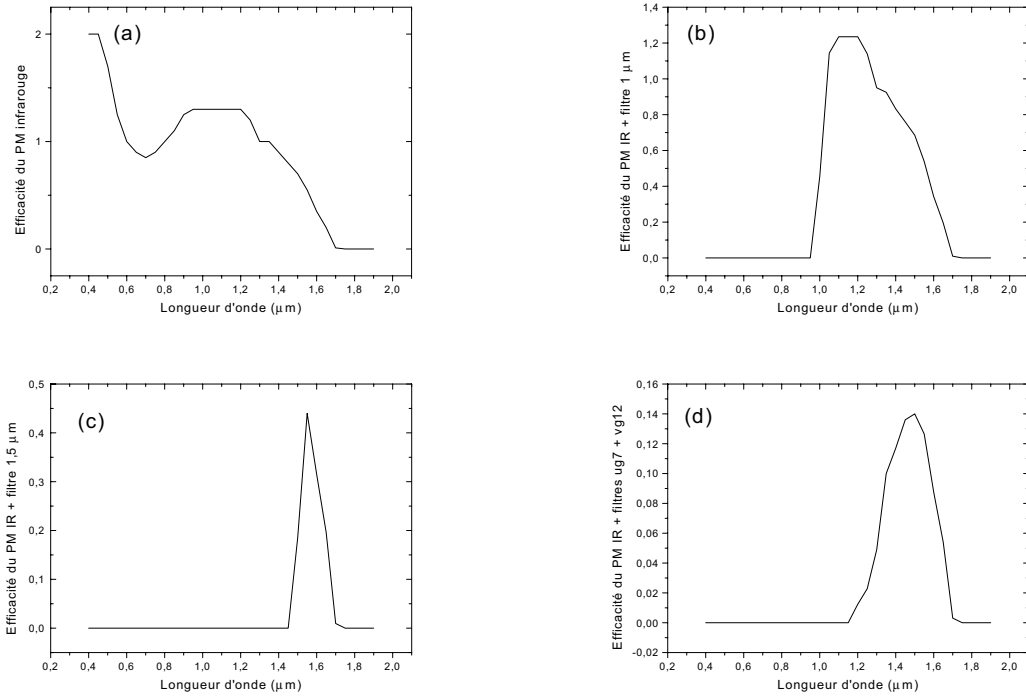


Fig. 3.5 – (a), (b), (c) et (d) sont les réponses spectrales respectives des systèmes composés du photomultiplicateur infrarouge et respectivement d'aucun filtre, un filtre à $1 \mu m$, un filtre à $1,5 \mu m$, et une combinaison des filtres UG 7 et VG 12.

télescope). En effet, même avec ce grand détecteur, le champ de vue du télescope est de $0,6 \text{ mrad}$, ce qui est petit en comparaison de la divergence du faisceau de quelques mrad . La collection des photons est donc faible. Une efficacité de photons équivalente peut être obtenue avec un télescope de miroir primaire de 400 mm .

Le protocole choisi était le suivant : le télescope était pointé en direction du point d'impact du faisceau sur un nuage, l'alignement est ensuite ajusté manuellement et enfin les paramètres laser sont choisis de manière à optimiser le signal LIDAR. Les meilleurs résultats ont été obtenus pour les paramètres suivants : une focalisation de quelques dizaines de mètres, un diamètre initial de 9 cm et une impulsion de 200 fs qui compensait légèrement la dispersion de vitesse de groupe. La puissance de l'impulsion émise était donc de $1,5 \text{ TW}$.

3.2.2 Analyses des résultats

Nous avons pu mesurer un signal rétrodiffusé dans toutes les configurations de filtres c'est à dire un signal jusque dans la bande $1,5\text{-}1,7 \mu m$ (cf. Fig. 3.6), constituant ainsi la première observation LIDAR dans l'infrarouge du continuum de lumière blanche généré lors de la propagation d'un faisceau femtoseconde térawatt. De plus, la dernière bande spectrale mesurée était à la limite de sensibilité spectrale du photomultiplicateur. Avec un

système de détection adapté à l'infrarouge moyen, il est certainement possible de mesurer des composantes spectrales de plus grande longueur d'onde.

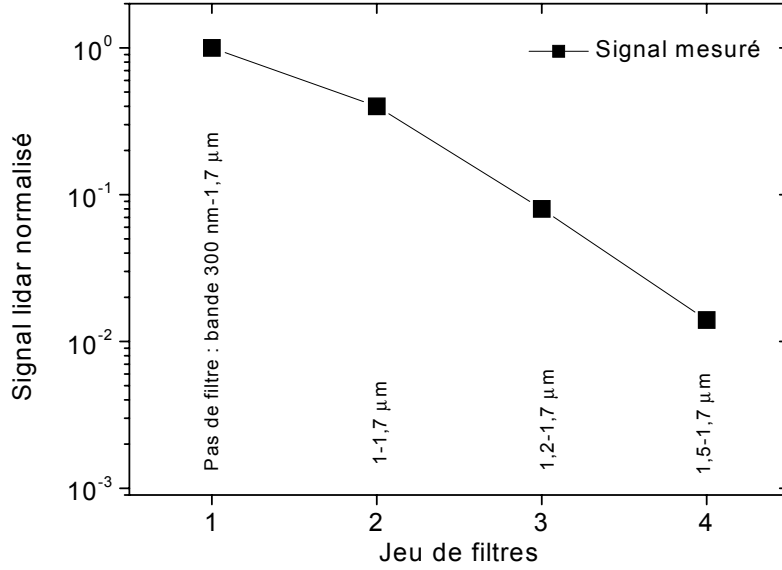


Fig. 3.6 – Génération de lumière blanche du côté infrarouge du spectre.

3.2.3 Comparaison avec le spectre mesuré en laboratoire

Cependant avec seulement quelques points de mesure, il n'est pas possible de remonter directement au spectre du faisceau laser dans l'atmosphère, mais on peut comparer ces mesures à celles attendues d'après le spectre obtenu en laboratoire [17] en simulant le signal LIDAR. Il n'est pas possible de simuler la propagation non-linéaire d'un faisceau femtoseconde sur plusieurs kilomètres de propagation. On part donc du spectre mesuré en laboratoire et on suppose que le faisceau se propage de manière linéaire jusqu'au nuage où il est rétrodiffusé. La propagation est également supposée linéaire pour le chemin retour. Les données sont également corrigées des paramètres instrumentaux et la transmission de l'atmosphère est considérée sur les 8 km de propagation aller-retour. L'atmosphère est simulée à partir la base de données HITRAN 2000 [84] avec un degré d'humidité relative de 80% (donnée obtenue par radiosonde à Meiningen). Cette transmission atmosphérique est représentée sur la figure 3.7. Le spectre transmis $S_{transmis}$ à travers l'atmosphère se déduit donc du spectre mesuré en laboratoire S_{labo} par :

$$S_{transmis} = S_{labo} \times T(\lambda) \quad (3.5)$$

Au point d'impact avec le nuage, le signal est rétrodiffusé par les aérosols qui composent le nuage. Il a été calculé en considérant la diffusion Mie simple ainsi que la diffusion multiple. Nous allons détailler ces deux points délicats de la modélisation.

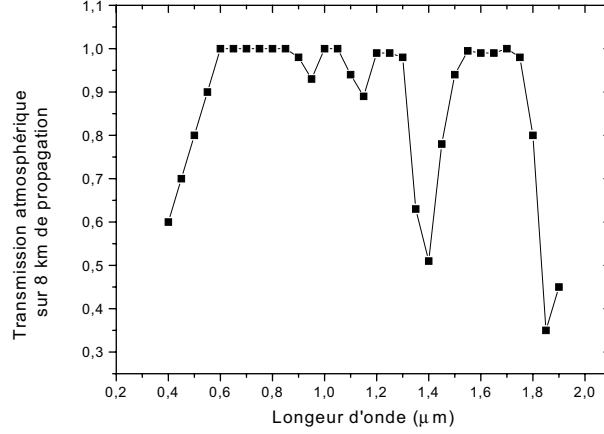


Fig. 3.7 – Transmission atmosphérique sur 8 km de distance

3.2.3.1 La diffusion Mie

La distribution angulaire de diffusion Mie des gouttelettes d'eau varie avec le diamètre des gouttelettes et la longueur d'onde (cf. paragraphe 1.3.1).

Pour simuler le signal rétrodiffusé par le nuage, une distribution caractéristique donnée par Deirmendjian de type C6 [85] a été considérée :

$$\frac{dN}{dr} = \frac{CN_0}{r_0} \left(\frac{r}{r_0}\right)^6 \exp(-6r/r_0) \quad (3.6)$$

Ici N est la concentration particulière pour un rayon r , r le rayon des gouttelettes, r_0 le mode de la distribution en taille, $C = 388,8$ une constante de normalisation et N_0 la concentration totale des aérosols. Cette distribution typique est centrée sur $r_0 = 4 \mu\text{m}$ (cf. Fig. 3.8a) et la figure 3.8b montre les variations du coefficient de rétrodiffusion en fonction de la longueur d'onde λ que nous avons calculé par :

$$\beta(\lambda) = \int_0^\infty \beta(r, \lambda) \frac{dN(r)}{dr} dr \quad (3.7)$$

Les figures 3.8a et 3.8b représentent respectivement la distribution en taille des gouttelettes pour un nuage typique de type C6 de Deirmendjian [85] et le coefficient de rétrodiffusion associé à ce nuage.

3.2.3.2 Diffusion multiple Mie

Il nous reste alors à calculer la contribution de la diffusion multiple Mie au signal pour déterminer le spectre auquel on peut s'attendre à partir du spectre mesuré en laboratoire. Pour cela, un modèle semi-analytique développé par Bissonnette a été utilisé [86, 87]. Ce modèle permet de prendre en compte la diffusion multiple lors de mesures LIDAR. Ce modèle ne prend en compte que la diffusion vers l'avant et l'arrière aux petits angles. C'est

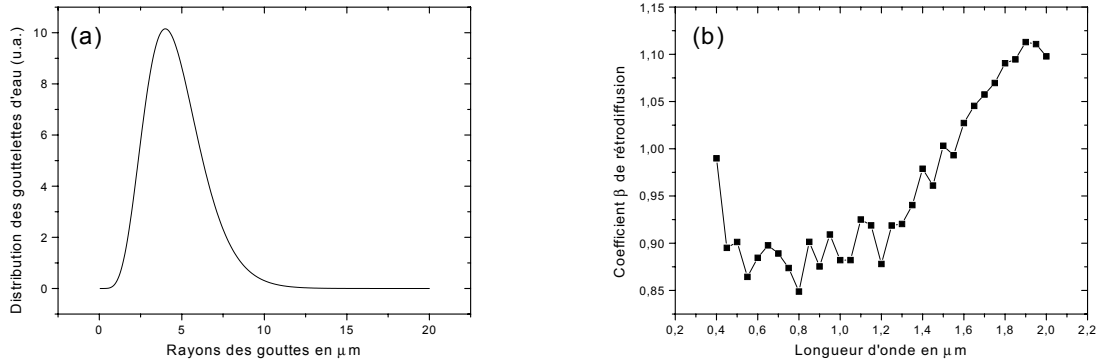


Fig. 3.8 – (a) Distribution C6 de Deirmendjian des gouttes en fonction du rayon. (b) Coefficient de rétrodiffusion de la distribution C6 de Deirmendjian en fonction de la longueur d'onde

à dire que seuls le premier lobe de diffusion vers l'avant et le lobe de rétrodiffusion centré sur π sont considérés. Cela est valable dans la mesure où ce sont les deux directions privilégiées de la diffusion Mie pour les tailles considérées. À cet effet, la diffusion vers l'avant est modélisée par une gaussienne de manière à rendre analytique une partie des calculs et déterminer efficacement la contribution de la diffusion multiple. Vers l'arrière, le pic central est moins prononcé, les lobes secondaires ne sont pas négligeables, aussi contrairement à Bissonnette, nous avons préféré réaliser un ajustement par des polynômes pour pouvoir considérer ces lobes pour les grandes longueurs d'onde ($\geq 1\mu\text{m}$), où l'approximation gaussienne de Bissonnette n'est plus valable. Les résultats des ajustements réalisés à 800 nm, la fondamentale du faisceau sont présentés sur les figures 3.9a et 3.9b.

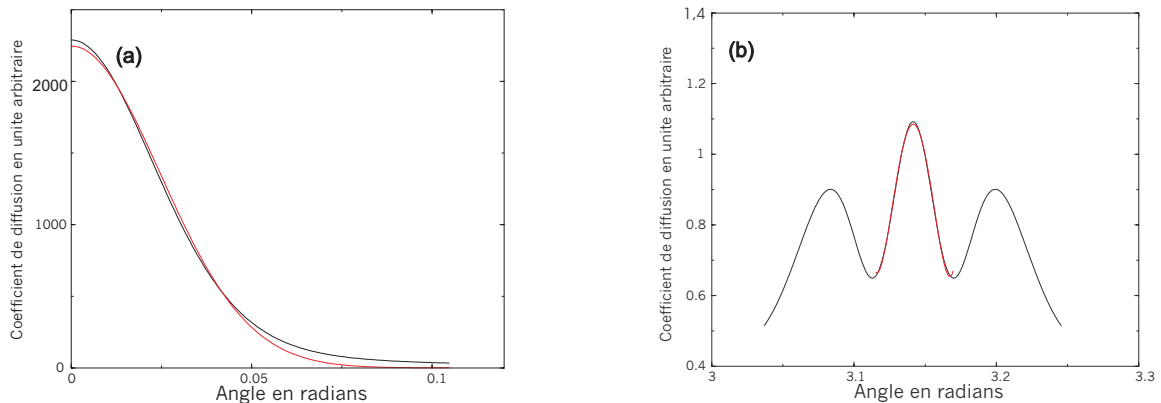


Fig. 3.9 – (a) et (b), ajustements respectifs de la diffusion vers l'avant et vers l'arrière à 800 nm pour un nuage de Deirmeidjan C6

3.2.3.3 Procédure de modélisation

Les paramètres d'entrée, pour calculer la contribution de la diffusion multiple Mie sont :

- la distance d'observation : 4000 m
- le champ de vue du télescope : 0,6 mrad

3.2. LIDAR infrarouge

- la divergence du faisceau laser : 2 mrad

Par ailleurs, contrairement à la diffusion simple, la diffusion multiple Mie n'est pas une fonction linéaire de N_0 . Il nous faut donc déterminer sa valeur. Pour cela, une méthode auto-cohérente a été mise en place. La procédure est la suivante :

1. estimer de $N_0^{(1)}$ à partir du signal rétrodiffusé en négligeant la diffusion multiple ;
2. calculer la contribution de la diffusion multiple à partir de $N_0^{(1)}$;
3. recalculer la concentration $N_0^{(2)}$ en retirant au signal LIDAR la contribution de la diffusion multiple ;
4. réitérer la procédure en estimant à nouveau la contribution de la diffusion multiple à partir de $N_0^{(2)}$ jusqu'à la convergence de la procédure.

3.2.3.4 Résultats et discussion

Après quatre itérations, l'algorithme a convergé vers une densité $N_0 = 1,2 \text{ cm}^{-3}$, ce qui correspond à une extinction $\alpha_{ext} = 16,3 \text{ km}^{-1}$ à 800 nm . Cette valeur est tout à fait typique pour un nuage C6 de Deirmendjian [86, 87]. La figure 3.10a montre la contribution de la diffusion multiple au signal LIDAR en fonction des diverses longueurs d'onde. À 800 nm, cette contribution est de l'ordre de 30% et décroît jusqu'à 15% à 2 μm . La contribution de la multidiffusion est donc loin d'être négligeable et sa variation avec la longueur d'onde est importante.

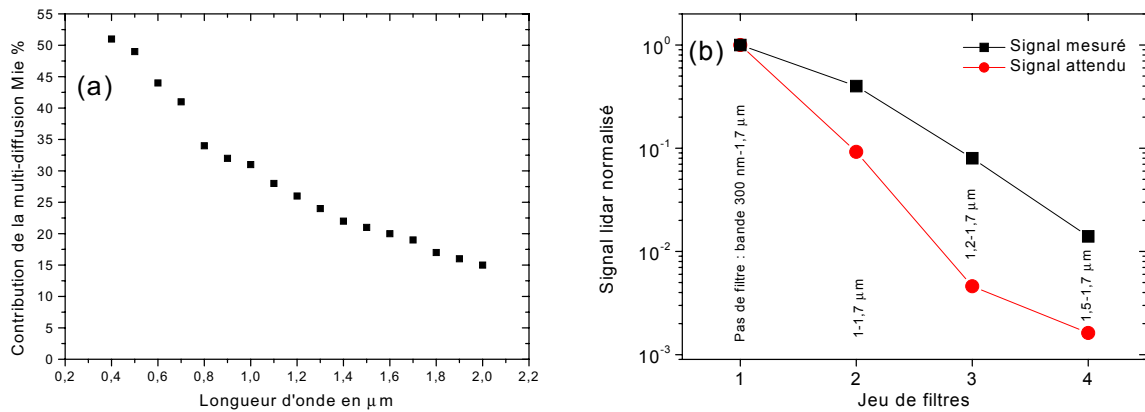


Fig. 3.10 – (a) Contribution de la diffusion multiple pour un nuage C6 de Deirmendjian de densité $N_0 = 1,2 \text{ cm}^{-3}$. (b) Comparaison des signaux LIDAR expérimentaux avec les valeurs simulées à partir du spectre mesuré en laboratoire [17].

Comparons maintenant les résultats de nos mesures avec les simulations réalisées à partir du spectre mesuré en laboratoire. Le signal de la fondamentale du faisceau à 800 nm ainsi que le signal attendu d'après nos simulations sont normalisés à 800 nm (cf. Fig.

3.10b). Lors de ces expériences un signal environ 10 fois plus important dans l'infrarouge a été obtenu par rapport à ce que nous pouvions *a priori* nous attendre à partir du spectre mesuré en laboratoire. Cela indique que l'efficacité de génération de lumière blanche dans la bande spectrale de 1 à $1,7 \mu\text{m}$ est plus efficace sur les grandes échelles qu'à petite échelle. Cela est dû à une augmentation de la puissance du faisceau et à un effet cumulatif en raison de l'allongement de la longueur d'interaction dans l'atmosphère, comme dans le cas de l'ultraviolet décrit plus haut. Notons que la même observation avait déjà été observée du côté de la partie visible du spectre [49, 88] : lorsque le faisceau est faiblement focalisé, le spectre de lumière blanche est plus large et l'efficacité de conversion en lumière blanche est meilleure qu'avec une forte focalisation [17].

La possibilité de la génération de lumière blanche à l'intérieur des gouttes est écartée en raison des paramètres lasers utilisés. En effet, la longueur de filamentation d'un faisceau de quelques térawatts avec une impulsion, focalisée à quelques dizaines de mètres, d'une durée de 200 fs ne permet pas d'atteindre la couche nuageuse à 4 km d'altitude.

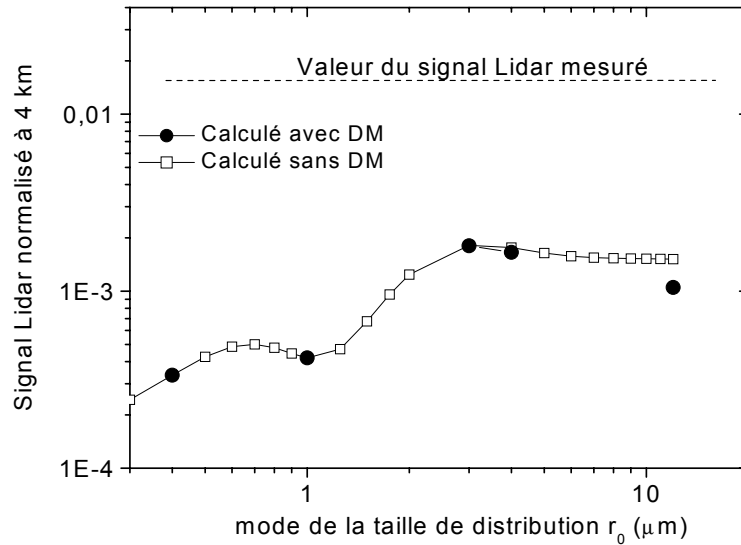


Fig. 3.11 – Influence de la taille des gouttelettes sur le signal LIDAR simulé pour un nuage de type C6 de Deirmidjian et d'extinction

Pour confirmer ces résultats et exclure un effet d'une mauvaise modélisation de la distribution en taille des gouttes du nuage, nous avons étudié leur influence sur la diffusion multiple pour la combinaison de filtres centrée entre $1,5$ et $1,7 \mu\text{m}$. Pour des distributions en taille centrées au-dessus de $2 \mu\text{m}$ de rayon, la contribution de la diffusion multiple au signal rétrodiffusé dépend peu de la taille des gouttelettes (cf. Fig. 3.11). Le signal LIDAR serait maximal pour $r_0 = 3 \mu\text{m}$ et diminue jusqu'à $r_0 = 10 \mu\text{m}$.

En-dessous de $r_0 = 3 \mu m$, le signal rétrodiffusé diminue fortement. Cela s'explique par la décroissance de l'efficacité de rétrodiffusion. Cependant, même pour un nuage dont la distribution serait centrée sur $r_0 = 3 \mu m$, c'est à dire le cas défavorable puisqu'il nous conduirait à surestimer le signal LIDAR, celui-ci reste 7 fois plus important que le signal attendu à partir des spectres mesurés en laboratoire. Les mêmes calculs (en prenant en compte la diffusion simple et multiple) ont été réalisés pour les autres filtres avec des résultats similaires.

Pour déterminer à quel spectre dans l'infrarouge correspond le signal mesuré, il a été modélisé par une décroissance exponentielle (conformément à celui mesuré au laboratoire cf. paragraphe 1.2) :

$$I(\lambda) = I(\lambda_0) \exp\left(-\frac{\lambda - \lambda_0}{K}\right) \quad (3.8)$$

Le taux de décroissance K a ensuite été ajusté de manière à reproduire la courbe expérimentale. Les figures 3.12a et 3.12b montrent le spectre qui a permis l'ajustement ainsi que l'ajustement réalisé.

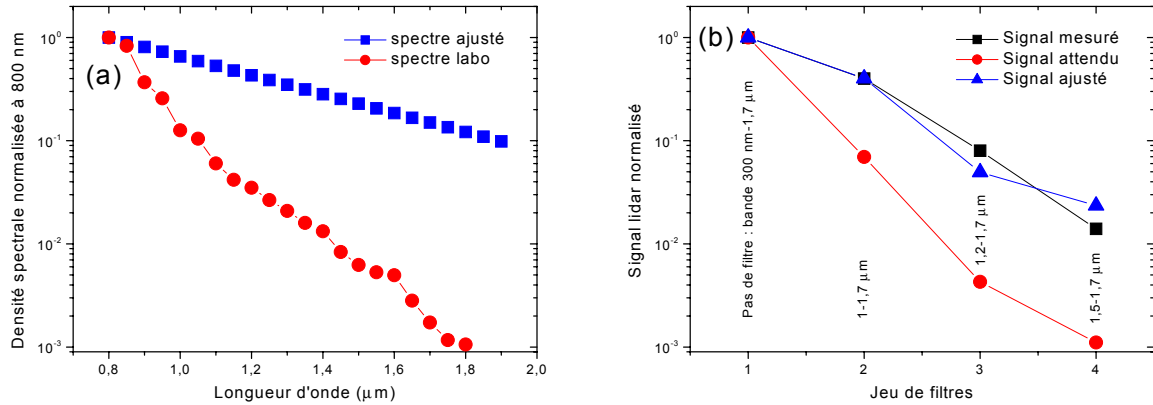


Fig. 3.12 – (a) Ajustement de la décroissance exponentielle du signal dans l'infrarouge pour retrouver les mesures réalisées. (b) Décroissance exponentielle du spectre qui permet l'ajustement que nous comparons au spectre préalablement mesuré en laboratoire.

En supposant une décroissance exponentielle du faisceau, la décroissance du spectre ajusté est beaucoup plus faible que celle du spectre mesuré en laboratoire. Elle est d'environ une décade par μm au lieu des 3 décades par μm .

3.2.4 Du spectre ultraviolet au spectre infrarouge à longue distance

Nous avons ainsi mesuré à longue distance, grâce à la technique LIDAR, le spectre du continuum de lumière blanche, dans l'ultraviolet et le visible de 230 nm à 500 nm. Dans

la partie visible, la mesure avait déjà été réalisée en 2001 entre 450 nm et 850 nm à Jena par P. Rairoux *et al* [49] révélant un plateau dans le continuum dans la partie visible du spectre. Nous avons montré que ce plateau peut se prolonger et se raccorder avec la génération de troisième harmonique lorsque la distance d'interaction est suffisante. La totalité du spectre du continuum de lumière blanche de 230 nm à 4 μm à longue distance est représentée sur la figure 3.13. La partie infrarouge a été obtenue par l'extrapolation du spectre à partir des mesures LIDAR réalisées dans l'infrarouge en supposant une décroissance exponentielle du signal. Cet hypercontinuum de lumière blanche mesuré à longue distance par la technique LIDAR permet d'envisager la mesure de nombreux polluants (l'ozone, oxydes d'azote, dioxyde de soufre et d'autres pour la partie ultraviolette du spectre, le méthane, les COV pour la partie infrarouge). De plus, on peut corriger ces mesures des interférences entre les différentes bandes d'absorptions, ou encore faire de la détection multi-polluants. Avoir la totalité du spectre de lumière blanche peut aussi nous permettre de remonter à la distribution en taille des différents aérosols.

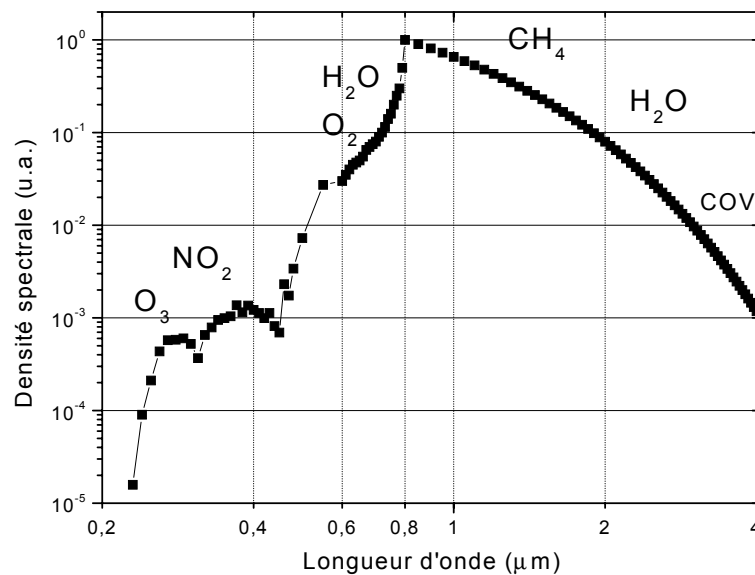


Fig. 3.13 – Spectre obtenu à longue distance par des mesures LIDAR. La partie infrarouge est obtenue par l'extrapolation de mesures LIDAR en supposant une décroissance exponentielle du spectre en ne considérant que l'extinction Rayleigh pour la transmission atmosphérique.

3.3 Un LIDAR multi-paramètres pour caractériser les nuages

Nous allons voir ici comment le LIDAR à lumière blanche peut servir à caractériser la microphysique des nuages, les processus de nucléation dans les nuages ainsi que le développement des gouttes d'eau qui jouent un rôle clé dans les modèles climatiques ou météorologiques [89]. En particulier, il est utile de connaître l'évolution de la taille des gouttelettes dans un nuage et leur densité en raison de leurs influences sur l'albédo terrestre ainsi que les prévisions de précipitations. Pour cela, des mesures continues de la distribution en taille des gouttelettes du nuage sont nécessaires, avec une résolution temporelle de la dizaine de minutes (temps caractéristiques de croissance des gouttelettes et d'évaporation). Il est possible de faire ces mesures *in situ* grâce à des ballons sondes ou des avions. Cependant, de telles méthodes ne sont pas utilisables pour des mesures continues.

Une voie prometteuse pour ces mesures est la technique LIDAR multispectral ou à plusieurs champs de vue dont l'abréviation anglaise est "MFOV", pour Multi-Field Of View [42]. Ces techniques reposent sur la dépendance caractéristique avec la longueur d'onde et leur taille, de la diffusion angulaire, de la section efficace d'extinction et de la rétrodiffusion des gouttes d'eau du nuage. Pour des nuages peu denses, où la diffusion multiple est négligeable, la méthode la plus adaptée est la méthode LIDAR multispectral. Elle repose sur l'utilisation de plusieurs longueurs d'onde [90, 91]. En comparant les signaux LIDAR avec des simulations, il est possible de déterminer la taille centrale, la largeur et la densité des gouttes d'une distribution prédéfinie. Cette technique suppose donc une connaissance *a priori* de la forme de la distribution. Pour mesurer la non-sphéricité des gouttes, il suffit d'étudier la dépolarisation du signal LIDAR.

Pour des nuages plus denses, la technique "MFOV" est plus adéquate [92, 93, 94, 95]. Ici le signal LIDAR est enregistré sur un détecteur à plusieurs champs de vue en masquant au niveau du détecteur des zones correspondant à des angles spécifiques de champ de vue. Il est ainsi possible de remonter à la contribution de la diffusion multiple pour les différents champs de vue et d'accéder par ce moyen à des informations sur la distribution en taille des gouttelettes du nuage. Cependant, avec l'utilisation d'une seule longueur d'onde et un nombre limité de champs de vue, une détermination univoque de la taille des gouttelettes est impossible. Cette technique suppose donc aussi des connaissances *a priori* sur la distribution des gouttes d'eau à l'intérieur du nuage.

Par ailleurs, pour une caractérisation complète de la microphysique à l'intérieur d'un nuage, il faut pouvoir non seulement déterminer la taille des gouttes d'eau dans le nuage,

mais aussi mesurer les paramètres thermodynamiques de l'atmosphère et plus particulièrement la température et l'humidité relative. Des mesures du rapport de mélange de vapeur d'eau et de la température peuvent être réalisées grâce à des ballons sondes, mais le contrôle de leur trajectoire est difficile et la résolution temporelle est limitée par le nombre de ballons que nous pouvons lancer en un temps donné.

Des mesures par la technique DIAL (cf. paragraphe 1.3.5) [42] ont été développées et fournissent des données de bonne qualité, même à partir d'avions [96, 97, 98, 99] ou de satellites [100, 91, 101, 102]. Ces techniques permettent de mesurer à la fois le profil de température et l'humidité relative en se servant de la diffusion Rayleigh mais en supposant une atmosphère adiabatique, ce qui est inadapté dans les nuages [103]. D'autres méthodes basées sur l'utilisation d'un laser de largeur spectrale ultra-étroite ($0,01 \text{ \AA}$) permettent de mesurer le décalage Doppler et l'élargissement spectral des raies d'absorption en faisant varier la longueur d'onde du laser. Des techniques par LIDAR Raman sont aussi développées pour réaliser des mesures précises de la quantité de vapeur d'eau dans l'atmosphère [104, 105].

Nous avons proposé une nouvelle méthode pour réaliser ces mesures par l'utilisation du continuum de lumière blanche généré lors de la propagation dans l'air d'impulsions femtosecondes térawatts. Des mesures simultanées de différentes espèces atmosphériques, en particulier le rapport de mélange de la vapeur d'eau et la quantité d'oxygène ont déjà été réalisées en utilisant le continuum [17, 49, 88, 106, 107]. Cependant, pour déterminer l'humidité relative, qui est un paramètre essentiel pour les modèles météorologiques et climatiques, une mesure simultanée de la température est nécessaire. Nous allons voir ici comment nous pouvons utiliser le continuum de lumière blanche pour faire de telles mesures de la taille des gouttelettes d'eau dans le nuage ainsi que de leur densité, du rapport de mélange de la vapeur d'eau et de la température. Ces mesures ont été réalisées séparément, mais à partir de la même source laser avec les mêmes paramètres ce qui permet potentiellement la réalisation simultanée de ces mesures.

3.3.1 Le dispositif expérimental

Ces expériences ont été réalisées à l'observatoire de Tautenburg (cf. paragraphe 1.3.6). Nous avons utilisé le télescope de l'observatoire dans la configuration Schmidit pour analyser la diffusion multiple à la base du nuage, et en configuration Coudé pour les mesures spectrales. Comme je l'ai détaillé au paragraphe 1.3.6, dans la configuration Schmidt, le faisceau est imagé à l'aide d'une caméra CCD de 2048×2048 pixels dont le champ de vue est de $6 \mu\text{rad} \times 6 \mu\text{rad}$ par pixel. Pour ces expériences, le faisceau du TéraMobile était collimaté avec un diamètre initial de 3 cm. La durée d'impulsion était de 150 fs pour les

mesures de la multidiffusion Mie. Pour les mesures spectrales, la durée d'impulsion était de 300 fs et nous utilisons le spectromètre Échelle de l'observatoire dont la résolution spectrale est de $0,1 \text{ \AA}$. Le signal était alors moyenné sur 3000 à 12000 tirs laser.

En parallèle à ces mesures, le système de détection propre au TéraMobile constitué du télescope et d'une photodiode était utilisée pour déterminer l'altitude, l'épaisseur et la longueur de pénétration optique des nuages.

3.3.2 Détermination de la distribution en taille des gouttes d'eau à partir de l'analyse angulaire de la diffusion multiple Mie

Caractériser un nuage signifie d'abord déterminer la densité et la distribution en taille des gouttes dans ce nuage. À cet effet, comme décrit au premier chapitre 1, le halo de diffusion à la base d'un nuage a été imagé (cf. Fig. 3.14a). Sous la couche de brume, la divergence du faisceau a été mesurée en se servant de la diffusion Rayleigh. La divergence mesurée à 800 nm est de $0,16 \text{ mrad}$. Dans le halo, la largeur à mi-hauteur est augmentée, la différence étant due à la diffusion multiple dans le nuage. La signature de la diffusion multiple va nous servir à déterminer la taille des gouttes d'eau contenues dans ce nuage.

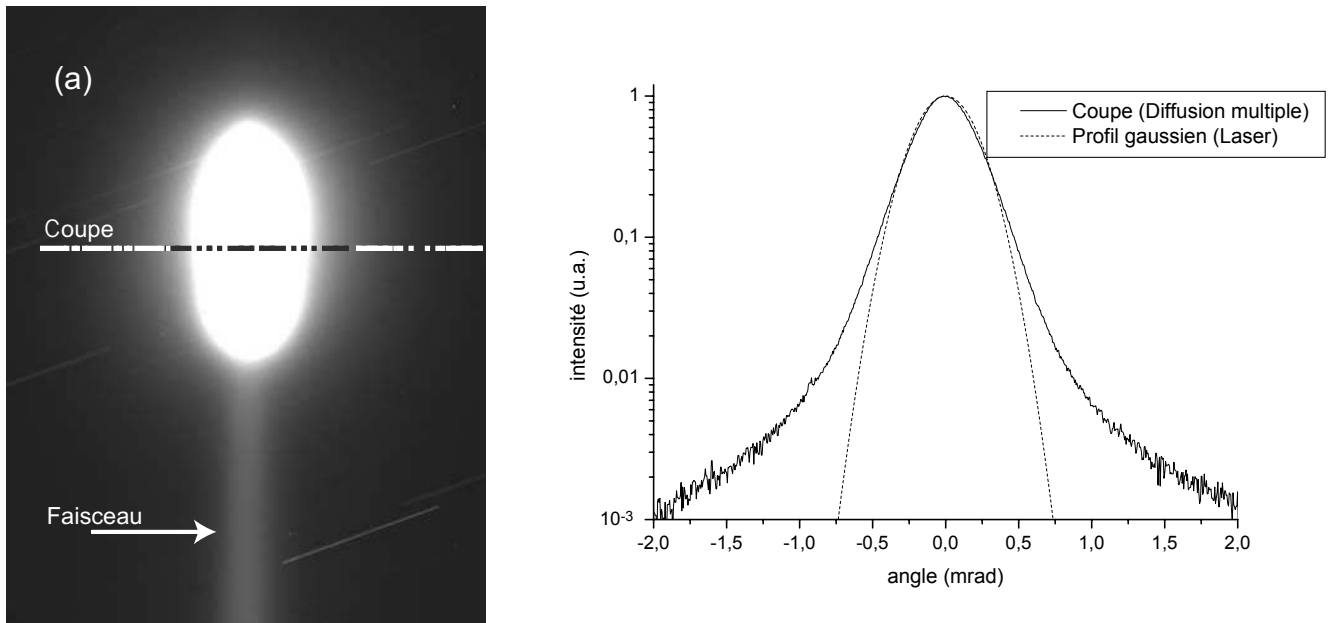


Fig. 3.14 – (a) Diffusion multiple sur la base d'un nuage à 6 km d'altitude à 800 nm.(b) Coupe du faisceau au niveau du halo à 6 km d'altitude présentant la distribution angulaire de la diffusion multiple corrigée de la parallaxe. La différence avec le profil gaussien est la signature de la diffusion multiple.

Pour être sûr que les charges issues de l'ionisation multiphotonique présentes au coeur des filaments lors de la propagation des impulsions femtosecondes térawatts n'affectent pas nos mesures en provoquant la nucléation dans une atmosphère sursaturée [3], nous

nous sommes assurés par le choix des paramètres laser que les filaments finissaient bien avant d'atteindre le nuage, à moins de 200 m d'altitude en choisissant une durée d'impulsion courte de 150 fs.

La grande résolution angulaire du système de détection a permis d'enregistrer le profil du faisceau à 800 nm dû à la diffusion multiple à la base du nuage avec une résolution angulaire jamais atteinte ($6 \mu rad$) constituant ainsi un LIDAR à plusieurs champs de vue. Cette grande résolution a permis de réaliser un ajustement de la distribution des gouttes à l'intérieur du nuage à l'aide d'un algorithme génétique [108]. Cette distribution était représentée par 15 classes de taille comprise entre $0,1 \mu m$ et $20 \mu m$. Chaque classe de taille est modélisée avec une distribution gaussienne dont la largeur à mi-hauteur est choisie de manière à ce que les ailes de la distribution de chaque classe se recouvrent. Les poids respectifs de chaque classe de la distribution en taille sont les paramètres d'ajustement. Ces 15 paramètres sont rassemblés dans un vecteur à 15 dimensions.

L'algorithme fonctionne de la manière suivante :

1. 100 individus, c'est à dire 100 vecteurs à 15 dimensions dont les composantes représentent les poids respectifs de chaque classe de gouttes sont créés de manière aléatoire ;
2. la distribution angulaire de la diffusion multiple est calculée pour ces cents individus selon le modèle détaillé au paragraphe suivant ;
3. la distribution calculée est alors comparée à la coupe expérimentale. Les 30 vecteurs reproduisant le mieux la figure de diffusion sont sélectionnés, c'est à dire présentant le plus faible χ^2 ;
4. ces 30 "meilleures" solutions sont alors combinées entre elles de manière aléatoire pour former 100 nouveaux individus ;
5. le processus est réitéré jusqu'à la convergence de l'algorithme, qui a été atteinte dans notre cas après 580 itérations.

Le calcul de la distribution angulaire de diffusion multiple est le suivant. Pour chaque classe de gouttes, nous avons moyenné la distribution angulaire de diffusion Mie à 800 nm avec $n = 1,334$ l'indice de réfraction de l'eau, soit :

$$Q_{classe}(\theta, r_i) = \frac{\int_0^\infty r^2 N_i(r) Q_{diff}(\theta, r) dr}{\int_0^\infty r^2 N_i(r) dr} \quad (3.9)$$

où θ est l'angle de diffusion, r le rayon des gouttes, r_i le rayon moyen de la classe i , N_i la densité particulaire des rayons de la classe i et $Q_{diff}(\theta, r)$, l'efficacité de diffusion Mie dans la direction θ .

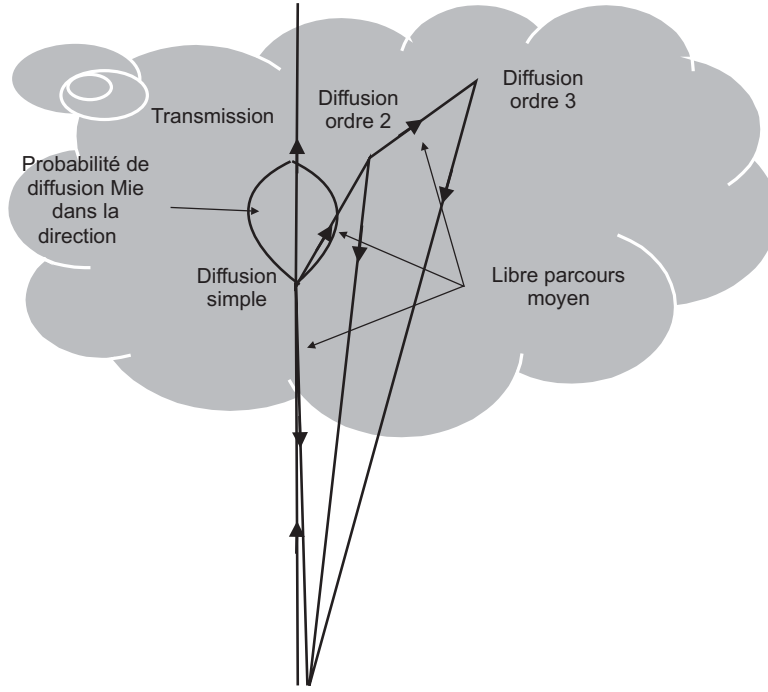


Fig. 3.15 – Schéma de principe utilisé pour la distribution angulaire de la diffusion multiple.

Notons que l'utilisation de la théorie de Mie est justifiée puisque la température dans le nuage à 6 km d'altitude est entre -25°C et -20°C (mesures obtenues par radiosonde lors de ces expériences), c'est à dire une température bien au-dessus du seuil de solidification totale des gouttes d'eau qui est de -35°C dans ces conditions. Par conséquent, l'hypothèse sous-jacente à la théorie de Mie, à savoir de considérer les particules du nuage comme des gouttes sphériques est justifiée. Pour déterminer la distribution angulaire de diffusion multiple, nous commençons par réaliser une moyenne sur les différentes classes pondérée par leur contribution respective, pour trouver l'efficacité de diffusion $Q_{moy}(\theta)$ dans la direction θ , soit :

$$Q_{moy}(\theta) = \frac{\sum_{i=1}^{i=15} Q_{classe}(\theta, r_i) N_i r_i^2}{\sum_{i=1}^{i=15} N_i r_i^2} \quad (3.10)$$

La probabilité de diffusion angulaire sur les différentes classes est ensuite calculée, ce qui se traduit mathématiquement par :

$$P(\theta) = \frac{Q_{moy}(\theta)}{\sum_{\theta=0}^{\theta=\pi} Q_{moy}(\theta)} \quad (3.11)$$

Nous supposons ensuite qu'à chaque événement de diffusion, un photon est émis dans la direction θ avec la probabilité $P(\theta)$. Entre chaque événement de diffusion, les photons sont supposés parcourir le libre parcours moyen L_{lpm} qui s'exprime par :

$$L_{lpm} = \frac{1}{2\pi \sum_i N_i r_i^2 Q_s(r_i)} \quad (3.12)$$

où $Q_s(r_i)$ est l'efficacité de la section efficace de la goutte d'eau de rayon r_i , toujours calculée à l'aide de la théorie de la diffusion Mie. Le schéma de principe de ce modèle est

représenté sur la figure 3.15

Un système LIDAR auxiliaire, celui du système TéraMobile, déterminait l'altitude et l'épaisseur du nuage qui était de l'ordre d'un kilomètre, c'est à dire supérieur au libre parcours moyen des photons à l'intérieur du nuage compris entre 10 et 1000 mètres. Il est donc possible de négliger le fait que des photons rétrodiffusés par diffusion multiple vont au-delà du sommet du nuage. Des tests ont aussi montré que les ordres supérieurs à l'ordre 3, c'est à dire 3 événements de diffusion avant la sortie du nuage, étaient négligeables (inférieurs à 5 %) même pour les champs de vue les plus éloignés du centre. C'est pourquoi dans les simulations suivantes, les calculs ont été réduits à l'ordre 3 de manière à réduire le temps de calcul et de permettre ainsi des ajustements par une méthode itérative.

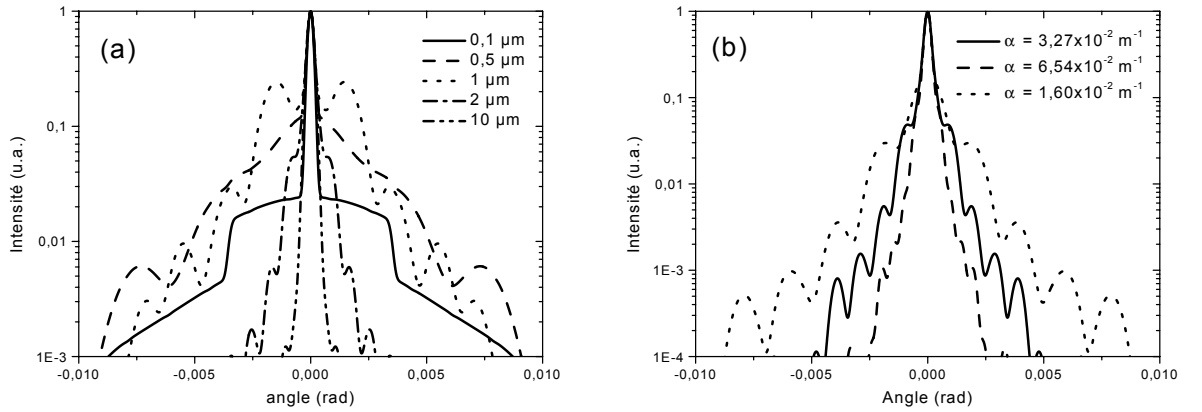


Fig. 3.16 – (a) Profils simulés de la diffusion multiple à 800 nm pour un nuage composé de gouttes de 0,1, 0,5, 1, 2, et 10 μ m avec un coefficient d'extinction de $\alpha_{ext} = 3,27 \times 10^{-2} \text{ m}^{-1}$. (b) Profils simulés de la diffusion multiple à 800 nm pour des gouttes de rayon de 2 μ m en fonction du coefficient d'extinction α_{ext} . Les profondeurs optiques respectives sont 30, 15 et 60 m.

Pour connaître la sélectivité de la caractérisation en taille de la méthode, nous avons fait des simulations de différents profils en faisant varier dans un premier temps, le rayon des gouttes du nuage en considérant la même profondeur optique de 30 m (cf. Fig. 3.16a), et dans un deuxième temps pour un rayon de gouttes fixé à 2 μ m on fait varier l'extinction linéaire du nuage (cf. Fig. 3.16b). Les différences des profils démontrent la sélectivité en taille et en concentration en gouttes de la méthode.

La figure 3.17a, représente la distribution en taille des gouttes d'eau du nuage du meilleur ajustement réalisé. La figure 3.17b montre cet ajustement ainsi que les données expérimentales.

3.3. Un LIDAR multi-paramètres pour caractériser les nuages

La distribution obtenue présente un maximum pour un rayon de gouttes de $5\text{ }\mu\text{m}$, ce qui est une valeur tout à fait en accord avec la valeur donnée dans la littérature [109, 110]. Pour cette distribution, le libre parcours moyen d'un photon a été calculé et vaut $L_{lpm} = 700\text{ m}$, et le coefficient d'extinction vaut $\alpha_{ext} = 1,4 \times 10^{-3}\text{ m}^{-1}$. Ces valeurs sont en accord avec les mesures faites sur le signal LIDAR enregistré en parallèle et le libre parcours moyen est effectivement inférieur à l'épaisseur du nuage.

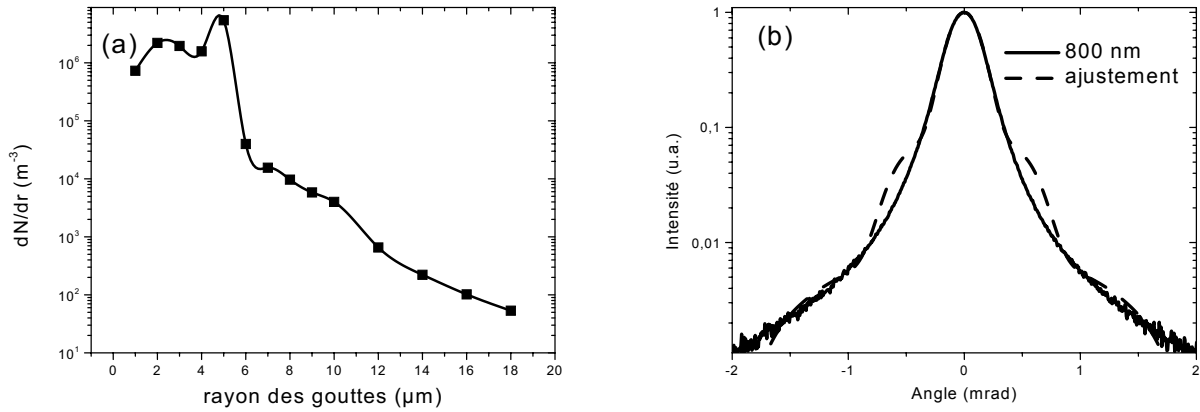


Fig. 3.17 – (a) Distribution en taille des gouttes du nuage pour le meilleur ajustement des données expérimentales de la distribution angulaire de diffusion multiple obtenue par l'algorithme génétique (b).

La détermination de la taille des gouttelettes et de la densité du nuage a été rendue possible sur 15 classes de gouttes grâce à la très haute résolution de cette technique à plusieurs champs de vue utilisant des images de la diffusion multiple du laser à la base du nuage. De plus, ce résultat est confirmé par un traitement analogue sur des images prises dans la zone spectrale de 400 à 500 nm du continuum de lumière blanche.

Par ailleurs, la pénétration optique à l'intérieur du nuage varie avec la longueur d'onde pour une distribution de taille donnée. Cette propriété pourrait être mise à profit grâce aux différentes longueurs d'onde du continuum de lumière blanche. En effet, on pourrait déterminer la densité et la distribution en taille pour les différentes couches correspondant à des pénétrations optiques différentes. Cependant, cette technique est difficile à mettre en place en raison de l'émission conique dans le visible. En effet, le profil du laser initial a une grande influence sur le profil de diffusion multiple obtenu.

3.3.3 Détermination de l'humidité relative

Pour être en mesure de caractériser la microphysique à l'intérieur du nuage, en plus de la taille des gouttes, il faut déterminer les paramètres thermodynamiques que sont l'humidité relative à l'intérieur du nuage ainsi que sa température. Cette mesure a été réalisée avec la même source laser ce qui permet d'envisager de les réaliser simultanément avec la mesure de la taille des gouttes.

Pour mesurer l'humidité relative, nous avons enregistré le signal rétrodiffusé par des nuages situés à 4,5 km d'altitude, altitude déterminée à l'aide du signal LIDAR mesuré simultanément. Nous avons ainsi obtenu en une seule acquisition un spectre "LIDAR" de 680 nm à 920 nm (cf. Fig. 3.18). Ces mesures étaient intégrées dans le temps, ce qui interdit malheureusement la résolution spatiale. Ce large spectre comprend donc à la fois les raies d'absorption de l'eau autour de 820 nm et les raies de l'oxygène autour de 762 nm. Les raies de l'eau correspondent au couplage ro-vibrationnel de la molécule alors que les raies de l'oxygène correspondent à la bande A.

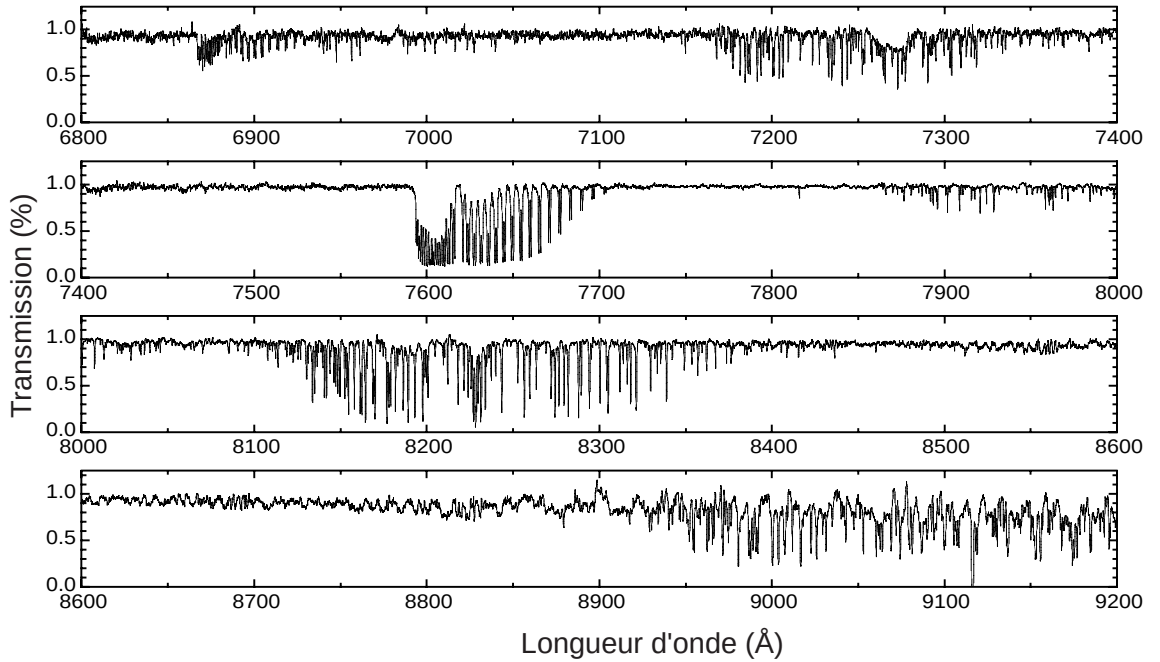


Fig. 3.18 – Spectre intégré de la transmission atmosphérique sur 4,5 km de propagation obtenu à Tautenburg

La zone spectrale enregistrée recouvre des raies d'absorption d'intensités très différentes. Pour notre analyse, nous avons choisi des raies de l'eau et de l'oxygène qui présentaient une absorption maximale, tout en évitant bien sûr des raies saturées. Ainsi, l'intensité des raies est proportionnelle à la concentration des espèces. Par ailleurs, le nuage a été considéré comme une cible solide, c'est à dire que la longueur de pénétration

3.3. Un LIDAR multi-paramètres pour caractériser les nuages

optique n'est pas prise en compte dans le nuage. En effet celle-ci est inférieure à 100 m, soit très inférieure à l'altitude du nuage.

Pour contrôler ces mesures, deux procédures d'ajustement totalement indépendantes ont été réalisées sur des spectres enregistrés avec des paramètres laser différents. Remarquons que la résolution spectrale de la mesure ($0,1 \text{ \AA}$) est environ dix fois plus faible que celle généralement utilisée pour la détermination des profils de température et de pression avec un système DIAL [42]. Mais en profitant de la grande largeur spectrale du continuum de lumière blanche rétrodiffusée, cette difficulté est contournée. À cet effet, les spectres simulés à partir de la base de données HITRAN 2000 [84] ont été convolués par la fonction d'élargissement instrumentale préalablement connue. La précision de cette technique a été testée sur des spectres simulés. Et en dépit de la résolution limitée du spectre, d'une connaissance spectrale approximative du continuum de lumière blanche et de l'efficacité spectrale de rétrodiffusion par le nuage, nous avons pu déterminer la température ainsi que le rapport de mélange de la vapeur d'eau présente dans l'atmosphère. En effet, la densité spectrale du continuum de lumière blanche, ainsi que l'efficacité de la rétrodiffusion sont des fonctions qui varient assez lentement en fonction de la longueur d'onde, et peuvent donc être considérées comme faisant partie de la ligne de base du spectre enregistré. Ensuite cette ligne de base est utilisée pour normaliser le spectre de transmission de l'atmosphère enregistrée sur l'ensemble de la zone spectrale considérée.

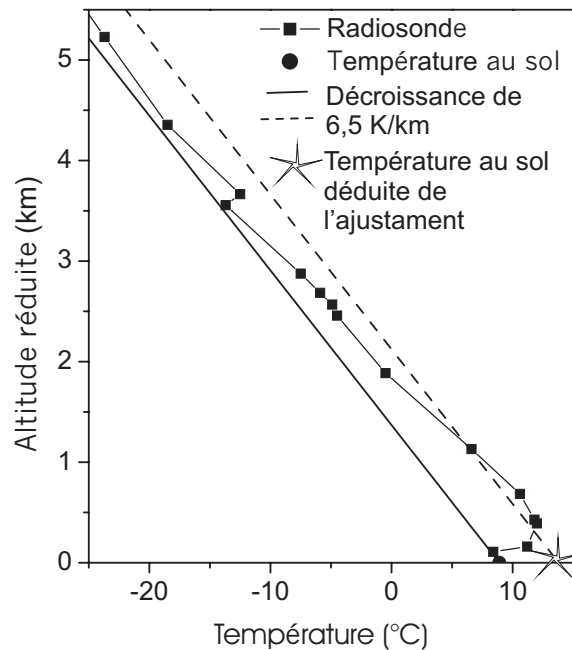


Fig. 3.19 – Profil de température obtenu par la procédure d'ajustement sur la bande spectrale des raies d'absorption de O_2 A et celui obtenu par radiosonde à Meiningen à 23h00 TU

Le premier ajustement a été réalisé sur le spectre acquis à 22h00 TU. La température

est déterminée à partir de la bande A de O_2 du spectre. La température est ensuite utilisée pour calculer le rapport de mélange de la vapeur d'eau présent dans l'atmosphère à partir de la bande d'absorption de l'eau issue du même spectre. Les conditions météorologiques étant stables, nous avons pu considérer un profil vertical standard de pression et une décroissance typique de la température de 6,5 K/km. L'atmosphère étant stratifiée, lors des ajustements, le spectre était calculé tous les 100 m et la concentration en oxygène de l'atmosphère est connue et vaut 20,9 %. Les paramètres d'ajustement pour cette procédure étaient la température au sol T_{sol} et l'altitude de la génération du continuum de lumière blanche $z_{continuum}$. La longueur du filament a été négligée puisque dans nos conditions expérimentales (impulsion de 300 fs [40]) elle est beaucoup plus courte que la distance sur laquelle la lumière blanche est absorbée. Pour déterminer la température, l'ajustement a été réalisé indépendamment sur la zone spectrale comprise entre 761 et 764 nm et sur une seconde zone spectrale allant de 766 à 769 nm. Pour les deux cas, la température trouvée est de $T_{sol} = 287 \pm 1$ K et $z_{continuum} = 550 \pm 100$ m. La température au sol déterminée par l'ajustement est supérieure à celle mesurée au sol durant les expériences qui était de 282 K. Cependant, le profil de température mesuré par radiosonde à proximité (à Meiningen à 100 km de distance à 23h00 TU) (cf. Fig. 3.19) montre une inversion thermique au voisinage du sol à 500 m d'altitude. Mais l'épaisseur de cette couche d'inversion est faible devant le chemin optique de 9 km, de sorte que sa contribution à l'ajustement est négligeable. Ainsi, la température donnée par l'extrapolation du profil de température est au-dessus de la couche d'inversion (cf. Fig. 3.19).

Nous avons ensuite utilisé le profil de température et l'altitude de l'émission du continuum de lumière blanche, pour déterminer l'humidité relative. Les conditions atmosphériques étant homogènes, l'humidité relative a été supposée constante tout au long des 4,5 km d'altitude. En particulier, les profils de température et de pression précédemment déterminés avec une résolution verticale de 100 m ont été utilisés pour déterminer le rapport de mélange de la vapeur d'eau dans l'atmosphère en fonction de l'humidité relative. L'ajustement a été réalisé dans la bande d'absorption ro-vibrationnelle de l'eau entre 813 et 816 nm d'une part et entre 825 et 829 m d'autre part (cf. Fig. 3.20). Cet ajustement conduit à une valeur moyenne d'humidité relative de 49 ± 3 %. Cette mesure est en accord avec le relevé radiosonde réalisé également à Meiningen (cf. Fig. 3.21).

Nous avons ainsi démontré, pour la première fois, qu'il était possible, à partir du continuum de lumière blanche, de déterminer le profil de température, et l'humidité relative moyenne, qui sont des paramètres thermodynamiques indispensables à la compréhension des mécanismes physiques mis en jeu lors de la formation des nuages et des précipitations. Pour vérifier ce premier résultat, un second ajustement a été réalisé indépendamment. Dans cette procédure, le taux d'humidité relative et la température au sol étaient dé-

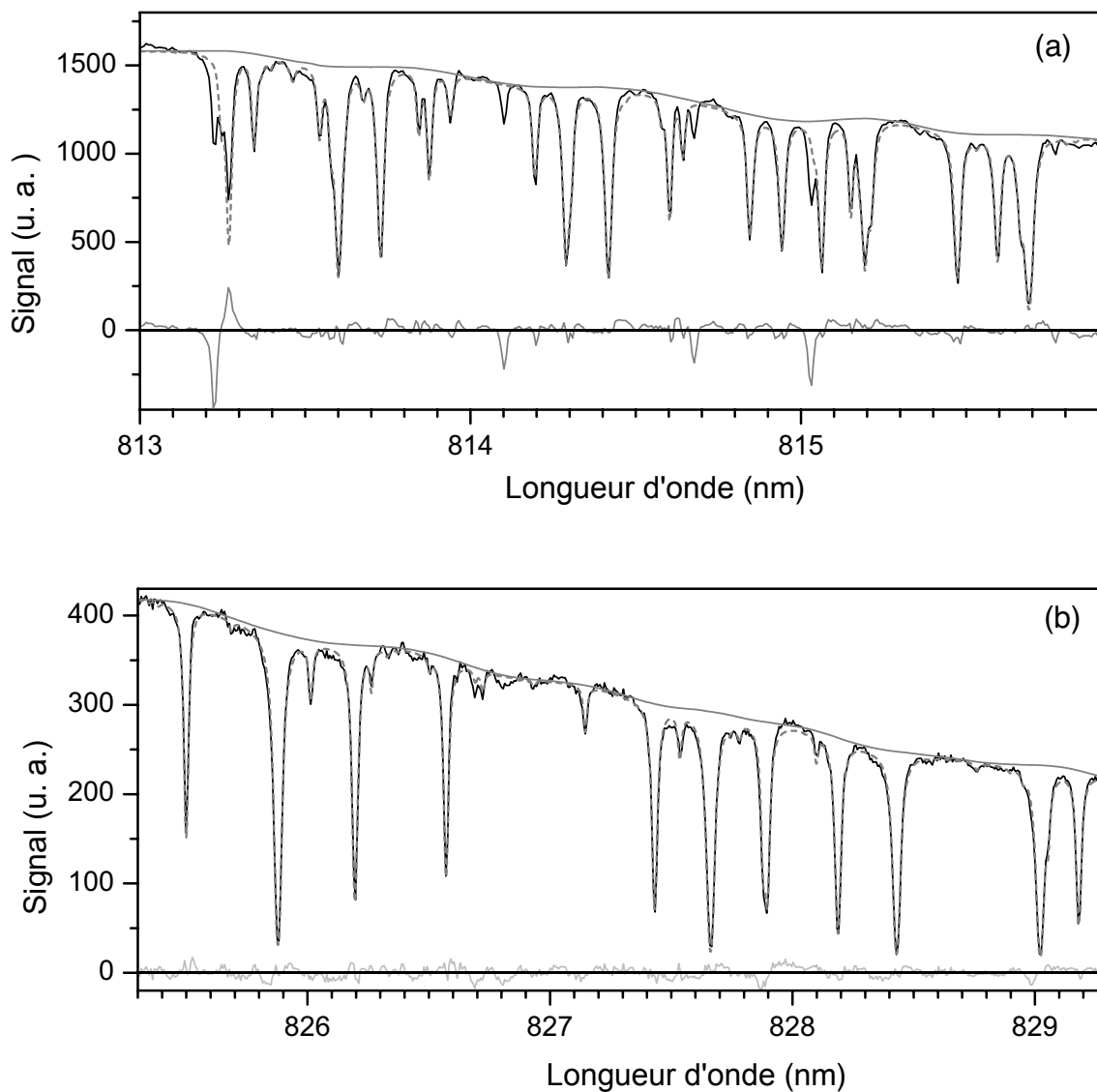


Fig. 3.20 – (a) Ajustement du spectre d'absorption de la bande rovibrationnelle de l'eau dans la zone spectrale comprise entre 813 et 816 nm et (b) comprise entre 825 et 829 nm. La courbe noire correspond aux données expérimentales et la courbe grise en pointillée au résultat de l'ajustement. La courbe grise autour de zéro est le résidu de l'ajustement alors que la courbe grise à la base des lignes est l'estimation de ligne de base. Remarquons que, grâce au chemin d'absorption extrêmement long, nous sommes capables de mesurer de faibles raies d'absorption non répertoriées dans la base de données HITRAN 2000

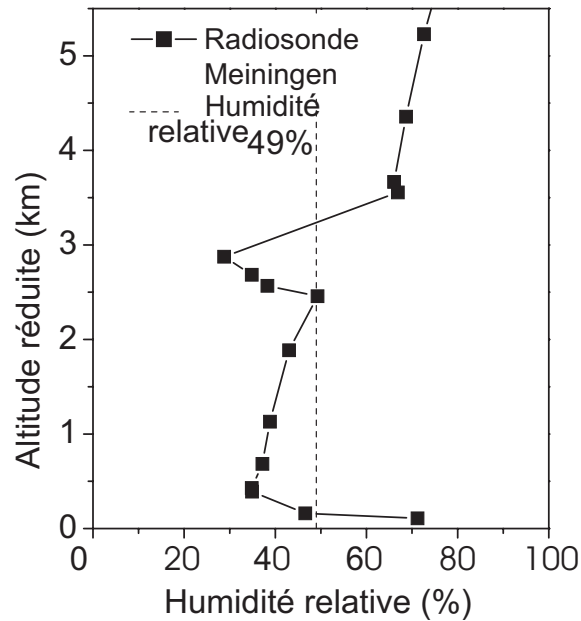


Fig. 3.21 – Humidité relative moyenne déduite de la procédure d’ajustement sur les bandes rovibrationnelles de l’eau entre 813 et 816 nm d’une part et entre 825 et 829 m d’autre part et le profil obtenu par radiosonde à Meiningen à 23h00 UT. Notons qu’une couche nuageuse située à 3 km d’altitude à Meiningen perturbe la mesure

terminés en un seul ajustement à deux paramètres sur la zone spectrale s’étendant de 815 à 840 nm. Les filaments étaient ici supposés être générés à basse altitude. La lumière blanche se propageait sur les neuf kilomètres de chemin optique parcouru (chemin aller et retour). Les résultats de cet ajustement sont $T_{sol} = 279 \pm 0,4$ K et le rapport de mélange de la vapeur d’eau vaut $0,38 \pm 0,01$ %. Nous estimons alors que le taux d’humidité relative au sol est de 42 ± 3 %, ce qui est en accord avec les résultats de l’ajustement précédent.

En conclusion, ces mesures spectrales nous ont permis de déterminer les caractéristiques de la masse d’air en dessous du nuage. Deux procédures d’ajustement ont été mises en place et donnent des résultats similaires quant à la détermination des paramètres thermodynamiques. Ces résultats nous démontrent aussi qu’il est possible de réaliser des ajustements, soit avec une unique mais très large zone spectrale, ou soit en utilisant plusieurs régions spectrales. Cependant, ces mesures, sans résolution temporelle, ne permettent pas d’obtenir la résolution spatiale inhérente aux mesures LIDAR. Cette limitation nous a conduit à utiliser des modèles pour le profil de température et le rapport de mélange de la vapeur d’eau dans l’atmosphère.

Certes, les modèles utilisés étaient en accord avec les données mesurées par radiosonde, mais si les conditions atmosphériques s’éloignent des modèles atmosphériques standards,

les procédures d'ajustement seront entachées d'erreurs. En revanche, il est possible de faire des mesures résolues temporellement avec une caméra CCD intensifiée équipée d'une porte temporelle. On réalise ainsi un véritable LIDAR résolu spectralement. En différenciant le spectre mesuré en fonction de l'altitude, on pourrait utiliser les procédures décrites ci-dessus à chaque altitude, pour obtenir des profils de température et d'humidité relative sans hypothèse préalable.

Néanmoins, si cette technique permet de mesurer le signal issu de la rétrodiffusion Mie sur la base d'un nuage, qu'en serait-il du signal issu de la rétrodiffusion Rayleigh sur les molécules d'air ? En effet, la rétrodiffusion Rayleigh est de 100 à 1000 fois moins efficace que la rétrodiffusion Mie provenant d'un nuage, ce qui diminuerait le rapport signal sur bruit des mesures LIDAR. Mais il serait possible d'utiliser un télescope dont le champ de vue serait adapté à la divergence du faisceau ce qui n'était pas le cas lors de nos mesures. Le champ de vue du système de détection était de $0,6 \mu\text{rad}$, c'est à dire largement plus faible que la divergence du faisceau. Un système de détection possédant un champ de vue de 1 mrad améliorerait le signal d'un facteur 3×10^6 . Cela permet d'envisager des mesures ; avec un rapport signal sur bruit comparable, avec un télescope de 40 cm seulement, une résolution spatiale de 100 m, et un nombre de tirs laser similaires à celui utilisé pour nos mesures décrites plus haut, soit un temps d'intégration de 5 minutes environ.

3.3.4 Conclusion et perspectives

En conclusion, nous avons montré pour la première fois, que grâce à la technique LIDAR à lumière blanche basée sur l'utilisation du continuum généré par la filamentation lors de la propagation verticale d'impulsions femtosecondes térawatts, nous sommes en mesure de déterminer simultanément la distribution en taille des gouttes dans un nuage et les propriétés thermodynamiques à leur voisinage, c'est à dire la température et l'humidité relative. Ces mesures, parce qu'elles utilisent la même source laser, sont réalisables simultanément. Bien que préliminaires, elles ouvrent la voie pour la réalisation d'un LIDAR multiparamètres combinant la technique LIDAR à plusieurs champs de vue et des mesures spectrales résolues en temps. Les données provenant d'une telle station LIDAR permanente combinant ces techniques seraient très utiles à la modélisation atmosphérique.

De plus, tout le potentiel de cette technique n'est pas encore utilisé. Il serait possible d'utiliser plusieurs longueurs d'onde ayant des longueurs de pénétration optique différentes pour analyser la distribution en taille des gouttes dans le nuage à des profondeurs différentes.

Nous verrons, de plus, au chapitre suivant que le LIDAR à lumière blanche n'est pas la

seule technique LIDAR rendue possible par les lasers femtosecondes térawatts. D'autres systèmes LIDAR basés sur d'autres propriétés de la filamentation seront décrits au chapitre suivant, montrant tout le potentiel et la souplesse de cette technique.

Chapitre 4

Les filaments pour s'affranchir de la limite de diffraction

Au chapitre précédent, nous avons décrit des applications LIDAR utilisant des effets non-linéaires lors de la propagation pour générer de la lumière blanche. Ici, on utilise la capacité des filaments à transporter des hautes intensités laser de manière à exciter des effets non-linéaires, *in situ*, sur des cibles situées à longue distance pour les analyser. En effet, on sait que pour un faisceau se propageant linéairement (cf. paragraphe 1.1.1), le diamètre de la tache focale augmente proportionnellement à la distance z de focalisation, empêchant ainsi la possibilité d'induire des effets non-linéaires à longue distance en régime nanoseconde.

Dans ce chapitre, deux exemples d'application illustrent la propriété des filaments à induire des effets non-linéaires à distance. Dans le premier cas, des aérosols biologiques sont détectés et analysés à distance en excitant la fluorescence à 2 photons grâce aux non-linéarités de la propagation des impulsions femtosecondes térawatts. Dans le deuxième cas, des cibles solides sont analysés à distance en créant un plasma à la surface de l'échantillon grâce à la haute intensité des filaments. L'analyse de l'émission permet d'identifier les composés de l'échantillon étudié.

4.1 Le LIDAR non-linéaire : détection et identification d'aérosols biologiques

La télédétection et l'identification des aérosols biologiques dangereux dans l'air sont devenues un enjeu majeur de la sécurité civile et militaire. La plupart des aérosols biologiques sont des bactéries de taille typique de $1\ \mu m$ comme par exemple l'anthrax [111]. Ces bactéries peuvent se rassembler jusqu'à former des agglomérats de taille de $10\ \mu m$.

Pour répondre à une éventuelle menace, il est nécessaire de pouvoir localiser rapidement la source de diffusion des aérosols, de cartographier en trois dimensions la propagation du nuage d'aérosols, et d'identifier les agents biologiques sans ambiguïté parmi une grande variété d'aérosols atmosphériques inoffensifs. Pour cela, nous avons proposé une nouvelle approche basée sur un LIDAR non-linéaire, où la haute intensité transportée par les filaments excite la fluorescence à plusieurs photons à distance sur la cible à analyser. En effet, les bactéries contiennent des fluorophores naturels. Ce sont par exemple des acides aminés tels que le tryptophane, très présent dans l'organisme, des nicotinamides (NADH) ou encore des flavines telle la vitamine B2 (riboflavine). Ces fluorophores naturels, dont la riboflavine, peuvent servir de traceurs de bactéries pour la télédétection des aérosols biologiques [112, 113].

En particulier, dans les expériences décrites ici, la riboflavine a été utilisée comme simulant biologique, et la signature de son spectre de fluorescence à 520 nm sert à l'identifier. La fluorescence de la riboflavine est excitée par l'absorption à deux photons de la fondamentale du laser à 800 nm. Outre, les bénéfices de la propagation non-linéaire du faisceau, l'excitation à 2 photons permet de choisir une longueur d'onde d'excitation dans l'infrarouge plutôt que dans l'ultraviolet, de manière à tirer partie d'une meilleure transmission atmosphérique pour les grandes longueurs d'onde. L'utilisation d'impulsions ultra-brèves ouvre également la possibilité de réaliser des mesures simultanées de la distribution en taille des aérosols par des méthodes pompe-sonde [114, 115]. De plus, une mise en forme temporelle des impulsions [116, 117] devrait à terme permettre d'améliorer la sélectivité de ce mode de détection par des techniques de "contrôle cohérent"[118].

4.1.1 Dispositif expérimental

La fluorescence est excitée par les impulsions femtosecondes térawatts du laser TéraMobile. Le faisceau avait un diamètre initial de 9 cm, et une durée d'impulsions de 1 ps. L'émission de fluorescence est détectée par un système LIDAR intégré au système TéraMobile, composé d'un télescope de 20 cm et d'un spectrophotomètre (cf. Fig. 4.1).

Les simulants biologiques étaient générés dans la chambre à nuages décrite au chapitre 2 pour étudier la propagation à travers un nuage. Ce nuage était situé à 45 m du TéraMobile. La distribution en taille des aérosols a été mesurée par un analyseur optique (Grimm modèle G 1-108). Ce sont des gouttelettes d'eau de rayon moyen de $1\ \mu\text{m}$ et de concentration en riboflavine de 0,02 g/L. Le spectre obtenu est représenté en fonction de la distance sur la figure 4.2. Nous avons déterminé, que, lors de ces expériences l'intensité optimale déposée sur la cible au niveau des gouttes était de $10^{11}\ \text{W}/\text{cm}^2$.

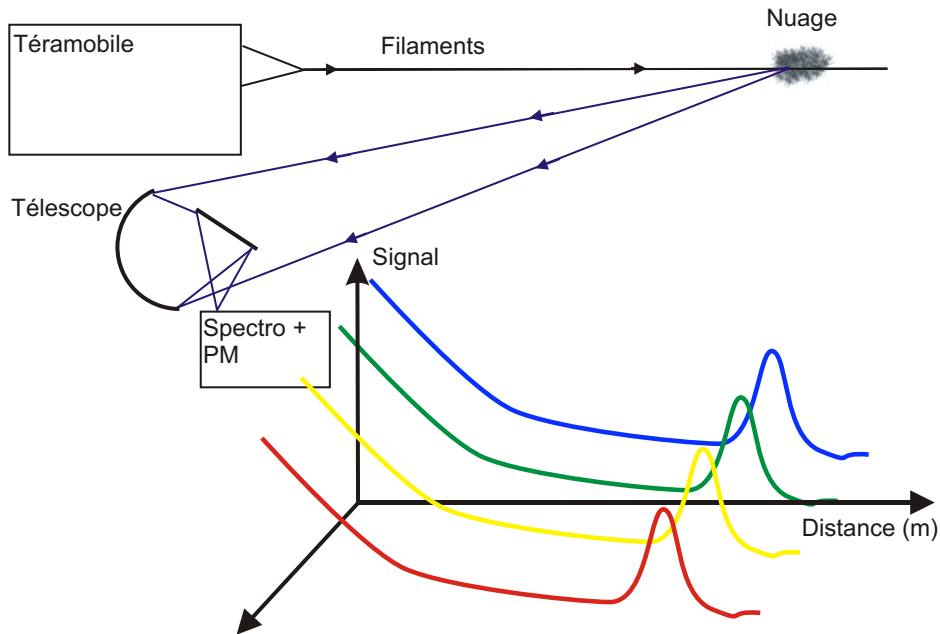


Fig. 4.1 – Dispositif expérimental : Le faisceau par des effets non-linéaires transportent des hautes intensités à longue distance pour induire une excitation à 2 photons dans le nuage de simulants biologiques. La fluorescence est détectée par la technique LIDAR

4.1.2 Analyse des résultats

Le spectre de fluorescence excitée à 2 photons, identifie clairement la présence de la riboflavine à l'intérieur des gouttelettes d'eau et le temps de vol des photons permet de repérer la distance du nuage de bioaérosols. En raison de la durée de vie de la fluorescence de 3 ns, la résolution spatiale est limitée intrinsèquement à 45 cm. Le nuage, ainsi mesuré, s'étend sur 10 m. Le signal mesuré au niveau du nuage se distingue très bien de celui dû à la rétrodiffusion des aérosols présents dans l'air ambiant. L'efficacité de rétrodiffusion du nuage est environ 1 000 fois supérieure à celle de l'air ambiant. Le spectre de fluorescence de la riboflavine est comparé à celui obtenu par la rétrodiffusion élastique sur des gouttelettes d'eau pure (cf. Fig. 4.2).

La différence entre les deux spectres enregistrés permet d'identifier clairement le caractère biologique du nuage d'aérosols. Sur le spectre des gouttes d'eau pure, ainsi que sur le spectre des gouttes d'eau dopées à la riboflavine, une croissance légère et continue de la densité spectrale est observée au-delà de 600 nm. Cela est dû à l'élargissement du spectre du laser par automodulation de phase dans l'air lors de la propagation. Le continuum ainsi généré est rétrodiffusé élastiquement par les gouttes d'eau.

La difficulté pour cette expérience est le contrôle de la propagation laser afin d'exciter efficacement la fluorescence à deux photons de la riboflavine dans les gouttes d'eau. Cela

4.1. Le LIDAR non-linéaire : détection et identification d'aérosols biologiques

est d'autant plus important qu'il s'agit d'effets non-linéaires, et donc qu'il faut atteindre *in situ* des hautes intensités pour exciter efficacement la fluorescence. Pour cela, les impulsions étaient mises en forme temporellement, en envoyant en premier dans l'air, les longueurs d'onde les plus courtes de l'impulsion laser, dont la largeur spectrale est d'environ 15 nm à la sortie du TéraMobile. Comme mentionné au chapitre 1, ce réglage permet à la fois de précompenser la dispersion de vitesse de groupe de l'impulsion, et de diminuer l'intensité crête de l'impulsion en l'étalant dans le temps. En choisissant une impulsion de 1 ps, l'objectif était de limiter la génération de lumière blanche par l'automodulation de phase qui a lieu lors de la filamentation dans l'air avant d'atteindre la cible. En effet, si la filamentation démarrait plus en amont au cours de la propagation, l'élargissement spectral s'étendrait de l'ultraviolet à l'infrarouge et masquerait la signature de l'émission de fluorescence de la riboflavine.

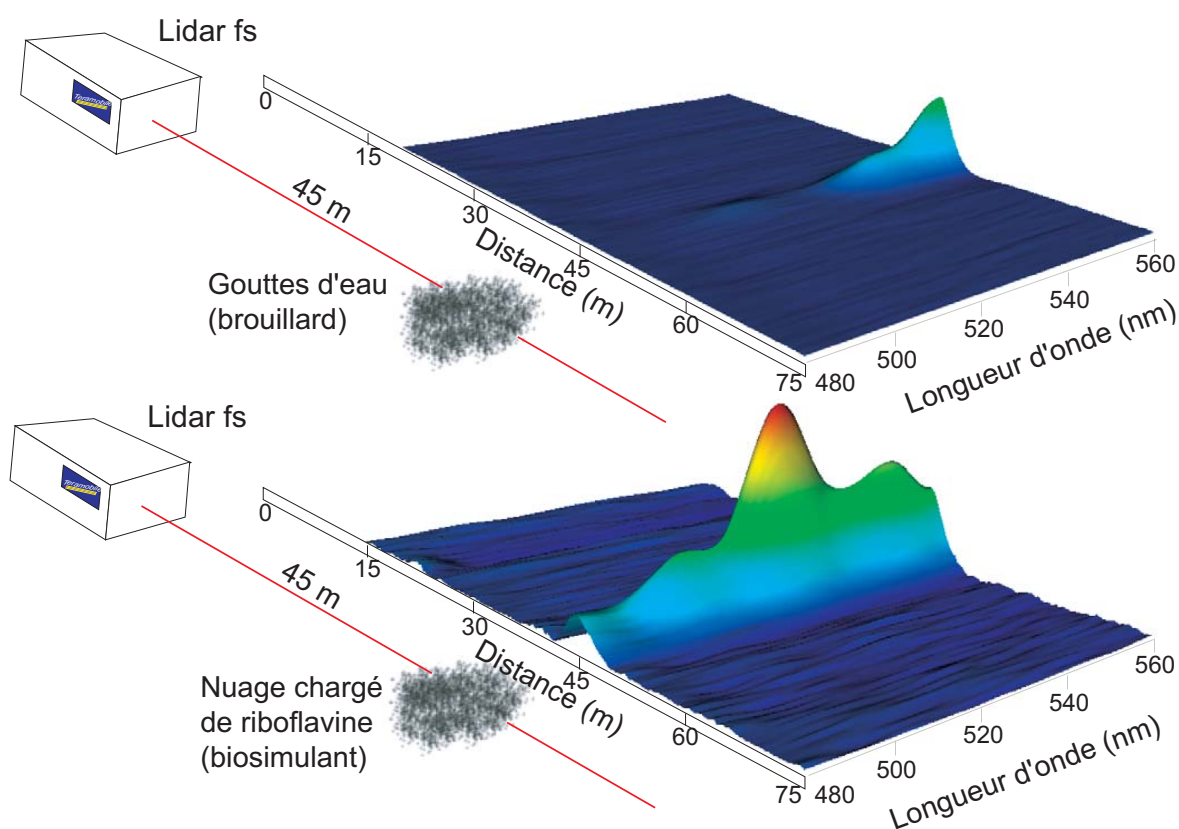


Fig. 4.2 – Détection et Identification d'aérosols biologiques à distance. Le faisceau femto-seconde térawatt émis par le téramobile excite la fluorescence à 2 photons de la riboflavine vaporisée dans une chambre à nuage à 45 m de distance. La fluorescence est enregistrée en fonction de la distance et de la longueur d'onde et exhibe la signature de l'émission de la riboflavine à 45 m de distance à 520 nm. Pour l'eau pure, de la lumière blanche générée par auto-modulation de phase est rétrodiffusée.

4.1.3 Comparaison des performances du LIDAR non-linéaire avec celles du LIDAR linéaire

Afin de déterminer le potentiel du LIDAR non-linéaire, les performances attendues d'un LIDAR non-linéaire excitant la fluorescence à 2 photons à 530 nm sont comparées avec celles d'un LIDAR linéaire excitant la fluorescence à 1 photon à 266 nm. La simulation est réalisée sur le tryptophane, le fluorophore naturel le plus abondant dans les bactéries. Bien entendu, des lasers à impulsions ultra-brèves térawatts à 530 nm n'existent pas encore. Mais les développements actuels des lasers basés sur l'ion Ytterbium sont très encourageants. Des puissances telles que le pétawatt sont obtenues pour la fondamentale à 1060 nm. En doublant la longueur d'onde d'un tel faisceau, la puissance serait deux fois plus faible, soit quelques térawatts à 530 nm. Or, l'utilisation d'impulsions femtosecondes autour de 530 nm devrait améliorer la sensibilité. En effet, la fluorescence à deux photons du tryptophane, un acide aminé dont la concentration est 10^4 fois supérieure à celle de la riboflavine dans les bactéries, serait excitée. La concentration typique est de 10^8 molécules de tryptophane dans une bactérie de 1 cm^3 . D'autre part, deux photons à 530 nm n'excitent pas seulement la fluorescence du tryptophane, mais aussi celle de la nicotinamide et de la riboflavine dont les bandes de fluorescence respectives vont de 320 à 370 nm, de 420 à 500 nm, et de 520 à 620 nm. La détection simultanée de la fluorescence des différents éléments de la bactérie permettra d'identifier la-dite bactérie et de connaître ainsi la dangerosité ou non du nuage [113]. Pour exciter la fluorescence à 1 photon du tryptophane, la quatrième harmonique d'un laser Nd : YAG est adaptée.

Au cours de la propagation, l'absorption due à l'extinction linéaire Rayleigh et Mie des molécules de gaz atmosphériques, et en particulier de l'ozone est considérée. Pour le chemin aller, il faut prendre en compte l'extinction à la longueur d'onde d'excitation du laser, soit $\lambda = 530 \text{ nm}$ pour le LIDAR à 2 photons, soit $\lambda = 266 \text{ nm}$ pour le LIDAR linéaire. Pour le chemin retour, c'est l'absorption à 340 nm, c'est à dire au maximum de fluorescence du tryptophane qu'il faut considérer. Les différents paramètres de la simulation sont décrits au tableau 4.1.

Le nombre de photons émis par fluorescence au niveau du nuage détecté par la méthode LIDAR s'écrit alors :

$$N_f(R) = \rho(R) N_T \sigma^{(n)} \eta I_0^n \tau \zeta(R, \lambda) \frac{A}{4\pi R^2} \times S \Delta R \cdot \exp \left(- \int_0^R \alpha_{ext}(R, \lambda_f) + n \alpha_{ext}(R, \lambda_{las}) dR \right) \quad (4.1)$$

Utiliser le LIDAR à 2 photons permet de profiter de la plus grande transmission atmosphérique à 530 nm. En effet l'extinction Rayleigh diminue très rapidement avec la longueur d'onde, $\alpha_{ext}^{Rayleigh} \propto 1/\lambda^4$. De plus, de nombreuses molécules présentes dans l'atmosphère absorbent dans l'ultraviolet. C'est le cas en particulier de l'ozone qui est

4.1. Le LIDAR non-linéaire : détection et identification d'aérosols biologiques

responsable de nombreux pics de pollution l'été dans la plupart des grandes villes. Sa section efficace d'extinction vaut $\sigma_{O_3} = 10^{-17} \text{ cm}^2$ à 266 nm. L'extinction atmosphérique à 266 nm, c'est à dire pour le cas de la fluorescence excitée par un photon, s'écrit alors :

$$\alpha_{ext}(266 \text{ nm}) = \alpha_{ext}^{Rayleigh}(266 \text{ nm}) + N_{O_3}\sigma_{O_3} = 1,6 \times 10^{-4} \text{ m}^{-1} + N_{O_3}\sigma_{O_3} \quad (4.2)$$

Pour l'absorption atmosphérique à 530 nm, la section efficace de l'ozone est négligeable. Seul l'extinction Rayleigh $\alpha_{ext}^{Rayleigh}(530 \text{ nm}) = 10^{-5} \text{ m}^{-1}$ doit être considérée en absence d'aérosols naturels.

Symbole	Définition	Valeur
R	Distance du nuage d'aérosols	De 0 à 10 km
$\rho(R)$	Concentration des particules d'aérosols de rayon moyen de $1\mu\text{m}$	100 bactéries/ cm^3
$\sigma^{(1)}$	Section efficace d'absorption à 1 photon par microparticule	$2 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ [119]
$\sigma^{(2)}$	Section efficace d'absorption à 2 photons par microparticule	$10^{-50} \text{ cm}^4\text{s/photon}$ [120, 121]
η	Rendement quantique de la fluorescence	0,13 [119, 120]
E_0	Energies émises à 266 nm (1-PEF) et 530 nm (2-PEF) supposées	100 mJ (1-PEF) 300 mJ (2-PEF)
I_0	Intensité initiale de l'impulsion laser	10^6 W/cm^2 (1-PEF) $4 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ (2-PEF)
τ	Durée de l'impulsion	10 ns (1-PEF) 1 ps (2-PEF)
A	Aire du télescope de détection	$0,125 \text{ m}^2$
ζ	Efficacité de la détection	0,2
S	Section du laser	10 cm^2
ΔR	Résolution spatiale	10 m
$\alpha(R, \lambda_f)$	Absorption atmosphérique à la distance R à la longueur d'onde de fluorescence	$5,9 \times 10^{-5} \text{ m}^{-1}$
$\alpha(R, \lambda_l)$	Absorption atmosphérique à la distance R à la longueur d'onde d'excitation du laser	cf. texte
N_T	Nombre de molécules de tryptophane par bactérie	10^8 [113]

Tab. 4.1 – Paramètres et valeurs de la simulation

Pour la simulation, dans le cas de la fluorescence excitée à deux photons, les paramètres laser ont été calqués sur les caractéristiques TéraMobile, c'est à dire des impulsions de 300 mJ et de durée de 1 ps. Pour la fluorescence excitée à un photon, les caractéristiques des meilleurs systèmes commerciaux Nd : YAG, avec une durée d'impulsion de 10 ns et d'énergie de 100 mJ dans la quatrième harmonique ont été considérées. Les résultats de la comparaison sont représentés sur la figure 4.3, où un nuage de 10 m de longueur a été considéré.

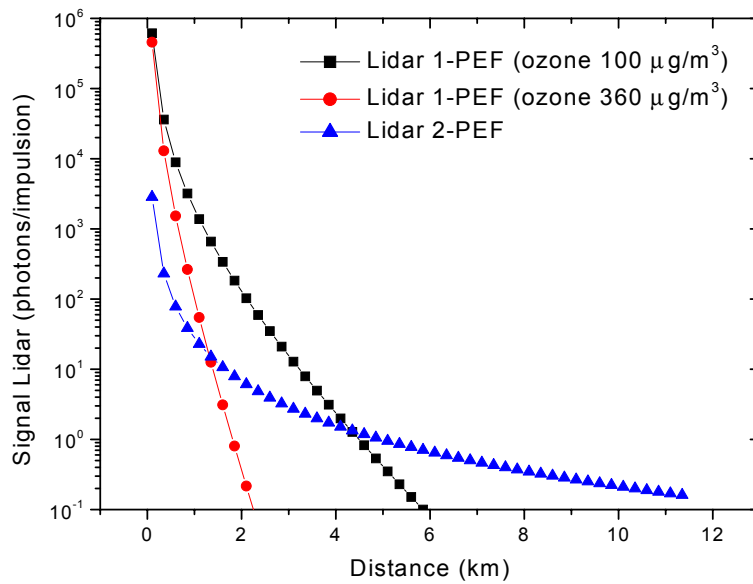


Fig. 4.3 – Simulation de la télédétection de la fluorescence du tryptophane dans des bioparticules excitée à un ou deux photons. Le signal LIDAR 2-PEF est plus élevé que son équivalent linéaire à partir de 2 ou 4 km selon la concentration d' O_3 . Le LIDAR à 2 photons bénéficie de la meilleure transmission atmosphérique à 530 nm par rapport à 266 nm en raison de la décroissance de la diffusion Rayleigh avec la longueur d'onde et de l'absorption à 266 nm par 100 ou 360 µg d' O_3 .

Pour une concentration en ozone de 100 µg/m³, c'est à dire une concentration souvent dépassée en zone urbaine, la décroissance du signal LIDAR 1-PEF est plus rapide que celle du LIDAR à 2-PEF. Cela est dû à la plus grande absorption de l'ultraviolet par rapport au visible, en raison de l'ozone et de l'extinction Rayleigh. La concentration d'ozone de 360 µg/m³ est le seuil d'alerte selon la norme CEE de 1999. Dans ces conditions, moins d'un photon par impulsion est collecté, c'est à dire que la détection devient inefficace dès 2 km de distance. La détection d'un nuage dangereux à cette distance modeste ne présente qu'un intérêt limité. En effet, le temps pour prendre des mesures de protection serait alors très court si ce nuage d'aérosols biologiques était dangereux. Contrairement au LIDAR à 1-PEF, la détection à l'aide d'un LIDAR à 2-PEF reste efficace même dans le cas de forte

concentration d'ozone dans l'atmosphère.

Ces simulations permettent aussi d'estimer la concentration minimum qu'il est possible de détecter. Le critère que nous avons choisi est la détection d'au moins un photon de fluorescence émis par impulsion. Comme usuellement en LIDAR, le seuil de détection est exprimé comme un produit de la concentration et de la résolution spatiale considérée. Il s'abaisse donc lorsque la distance d'intégration spatiale augmente vu que $N_f(R) \propto N_T \rho(R) \Delta R$ (cf. Équation. 4.1). Pour une résolution spatiale de 10 m, le seuil minimum de concentration détectable avec le LIDAR à 2 photons est de 20 bactéries/ cm^3 à 2 km et de 100 bactéries/ cm^3 à 5 km. Ce seuil de détection dépend aussi du rendement quantique η de la fluorescence. Le rendement quantique de la fluorescence considéré $\eta = 0,13$ [119, 121], permet de négliger la saturation et le photoblanchiment [120], puisqu'une moyenne de 0,1 photon est émis par molécule de tryptophane par impulsion laser. Le rendement quantique considéré est une valeur typique correspondante à celui du *bacillus subtilis* ou du *bacillus cereus*. Cependant des fluctuations d'environ un ordre de grandeur sont observées selon le type de bactéries. Ces fluctuations abaissent d'autant le seuil de détection mais n'affectent pas la comparaison entre les processus d'excitation à 1 ou 2 photons.

4.1.4 Conclusion et perspectives

Nous avons réalisé la première détection et identification à distance par une excitation à 2 photons, d'aérosols biologiques. Cette démonstration a été réalisée à une distance de 45 m. L'efficacité de la fluorescence excitée à 2 photons est comparée avec celle effectuée à un photon. Nous avons supposé alors que nous contrôlions parfaitement la propagation non-linéaire, aussi bien dans le domaine spatial que dans le domaine spectral. Le contrôle spatial et spectral de l'impulsion a été réalisé sur une centaine de mètres. Le contrôle spatial de la filamentation a été démontré jusqu'à 2 km de distance. Pour assurer le contrôle spatial et spectral jusqu'à 2 km de distance, des expériences supplémentaires et des investigations théoriques sont nécessaires. Une mise en forme temporelle des impulsions ainsi que l'utilisation d'optique adaptative peut certainement être d'une grande aide, comme cela a déjà été démontré pour la fusion [122]. De plus, la mise en forme temporelle des impulsions gouvernée par un algorithme génétique pourrait permettre, tout en abaissant le seuil de détection, d'accroître la sélectivité de la méthode et de distinguer ainsi deux espèces ayant le même spectre de fluorescence linéaire, comme cela a été récemment démontré en laboratoire [116, 123, 124].

4.2 La méthode “R-FIBS”

Le paragraphe précédent a illustré une application de la propagation fortement non-linéaire du faisceau pour délivrer des hautes intensités à longue distance et induire des effets non-linéaires *in situ* afin de mettre en évidence des aérosols biologiques. Cette propriété est aussi utile pour l'analyse à longue distance de cibles solides par la technique “LIBS”. “LIBS” est l'abréviation anglaise de “Laser Induced Breakdown Spectroscopy ” (spectroscopie de plasma créé par laser). C'est une méthode d'analyse de la matière par laser . Un plasma résultant de l'interaction entre une impulsion laser intense et la matière est créé. La matière ablatée par le laser est réduite à un état élémentaire ionique, atomique ou moléculaire. Les raies de recombinaison dans le panache de plasma donnent accès par analyse spectroscopique à la composition chimique de la matière. L'intérêt croissant de cette technique est dû aux caractéristiques inhérentes à celle-ci : excitation et détection tout-optique, sans préparation de l'échantillon, analyse simultanée d'un échantillon chimiquement complexe...

Après avoir précisé les grandes caractéristiques de cette technique, je discuterai l'apport des impulsions femtosecondes à la technique LIBS. Deux configurations ont été utilisées. Pour la première configuration, le faisceau était focalisé à 25 m et l'ablation était due à l'ensemble du faisceau et non uniquement aux filaments. Puis, dans une deuxième configuration le faisceau était émis collimaté et l'ablation était due uniquement aux filaments. Je m'intéresserai alors en particulier à l'utilisation des filaments pour induire un plasma à très longue distance, permettant d'étendre les applications de la technique LIBS en télé-détection. Cette nouvelle technique est appelée R-FIBS, soit “Remote Filaments Induced Breakdown Spectroscopy”, ce qui signifie spectroscopie de plasma créé par des filaments à distance.

4.2.1 La technique “LIBS”

La technique LIBS est une méthode d'analyse de la matière sous ses différentes états : liquide, gaz et bien sûr solide. Il suffit que l'interaction laser-matière puisse conduire à la formation d'un plasma constitué d'ions, d'atomes ou de molécules issus de l'échantillon étudié. C'est en raison de la grande souplesse de cette technique qu'un grand nombre d'applications existe déjà. Un système LIBS a même été construit pour être monté sur un véhicule automatique afin d'analyser le sol martien à une distance supérieure à 10 m [125, 126].

C'est l'émission spécifique du plasma qui est utilisée pour l'analyse de l'échantillon. Les ions, les atomes, ou les molécules formant le plasma occupent des états excités en raison des hautes températures et des recombinaisons ions-électrons résultant de l'interaction laser-

matière. Un électron dans l’état excité d’énergie E_2 , a la probabilité A_{21} de transition par seconde pour passer à un état moins excité d’énergie E_1 en émettant un photon de fréquence ν telle que $h\nu = E_2 - E_1$. Les probabilités de transitions des ions et des atomes sont connues et tabulées dans des bases de données telles que celle du NIST [127].

4.2.2 L’apport des impulsions femtosecondes à la technique LIBS

La spectroscopie de l’émission plasma permet d’identifier les atomes qui composent l’échantillon analysé. Cependant, les caractéristiques de l’émission ne dépendent pas uniquement de l’échantillon mais aussi de l’air ambiant. Des raies sont issues des atomes excités de l’air ambiant et une émission continue est générée par des processus de recombinaisons électrons-ions et Bremsstrahlung dû à des électrons chauds. Les raies issues de l’atmosphère peuvent alors masquer des composés de l’échantillon et rendent délicates l’analyse du signal LIBS. Les raies issues des composés de l’atmosphère dépendent de la formation du plasma et de la température atteinte par le plasma. Ces paramètres dépendent donc fortement de l’interaction laser-matière à l’origine de la formation de ce plasma.

En étudiant les différences sur les propriétés relatives à l’ablation et à l’émission spectrale, nous allons discuter l’apport des impulsions femtosecondes à la technique LIBS.

4.2.2.1 Dispositif expérimental

Les impulsions étaient émises par le laser du système TéraMobile. Le faisceau était focalisé à 25 mètres sur l’échantillon. La durée d’impulsion était soit de 80 fs, soit de 200 ps. Cette durée de 200 ps est supérieure à la durée de couplage avec les phonons [128, 129]. Ces deux durées permettent donc de différencier deux régimes d’impulsions “LIBS”. Pour obtenir des impulsions de 200 ps, le compresseur était court-circuité par un système de miroirs.

Dans une perspective de détection à distance, nous avons utilisé le système de détection de type LIDAR de la salle de contrôle du système TéraMobile. Il est constitué d’un système LIDAR classique (cf. paragraphe 1.3) qui comprenait un télescope de miroir primaire de 10 cm. La tache circulaire au foyer du télescope était adaptée à la fente d’entrée d’un spectrophotomètre (Chromex 500IS/SM) par un faisceau de fibres optiques. Le spectre était ensuite enregistré à l’aide d’une caméra CCD intensifiée. Avec un réseau de 600 lignes par mm, une fente d’entrée de 100 μm , la résolution du système était de 0,34 nm par pixel sur la caméra. Le déclenchement de la caméra était synchronisé par une photodiode observant une fuite sur le miroir d’émission avec un intervalle de temps ajustable entre la porte temporelle d’acquisition de la caméra et le laser grâce à un générateur de délai. L’efficacité en intensité du système de détection entre 450 et 950 nm a été calibrée à l’aide d’une lampe halogène considérée comme un corps noir de température de 3000 K. Le

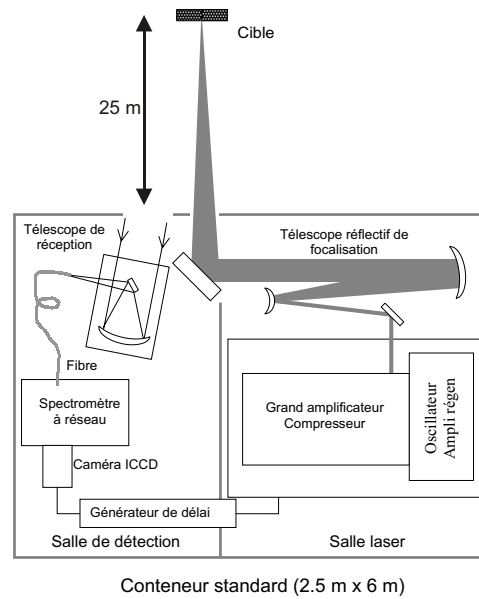


Fig. 4.4 – Schéma du dispositif expérimental. Le faisceau laser est focalisé à 25 m sur la cible grâce au télescope d'émission. La lumière émise par la plasma créé lors de l'interaction laser-matière est recueillie par un télescope, transmise par une fibre à un spectromètre imageur puis à une caméra CCD intensifiée dont la synchronisation est faite par un générateur de délais.

détecteur était aligné sur la cible grâce à un laser Nd : YAG auxiliaire continu. De plus, pour augmenter le rapport signal sur bruit, le signal était intégré sur quelques centaines d'impulsions, soit une durée d'acquisition inférieure à la minute.

4.2.2.2 Une ablation avec un moindre dommage

Afin de caractériser les dommages induits sur l'échantillon pour l'analyse "LIBS" femtoseconde et picoseconde, l'ablation laser sur des échantillons de cuivre et d'aluminium de qualité industrielle a été comparée dans les deux régimes d'impulsions. La figure 4.5 montre les cratères d'ablation dus à l'interaction laser-matière d'impulsions femtosecondes (80 fs) et picosecondes (200 ps). Pour les deux faisceaux, la focalisation était identique (25 m) de même que l'énergie par impulsions (150 mJ). Les cratères d'ablation issus des impulsions femtosecondes sont dus, dans la configuration focalisée à l'ensemble du faisceau et non aux filaments générés lors de la propagation. Les cratères sont même plus larges que ceux issus des impulsions picosecondes car l'intensité des ailes du faisceau dans le régime femtoseconde dépasse le seuil d'intensité nécessaire à l'ablation, contrairement au cas d'une impulsion picoseconde.

Par ailleurs, la nature des dégâts est très différente. Dans le régime picoseconde, au centre des cratères, les traces d'une fusion de l'échantillon sont visibles avec un cratère présentant des reliefs suite à l'interaction laser-matière. Dans la littérature, en régime nanoseconde [130], des températures de plasma dépassant les 3000 K ont en effet été

relevées. Cette température est largement supérieure à la température de fusion du cuivre (1365 K) ou de l'aluminium (930 K). Dans le régime femtoseconde, il est généralement accepté que l'ablation d'un échantillon solide résulte d'une transition directe de la phase solide à la phase vapeur [128]. Ceci est confirmé par nos résultats expérimentaux où la partie centrale, avec un aspect rugueux et des stries, ne semble pas avoir été fondue. On a une élévation de la température au-dessus de la température critique pour laquelle l'énergie de liaison des molécules est égale à l'énergie cinétique moyenne des molécules.

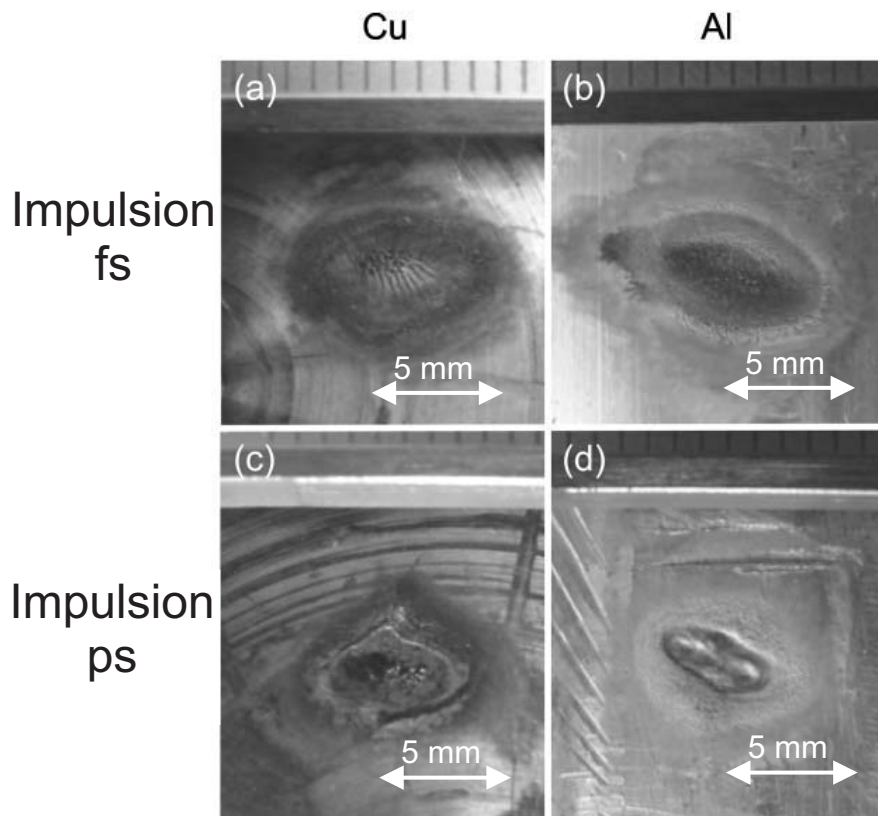


Fig. 4.5 – Comparaison des impacts dus à l'ablation laser dans le régime femtoseconde (80 fs) et picoseconde (200 ps) pour des échantillons de cuivre ou d'aluminium pour les mêmes conditions de focalisation du faisceau (25 μ m). L'énergie par impulsion laser était de 150 mJ. Les photographies ont toutes la même échelle.

4.2.2.3 Des spectres “propres” non pollués par l'environnement

Les processus d'ablation étant différents dans les deux régimes d'impulsions (femtosecondes et picosecondes), on peut s'attendre à ce que les espèces générées lors de l'interaction laser-matière soient différentes et donc à ce que les spectres diffèrent. Les spectres du cuivre enregistrés dans les deux régimes d'impulsion sont représentés sur la figure 4.6. La porte d'intégration était de 10 μ s et située 10 ns après le retour de la lumière diffusée élastiquement sur la cible. Le signal était moyenné sur 400 tirs laser sur le cuivre

dans le régime femtoseconde. Dans le régime picoseconde, le délai était de 345 ns, la durée d'intégration de 1 μ s et le signal était moyenné sur 150 tirs. Dans les deux cas, les raies d'émission plasma de l'atome de cuivre à 510,6 nm, 515,3 nm, 521,8 nm, 529,3 nm, 570,0 nm, 578,2 nm, 793,3 nm et 809,3 nm se détachent d'un faible continuum dans le cas du cuivre. Les raies ioniques du cuivre (I) à 627,3 nm, 740,4 nm, 766,46 nm, 780,7 nm et 782,56 nm tabulées dans la base de données NIST [127] ne sont en revanche pas visibles. Cependant, sur les spectres enregistrés dans le régime femtoseconde, les raies de l'atmosphère ambiante ne sont pas visibles. Dans le régime picoseconde, les raies de l'azote et de l'oxygène se détachent.

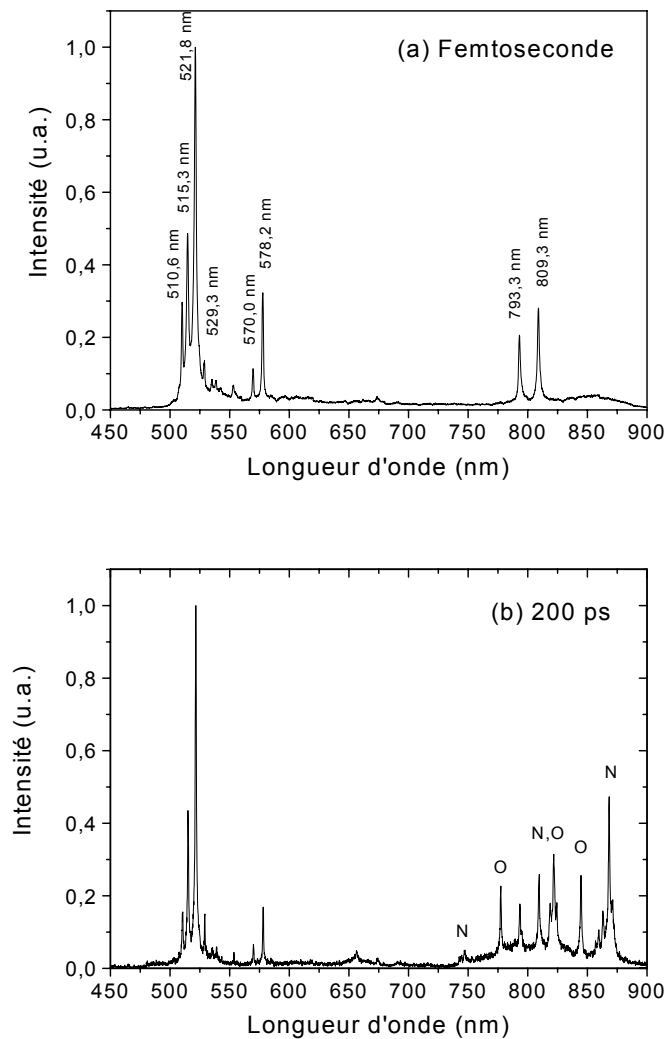


Fig. 4.6 – Spectres du cuivre obtenus par télédétection LIBS d'un échantillon situé à 25 m excité par des impulsions femtosecondes (80 fs) et picoseconde (200 ps). Les longueurs d'onde des raies d'émission du cuivre sont indiquées sur la figure (a) et les raies de l'oxygène et de l'azote sont identifiées sur la figure(b).

Les raies de l'air ambiant sont dues à l'expansion du panache chaud de plasma dans le cas d'une excitation par une impulsion nanoseconde [131]. Pour des impulsions "longues",

au-delà de la centaine de picosecondes, l’émission de l’air ambiant est due à l’interaction entre l’arrière de l’impulsion et les premiers électrons du plasma créé, conduisant à l’ionisation des molécules d’air par l’effet Bremsstrahlung inverse [132]. L’absence des raies d’émission de l’air ambiant avec les impulsions femtosecondes est certainement due à une éjection plus rapide du panache de plasma à des vitesses supersoniques [133], expulsant les molécules d’azote et d’oxygène pendant une durée de plusieurs μs [134], ainsi qu’à l’absence de chauffage du plasma par l’effet Bremsstrahlung inverse, l’impulsion n’existait plus quand le plasma est formé. La “propreté” du spectre, non “pollué” par les raies d’émission de l’air ambiant, est une qualité très appréciable pour déterminer la composition de l’échantillon. En effet, cela évite d’éventuelles interférences entre les raies de l’air ambiant et les raies dues à la composition de l’échantillon étudié. Si cette propriété n’est pas essentielle pour l’analyse d’un échantillon simple présenté dans cet exemple, comme la cible métallique de cuivre, elle va s’avérer capitale pour l’étude d’échantillons biologiques, qui partagent avec l’air des éléments tels que l’oxygène ou l’azote.

Des résultats comparables ont été obtenus avec un échantillon d’aluminium. Cette fois-ci, ce sont les raies de l’oxyde d’aluminium AlO correspondant aux transitions $B^2\Sigma^+ \rightarrow X^2\Sigma^+$ avec $\Delta\nu = 1, 0, -1, -2$ qui ont été observées. Les raies moléculaires sont visibles dans tous les régimes d’impulsion, femtosecondes (80 fs), picosecondes (200 ps), nanosecondes (5 ns). De plus, comme pour le cuivre, les raies issues de l’excitation secondaire de l’air ne sont pas visibles lorsque l’échantillon est excité par des impulsions femtosecondes contrairement à l’excitation par des impulsions nanosecondes et picosecondes. La “propreté” des spectres obtenue avec des impulsions femtosecondes est donc un processus général qui ne dépend pas de la nature des échantillons.

4.2.2.4 Décroissance du signal “LIBS” excité par des impulsions femtosecondes et picosecondes

Pour s’affranchir des raies parasites, une possibilité réside dans le choix de la position de la porte temporelle. On est alors confrontés à la décroissance rapide du signal. Pour caractériser cette décroissance du signal LIBS excité par des impulsions picosecondes et femtosecondes, les spectres ont été enregistrés avec un délai variable et une porte temporelle fixée à 10 μs . Cette porte temporelle a été choisie très large, de manière à enregistrer toute la fin du signal à partir d’un temps donné.

La figure 4.7 montre que la décroissance des signaux LIBS de la raie du cuivre à 515,3 nm excitée par des impulsions picosecondes (200 ps) et femtosecondes (80 fs) de même énergie, sont comparables. La décroissance est similaire pour les différentes raies atomiques du cuivre. Le temps de décroissance du cuivre excité par une impulsion fem-

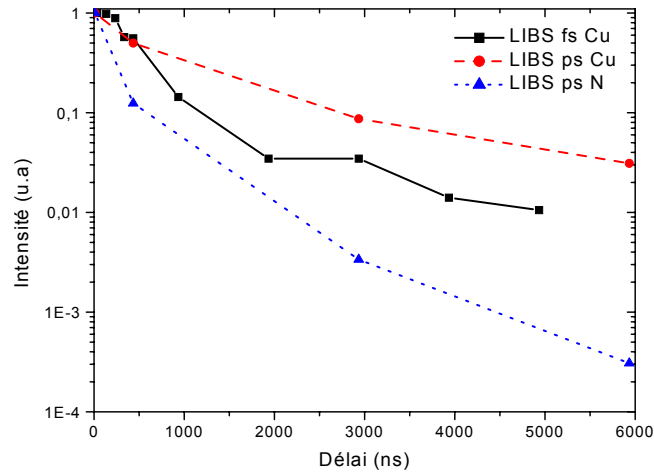


Fig. 4.7 – Décroissance en fonction du délai du signal LIBS de la raie du cuivre à 515,3 nm, excitée par une impulsion laser de durée 80 fs et de durée 200 ps de même énergie ainsi que la raie de l'azote à 868 nm due à une excitation secondaire de l'air.

toseconde est de plusieurs μs , ce qui est d'environ 1 ordre de grandeur plus grand que les valeurs relevées dans la littérature avec des énergies par impulsion plus faibles (1 mJ, 140 fs) [135]. Cette décroissance plus lente est la signature d'un mécanisme d'interaction laser-matière différent pour des impulsions de haute énergie. De plus la décroissance comparable dans le régime femtoseconde et picoseconde montre bien qu'il s'agit d'un effet d'énergie et non de puissance. En revanche, la décroissance de la fluorescence de la raie d'azote à 868 nm issue d'une excitation secondaire de l'air est beaucoup plus rapide.

Les mêmes expériences ont été réalisées sur l'échantillon d'aluminium montrant des durées de décroissance similaires pour la raie moléculaire de l'aluminium AlO précédemment observée. Là encore, les résultats semblent revêtir un caractère général aux échantillons métalliques.

4.2.2.5 Conclusions et perspectives de cette étude

Les expériences préliminaires présentées ici nous ont permis de démontrer qu'il est possible de réaliser la télédétection LIBS avec un laser femtoseconde focalisé à 25 m, sur des échantillons métalliques placés à 25 m. Nous avons montré que l'ablation femtoseconde génère une élévation moindre de la température, ce qui conduit à des spectres plus "propres". De ce fait, l'excitation par une impulsion femtoseconde permet d'éviter des raies issues d'une excitation secondaire de l'air, rendant plus facile l'automatisation de l'analyse des signaux LIBS. Cette propriété est capitale pour l'extension de cette méthode à des composés organiques qui peuvent contenir de l'azote ou de l'oxygène. Des expériences sont d'ailleurs en cours au laboratoire à ce sujet, où des bactéries sont analysées par la

méthode “LIBS”. L’analyse d’un tel composé sera extrêmement facilitée par l’utilisation des impulsions femtosecondes.

4.2.3 La technique R-FIBS

Pour accroître les potentialités de la technique “LIBS” à distance, nous avons proposé une nouvelle approche où le faisceau laser femtoseconde térawatt est collimaté à la sortie du laser et où l’émission LIBS est provoquée par les filaments générés lors de la propagation du faisceau. Cela permet de dépasser la limite de diffraction qui limite la distance d’analyse de l’échantillon par un faisceau focalisé et ce d’autant plus que les processus mis en jeu sont non-linéaires. La télédétection LIBS à la distance de 120 m démontrée à Malaga par le groupe de J. J. Laserna [136] en utilisant des impulsions nanosecondes paraît être une limite de cette technique. Grâce aux filaments, nous avons montré qu’il est possible d’induire un plasma jusqu’à 180 m de distance et obtenir ainsi un signal LIBS. Cette distance n’est pas une limite de la technique, mais correspond à la distance maximale disponible durant les expériences. Nous avons appelé cette configuration “Remote Filaments Induced Breakdown Spectroscopy” (R-FIBS) dont la traduction française est “Spectroscopie de plasma créé par des filaments”. En raison de la propagation des filaments sur de longues distances, la détection d’échantillons solides est possible jusqu’à une distance de quelques kilomètres. Cela élargit considérablement le champ d’application de la technique LIBS. En effet, la télédétection permet d’analyser des échantillons difficiles d’accès comme dans des sites géologiques, ou pollués (chimiquement ou par l’industrie nucléaire). La lumière émise par le plasma est recueillie par un système de détection de type LIDAR à lumière blanche, comme décrit au paragraphe précédent pour le faisceau focalisé.

4.2.3.1 Dispositif expérimental

Le système expérimental utilisé pour l’essentiel des expériences rapportées ici (cf. Fig. 4.8) est proche de celui décrit à la partie précédente 4.2.2.1. Il ne diffère qu’en deux points. D’une part, le faisceau est émis collimaté avec un diamètre initial de 3 cm de manière à générer des filaments et d’autre part, le télescope utilisé avait un miroir primaire de 20 cm au lieu de 10 cm. De plus la distance de l’échantillon par rapport au laser variait entre 20 et 90 m. Les échantillons considérés étaient du cuivre et du fer. La porte temporelle du détecteur était synchronisée de manière à éliminer la lumière blanche rétrodiffusée élastiquement par l’échantillon.

De plus, en complément aux expériences ci-dessus, des expériences complémentaires ont été réalisées sur une cible d’aluminium située à 180 m du laser. Le système de détection était placé à proximité de la cible, et était composé d’une lentille de 5 cm de diamètre

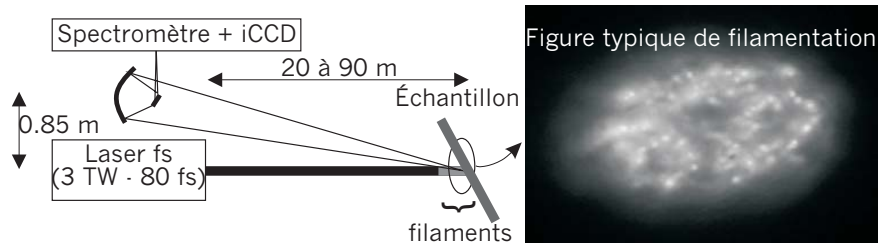


Fig. 4.8 – Dispositif expérimental R-FIBS. Le plasma est alors généré par les filaments issus de la propagation non-linéaire d'impulsions femtosecondes térawatts

et d'une distance focale de 25 cm, qui focalisait sur une fibre la lumière émise par le plasma induit par les filaments générés après 180 m de propagation. La fibre était reliée à un spectromètre d'ouverture $f/4$ (ORIEL MS257) dont le réseau était blasé à 260 nm et comportait 600 traits par mm. À la sortie du spectromètre, un photomultiplicateur (PM Hamamatsu 6780-03) relié à un oscilloscope enregistrait le signal LIBS. Les longueurs d'onde étaient balayées tous les nanomètres autour de 400 nm à l'aide du spectromètre. Le résultat est présenté au paragraphe 4.2.3.6.

4.2.3.2 Une ablation sans cratère

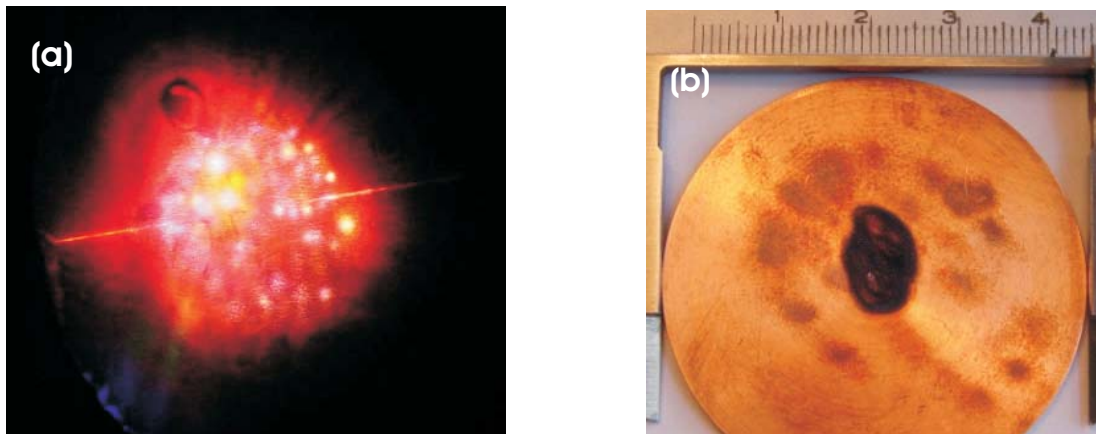


Fig. 4.9 – (a) Photo typique de l'émission plasma sur un échantillon de cuivre. L'émission plasma a lieu uniquement au niveau des filaments et l'intensité du bain du faisceau est insuffisante pour générer un plasma à la surface de l'échantillon. (b) Surface de cuivre irradiée par des tirs laser. La tâche noire au centre correspond à l'irradiation par un faisceau femtoseconde focalisé à 25 m. Les taches grises correspondent à l'irradiation par les filaments sur la cible située à 90 m. En raison de la turbulence de l'air qui fait varier aléatoirement la position des filaments sur la cible, l'irradiation est répartie sur une grande surface, ce qui limite la profondeur d'ablation.

L'ablation par les filaments a également été étudiée. Lors de la propagation du faisceau térawatt, plusieurs filaments sont générés. Ces filaments ont pour origine des modulations d'intensité dans le profil initial du faisceau [48]. Chaque filament a une intensité de

$5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, ce qui est supérieur au seuil d'intensité nécessaire à l'ablation alors que l'intensité du reste du faisceau est trop faible pour exciter un plasma, comme le montre la figure 4.9a prise à 90 m du laser. L'émission plasma, qui apparaît comme des points lumineux, se réalise uniquement au niveau des filaments alors que l'intensité du reste du faisceau est insuffisante pour générer un plasma à la surface de l'échantillon.

Sur la photo 4.9b, l'ablation due aux filaments endommage beaucoup moins l'échantillon étudié que l'ablation due au faisceau focalisé. En effet, sur cette photo, au centre, un cratère d'ablation est dû à un faisceau focalisé à 25 m, alors que l'ablation due aux filaments est révélée seulement par des taches grises. Ces taches sont beaucoup plus larges que le diamètre des filaments en raison de la turbulence de l'air qui modifie aléatoirement la position des filaments. La zone est ainsi ablatée très superficiellement autour de la position moyenne des filaments. L'utilisation des filaments pour la technique LIBS est donc particulièrement non invasive.

4.2.3.3 Analyse de l'émission plasma induite par les filaments

Grâce aux hautes intensités transportées par les filaments, les spectres provenant d'échantillons de cuivre et du fer placés à 90 m issus de l'émission plasma ont pu être enregistrés (cf. Fig. 4.10a et Fig. 4.10b). Les spectres présentés sont moyennés sur 10 000 tirs laser. Cependant une identification sans ambiguïté des raies du cuivre et du fer est possible dès 1 000 tirs laser, soit moins de 2 minutes d'intégration à une fréquence de 10 Hz. Ce temps est suffisamment court pour permettre une analyse en temps réel. Aucun signal n'a pu être obtenu avec un faisceau collimaté à 90 m de distance en utilisant une impulsion nanoseconde (5 ns) ou picoseconde (200 ps). De plus, un signal n'était obtenu avec une impulsion femtoseconde que lorsque la durée d'impulsion était ajustée de manière à précompenser la dispersion de vitesse de groupe de sorte que les filaments frappaient la cible métallique. Les filaments sont donc bien à l'origine du signal observé et ils sont indispensables à l'apparition du signal. Nous reviendrons sur cet aspect dans le paragraphe 4.2.3.4.

Remarquons déjà que, comme c'est le cas avec des impulsions femtosecondes focalisées, les spectres du cuivre et du fer ne sont pas contaminés par les raies de l'air ambiant. De plus, le fond est particulièrement bas, et aucune émission large bande due à un corps noir, n'a pu être mise en évidence. Le plasma généré par les filaments est froid et donne encore un meilleur contraste que pour le signal LIBS excité par un laser focalisé (cf. paragraphe 4.2.2.3).

Cette qualité de spectre, comme pour le faisceau femtoseconde focalisé, indépendante

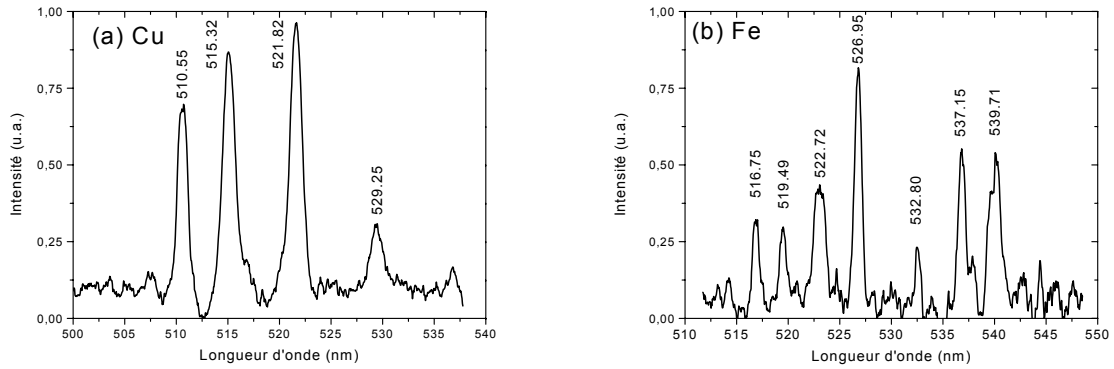


Fig. 4.10 – Spectres du cuivre et du fer enregistrés à 90 m de distance

de l'air ambiant, permet d'envisager la possibilité d'utiliser cette technique pour une analyse quantitative de matériaux plus complexes contenant de l'oxygène comme des bactéries ou des matériaux organiques.

4.2.3.4 Influence de la distance sur le signal FIBS

Pour étudier la possibilité d'utiliser la technique R-FIBS à longue distance, l'évolution du signal FIBS avec la distance de l'échantillon est représentée sur la figure 4.11. Pour chaque distance, la durée d'impulsion était ajustée de manière à optimiser le signal. Elle correspondait à chaque fois au maximum de l'intensité acoustique sur l'échantillon, c'est à dire au maximum d'efficacité de l'ablation due au laser. Les filaments commençaient à chaque fois à seulement quelques mètres de l'échantillon.

Cette procédure a permis d'obtenir un signal R-FIBS dont la décroissance en $1/R^2$ (R est la distance de l'échantillon) est due uniquement au facteur géométrique correspondant à la diminution de l'angle solide de collection de la lumière émise au niveau de l'échantillon par le télescope. Cela signifie qu'en ajustant la durée d'impulsion, l'émission FIBS engendrée par les filaments ne dépend pas de la distance. Ce comportement diffère totalement de celui d'un faisceau focalisé. En effet, comme nous l'avons vu au paragraphe 1.1.1.1, le diamètre dans le plan focal du faisceau augmente linéairement avec la distance de focalisation. La génération de plasma étant un processus multiphotonique, elle est très sensible à l'intensité du faisceau et la plus grande surface irradiée ne contrebalance pas la diminution du signal LIBS. La décroissance simulée du signal LIBS dans le cas de l'ionisation à 3 photons du cuivre est représentée sur la figure 4.11. Les performances des signaux R-LIBS et R-FIBS sont ainsi comparées en fonction de la distance de l'échantillon. À longue distance, au-delà d'environ 100 m, la seule approche envisageable est la technique R-FIBS où le plasma est généré par la haute intensité transportée et délivrée par les filaments.

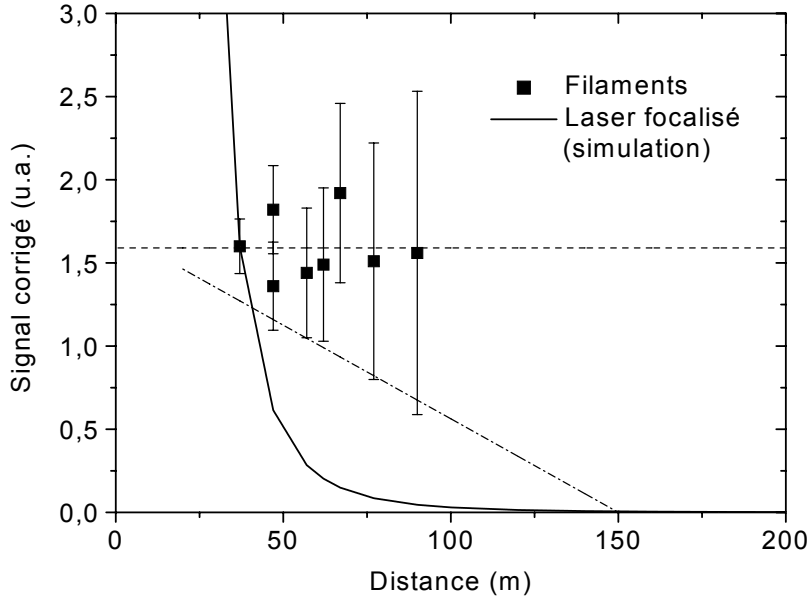


Fig. 4.11 – Intensité du signal de télédétection FIBS en fonction de la distance de l’échantillon. Le signal FIBS est comparé au comportement attendu par un signal LIBS résultant d’un processus d’ionisation à trois photons.

Comme nous l’avons déjà montré au chapitre 1, les filaments peuvent être initiés jusqu’à une distance d’environ 2 km [30, 40]. La génération de plasma par les filaments est donc possible sur des cibles situées à de telles distances. Cependant, avec le système de détection utilisé dans nos expériences, le rapport signal/bruit tombe à 1 pour une distance de 150 m. Mais cette valeur ne doit pas être considérée comme la limite du R-FIBS puisqu’elle est liée avant tout au système de détection. Or, l’efficacité du système de détection peut être facilement augmentée d’un facteur 100 en réalisant un meilleur couplage entre le télescope et le spectromètre. Nous avons estimé qu’il serait possible d’analyser des échantillons par la technique R-FIBS jusqu’à des distances de l’ordre du kilomètre.

4.2.3.5 Vers la télédétection du signal FIBS à l’échelle kilométrique

La présence des filaments étant suffisante à induire une ablation sur l’échantillon après une distance “arbitraire” (du moins sur des distances kilométriques) de propagation, il faut développer un système de détection spécifique pour profiter pleinement de cet avantage offert par les filaments.

Le système de détection (télescope, fibre, spectromètre, caméra CCD intensifiée) utilisé pour nos expériences décrites précédemment, offre une bonne résolution spectrale (0,34 nm) mais une faible efficacité de détection (7%). En effet, une fibre collectait les photons dans la tache focale du télescope, or le couplage par fibre est délicat. Il est considéré qu’un

couplage avec une efficacité de 50% est déjà bonne. De plus, la fibre a une transmission d'environ 50 % à 520 nm (donnée du constructeur) et est encore plus faible dans l'ultra-violet où sont présentes des raies de nombreux métaux, notamment de l'aluminium [127]. De plus, la lumière collectée est ensuite réfléchiée par 5 miroirs en aluminium au niveau du spectromètre. À ce niveau, en prenant en compte les pertes dues au coefficient de réflexion des réseaux du spectromètre, une estimation de l'efficacité de détection de 7% est un maximum. De plus, en considérant les spectres acquis à 90 m, ainsi que l'efficacité spectrale de la photocathode de la caméra CCD intensifiée et de l'amplification due à la haute tension, on estime à 19 photons seulement le nombre de photons émis par une raie d'émission qui atteignent à chaque tir la photocathode de la caméra CCD après avoir traversé l'ensemble du système de détection (téléscope, fibre, spectromètre). Pour aller à des distances de l'ordre du kilomètre, il est donc nécessaire d'accroître l'efficacité du système de détection.

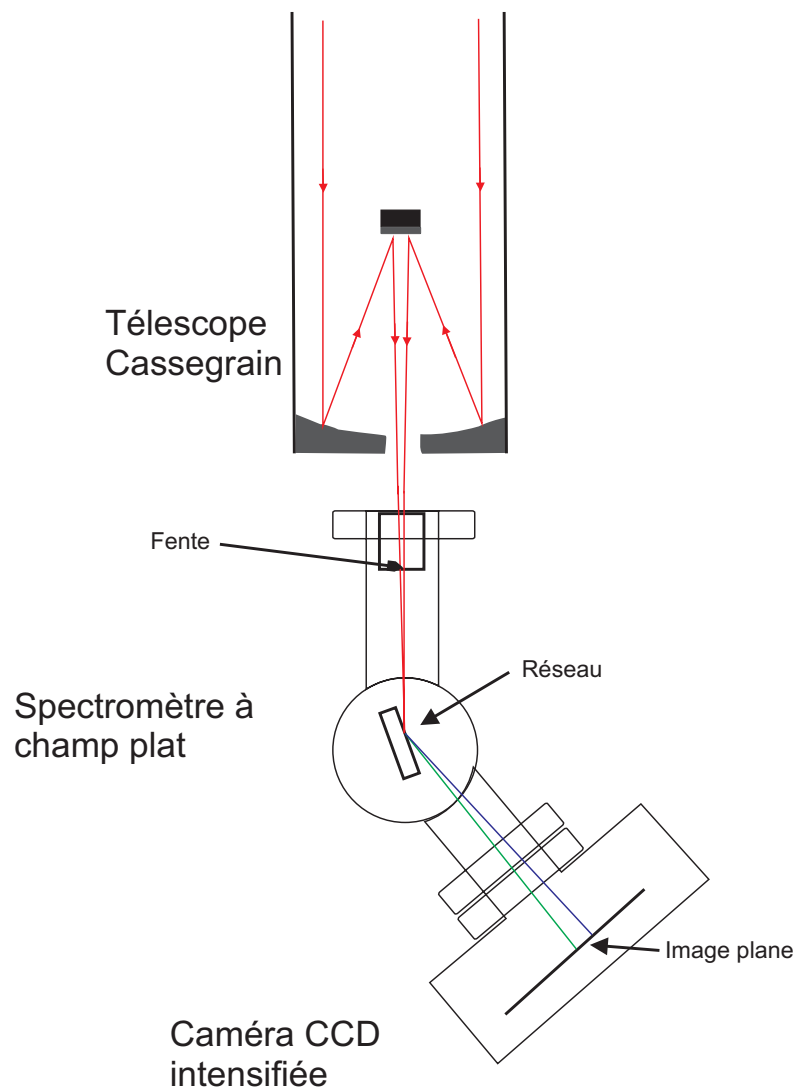


Fig. 4.12 – Schéma de principe de détection pour le R-FIBS kilométrique.

Pour cela, nous proposons un système compact composé d’un télescope Cassegrain, un spectromètre à champ plat et d’une caméra CCD intensifiée (cf. Fig. 4.12). L’avantage du télescope Cassegrain par rapport au télescope de Newton réside dans sa compacité et à un système mécanique plus facile à intégrer pour la détection. Le spectromètre à champ plat est composé uniquement d’un réseau sphérique, ce qui permet d’éviter des réflexions multiples et améliore ainsi la collection de signal. De plus un tel système est aplanétique et permet que le spectre soit enregistré dans un plan par une caméra CCD intensifiée.

En supprimant la fibre pour coupler directement le spectromètre au foyer du télescope, et en diminuant le nombre de systèmes réfléchissants, c’est à dire en ayant un chemin le plus direct possible pour la lumière, la sensibilité du système de détection est améliorée. Dans ces conditions, une efficacité de détection de 50% peut être atteinte, ce qui permettrait d’améliorer par un facteur 7 le rapport signal sur bruit. Pour analyser un échantillon à 1 000 m de distance, il est nécessaire de tripler la taille du télescope. Notons que la valeur de 7% pour l’efficacité de la détection utilisée est très optimiste, aussi un télescope de 40 cm est certainement déjà suffisant pour atteindre une distance de 1 km. Par ailleurs, pour aller encore plus loin, une détection de type LIDAR à lumière blanche avec un monochromateur et un photomultiplicateur augmentera encore l’efficacité de la détection grâce à la très grande sensibilité des photomultiplicateurs. La principale limitation viendra alors de la faculté à générer des filaments à des distances de plusieurs kilomètres. Cependant, la résolution spectrale rendrait difficile l’identification des raies observées. Quoi qu’il en soit nos résultats montrent qu’il est très raisonnable d’espérer développer un système R-FIBS capable de réaliser des mesures à l’échelle du kilomètre.

4.2.3.6 Les filaments induisent un signal plasma jusqu’à au moins 180 m

Pour démontrer expérimentalement que la distance de 90 m pour laquelle les spectres du cuivre et du fer, ne constituaient pas une limite à la technique, des échantillons d’aluminium ont été placés à 180 m dans un bâtiment annexe. Des contraintes d’espace nous ont obligé à utiliser le deuxième système de détection décrit au paragraphe 4.2.3.1.

Comme précédemment, la cible était irradiée par les filaments et la durée d’impulsion était optimisée de manière à maximiser l’intensité acoustique sur l’échantillon. Les raies d’émission de l’aluminium sont enregistrées dans la région ultraviolette du spectre où sont présentes les raies d’aluminium les plus intenses. Les raies d’émission situées à 394,4 nm et 396,1 nm ont ainsi été mises en évidence. Sur la figure 4.13, les signaux enregistrés correspondant à deux longueurs d’onde sont représentés. La ligne “on” correspond à une raie d’émission de l’aluminium alors que la ligne “off” caractérise le continuum de lumière blanche. Cette dernière ligne met en évidence la lumière blanche rétrodiffusée par diffusion

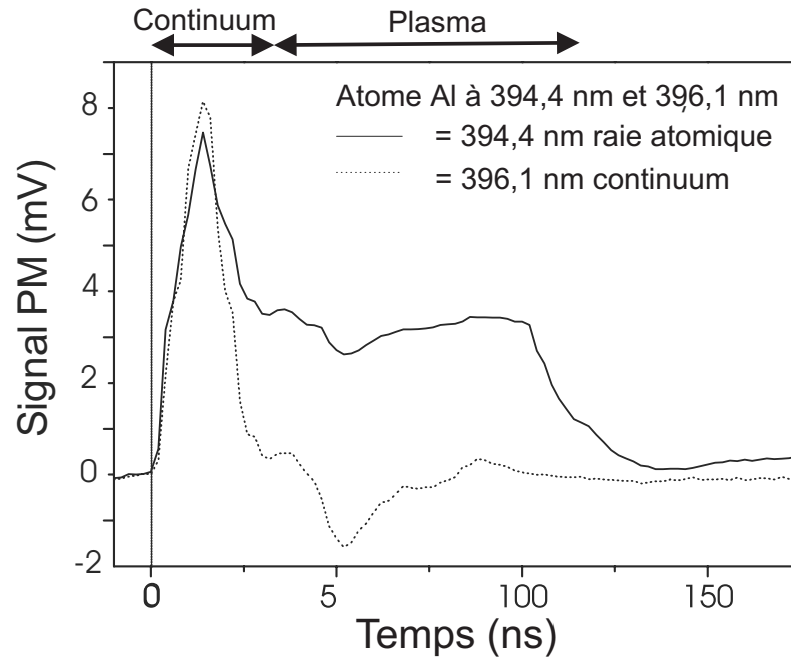


Fig. 4.13 – Émission plasma engendrée par des filaments générés par un laser femtoseconde térawatt situé à 180 m de l'échantillon d'aluminium. La ligne "on" correspond au signal enregistré pour une raie d'émission de l'aluminium alors que la ligne "off" est éloignée de toute raie d'émission. La durée de vie de l'émission se déduit à partir des signaux enregistrés et vaut 130 ns.

élastique par la cible d'aluminium. La ligne "on" exhibe un signal d'une durée supérieure qui correspond à l'émission plasma qui succède à la rétrodiffusion de la lumière blanche. Cela permet d'accéder à la durée de vie du plasma. Elle vaut 130 ns ce qui est beaucoup plus court que les temps observés, à des distances plus courtes, pour des faisceaux focalisés

4.2.4 Conclusions et perspectives

Nous avons pour la première fois obtenu un signal FIBS, c'est à dire dû à un plasma généré sur cible par des filaments. Nous avons également montré que cette technique était parfaitement adaptée à la télédétection à des distances de l'ordre de la centaine de mètres, voire du kilomètre après une optimisation du système de détection. De plus, les spectres obtenus sont "propres", avec un très faible bruit de fond et ne sont pas perturbés par la présence des raies issues de l'air ambiant. De plus, on sait que les impulsions femtosecondes permettent de mettre en évidence des raies moléculaires appartenant à l'échantillon alors qu'elles n'ont jamais été observées avec des impulsions nanosecondes. Cela ouvre la voie vers des études quantitatives d'échantillons plus complexes contenant notamment de l'oxygène, comme des matériaux organiques ou bactériologiques à des distances inimaginables auparavant.

4.2. La méthode “R-FIBS”

Comme pour la télédétection et l’identification des aérosols biologiques par la fluorescence à deux photons, le contrôle de la filamentation est un paramètre clé de ce type d’application. À cet effet, le contrôle de la filamentation, via le glissement de fréquences pour compenser la dispersion de vitesse de groupe, voire la mise en forme temporelle des impulsions, est primordiale.

Chapitre 5

Vers un paratonnerre laser ?

Après avoir vu différentes applications des filaments et, en particulier, en télédétection pour étudier l'atmosphère ou des cibles solides, nous allons aborder ici un tout autre aspect des activités de recherche de la collaboration TéraMobile. Le but ultime de ce volet de recherches est de guider et déclencher la foudre à l'aide des filaments générés lors de la propagation des faisceaux laser femtosecondes térawatts. Pour cela, le canal de plasma généré au cours de la filamentation crée un chemin plus conducteur que l'air qui facilite la décharge de foudre.

5.1 Introduction

À chaque instant, la Terre est en moyenne touchée par plus de 2000 orages qui produisent à chaque seconde une centaine d'éclairs. Un tiers d'entre eux frappent le sol et sont appelés "foudres". Elle est responsable chaque année au Canada et aux États-Unis de 500 morts, 1300 blessés, ainsi que de nombreux dommages matériels. On dénombre aussi une trentaine de morts par année en France. Guider et déclencher la foudre aideraient à résoudre certains de ces problèmes, notamment pour des sites particuliers.

En dépit des paratonnerres classiques, la foudre est responsable de 50% des pannes du réseau électrique canadien d'Hydro-Québec causant une facture de 30 à 40 millions de dollars par années de dégâts matériels pour cette seule compagnie [137]. Le réseau français EDF subit 77 000 impacts de foudre sur son réseau chaque année. C'est pourquoi, ces compagnies aimeraient améliorer la résistance de leur matériel au foudroiement. Le moyen le plus sûr consiste à tester une pièce d'équipement en la soumettant à la foudre elle-même. Malheureusement pour cela, il faut attendre un grand nombre d'années, 7 ou 8 ans, pour que la foudre tombe sur un équipement test donné pour obtenir un retour d'expériences significatif. Mais en guidant et en déclenchant la foudre pendant un orage, la statistique de foudroiement de l'équipement testé serait augmentée et permettrait de

trouver plus rapidement un moyen de protection adéquat. Des sites sensibles comme une centrale nucléaire, une raffinerie, un entrepôt d'explosifs, une usine pétrochimique ou de gaz naturel, un hôpital ou toute autre installation de première importance pourraient aussi utiliser un paratonnerre laser.

Le problème de la foudre concerne aussi les avions. En effet, l'utilisation de plus en plus importante de matériaux composites non métalliques a rendu nécessaire la recherche de solutions nouvelles pour protéger les avions et leurs systèmes embarqués des effets de destruction de la foudre ainsi que des perturbations électromagnétiques très intenses qui accompagnent les éclairs. En effet, les câblages électriques réceptionnent comme des antennes ces perturbations et les transmettent directement aux équipements électroniques. Une surtension de quelques dizaines de volts seulement suffit à mettre hors service l'électronique hautement sensible des avions, ce qui pourrait causer la perte totale des commandes de vol. Cela est particulièrement important aux phases clés du vol, que constituent le décollage et l'atterrissage. En déclenchant la foudre, les nuages à proximité de l'aéroport peuvent être déchargés, permettant ainsi le décollage et l'atterrissage d'un avion sans risquer le foudroiement de celui-ci. De plus, une fois le nuage déchargé, il est possible d'éteindre le laser pendant le décollage ou l'atterrissage pour éviter tout risque oculaire alors qu'un paratonnerre classique constituerait un obstacle inamovible à proximité d'une piste d'atterrissage.

Ces exemples ne sont bien sûr pas exhaustifs, mais illustrent une partie de l'intérêt que peut présenter le guidage et le déclenchement de foudre. Bien sûr, des techniques de déclenchement et de guidage de foudre par des fusées tirant une bobine de fil conducteur est possible. Cependant, cette technique est limitée par le nombre de fusées disponibles. De plus, le fil risque de retomber sur une installation électrique et de l'endommager. Pour cela, dès les années 70, on a eu l'idée d'utiliser un faisceau laser pour ioniser l'air de manière à créer un chemin conducteur qui remplacerait le fil de la fusée, pour guider et déclencher la foudre. Il n'y a alors plus le risque d'endommager une installation électrique et le taux de répétition du laser permet d'essayer plusieurs fois par seconde de déclencher et guider la foudre.

Les différentes approches mises en oeuvre pour guider et déclencher la foudre avec un faisceau laser seront rapidement décrites au début de ce chapitre, et en particulier l'approche ainsi que les résultats obtenus par la collaboration TéraMobile. Je détaillerai ensuite les résultats nouveaux obtenus au cours de mon travail de thèse. En particulier, nous avons développé des stratégies nouvelles pour dépasser les limites actuelles de cette technique afin d'aller vers l'application réelle, c'est à dire guider et déclencher la foudre naturelle.

5.2 Les différentes approches laser et principe du guidage par des filaments

5.2.1 Différentes approches

Les premières tentatives pour guider la foudre à l'aide d'un laser ont été effectuées au cours des années 1980 par les américains [138, 139, 140] et les japonais [141, 142]. Ils utilisaient alors des lasers au gaz carbonique à des longueurs d'onde de $10,6 \mu m$. Cependant le plasma ainsi créé était très absorbant et empêchait la propagation à de longues distances du faisceau laser. En effet, à cette longueur d'onde élevée, il suffit d'une densité faible de plasma pour rendre ce dernier opaque à de telles longueurs d'onde. Si cette méthode s'est révélée efficace en laboratoire, c'est à dire sur quelques mètres, en revanche il n'a pas été possible d'étendre cette technique à la foudre naturelle. C'est pourquoi, on lui préfère aujourd'hui l'utilisation des faisceaux femtosecondes térawatts à 800 nm ou dans l'ultraviolet [143, 144] dont le principal attrait réside dans le mécanisme d'ionisation de l'atmosphère. Celle-ci se fait par effet tunnel ou par transitions multiphotoniques conduisant ainsi à la formation d'un plasma froid et peu dense ($N_e \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ [13]). C'est cette faible ionisation et la longueur d'onde plus courte, qui permet notamment au faisceau de ne pas être absorbé par le plasma créé et de se propager sur plusieurs centaines de mètres. La densité d'électrons libres générée est supérieure à la densité électronique nécessaire pour initier la foudre dans l'atmosphère $N_{e,init} \approx 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ [145, 146]. L'idée est alors d'utiliser ce canal de plasma pour guider et déclencher la foudre. Plusieurs variantes de cette approche sont à l'étude en laboratoire de haute tension.

La première approche utilise un faisceau femtoseconde ultraviolet de manière à générer un canal de plasma uniforme entre les deux électrodes [143, 147]. Cependant, cette technique n'a été démontrée pour l'instant que sur quelques dizaines de cm. Une deuxième approche consiste à focaliser fortement un faisceau femtoseconde térawatt infrarouge ce qui conduit à des canaux de plasma fortement ionisés de 5 à 20 cm au niveau du foyer optique en plein milieu d'électrodes séparés de plusieurs mètres [148]. Cependant, il est difficile d'extrapoler ces résultats à l'échelle atmosphérique, soit sur plusieurs centaines de mètres. La collaboration Téramobile développe une troisième approche à l'aide de filaments longs.

5.2.2 Principe du guidage par des filaments

Dans cette approche, un faisceau femtoseconde térawatt à 800 nm , est envoyé collimaté ou faiblement focalisé de manière à générer des filaments longs et réaliser ainsi un pont ohmique entre les électrodes. Comme cela a été démontré, les filaments peuvent se pro-

5.2. Les différentes approches laser et principe du guidage par des filaments

pager sur plusieurs centaines de mètres et être initiés à la distance voulue [40, 30]. Cette technique présente ainsi l'avantage de pouvoir *a priori* être extrapolée sur de grandes distances. La collaboration Téramobile a déjà obtenu des résultats prometteurs lors d'une première campagne d'expériences à l'université technique de Berlin.

Le résultat le plus spectaculaire obtenu est, bien sûr, le guidage de décharges de hautes tensions. La collaboration a alors montré sa capacité à guider et à déclencher des décharges de 1,2 MV entre des électrodes éloignées jusqu'à 3,8 m. Sur la figure 5.1, une décharge haute tension naturelle se propage sur un trajet erratique, comparable à la décharge d'un allume-gaz. Sur la photo 5.2, une décharge totalement rectiligne est guidée le long du faisceau laser.



Fig. 5.1 – décharge non-guidée (sans laser)



Fig. 5.2 – décharge guidée (avec laser)

Plusieurs paramètres expérimentaux ont été étudiés quant à l'efficacité du déclenchement et du guidage par le faisceau laser. Il est à noter que la haute tension est appliquée sur les électrodes que d'une manière transitoire et que l'influence de la synchronisation entre la haute tension et le tir laser s'est avérée déterminante. Il n'a été possible de déclencher et guider la décharge haute tension que pour un tir laser tiré après la valeur maximale de la haute tension avec un délai compris entre 0 et 15 μs . Contrairement aux résultats de La Fontaine *et al* [144], qui ont déclenché des décharges de haute tension avec des délais négatifs allant jusqu'à 15 μs , aucune décharge haute tension n'a pu être déclenchée et guidée en tirant le laser avant la haute tension. Cependant, dans leur configuration, le faisceau était alors beaucoup plus fortement focalisé, et la physique du déclenchement est alors différente. En effet, il est dû principalement à une expansion hydrodynamique du canal de plasma qui a lieu de façon retardée par rapport au tir laser.

L'importance du contact ohmique entre les filaments et les électrodes s'est également révélée déterminante. Les premières expériences ont été réalisées avec deux électrodes to-

riques. Un éloignement du faisceau de quelques centimètres par rapport au centre de la première électrode était suffisante pour empêcher un déclenchement possible par le laser. Ce résultat est tout à fait conforme à ce qui est observé en laboratoire sur des échelles spatiales réduites (1,5 cm entre les électrodes) [35]. Ensuite, le contact ohmique a été modifié en faisant varier la distance de focalisation du faisceau. Les filaments ont été initiés de plus en plus loin entre les électrodes jusqu'à débiter au-delà de la première électrode. Le taux de déclenchement de décharges de haute tension diminuait régulièrement avec l'augmentation de cette distance jusqu'à tomber à 0. La distance focalisation a été également diminuée, en faisant démarrer ainsi les filaments plus tôt. Lorsque les filaments n'atteignaient plus l'électrode plane, le taux de déclenchement était également réduit à 0. Le taux de réussite le plus élevé a été obtenu pour des filaments débutant 1 m avant la première électrode et qui s'étendaient jusqu'à la deuxième électrode distante de 1,5 m à 4,5 m selon les cas.

Pour quantifier la capacité de déclenchement par le faisceau laser, à plusieurs distances, la tension avec laser $U_{50,laser}$, et sans laser $U_{50,libre}$ pour laquelle le taux de déclenchement de décharges était de 50% a été mesuré. Une réduction de U_{50} en présence du laser a ainsi pu être mise en évidence. C'est cette réduction qui permet de parler de déclenchement de décharge haute tension. La valeur de U_{50} est ainsi diminuée de 32 ± 1 %. Cette valeur a été obtenue en faisant le calcul suivant : $(U_{50,libre} - U_{50,laser}) / U_{50,libre}$. Un ajustement linéaire du taux de décharges libres en fonction de la distance, et du taux de déclenchement des décharges en présence du laser a permis de déterminer une tension de 800 kV/m pour avoir un taux moitié de décharges libres et une tension de 600 kV/m pour des décharges déclenchées par laser. Il serait donc possible de décharger les nuages par un éclair avant que celui-ci ait lieu naturellement.

En utilisant les décharges qui ne sont guidées que sur une fraction η de la distance entre les électrodes, la collaboration TéraMobile a mesuré la vitesse des décharges guidées v_g et des décharges libres v_l . Pour se faire, on réalise un ajustement linéaire du temps τ d'établissement de la décharge tel que :

$$\tau = L (\eta/v_g + (1 - \eta)/v_l) \quad (5.1)$$

où L est l'intervalle de longueur entre les électrodes. La décharge libre suit un chemin erratique et se propage à la vitesse $v_l = 2,9 \pm 0,5 \times 10^5$ m/s. La décharge guidée est accélérée par les filaments en raison de la meilleure conductivité des filaments (10^5 - 10^6 Ω pour une distance entre les électrodes de quelques mètres [149, 150]) par rapport à l'air ce qui facilite la progression de la décharge guidée qui se propage ainsi à la vitesse $v_g = 1,0 \pm 0,2 \times 10^6$ m/s. Ces valeurs sont en accord avec celles qui avaient déjà été mesurées par La Fontaine *et al* [144, 151]. La vitesse des décharges guidées est du même

ordre de grandeur que les éclairs qui repassent exactement par le chemin emprunté par une première décharge qui a libéré des électrons libres. Cela laisse penser que l'intérêt des filaments est la création d'un chemin d'électrons libres tout au long de la propagation du faisceau.

La collaboration Téramobile avait alors démontré le déclenchement et le guidage de décharges de haute tension jusqu'à des distances de 3,8 m. La limitation en distance était due ici au générateur haute tension utilisable dans la halle (tension maximale de 2,2 MV). Il aurait fallu pouvoir augmenter encore la tension pour guider les décharges sur de plus longues distances. Le mécanisme de pont ohmique est compatible avec l'extension de cette technique à des distances plus longues et permettent ainsi d'aller vers l'application réelle. Cependant la durée de vie du canal de plasma est brève. Après quelques dizaines de nanosecondes, les électrons libres présents dans le plasma généré par les filaments se sont attachés à des molécules d'oxygène formant les ions O_2^- , qui eux-mêmes disparaissent après plusieurs μs [143, 144, 151]. En effet, une décharge guidée se propage à la vitesse de $1,0 \pm 0,2 \times 10^6$ m/s, soit de 1 mètre en 1 μs [152]. Aussi si nous voulons étendre cette technique à l'application réelle, c'est à dire décharger un nuage orageux à 200-300 mètres du sol, la durée de vie du plasma doit être augmentée. Pour cela, une nouvelle série d'expériences, à laquelle j'ai participé, a été menée à l'université technique de Berlin. Une deuxième impulsion laser nanoseconde est utilisée pour entretenir le plasma. Cette expérience sera décrite au paragraphe 5.4. Une autre limitation concerne l'efficacité de cette technique sous la pluie. En effet, sous un orage, les filaments peuvent rencontrer diverses particules comme des grêlons ou plus simplement des gouttes de pluie. Dans ce but, le déclenchement de foudre sous la pluie sur une distance de 1,2 m a été testé.

5.3 Déclenchement de décharges de haute tension sous la pluie

Pour se rapprocher des conditions expérimentales de l'application réelle, c'est à dire déclencher et guider la foudre d'un orage, donc probablement sous la pluie, une expérience de guidage de foudre dans un laboratoire en générant une pluie entre les électrodes qui généraient la décharge a été menée. En effet, plusieurs facteurs sont modifiés par la présence des gouttes. Par exemple, le potentiel d'ionisation plus faible de l'eau vis à vis de l'air réduit la tension de claquage. Par ailleurs, les gouttes d'eau ainsi que les particules de glace sont indispensables à la formation des charges des cellules orageuses qui se font par collisions entre les divers aérosols à l'intérieur des cumulo-nimbus. De plus, les aspérités des aérosols renforcent les champs électriques locaux par des effets de pointe permettant l'initiation des décharges. C'est d'ailleurs ce qui permet d'expliquer que les

décharges naturelles se produisent avec des valeurs de champ électrique bien inférieures à celles qui sont nécessaires en laboratoire [153]. Peu d'études de décharges, sous la pluie, déclenchées par laser ont pu être menées à bien en raison de la difficulté de réaliser des expériences de haute tension en présence d'atmosphère humide. Une seule étude publiée au Japon concerne cet aspect. Elle a été menée avec un laser CO_2 et s'intéresse davantage à l'effet dû au brouillard qu'à la pluie [154]. Pour caractériser la faisabilité du guidage de foudre sous la pluie, les impulsions laser ultra-brèves sont des bons candidats en raison de leur comportement particulier vis à vis des gouttes d'eau. Je fais allusion ici à l'aspect "perce-nuage" de la propagation des filaments que nous avons vu au chapitre 2. Cependant, qu'en est-il des propriétés de déclenchement et de guidage de foudre sous la pluie ? Pour cela, nous avons mené une étude systématique que je vais maintenant décrire.

5.3.1 Dispositif expérimental

Pour réaliser de telles expériences, deux outils exceptionnels sont rassemblés, le laser femtoseconde térawatt du TéraMobile et un générateur très haute tension, un générateur Marx. Les tensions atteintes par le générateur sont au maximum de 2 MV avec un temps de montée de $1,2 \mu s$ et un temps de décroissance à mi-hauteur de $50 \mu s$. Les décharges sont formées entre deux électrodes. La première était une électrode sphérique de 12 cm de diamètre, séparée d'une distance variable (du mètre à quelques mètres), de la deuxième électrode (cf. Fig. 5.3). Cette dernière était une électrode plane de 3 m de diamètre. L'impulsion haute tension était synchronisée avec l'impulsion laser à l'aide d'un générateur de délai variable.

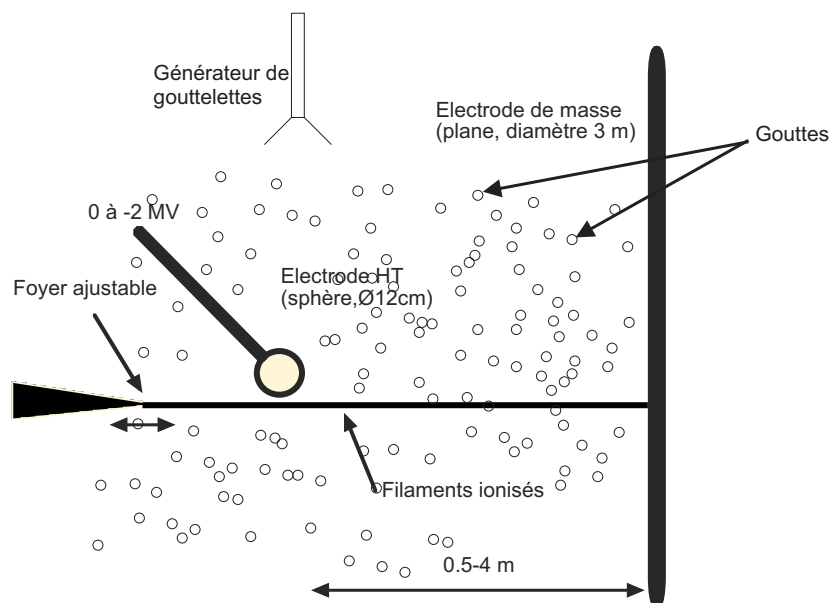


Fig. 5.3 – Schéma du dispositif expérimental

Le faisceau laser était généré à l'aide de la chaîne du TéraMobile. Le faisceau initial avait alors un diamètre initial de 9 cm et était légèrement focalisé à 15-20 m à l'aide du télescope d'émission. L'énergie initiale de 230 mJ générait un bouquet d'environ quinze filaments de 4 à 5 mètres de longueur répartis à l'intérieur d'un faisceau de 0,5 à 1 cm de diamètre entre les électrodes. Dans la plupart des expériences, les filaments débutaient peu avant la première électrode et se propageaient jusqu'à rencontrer l'électrode plane (vérifié directement à l'aide d'un écran). Le faisceau passait à proximité de l'électrode sphérique, à environ 1 cm de distance, de manière à ce que les canaux plasmas présents dans les filaments forment un pont ohmique entre les électrodes. Les paramètres laser pour cette expérience étaient les suivants. La durée initiale de l'impulsion était de 170 fs et l'énergie par impulsion était de 230 mJ. Le laser était tiré 5 μ s après le pic de haute tension et la distance entre les électrodes était de 1,2 m.

À ce système, un générateur de gouttes entre les électrodes a été ajouté. Le nuage commençait avant la première électrode et finissait à la seconde électrode. Il s'étendait sur 3 m avec un coefficient d'extinction moyen de $0,14\text{ m}^{-1}$, une concentration de $0,3\text{ gouttes/cm}^3$, de diamètre moyen de 0,5 mm, pour une vitesse de chute de 0,25 m/s. La transmission optique à travers le nuage est de 34%. Cette pluie correspond à une pluie extrêmement dense, environ dix fois plus qu'une pluie orageuse. Même dans ce cas, l'observation visuelle du profil confirme que les filaments survivaient à l'interaction avec le nuage, comme nous pouvions nous y attendre d'après les expériences menées à petite échelle [50, 155] et à grande échelle [54]. Pour caractériser l'atmosphère dans laquelle se déroulait cette expérience, l'humidité relative, la température et le rapport de mélange de la vapeur d'eau ont été mesurés. Sous la pluie, l'humidité relative était de 48%, la température égale à 19°C, soit un rapport de mélange pour la vapeur d'eau de 1%. Pour l'atmosphère "sèche", l'humidité relative était de 34%, la température était de 22°C, soit un rapport de mélange de 0,9%. Entre les deux configurations "sèche" ou "pluie", les paramètres thermodynamiques sont donc de valeurs tout à fait comparables. Le changement réside en fait dans les paramètres optiques que constituent l'extinction due à la pluie, et la diffusion des photons par les aérosols, c'est à dire les gouttes de pluie, ainsi que les paramètres électriques dus à la polarisabilité des gouttes.

5.3.2 Analyses des résultats

Pour pouvoir mesurer l'efficacité de la technique de déclenchement et de guidage de la foudre par des filaments sous la pluie, elle est comparée à l'efficacité de déclenchement sous atmosphère "sèche". Dans les deux cas, l'occurrence des décharges dans des conditions expérimentales données est stochastique. Pour estimer l'efficacité dans des conditions expérimentales données, pour chaque point expérimental, l'intervalle de confiance à 90% est

calculé grâce à l'accumulation de 10 à 20 tirs dans les mêmes conditions expérimentales. Cet intervalle est ici d'un intérêt primordial, étant donné que ce sont des effets statistiques qui sont mis en évidence. C'est pourquoi cet intervalle sera indiqué dans la suite de ce chapitre, pour tous les résultats expérimentaux présentés.

5.3.2.1 Calcul de l'intervalle de confiance

Pour calculer cet intervalle de confiance, dans des conditions expérimentales données, la probabilité de décharge de chaque tir est supposée indépendante des précédents. La loi binomiale est alors la description adaptée pour calculer l'intervalle de confiance, c'est à dire l'intervalle sur lequel le taux de déclenchement est compris avec une probabilité de 90%, compte tenu des données expérimentales. Dans des conditions expérimentales données, si le taux de déclenchement est p , la probabilité P d'avoir une combinaison de n décharges, parmi N tirs est :

$$P(p, n, N) = \frac{p^n (1 - p)^{N-n}}{n! (N - n)!} \quad (5.2)$$

La taux de déclenchement p est comprise entre 0 et 1 d'où :

$$1 = \int_0^1 P(p, n, N) dp. \quad (5.3)$$

On recherche alors les taux déclenchement $p_{5\%}$ et $p_{95\%}$ pour lesquelles la probabilité que le taux de déclenchement soit en dehors de l'intervalle défini par ces deux valeurs est de 10% :

$$0,05 = \frac{\int_0^{p_{5\%}} P(p, n, N) dp}{\int_0^1 P(p, n, N) dp} \quad (5.4)$$

$$0,95 = \frac{\int_0^{p_{95\%}} P(p, n, N) dp}{\int_0^1 P(p, n, N) dp} \quad (5.5)$$

$$(5.6)$$

Cela signifie qu'il y a 90 chances sur 100 que le taux de déclenchement de décharges de haute tension p soit compris entre $p_{5\%}$ et $p_{95\%}$, ou encore qu'il y a seulement 10 chances sur 100 pour que le taux de déclenchement p dans les conditions expérimentales considérées soit en dehors de l'intervalle de confiance. Le calcul des seuils $p_{5\%}$ et $p_{95\%}$ est réalisé en discrétisant p tous les 1% dans les intégrales précédentes. Pour passer d'une description à l'autre, il suffit d'utiliser l'approximation suivante :

$$\int_0^p P(p', n, N) dp' = \sum_{j=0}^{j=kp} P(j/k, n, N) \quad (5.7)$$

Les différents intervalles de confiance définis par l'intervalle entre $p_{5\%}$ et $p_{95\%}$ qui entourent le taux de déclenchement de décharges de haute tension p , sont ainsi calculés sans approximation sur le nombre de tirs. Cela permet de comparer des situations même

lorsque le nombre de tirs est faible et de déterminer la tension U_{50} pour laquelle dans des conditions expérimentales données, le taux de déclenchement de décharge est de 50% comme précédemment.

Pour comparer les taux de déclenchement dans différentes configurations (1 et 2), il faut tester l'hypothèse que $p_2 > p_1$ où p_1 et p_2 sont les taux de déclenchement dans les deux configurations respectives. Pour cela, on évalue $P(p_2 > p_1)$, la probabilité d'avoir $p_2 > p_1$ compte tenu des données expérimentales. Pour estimer cette probabilité $P(p_2 > p_1)$, nous avons utilisé la loi binomiale, comme pour le calcul de l'intervalle de confiance. Cette probabilité peut être ainsi estimée sur des petits nombres et non avec les formules usuelles qui ne sont valables que pour les grands effectifs. Pour cela, la probabilité $P(p, n, N)$ est calculée grâce à l'équation 5.2, pour chacune des deux configurations et pour toutes les valeurs de p . Les notations seront désormais simplifiées en ne précisant plus le nombre n de décharges réussies parmi le nombre N de tentatives. Nous écrirons donc que $P(p, n, N) \equiv P(p)$. Puis la probabilité $P_{(\text{conf} : 2)}(p_2) \cap P_{(\text{conf} : 1)}(p_1)$ a été calculée. Cette probabilité représente la probabilité d'avoir un taux de déclenchement p_2 pour la configuration 2 et un taux de déclenchement p_1 pour la configuration 1. Les probabilités de décharge étant indépendantes :

$$P_{(\text{conf} : 2)}(p_2) \cap P_{(\text{conf} : 1)}(p_1) = P_{(\text{conf} : 2)}(p_2) \times P_{(\text{conf} : 1)}(p_1) \quad (5.8)$$

Et la probabilité $P(p_2 > p_1)$ s'écrit alors :

$$P(p_2 > p_1) = \int \int_{p_2 > p_1} P_{(\text{conf} : 2)}(p_2) \cap P_{(\text{conf} : 1)}(p_1) dp_2 dp_1 \quad (5.9)$$

Cette démarche permet de mettre en évidence des effets statistiques même sur des petits nombres. Elle sera utilisée pour comparer les taux de déclenchement dus à une configuration à double impulsion laser et une configuration à simple impulsion laser.

5.3.2.2 Influence de la pluie sur le taux des décharges libres

Le premier effet de la présence du nuage est la réduction du U_{50} , de 3% (cf. Fig. 5.4), c'est à dire que sans laser, la tension de claquage pour la foudre naturelle était légèrement abaissée par la présence du nuage. Pour déterminer U_{50} , un ajustement des points expérimentaux par une fonction présentant une rupture brutale et passe de 0 à 1 (nous avons choisi la fonction $1 + \tanh[a(U - U_{50})]$). La faible différence d'humidité relative dans les deux cas, "atmosphère sèche" et "sous la pluie", ne permet pas d'expliquer la différence statistique observée. Cependant, la différence peut être comprise en raison de la polarisabilité des gouttes qui se déforment sous l'effet d'un champ électrique [156]. Elles prennent alors une forme allongée, faisant apparaître deux pointes augmentant ainsi les valeurs du champ électrique à leur extrémité, ce qui favorise, comme dans un nuage orageux, l'initiation de la décharge naturelle [156].

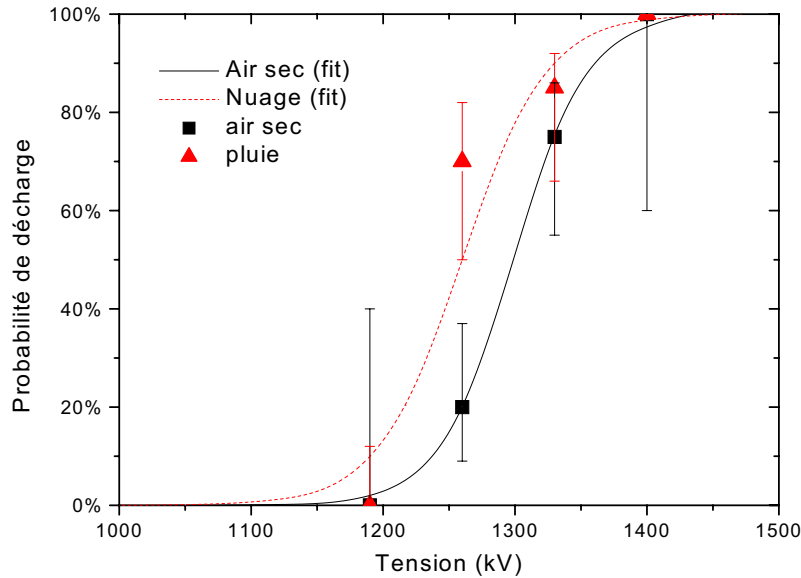


Fig. 5.4 – Influence de la pluie sur le taux de décharges libres. L’ajustement représenté par les lignes solides, est fait à partir de la fonction tangente hyperbolique.

5.3.2.3 Efficacité du guidage et du déclenchement de décharge de haute tension par laser sous la pluie

Comme la pluie abaisse la tension de claquage, il est à craindre qu’elle entre en compétition avec l’effet sur le déclenchement des décharges à l’aide du laser. Malgré la baisse de la tension de claquage de la foudre sous la pluie et malgré la présence des gouttes d’eau du nuage qui diffusent le faisceau et l’absorbent, le déclenchement et le guidage de foudre par les filaments restent possibles.

La figure 5.5 montre que des décharges de haute tension sous la pluie ont été déclenchées jusqu’à 910 kV. Cette valeur est proche de sa contrepartie en atmosphère sèche, où des décharges ont été déclenchées jusqu’à 850 kV. Ces valeurs sont très inférieures aux 1190 kV nécessaires pour initier une décharge sans laser en atmosphère humide. La présence du faisceau permet donc d’abaisser de 30%, la tension nécessaire pour amorcer des décharges dans l’air, ou sous la pluie. La présence du nuage ne modifie que très légèrement l’efficacité de déclenchement due aux filaments. Qu’en est il de l’efficacité du guidage ? Sur la figure 5.6, l’effet de guidage sous la pluie est comparé au guidage sous atmosphère “sèche”. Cette statistique a été réalisée sur les seuls tirs correspondant à des tensions inférieures à 1190 kV, c’est à dire uniquement sur des décharges déclenchées par laser.

Même en présence du nuage dense, près de 60% des décharges sont guidées sur plus

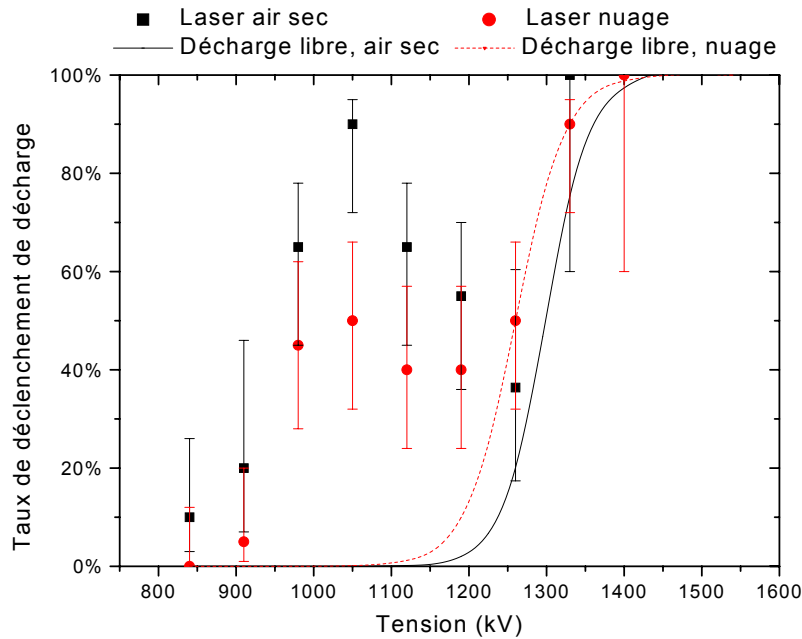


Fig. 5.5 – Taux de déclenchement de décharge par des impulsions laser en présence d'atmosphère humide ou sèche. Les courbes de déclenchement sans laser sont reprises de la figure 5.4 à titre de comparaison

de 90% de la longueur, et 90% sont guidées sur plus de la moitié de l'intervalle entre les électrodes. Les propriétés de guidage sont donc, elles aussi, peu affectées par la pluie.

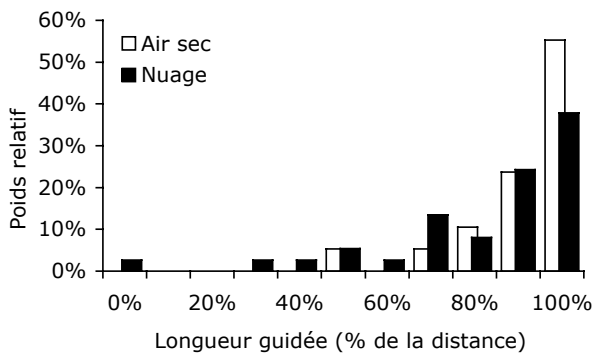


Fig. 5.6 – Pourcentage de la partie guidée sur l'intervalle de 1,2 m entre les deux électrodes. L'efficacité du guidage des décharges sous atmosphère sèche est comparée à l'efficacité de guidage sous la pluie.

5.3.2.4 Discussion

Une première explication de la persistance de l'effet de déclenchement et de guidage de foudre est que la transmission du nuage, 65%, est supérieure au seuil de transmission des filaments vu au chapitre 2. Aussi, dans cette expérience, les filaments sont en mesure de réaliser le contact ohmique entre les électrodes vu au paragraphe 5.2.2. Pour analyser ces résultats, le libre parcours moyen des filaments $L_{lpm,fil}$ (cf. chapitre 2 2.2.1) à travers

le nuage a été estimé.

$$L_{lpm,fil} = \frac{1}{\pi N_{gouttes} \left(r + R \sqrt{Q_{diff}} \right)^2} \quad (5.10)$$

où

- r est le rayon des filaments environ $50 \mu m$;
- Q_{diff} , l'efficacité Mie (cf. paragraphe 1.3.1 pour une goutte de rayon R de $250 \mu m$ et à $\lambda = 800 \mu m$;
- R est le rayon des gouttes $250 \mu m$;
- $N_{gouttes}$ est la concentration des gouttes dans le nuage et vaut $0,3 \text{ gouttes}/cm^3$.

Le libre parcours moyen vaut $L_{lpm,fil} \approx 12 \text{ m}$. Seulement un filament sur quatre rencontre donc une goutte lors de la propagation à travers le nuage et l'énergie présente dans le faisceau à proximité des filaments détruits est suffisante pour reformer les dits filaments [50]. L'extinction linéaire joue donc un rôle primordial, car il faut que l'énergie du faisceau situé à proximité du filament détruit soit suffisante pour reformer immédiatement les filaments dans la suite de la propagation. C'est grâce à ce réapprovisionnement en énergie que les filaments peuvent assurer leur rôle de pont ohmique sous la pluie.

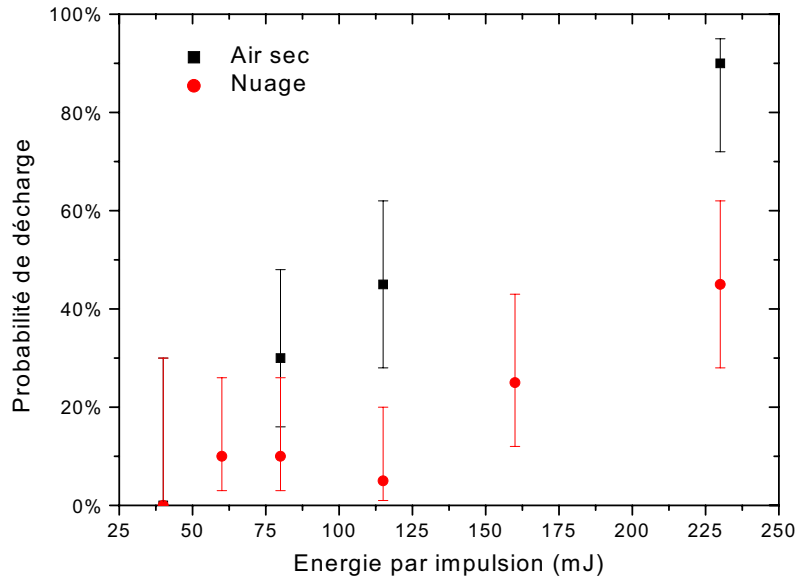


Fig. 5.7 – Taux de déclenchement de la décharge à 1050 kV en fonction de l'énergie par impulsion

Pour quantifier l'effet de l'extinction linéaire, nous avons voulu déterminer l'influence de l'énergie initiale du laser sur le taux de décharge sous air sec et sous la pluie. La tension choisie de 1050 kV est bien inférieure à la tension nécessaire pour observer des décharges naturelles. Les décharges observées sont donc toutes déclenchées par le laser. Les résultats de cette étude sont représentés sur la figure 5.7. Cette figure montre que, même sous la

5.4. Augmentation de l'efficacité de déclenchement

pluie, il est possible de déclencher une décharge avec seulement 60 mJ par impulsion. Ce taux de déclenchement est seulement de 10%, mais cela ne constitue pas une limitation importante. En effet, étant donné le taux de répétition du laser à 10 Hz, la probabilité de décharge par seconde resterait suffisante en conditions réelles et permet de garder un nuage déchargé.

5.3.3 Conclusion

Nous avons démontré que, malgré la pluie, les filaments étaient toujours en mesure de déclencher et guider la foudre. Cependant, le nuage diminue de quelques pour cents le taux de déclenchement de décharge pour un champ électrique $\vec{E}$ et une énergie laser donnés et favorise dans le même temps les décharges libres. En revanche, il n'augmente pas significativement le seuil en énergie par impulsion ou en champ électrique $\vec{E}$ nécessaires pour observer des décharges déclenchées et guidées. Ainsi, un taux de répétition élevé du laser permettrait de garder une densité temporelle de probabilité raisonnable pour guider et déclencher la foudre efficacement.

Ces résultats sont bien sûr encourageants en vue de l'application réelle, à savoir de guider la foudre naturelle. Nous savons maintenant que la pluie ne perturbe que peu l'efficacité du laser. De plus, nous avons vu que la longueur de filamentation était seulement limitée à plusieurs centaines de mètres par la puissance transmise même pour un nuage dense (cf. paragraphe 2.2.1). Cependant, étant donné les échelles spatiales considérées dans la nature (quelques centaines de mètres), pour que cette technique soit efficace, il faut augmenter la durée de vie du plasma créé par les filaments. En effet, si on considère la vitesse de propagation des décharges de haute tension de 10^6 m/s et le temps de vie du plasma, la longueur utile du filament n'est que de 1 m. Pour cela, l'effet d'une deuxième impulsion laser, une impulsion nanoseconde fournie par un deuxième laser, a été étudié. Cette expérience sera décrite au prochain paragraphe.

5.4 Augmentation de l'efficacité de déclenchement

Le temps de vie du plasma créé par les filaments est inférieur à la microseconde. C'est ce qui a été calculé par La Fontaine *et al* [144] et mesuré expérimentalement par Tzortzakis *et al* [157]. Étant donné la vitesse de propagation des décharges déclenchées par laser, soit environ 10^6 m/s [152], celle-ci a le temps de se propager sur une distance de l'ordre du mètre. Après cette distance, la densité électronique du canal de plasma est retombée à zéro avant l'arrivée de la décharge. Aussi pour étendre cette technique à l'échelle atmosphérique, la durée de vie du plasma doit être augmentée. Pour cela, Diels *et al* [143] ont proposé d'utiliser une deuxième impulsion laser qui prolongerait la durée de vie du plasma.

Mais ces prévisions n'avaient jamais pu être testées expérimentalement. Nous avons testé pour la première fois, l'effet d'une deuxième impulsion.

Le but de cette deuxième impulsion est de générer de nouveaux électrons libres. Cela peut se faire par l'effet Bremsstrahlung inverse par ionisation par avalanche, par chauffage du plasma, ou photodétachement des ions O_2^- . Ces trois effets empêchent les électrons libres de se rattacher trop rapidement aux molécules d' O_2 en formant les ions O_2^- ou en se recombinant aux ions O_2^+ et N_2^+ . Contrairement aux simulations qui prédisent que seul un laser de très grande énergie (10 Joules par impulsion) serait efficace [147], nous avons démontré expérimentalement que même avec un laser nanoseconde d'énergie modérée (inférieure à 1 J), avec une configuration à double impulsion (une impulsion femtoseconde suivie d'une impulsion nanoseconde), peut améliorer le taux de déclenchement des décharges sur une distance inter-électrode de 1,2 m.

5.4.1 Dispositif expérimental

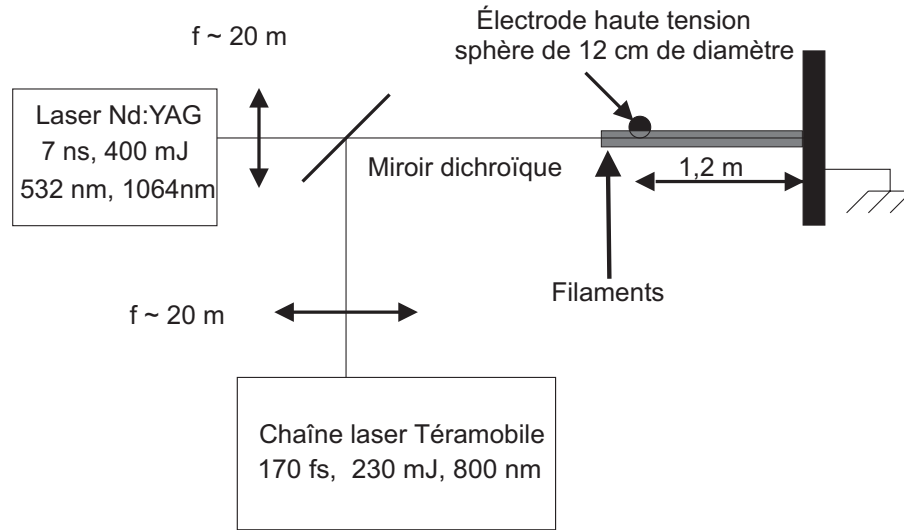


Fig. 5.8 – Dispositif expérimental pour le déclenchement de décharges de haute tension dans la configuration à double impulsion

Le dispositif expérimental est très proche de celui décrit au paragraphe 5.3.1. Je ne décrirai donc ici que les différences avec ce dispositif. La possibilité d'utiliser une deuxième impulsion nanoseconde fournie par un laser Nd : YAG (laser Quanta-Ray de Spectra-Physics)(cf. Fig. 5.8) a été ajoutée à ce dispositif. Ce laser possède un cristal doubleur optionnel qui permettait d'utiliser soit le laser à 1064 nm avec une puissance de 800 mJ, soit une impulsion doublée à 532 nm avec une puissance réduite à 400 mJ. L'impulsion durait 7 ns et était synchronisée avec celle du Téramobile à l'aide d'un générateur de délai. Deux photodiodes, l'une visualisant l'impulsion femtoseconde et l'autre l'impulsion nanoseconde, permettaient de contrôler et d'ajuster la synchronisation entre les deux la-

sers relativement à l'impulsion haute tension.

Les paramètres de la chaîne laser du TéraMobile sont les mêmes que pour les expériences sous la pluie présentées précédemment, c'est à dire que la durée d'impulsion est de 170 fs, et que le faisceau était focalisé à 20 m. Le laser YAG était également légèrement focalisé pour optimiser le recouvrement avec le filament sur tout l'intervalle entre les électrodes. Les deux faisceaux avaient un diamètre de 1 cm entre les électrodes et se recouvraient spatialement.

5.4.2 Résultats

Nous avons d'abord vérifié que la seconde impulsion ns n'a pas d'effet significatif lorsqu'elle est émise avant l'impulsion femtoseconde, sans recouvrement temporel entre les deux impulsions. En effet, dans ce cas l'impulsion nanoseconde ne rencontre pas le plasma créé par l'impulsion femtoseconde et n'a donc aucun effet sur celui-ci. C'est pourquoi, dans la suite, seuls les tirs pour lesquels l'impulsion femtoseconde était émise avant l'impulsion nanoseconde ou dans le front montant de cette dernière impulsion sont pris en compte. De plus, nous avons vérifié que les impulsions nanosecondes, à 1064 nm ou 532 nm, ne pouvaient déclencher ou guider seules les décharges haute tension.

Comme pour les expériences sous la pluie, nous cherchons à mettre en évidence des effets statistiques en comparant le taux de déclenchement avec ou sans seconde impulsion. Aussi, pour chaque condition expérimentale, le taux de déclenchement ainsi que l'intervalle de confiance associé, calculé à l'aide de la loi binomiale comme décrit au paragraphe 5.3.2.1, sont caractérisés par une accumulation sur 10 ou 20 tirs laser.

Nous avons comparé le taux de déclenchement p_2 des décharges par une double impulsion avec le taux de déclenchement p_1 par une unique impulsion femtoseconde. Les résultats sont représentés sur la figure 5.9.

Pour toutes les tensions où nous avons des résultats dans les deux configurations, le taux de déclenchement avec double impulsion est supérieur au taux de déclenchement avec une impulsion simple. Deux points individuels atteignent même la signification statistique à 10% (les intervalles de confiance ne se recouvrent pas). Cependant, pour mettre en évidence statistiquement l'amélioration du taux de déclenchement due à la configuration double impulsion, la probabilité $P(p_2 > p_1)$ pour laquelle le taux de déclenchement p_2 pour la configuration double impulsion est supérieur au taux de déclenchement p_1 pour la configuration simple impulsion a été calculé conformément au paragraphe 5.3.2.1.

À 882 kV et 910 kV, la probabilité $P(p_2 > p_1)$ que le taux de déclenchement p_2 est

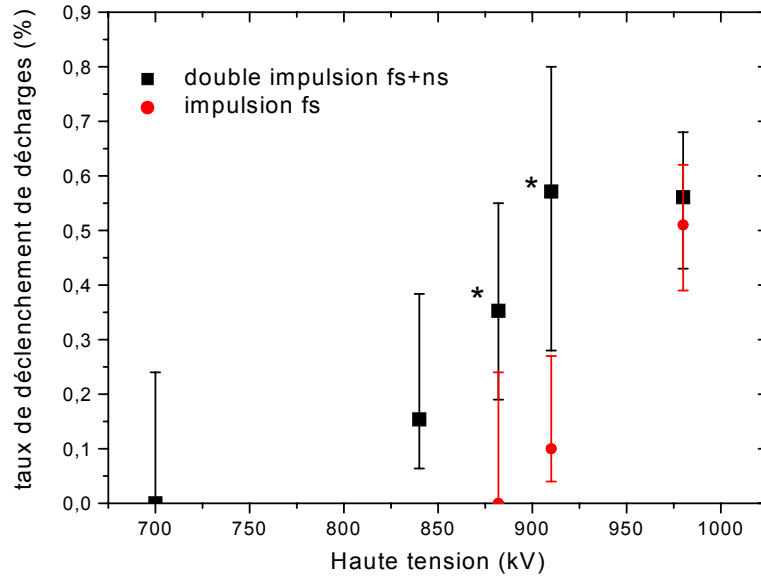


Fig. 5.9 – Taux de déclenchement des décharges de haute tension avec une configuration double impulsion, (une impulsion femtoseconde suivie d’une impulsion nanoseconde à la longueur d’onde $\lambda = 532$ nm) avec une impulsion femtoseconde unique. Les astérisques signalent les conditions pour lesquelles l’amélioration du taux de déclenchement dans la configuration double impulsion est statistiquement significative (voir le texte pour les détails).

supérieur au taux de déclenchement p_1 est de plus de 98%, démontrant ainsi statistiquement l’amélioration du taux de déclenchement de décharges de haute tension grâce à cette technique. À 910 kV, le taux de déclenchement passe de 10% dans la configuration simple impulsion à 57% dans la configuration double impulsion.

De plus, la seconde impulsion permet d’abaisser le seuil de déclenchement en tension d’au moins 40 kV, soit 5% de réduction. En effet alors que le taux de déclenchement de décharge est déjà de 0 avec une simple impulsion à 870 kV, il est encore possible de guider des décharges de haute tension dans une configuration double impulsion jusqu’à 830 kV.

La même expérience a été menée en utilisant la fondamentale du laser Nd : YAG, c’est à dire à 1064 nm. Alors que dans cette configuration, l’énergie du laser nanoseconde est double (800 mJ) par rapport à l’énergie de la deuxième harmonique, aucun effet n’a pu être mis en évidence.

5.4.3 Élément de l’effet de la deuxième impulsion

Trois mécanismes ont été invoqués pour augmenter la durée de vie du plasma et améliorer ainsi le taux déclenchement. Il s’agit d’une part de l’ionisation par avalanche induite par l’accélération des électrons dans le champ de l’impulsion, du chauffage du

5.4. Augmentation de l'efficacité de déclenchement

plasma, et du photodétachement. Nous allons estimer leur contribution respective avec les paramètres de notre expérience.

5.4.3.1 Évaluation de l'ionisation par avalanche

Sous le champ de l'impulsion $\vec{E}$ les électrons sont accélérés, et vont rencontrer des molécules d'air qui vont être à l'origine de nouveaux électrons. C'est l'ionisation par avalanche. On exprime cette génération d'électrons par le coefficient δ_{aval} défini par :

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = \delta_{aval} N_e. \quad (5.11)$$

Le taux d'ionisation par avalanche δ_{aval} a été obtenu par Shen [158] à partir d'un modèle classique de l'interaction entre un électron libre et un champ électrique oscillant $\vec{E}$ oscillant à la pulsation w_L .

$$\delta_{aval} = \frac{1}{w_L^2 \tau^2 + 1} \cdot \frac{e^2 \tau}{c \epsilon_0 m_e E_i} \cdot I_{inc} \quad (5.12)$$

$$\eta = \frac{m_e w_L^2 \tau}{M} \quad (5.13)$$

où

- $\tau = 8 \times 10^{-12}$ s est la durée en seconde entre deux collisions entre un électron et une molécule d'air pour une température électronique $T_e = 12\,000$ K (N_e étant exprimé en m^{-3}) [147, 143, 159] ;
- $E_i = 12,1$ eV est l'énergie d'ionisation de O_2 ;
- $m_e = 9,1 \times 10^{-31}$ kg est la masse des électrons ;
- η l'attachement des électrons aux molécules d' O_2 ;
- $M = 4,1 \times 10^{-26}$ kg est la masse moyenne des molécules d'air ;
- $I_{inc} = 7,8 \times 10^7$ W/cm² est l'intensité du laser calculée avec un rayon de 5 mm et une durée d'impulsion de 7 ns.

L'équation 5.12 correspond au taux d'augmentation du nombre d'électrons en raison de leur accélération dans le champ électrique de l'impulsion $\vec{E}$, alors que la deuxième équation 5.13 correspond à la perte du nombre d'électrons lors de leur collision élastique avec des particules lourdes, de masse M , qui sont dans notre cas des molécules d'air.

Pour que l'ionisation par avalanche domine l'attachement des électrons aux molécules d'oxygène, il faudrait une intensité I_{inc} du laser nanoseconde :

$$I_{inc} \geq \frac{m_e^2 w_L^2}{M} \cdot \frac{c \epsilon_0 E_i}{e^2} = 10^9 \text{ W/cm}^2, \quad (5.14)$$

c'est à dire 2 ordres de grandeur au-dessus de l'intensité du laser nanoseconde utilisé. Il faudrait donc un laser de 6 J pour induire un tel effet. Cet ordre de grandeur correspond aux estimations, de 5 J par impulsion laser, effectuées par Rambo *et al* [147]. Ces seuils sont aussi comparables à ceux observés pour les plasmas à l'intérieur des gouttes [160] où des intensités de 10^{10} W/cm² sont nécessaires pour des impulsions nanosecondes.

5.4.3.2 Évaluation de l'effet du chauffage de plasma

Nous avons également estimé l'effet de l'élévation de la température par chauffage du plasma par l'absorption du laser. À cet effet, l'énergie de l'impulsion nanoseconde absorbée par le plasma créé par l'impulsion femtoseconde est estimée à l'aide de la loi de Beer-Lambert $I = I_0 (1 - \exp(-\alpha D))$, où D est la longueur du plasma traversée par le faisceau, et α l'absorption linéaire de ce plasma. Pour un plasma, l'absorption linéaire s'exprime par :

$$\alpha = \frac{\nu_{ei} \omega_p^2}{c \omega^2} \quad (5.15)$$

avec :

- $\omega_p = \frac{N_e e^2}{m_e \epsilon_0}$ est la pulsation d'oscillation du plasma ;
- $\nu_{ei} = 1/\tau$ est la fréquence des collisions des électrons les molécules de l'air [143] ;
- $T_e = 12\,000\text{ K}$, la température initiale des électrons après l'impulsion femtoseconde, ce qui correspond à l'excès d'énergie après l'ionisation multiphotonique [143] ;
- $N_e = 10^{23}\text{ m}^{-3}$ la densité initiale des électrons après l'impulsion femtoseconde qui est une borne supérieure [13, 143, 147, 159].

Pour l'impulsion nanoseconde, à $\lambda = 532\text{ nm}$, $\alpha = 0,085\text{ m}^{-1}$. Aussi dans cette configuration, l'énergie absorbée à partir des 400 mJ de l'impulsion nanoseconde est seulement de $3 \times 10^{-4}\text{ J/m}^3$, ce qui induirait une élévation de température de l'air au niveau des filaments de l'ordre de $0,3\text{ }\mu\text{K}$. Cette faible absorption est due au fait que moins de 1% des molécules sont ionisées et donc que la densité du plasma est trop faible pour absorber efficacement l'énergie de l'impulsion laser nanoseconde. De même pour une impulsion laser de 800 mJ à 1064 nm, l'absorption linéaire étant de $\alpha = 0,4\text{ m}^{-1}$, cela induit une élévation de température de l'ordre du μK .

5.4.3.3 Estimation de l'effet du photodétachement

Nous avons également évalué le taux d'ionisation à un photon de l'ion O_2^- , soit :

$$\frac{\partial N_{O_2^-}}{\partial t} = \gamma_l N_{O_2^-} \quad (5.16)$$

où $\gamma_l = \frac{\sigma_{O_2^-} I}{\hbar \omega}$. À $\lambda = 532\text{ nm}$, $\sigma_{O_2^-} = 1,5 \times 10^{-19}\text{ cm}^2$ [161] et $I = 400\text{ mJ}$, on a $\gamma_{l,532} = 2,9 \times 10^7\text{ s}^{-1}$. L'effet attendu semble faible avec seulement $10^{15}\text{ électrons/cm}^3$ produits pendant la durée de 7 ns de l'impulsion laser, comparé aux $10^{17}\text{ électrons/cm}^3$ générés initialement par l'impulsion femtoseconde. Il n'y a donc pas d'effet direct attendu par l'utilisation d'une seconde impulsion nanoseconde. Ce résultat confirme les prévisions de Zhao *et al* [143], qui disaient que 10 J par impulsion était nécessaire pour induire un effet significatif par photodétachement.

5.4. Augmentation de l'efficacité de déclenchement

L'effet attendu est encore plus faible à 1064 nm en dépit de l'énergie supérieure. En effet, $\sigma_{O_2^-} = 4,6 \times 10^{-21} \text{ cm}^2$ et $I = 800 \text{ mJ}$, ce qui conduit à $\gamma_{l,1064} = 1,8 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ [161]. C'est pourquoi, en dépit d'une plus grande intensité dans la fondamentale du laser Nd : YAG, un effet plus grand est attendu en utilisant le cristal doubleur, et donc la deuxième harmonique du laser Nd : YAG. Ce résultat est en accord avec l'expérience.

Ces trois effets pris individuellement ne permettent pas de comprendre l'augmentation de l'efficacité de la deuxième impulsion nanoseconde. L'interprétation expérimentale des résultats expérimentaux nécessitera donc une modélisation plus complète des processus mis en jeu, en particulier le couplage des processus de photodétachement, d'ionisation par avalanche et de chauffage du plasma via les équations cinétiques exprimant l'évolution du plasma [143, 147, 159]. La compréhension du déclenchement nécessite également la prise en compte du déplacement des électrons qui créent une charge d'espace et de l'évolution hydrodynamique du plasma. À cela, il faut encore ajouter l'effet de chauffage du plasma dans le champ électrique entre les électrodes par effet Joule. Mais de telles simulations sont très lourdes en terme de temps de calcul. En effet, il faut calculer le champ en fonction du temps et de l'espace avec une résolution longitudinale de l'ordre du centimètre, et une résolution temporelle de l'ordre de la picoseconde. Elles vont donc au-delà des ressources informatiques disponibles en laboratoire et bien au-delà de mon travail de thèse.

5.4.4 Conclusion et perspectives

Nous avons donc démontré expérimentalement qu'une impulsion nanoseconde visible à $\lambda = 532 \text{ nm}$, même d'énergie modeste, peut améliorer le taux de déclenchement de décharges de haute tension si elle est synchronisée avec une impulsion femtoseconde. L'interprétation des résultats nécessitera une modélisation complète de l'évolution temporelle du plasma soumise aux impulsions laser et au champ électrique. Une meilleure modélisation nécessitera également de mieux caractériser la dépendance de l'effet de la seconde impulsion en fonction de sa longueur d'onde. En effet, Le photodétachement serait plus efficace dans l'ultraviolet tandis que les processus de chauffage sont plus efficaces avec une énergie supérieure dans l'infrarouge. Il serait donc utile de caractériser l'efficacité d'impulsions à plusieurs longueurs d'onde, par exemple sur les différentes harmoniques d'un laser Nd : YAG et en particulier de la troisième harmonique à 355 nm.

Optimiser la synchronisation entre les deux impulsions laser de manière à ce que l'impulsion nanoseconde arrive sur le plasma lorsque la concentration en ions O_2^- atteint son maximum, c'est à dire après une dizaine de nanosecondes permettrait d'augmenter encore l'effet de photodétachement. Ce type d'optimisation, associé à l'utilisation éventuelle d'un laser nanoseconde de plus forte énergie (jusqu'à plusieurs joules, voire quelques dizaines

de joules) permettent de penser que l'utilisation d'une deuxième impulsion permettra de dépasser la principale limitation du déclenchement de décharges par des lasers ultra-brefs, qui réside dans la durée de vie faible du plasma généré dans les filaments.

5.5 Guider et déclencher la foudre à l'échelle atmosphérique ?

Les expériences que nous avons menées en laboratoire décrites dans ce chapitre, notamment celles démontrant l'efficacité du déclenchement de décharges de haute tension, sous la pluie et l'augmentation du taux de déclenchement grâce à une deuxième impulsion nanoseconde fournie par la deuxième harmonique d'un laser Nd : YAG, nous rapprochent de l'application réelle : le guidage et le déclenchement de la foudre naturelle.

Cependant, il n'est pas possible d'extrapoler directement à l'atmosphère les résultats obtenus à l'échelle du laboratoire. En effet la longueur effective des filaments c'est à dire la longueur sur laquelle la décharge se propage à travers le canal de plasma généré par l'impulsion laser est de quelques mètres. En effet, la vitesse de propagation des décharges est de 10^6 m/s alors que la durée du plasma électronique est d'au mieux $1 \mu s$.

De plus, pour guider et déclencher les décharges de haute tension en laboratoire, une configuration focalisée avec un diamètre d'environ 1 cm s'est révélée plus efficace qu'un faisceau parallèle. La densité électronique pour un faisceau collimaté de 3 cm de diamètre semble trop faible pour réaliser le contact ohmique efficacement. Cette constatation est problématique pour générer des filaments longs qui s'étendent dans l'idéal *a priori* du sol jusqu'à la base d'un nuage chargé, de manière à réaliser un contact ohmique entre les deux bornes du condensateur naturel que sont la base du nuage et le sol. Il est aussi possible que les charges apportées par les filaments ne servent pas à guider et déclencher, mais induisent des micro-décharges à l'intérieur du nuage et déchargent ainsi le nuage. Les objectifs de protection de sites seraient bien sur remplis, mais l'effet spectaculaire d'une décharge rectiligne guidée par les filaments n'aurait plus lieu et nous ne verrions donc jamais des photos comme celle montrée sur la figure 5.10 où nous pouvons observer la foudre guidée par une fusée à laquelle est fixée une bobine de fil qui se déroule dans les airs.

Par ailleurs, sur quelques mètres de décharges de haute tension réalisées en laboratoire, seul le précurseur de la décharge (un "streamer") ne peut être reproduit. En effet, il faut dépasser les 5 m de propagation de décharge pour déclencher le mécanisme de décharges naturelles, (un "leader") observé dans l'atmosphère sur de grandes distances (quelques mètres à plusieurs centaines de mètres). En laboratoire, générer une telle décharge est à la limite de la technologie.



Fig. 5.10 – Foudre déclenchée par une fusée qui déroule une bobine de fil attachée à sa base. La partie de décharge rectiligne correspond à la partie guidée par le fil. ©Lamgmuir Lab, New Mexico Tech

Des développements supplémentaires sont donc nécessaires. Les développements proposés à la fin du paragraphe précédent, à savoir, la synchronisation des deux impulsions devraient encore améliorer le taux de déclenchement de décharges de haute tension par laser. Comparer l'efficacité de l'aide apportée par une impulsion nanoseconde dans l'ultraviolet par la troisième harmonique d'un laser Nd : YAG avec une impulsion générée par la deuxième harmonique du même laser devrait aussi apporter des résultats utiles pour orienter le développement d'applications en grandeur réelle.

Par ailleurs la conductivité des filaments générés par un laser ultraviolet est 50 fois plus importante que la conductivité des filaments générés dans l'infrarouge [147]. C'est pourquoi il serait utile de comparer l'efficacité des filaments générés dans l'ultraviolet avec des filaments générés dans l'infrarouge. Aussi, il est possible que nous ayons intérêt à doubler la fréquence du faisceau du TéraMobile à l'aide d'un cristal doubleur pour générer des filaments dans l'ultraviolet afin de déclencher et guider plus efficacement les décharges de haute tension sur de longues distances.

Des expériences de terrain, en grandeurs réelles sont également nécessaires. À cet effet, le système TéraMobile est la chaîne laser la plus adaptée en raison de la mobilité du système qui permet de se déplacer dans des sites hautement foudroyés.

Cependant si l'échelle de la centaine de mètres semble difficile à atteindre, les expériences fusée-fil ont montré qu'une longueur de 10 m de fil était suffisante pour déclencher

la foudre. Il est donc possible que focaliser le faisceau fortement pour créer un plasma dense sur quelques dizaines de mètres, à une altitude adéquate, dont le temps de vie pourrait être augmenté par une seconde impulsion serait peut-être une configuration plus efficace que la configuration avec un faisceau collimaté.

Nous avons réalisé une série de tests préliminaires au guidage et déclenchement de foudre au Nouveau Mexique à l'observatoire Langmuir (Langmuir Observatory) dans le cadre d'une collaboration avec l'équipe du New Mexico Tech dirigée par William Winn. Cela s'est révélé un succès au niveau du laser dans le sens qu'il a fonctionné à 3 200 m d'altitude pendant 3 mois après un voyage transatlantique en avion. Lors de cette campagne, aucun effet du laser sur la foudre n'a pu être mis en évidence. Cependant, lors de notre tentative, deux orages seulement ont eu lieu sur trois mois, et très peu de configurations ont pu être testées. En particulier, nous n'avons pas eu le temps d'essayer différentes durées d'impulsion laser ni différentes focalisations du faisceau.

Une nouvelle tentative exploitant les différentes pistes évoquées pourrait être testée prochainement lors d'une campagne de terrain. Nous espérons, à cette occasion, des conditions climatiques plus favorables.

Conclusion

Les résultats présentés dans ce travail apportent de nombreux éléments nouveaux quant à la propagation des impulsions ultra-brèves et ultra-intenses dans l'atmosphère sous forme de filaments et à leurs applications.

En collaborant avec le groupe de Luc Bergé, un modèle en dimension réduite de propagation permettant de simuler la propagation d'un faisceau ultra-intense dans le régime de la multi-filamentation sur une centaine de mètres a pu être validé. De plus, une technique simple, prendre en photo le faisceau diffusé sur un écran blanc, avec un filtre à 800 nm, s'est révélé une méthode souple et adéquate pour caractériser le profil du faisceau. Nous avons mis aussi en évidence l'existence de filaments continus sur plusieurs mètres de distance, y compris en présence d'aérosols. Nous avons montré que les filaments se propagent à haute altitude mais sont moins nombreux pour un faisceau de même puissance critique. Ce nombre moindre de filaments implique de faibles pertes d'énergie du faisceau par l'ionisation multiphotonique, l'absorption due au plasma, la génération de lumière blanche et l'émission conique. Cette propriété est favorable à l'existence de filaments longs lors de la propagation verticale de faisceaux de forte puissance, à des hautes altitudes étant donné que la principale limite de la longueur des filaments est liée à l'extinction du faisceau en dessous d'un seuil de quelques puissances critiques. Les filaments sont donc de bons candidats pour induire des effets non-linéaires sur des cibles même à travers un brouillard ou un nuage.

Des applications atmosphériques des filaments ont également été développées. La caractérisation de la génération de troisième harmonique et de l'émission conique qui contient 65% de l'énergie du faisceau à 400 nm, ont permis de réaliser des mesures préliminaires de la concentration d'ozone et d'aérosols. De plus, grâce à la chaîne laser du TéraMobile, nous avons démontré la faisabilité de mesures simultanées des paramètres thermodynamiques comme la température et l'humidité relative, ainsi que la caractérisation en taille de la distribution et la densité des gouttes d'eau dans un nuage, ouvrant la voie vers un Lidar multi-paramètres (Light Detection And Ranging).

Profitant des hautes intensités transportées par des filaments, des aérosols biologiques

ont pu être détectés et identifiés à distance en excitant *in situ* la fluorescence à deux photons de la riboflavine. La meilleure transmission des grandes longueurs d'onde utilisées pour l'excitation à plusieurs photons est un atout pour l'utilisation de cette technique à longue distance. De plus, les résultats sont prometteurs quant à la sélectivité des bactéries grâce à la mise en forme temporelle des impulsions.

Nous avons également démontré que les hautes intensités transportées par les filaments permettent d'identifier des échantillons solides par la technique R-FIBS (Remote Filaments Induced Breakdown Spectroscopy) à très longue distance. Avec un système de détection adapté, il serait ainsi possible d'atteindre l'échelle kilométrique.

Nous avons également poursuivi les expériences de déclenchement de décharges de haute tension. L'efficacité du déclenchement sous la pluie, ainsi que l'augmentation de l'efficacité grâce à la superposition d'un laser YAG permet de se rapprocher de la réalisation "spectaculaire" d'un coup de foudre guidé et déclenché par laser.

L'ensemble de ces applications appelle des expériences complémentaires pour affiner les méthodes et les rendre opérationnelles à l'état de routine. Cette perspective est permise grâce à la fiabilité croissante des lasers femtosecondes térawatts et leur manipulation de plus en plus aisée.

Les mesures préliminaires de la concentration d'ozone grâce à la troisième harmonique ont permis de définir le système de détection qui servira à la campagne de Paris en Juin 2005. La réalisation d'un Lidar multi-paramètre demande des expériences complémentaires qui serviront à terme à optimiser les conditions expérimentales spécifiques à ces mesures (puissance crête, mise en forme temporelle des impulsions, focalisation du faisceau).

Les expériences réalisées sur des simulants biologiques doivent être poursuivies sur de vraies bactéries pour affiner et confirmer l'intérêt de l'excitation à plusieurs photons de la fluorescence et implémenter sur le terrain des expériences réalisées en laboratoire au sein du groupe de Jean-Pierre Wolf par Véronique Boutou et François Courvoisier [123].

Les résultats prometteurs obtenus en "LIBS", grâce à l'apport des impulsions femtosecondes à cette technique ont permis l'émergence d'une nouvelle thématique au sein du laboratoire. La "propreté" des spectres enregistrés permet d'envisager de l'utiliser pour l'analyse de routine d'échantillons complexes, telles que des bactéries.

J'ai eu la chance d'arriver dans la collaboration Téramobile, au moment où le système rentrait dans sa phase opérationnelle. J'ai ainsi pu disposer d'un outil exceptionnel pour aborder des domaines variés et montrer le bien fondé des applications atmosphériques des impulsions femtosecondes térawatts. Devant cet intérêt, d'autres groupes à travers le monde envisagent maintenant la construction d'un système similaire et de suivre la voie tracée par la collaboration Téramobile.

Bibliographie

- [1] François Salin. *Femtosecond laser pulses : principles and experiments*, chapter How to manipulate and change the characteristics of laser pulses. Rulhière C. ED, Springer, 1998.
- [2] S. L. Chin, A. Brodeur, S. Petit, O. G. Kosareva, et V. P. Kandidov. Filamentation and supercontinuum generation during the propagation of powerful ultrashort laser pulses in optical media (white light laser). *Journal of nonlinear optical physics and materials*, 8(1) :121–146, 1999.
- [3] J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf, et L. Wöste. White-light filaments for atmospheric analysis. *Science*, 301(5629, 4 Jul 2003) :61–64, 2003.
- [4] R. R. Alfano et S. L. Shapiro. Emission in the region 4000 to 7000 Å via four-photon coupling in glass. *Physical Review Letters*, 24(11) :584–587, 1970.
- [5] D. Strickland et P.B. Corkum. Resistance fo short pulses to self-focusing. *Journal of the Optical Society of America B*, 11 :492, 1994.
- [6] R. R. Alfano et S. L. Shapiro. Direct distortion of electric clouds of rare-gas atoms in intense electric fields. *Physical Review Letters*, 24(22) :1217–1220, 1970.
- [7] R. R. Alfano et S. L. Shapiro. Observation of self-phase modulation and small-scale filaments in crystals and glasses. *Physical Review Letters*, 24(11) :592, 1970.
- [8] A. Brodeur et S. L. Lin. Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media. *Journal of The optical society of America B*, 16(4) :637–650, 1999.
- [9] Jürgen Eichler et Hans Joachim Eichler. *Laser*. Springer, 1998.
- [10] D. H. Rank. *Advances in Spectroscopy I*. H. W. Thompson, New York, 1959.
- [11] L. Bergé. Wave collapse in physics : principes and applications to light and plasma waves. *Physics reports*, 303 :259–370, 1998.
- [12] W. L. Kruer. *The physics of the plasma interactions*, 1966.
- [13] J. Kasparian, R. Sauerbrey, et S. L. Chin. The critical laser intensity of self-guided light filaments in air. *Applied Physics B*, 71(6) :877–879, 2000.

- [14] A. Brodeur, C. Y. Chien, F. A. Ilkov, S. L. Chin, O. G. Kosareva, et V. P. Kandidov. Moving focus in the propagation of ultrashort laser pulses in air. *Optics Letters*, 22(5) :304–306, 1997.
- [15] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, et G. Mourou. Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air. *Optics Letters*, 20(1) :73–75, 1995.
- [16] H. R. Lange, A. Chiron, J.-F. Ripoche, A. Mysyrowicz, P. Berger, et P. Agostini. High order harmonic generation and quasiphase matching in xenon using self-guided femtosecond pulses. *Physical Review Letters*, 81(8) :1611–1613, 1998.
- [17] J. Kasparian, R. Sauerbrey, D. Mondelain, S. Niedermeier, J. Yu, J.-P. Wolf, Y.-B. André, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, S. Tzortzakis, M. Rodriguez, H. Wille, et L. Wöste. Infrared extension of the supercontinuum generated by fs-tw-laser pulses propagating in the atmosphere. *Optics Letters*, 25(18) :1397–1399, 2000.
- [18] S. L. Chin, S. Petit, W. Liu, A. Iwasaki, M.-C. Nadeau, V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, et K. Yu. Andrianov. Interference of transverse rings in multifilamentation of powerful femtosecond laser pulses in air. *Optics Communications*, Soumis, 2002.
- [19] O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, C. Y. Chen, et S. L. Chin. Conical emission from laser-plasma interactions in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air. *Optics Letters*, 22(17) :1332–1334, 1997.
- [20] E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon, B. S. Prade, M. A. Franco, F. Salin, et A. Mysyrowicz. Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air. *Optics Letters*, 21(1) :62–64, 1996.
- [21] J. Yu, D. Mondelain, G. Ange, R. Volk, S. Niedermeier, J.-P. Wolf, J. Kasparian, et R. Sauerbrey. Backward supercontinuum emission from a filament generated by ultrashort laser pulses in air. *Optics Letters*, 26(8) :533–535, 2001.
- [22] J. Kasparian, M. Rodriguez, R. Sauerbrey, H. Wille, L. Wöste, T. Fujii, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, L. Klingbeil, K. Rethmeier, W. Kalkner, E. Salmon, J. Yu, et J.-P. Wolf. Triggering and guiding of high-voltage discharges using fs-laser-induced ionized filaments. In *Journée Scientifique ONERA sur la foudre*, Palaiseau, France, 2001. Oral.
- [23] W. G. Wagner, H. A. Haus, et J. H. Marburger. Erratum : Large-scale self-trapping of optical beams in the paraxial ray approximation. *Physical Review A*, 3(6) :2150, 1971.
- [24] Peter M. Goorjian, Allen Taflove, Rose M. Joseph, et Susan C. Hagness. Computational modeling of femtosecond optical solitons from maxwell’s equation. *IEEE journal of quantum electronics*, 28(10) :2416–2422, 1992.

-
- [25] Jinendra K. Ranka et Alexander L. Gaeta. Breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of ultrashort pulses. *Optics Letters*, 23(7) :534–536, 1998.
- [26] A. Chiron, B. Lamouroux, R. Lange, J.-F. Ripoche, M. Franco, B. Prade, G. Bonnaud, G. Riazuelo, et A. Mysyrowicz. Numerical simulations of the nonlinear propagation of femtosecond optical pulses in gases. *The European Physical Journal D*, 6 :383–396, 1999.
- [27] N. Aközbek, C. M. Bowden, A. Talepbour, et S. L. Chin. Femtosecond pulse propagation in air : variational analysis. *Physical Review E*, 61(4) :4540–4549, 2000.
- [28] D. L. Hovhannisyan. Analytic solution of the wave equation describing dispersion-free propagation of a femtosecond laser pulse in a medium with cubic and fifth-order nonlinearity. *Optics Communications*, 196 :103–107, 2001.
- [29] P. Sprangle, J. R. Peñano, et B. Hafizi. Propagation of intense short laser pulses in the atmosphere. *Physical Review E*, 66 :046418, 2002.
- [30] G. Méchain, A. Couairon, Y.-B. André, C. D’Amico, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, et R. Sauerbrey. Long-range self-channeling of infrared laser pulses in air : a new propagation regime without ionization. *Applied Physics B*, 79 :379, 2004.
- [31] M. Mlejnek, M. Kolesik, J. V. Moloney, et E. M. Wright. Optically turbulent femtosecond light guide in air. *Physical Review Letters*, 83(15) :2938–2941, 1999.
- [32] C. Ren, R. G. Hemker, R. A. Fonseca, B. J. Duda, et W. B. Mori. Mutual attraction of laser beams in plasmas : braided light. *Physical review letters*, 85(10) :2124–2127, 2000.
- [33] G. Fibich et B. Ilan. Deterministic vectorial effect lead to multiple filamentation. *Optics Letters*, 26(11) :840–842, 2001.
- [34] L. Bergé, S. Skupin, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J. P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou, et R. Sauerbrey. Multiple filamentation of tw laser pulses in air. *Physical Review Letters*, 92 :225002, 2004.
- [35] S. Tzortzakis, L. Bergé, A. Couairon, M. Franco, B. Prade, et A. Mysyrowicz. Breakup and fusion of self-guided femtosecond light pulses in air. *Physical Review Letters*, 86(24) :5470–5473, 2001.
- [36] Stefan Skupin, Ulf Peschel, Christoph Etrich, Lutz Leine, Dirk Michaelis, et Falk Lederer. Intense pulses in air : breakup of rotational symmetry. *Optics Letters*, 27(20) :1812–1814, 2002.
- [37] M. Mlejnek, E. M. Wright, et J. V. Moloney. Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air. *Optics Letters*, 23(5) :382–384, 1998.

- [38] Arnaud Couairon, Stelios Tzortzakis, Luc Bergé, Michel Franco, Bernard Prade, et André Mysyrowicz. Infrared femtosecond light filaments in air : simulations and experiments. *Journal of the Optical Society of America B*, 19(5) :1117–1131, 2002.
- [39] E. T. J. Nibbering, G. Grillon, M. A. Franco, B. S. Prade, et A. Mysyrowicz. Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, n_2 , and o_2 by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses. *Journal of the Optical Society of America B*, 14(3) :650–660, 1997.
- [40] Miguel Rodriguez, Riad Bourayou, Guillaume Méjean, Jérôme Kasparian, Jin Yu, Estelle Salmon, Aleks Scholz, Bringfried Stecklum, Jochen Eislöffel, Uwe Laux, Artie P. Hatzes, Roland Sauerbrey, Ludger Wöste, et Jean-Pierre Wolf. Kilometer-range non-linear propagation of femtosecond laser pulses. *Physical Review E*, 69 :036607, 2004.
- [41] Rachel Nuter, Stefan Skupin, et Luc Bergé. Chirp-induced dynamics of femtosecond filamentation in air. *Optics Letters*, 30(8), 2005.
- [42] Raymond M. Measures. *Laser remote sensing - Fundamentals and applications*. Wiley Interscience, New York, 1984.
- [43] G. Mie. Beiträge zur optik trüber medien speziell kolloidaler metallösungen. *Ann. Phys.*, 25 :337–445, 1908.
- [44] C. F. Bohren et D. R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley, New York, 1983.
- [45] Owen B. Toon et T. P. Ackerman. Algorithms for the calculation of scattering by stratified spheres. *Applied Optics*, 20(20) :3657–3660, 1981.
- [46] W. J. Wiscombe. Improved mie scattering algorithms. *Applied Optics*, 19(9) :1505–1509, 1980.
- [47] Miguel Rodriguez. *Terawatt-Femtosekunden-Laserpulse in der Atmosphäre : Phänomene und Anwendungen*. PhD thesis, Berlin, 2004.
- [48] S. Skupin, L. Bergé, U. Peschel, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J. P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou, et R. Sauerbrey. Filamentation of femtosecond light pulses in the air : Turbulent cells versus long-range clusters. *Physical Review E*, 70 :046602, 2004.
- [49] P. Rairoux, H. Schillinger, S. Niedermeier, M. Rodriguez, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, B. Stein, D. Waite, C. Wedekind, H. Wille, et L. Wöste. Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses. *Applied Physics B*, 71 :573–580, 2000.
- [50] F. Courvoisier, V. Boutou, J. Kasparian, E. Salmon, G. Méjean, J. Yu, et J.-P. Wolf. Light filaments transmitted through clouds. *Applied physics letters*, 83 :213–215, 2003.

-
- [51] François Courvoisier. *Spectroscopie ultra-brève de particules d'aérosols et microcavités*. PhD thesis, Université Claude Bernard Lyon 1, 2005.
- [52] L. Bergé et A. Couairon. Gas-induced solitons. *Physical Review Letters*, 86(6) :1003–1006, 2001.
- [53] G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, E. Salmon, S. Frey, J. P. Wolf, S. Skupin, A. Vincotte, R. Nuter, S. Champeaux, et L. Bergé. Multifilamentation transmission through fog. *Physical Review A*, soumis, 2005.
- [54] Grégoire Méchain, Guillaume Méjean, Roland Ackermann, Philipp Rohwetter, Yves-Bernard André, Jérôme Kasparian, Bernard Prade, Kamil Stelmaszczyk, Jin Yu, Estelle Salmon, William Winn, A. (Vern) Schlie, André Mysyrowicz, Roland Sauerbrey, Ludger Wöste, et Jean-Pierre Wolf. Propagation of fs-tw laser filaments in adverse atmospheric conditions. *Applied Physics B*, à paraître, 2005.
- [55] K. Stelmaszczyk, P. Rohwetter, R. Ackermann, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, J. Kasparian, J.-P. Wolf, et L. Wöste. Non-linear effects accompanying terawatt laser-pulse in air and their applications. In *Lasermetry 2004*, Warshaw, Poland, 2004. SPIE proceedings. Conférence invitée, K. Stelmaszczyk.
- [56] M. Mlejnek, E. M. Wright, et J. V. Moloney. Femtosecond pulse propagation in argon : A pressure dependence study. *Physical Review E*, 58(4) :4903–4910, 1998.
- [57] Stéphanie Champeaux et Luc Bergé. Femtosecond pulse compression in pressure-gas cells filled with argon. *Physical Review E*, 68 :066603, 2003.
- [58] A. Becker, N. Aközbek, K. Vijayalakshmi, E. Oral, C. M. Bowden, et S. L. Chin. Intensity clamping and re-focusing of intense femtosecond laser pulses in nitrogen molecular gas. *Applied Physics B*, 73 :287–290, 2001.
- [59] N. Kortsalioudakis, M Tatarakis, N Vakakis, S.D. Moustazis, M. Franco, B. Prade, André Mysyrowicz, N.A. Papadogiannis, A. Couairon, et S. Tzortzakis. Enhanced harmonic conversion efficiency in the self-guided propagation of femtosecond ultraviolet laser pulses in argon. *Applied Physics B*, 80 :211–214, 2005.
- [60] C.P. Hauri, W. Kornelis, F.W. Helbing, A. Heinrich, A. Couairon, A. Mysyrowicz, J. Biegert, et U. Keller. Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation. *Applied Physics B*, 79 :673–677, 2004.
- [61] Grégoire Méchain, T. Olivier, M. Franco, A. Couairon, Bernard Prade, et André Mysyrowicz. Femtosecond filamentation in air at low pressuree,. *en préparation*, 2005.
- [62] Petr Chylek, Maurice A. Jarzembki, Vandana Srivastava, et Ronald G. Pinnick. Pressure dependence of the laser-induced breakdown thresholds of gases and droplets. *Applied optics*, 29(15), 1990.

- [63] J. H. Marburger et E. L. Dawes. Dynamical formation of a small-scale filament. *Physical Review Letters*, 21(8) :556–558, 1968.
- [64] Edson R. Peck et Donald J. Fisher. Dispersion of argon. *Journal of the Optical Society*, 54(11), 1964.
- [65] G. Méchain, C. D’Amico, Y.-B. André, S. Tzortzakis, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon, E. Salmon, et R. Sauerbrey. Range of plasma filaments created in air by a multi-terawatt femtosecond laser. *Optics Communications*, 247 :171–180, 2005.
- [66] P. A. Robinson. Nonlinear wave collapse and strong turbulence. *Reviews of modern physics*, 69(2) :507–573, 1997.
- [67] V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, M. P. Tamarov, A. Brodeur, et S. L. Chin. Nucleation and random movements of filaments in the propagation of high-power laser radiation in a turbulent atmosphere. *Quantum electronics*, 29(10) :911–915, 1999.
- [68] S. L. Chin, A. Talebpour, J. Yang, S. Petit, V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, et M. P. Tamarov. Filamentation of femtosecond laser pulses in turbulent air. *Applied Physics B*, 74 :67–76, 2002.
- [69] W. Liu, O. Kosareva, I. S. Golubtsov, A. Iwasaki, A. Becker, V. P. Kandidov, et S. L. Chin. Random deflection of the white light beam during self-focusing and filamentation of femtosecond laser pulse in water. *Applied Physics B*, 75 :595–599, 2002.
- [70] Sergey Bendersky, Norman S. Komeika, et Natan Blaunstein. Atmospheric optical turbulence over land in middle east coastal environments : prediction modeling and measurements. *Applied Optics*, 43(20) :4070–4079, 2004.
- [71] K. Stelmasczyk, P. Rohwetter, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, J. Kasparian, R. Ackermann, J.-P. Wolf, et L. Wöste. Long-distance remote laser-induced breakdown spectroscopy using filamentation in air. *Applied Physics Letters*, 85(18) :3977, 2004.
- [72] Ph. Rohwetter, K. Stelmasczyk, L. Wöste, R. Ackermann, G. Méjean, E. Salmon, J. Kasparian, J. Yu, et J.-P. Wolf. Filament-induced remote ablation for long range libs operation. *Spectrochimica Acta B*, Accepté, 2005.
- [73] M. Sturm et N. Noll. Laser-induced breakdown spectroscopy of gas mixtures of air, co_2 , n_2 , and c_3h_8 for simultaneous c, h, o, n measurements. *Applied Optics*, 42 :6221, 2003.
- [74] S. Bachus, J. Peatross, L. Zeek, A. Rundquist, G. Taft, Margaret M. Murnane, et Henry C. Kapteyn. 16-fs, 1 μj ultraviolet pulses generated by third-harmonic conversion in air. *Optics Letters*, 21(9) :665, 1996.

- [75] C. W. Siders, N. C. Turner III, M. C. Downer, A. Babine, A. Stepanov, et Sergeev A. M. Blue-shifted third-harmonic generation and correlated self-guiding during ultra-fast barrier suppression ionization of subatmospheric density noble gases. *Journal of the Optical Socceity of America B*, 13 :330, 1996.
- [76] A. B. Fedotov, N. I. Koroteev, M. M. T. Loy, X. Xiao, et A. M. Zheltikov. Saturation of third-harmonic generation in a plasma of self-induced optical breakdown due to the self-action of 80-fs light pulses. *Optics Communication*, 133 :587, 1997.
- [77] H. R. Lange, A Chiron, J.-F. Ripoche, A. Mysyrowicz, P. Breger, et P. Agostini. High-order harmonic generation and quasiphase matching in xenon using self-guided femtosecond pulses. *Physical Review letter*, 81 :1611, 1998.
- [78] Yusuke Tamaki, Jiro Itatani, Yutaka Nagata, Minoru Obara, et Katsumi Midorikawa. Highly efficient, phase-matched high-harmonic generation by a self-guided laser beam. *Physical Review letter*, 82 :1422, 1999.
- [79] G Marcus, A. Zigler, et Z. Henis. Third-harmonic generation at atmospheric pressure in methane by use of intense femtosecond pulses in the tight-focusing limit. *Journal of the Optical Society of America B*, 16 :792, 1999.
- [80] N. Aközbek, A. Iwasaki, A. Becker, M. Scalora, S. L. Chin, et C. M. Bowden. Third-harmonic generation and self-channeling in air using high-power femtosecond laser pulses. *Physical Review Letters*, 89(14) :143901, 2002.
- [81] H. Yang, J. Zhang, J. Zhang, L. Z. Zhao, Y. J. Li, H. Teng, Y. T. Li, Z. H. Wang, Z. L. Chen, Z. Y. Wei, J. X. Ma, W. Yu, et Z. M. Sheng. Third-order harmonic generation by self-guided femtosecond pulses in air. *Physical Review E*, 67 :015401, 2003.
- [82] S. Skupin, F. Lederer, L. Bergé, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, R. Ackermann, et J. P. Wolf. Super-broadband continuum at uv-visible wavelengths generated by ultrashort laser pulses in air. *Physical Review E*, 2005.
- [83] F. Immler. A new algorithm for simultaneous ozone and aerosol retrieval from tropospheric dial measurements. *Applied Physics B*, 2003.
- [84] base de données hitran 2000, 2000.
- [85] D. Deirmendjian. Far-infrared and submillimeter wave attenuation by clouds and rain. *Journal of applied meteorology*, 14 :1584, 1975.
- [86] L. R. Bissonnette, P. Brusciaglioni, A. Ismaelli, G. Zaccanti, A. Cohen, Y. Benayahu, M. Kleinman, S. Egert, C. Flesia, P. Schwendimann, A. V. Starkov, M. Noormohammadian, U. G. Oppel, D. M. Winker, E. P. Zege, I. L. Katsev, et I. N. Polonsky. Lidar multiple-scattering from clouds. *Applied Physics B*, 60 :355–362, 1995.

- [87] Luc R. Bissonnette et Daniel L. Hutt. Multiply scattered aerosol lidar returns : inversion method and comparison with in-situ measurements. *Applied Optics*, 34(30) :6959–6975, 1995.
- [88] Ludger Wöste. Femtosecond white light generation for atmospheric remote sensing. In *Enviresense'97*, Munich, Germany, 1997.
- [89] H. R. Pruppacher et J. D. Klett. *Microphysics of clouds and precipitation*. Riedel Publishing Company, Dordrecht (Hollande), 1978. Diffusivité de la vapeur d'eau donnée page 412.
- [90] B. Stein, M. Del Guasta, J. Kolenda, M. Morandi, P. Rairoux, L. Stefanutti, J. P. Wolf, et L. Wöste. Stratospheric aerosol size distribution from multispectral lidar measurements at sodankylö during easoe. *Geophysical Research Letters*, 21(13) :1311, 1994.
- [91] D. M. Winker et M. P. McCormick. Aerosol and cloud sensing with the lidar in space technology experiment (lite). In C Weiner, editor, *In Lidar Technique for remote sensing*, pages 98–105. Spie, 1994.
- [92] L. R. Bissonnette. Multiple-scattering of narrow light beams in aerosols. *Applied Physics*, 60 :315–323, 1995.
- [93] S. R. Pal et A. I. Carswell. Multiple scattering in atmospheric clouds : lidar observations. *Applied Optics*, 15(8) :1990–1995, 1976.
- [94] J. S. Ryan, S. R. Pal, et A. I. Carswell. Laser backscattering from dense water-droplet clouds. *Journal of the Optical Society of America*, 69(1) :60–67, 1979.
- [95] Luc R. Bissonnette. Multiple-scattering lidar equation. *Applied Optics*, 35(33) :6449–6465, 1996.
- [96] Richard A. Ferrare, Edward V. Brownell, Syed Ismail, Vincent G. Brackett, Marian B. Clayton, Marta Fenn, Lorraine Heilman, Susan A. Kooi, David D. Turner, Michael J. Mahoney, Reginald E. Newell, Yong Zhu, Eric Jensen, John Barrick, et Glen Sachse. Lidar measurements of relative humidity and ice supersaturation in the upper troposphere. In *International laser radar conference (ILRC 2002)*, Québec, Canada, 2002.
- [97] Syed Ismail et Edward V. Browell. Airborne and spaceborne lidar measurements of water vapor profiles : a sensitivity analysis. *Applied Optics*, 28(17) :3603–3615, 1989.
- [98] G. Ehret, C. Liemle, W. Renger, et G. Simmet. Airborne remote sensing of tropospheric water vapor with a near-infrared differential absorption lidar system. *Applied Optics*, 32(24) :4534–4551, 1993.

-
- [99] C. Flamant, J. Pelon, L. Eymard, et J. Tournadre. Ssm/i integrated water vapor content measurements in coastal regions : a comparison with shipborne and airborne remote. *Journal Geophysical Research*, 108, 2003.
- [100] A. Heliere, J. L. Bezy, P. Bensi, et P. Ingmann. System definition of the esa earth explorer wales mission. In H. Fujisada, J. B. Lurie, L. M. Aten, et K. Weber, editors, *Sensors, Systems ,and Next-Generation Satellites VI*. editions, Proceedings SPIE, 2003.
- [101] L. Garand, E. Gerard, D. Tan, V. Wulfmeyer, G. Ehret, et P. Di. Girolamo. Wales (water vapour lidar experiment in space) : impact of spaceborne measurements on nwp and climate research. In *Proceedings of Twenty-First International Laser Radar Conference*, volume 2, pages 755–758, 2002.
- [102] A. J. Wimmers, J. L. Moody, E. V. Browell, J. W. Hair, W. B. Grant, C. F. Butler, M. A. Fenn, C. C. Schmidt, J. Li, et B. A. Ridley. Signatures of tropopause folding in satellite imagery. *Journal of Geophysical Research*, 108, 2003.
- [103] D. D. Turner, R. A. Ferrare, L. A. Heilman, et T. P. Tooman. A two year climatology of water vapor and aerosols in the lower troposphere measured by a raman lidar. In *International Laser Radar Conference 2000*, 2000.
- [104] C. R. Philbrick. Application of raman lidar advancements in meteorology and air quality monitoring. In Z. Liu U. N. Singh, T. Itabe, editor, *Lidar Remote Sensing for Industry and Environment Monitoring III*. Proceeding SPIE, 2003.
- [105] G. Pappalardo, A. Amodeo, S. Amoruso, V. Cuomo, P. Di Girolamo, F. Esposito, L. Leone, L. Mona, M. Pandolfi, G. Pavese, R. Restieri, et C. Serio. Measurement campaign of atmospheric water vapor and aerosols in southern italy. In H.-L. Huang, D. Lu, et Y. Sasane, editors, *Optical Remote Sensing of the Atmosphere and Clouds III*. editions, Proceedings SPIE, 2003.
- [106] G. Méjean, J. Kasparian, E. Salmon, J. Yu, J.-P. Wolf, R. Bourayou, R. Sauerbrey, M. Rodriguez, L. Wöste, H. Lehmann, B. Stecklum, U. Laux, J. Eislöffel, A. Scholz, et A. P. Hatzes. Towards a supercontinuum-based infrared lidar. *Applied Physics B*, 77(2-3) :357–359, 2003. DOI 10.1007/s00340-003-1183-x.
- [107] G. G. Matvienko, V. V. Veretennikov, G. M. Krekov, et M. M. Krekova. Remote sensing of atmospheric aerosols with a white-light femtosecond lidar. part 1. numerical simulations. *Atmospheric and Oceanic Optics*, 16(12) :1013–1019, 2003.
- [108] T. Back et H. Schwefel. An overview of evolutionary algorithms for parameter optimization. *Evolution Computers.*, 1, 1993.
- [109] A. V. Korolev, G. A. Isaac, I. P. Mazin, et H. W. Barker. Mircophysical properties of continental clouds from in-situ measurements. *Quaterly journal of royal meteorological society*, 2001, 2001.

- [110] N. L. Miles, J. Verlinde, et E. E. Clothiaux. Cloud droplet size distributions in low-level stratiform clouds. *Journal Atmospheric Sciences*, 57, 2000.
- [111] Y. S. Cheng, E. B. Barr, B. J. Fan, P. J. Hargis, D. J. Rader, T. J. O'Hern, J. R. Torczynski, G. C. Tisone, B. L. Preppernau, S. A. Young, R. J. Radloff, S. L. Miller, et J. M. Macher. Detection of bioaerosols using multiwavelength uv fluorescence spectroscopy. *Aerosol Science and Technology*, 30(186), 1999.
- [112] Y.-L. Pan, R. G. Pinnick, S. C. Hill, S. Niles, S. Holler, J. R. Bottiger, J.-P. Wolf, et R. K. Chang. Dynamics of photon-induced degradation and fluorescence in riboflavin microparticles. *Applied Physics B*, 72 :449–454, 2001.
- [113] Steven C. Hill, Ronald G. Pinnick, Stanley Niles, Yong-Le Pan, Stephen Holler, Richard K. Chang, Jerold Bottiger, Bean T. Chen, Chun-Sing Orr, et Greg Feather. Real-time measurement of fluorescence spectra from single airborne biological particles. *Field Analytical Chemistry and Technology*, 3(4-5) :221–239, 1999.
- [114] Jean-Pierre Wolf, Yong-Le Pan, Gordon M. Turner, Matthew C. Beard, Charles A. Schmuttermayer, Stephen Holler, et Richard K. Chang. Ballistic trajectories of optical wave packets within microcavities. *Physical Review A*, 64 :023808, 2001.
- [115] Loïc Méès, Jean-Pierre Wolf, Gérard Gouesbet, et Gérard Gréhan. Two-photon absorption and fluorescence in a spherical micro-cavity illuminated by using two laser pulses : numerical simulations. *Optics Communications*, 208 :371–375, 2002.
- [116] T. Brixner, N. H. Damrauer, P. Niklaus, et G. Gerber. Photosensitive adaptive femtosecond quantum control in the liquid phase. *Nature*, 414(1 November 2001) :57–60, 2001.
- [117] R. J. Levis, G. M. Menkir, et H. Rabitz. Selective bond dissociation and rearrangement with optimally tailored, strong-field laser pulses. *Science*, 292 :709–713, 2001.
- [118] H. Rabitz, R. Vivie-Riedle, Marcus Motzkus, et Karl Kompa. Whither the future of controlling quantum phenomena ? *Science*, 288 :824–828, 2000.
- [119] Gregory W. Faris, Richard A. Copeland, Kristien Mortelmans, et Burt V. Bronk. Spectrally resolved absolute fluorescence cross sections for bacillus spores. *Applied Optics*, 36(4) :958, 1999.
- [120] M. Lippitz, W. Erker, H. Decker, K. E. van Holde, et T. Basché. Two-photon excitation microscopy of tryptophan-containing proteins. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 99(5) :2772–2777, 2002.
- [121] A. Rehms et P. Callis. Fluorescence excitation spectra of aromatic amino acids. *Chemical Physics Letters*, 208(3-4) :276–282, 1993.

-
- [122] B. Wattellier, C. Sauteret, J.-C. Chanteloup, et A. Migus. Beam-focus shaping by use of programmable phase-only filters :application to an ultralong focal line. *Optics Letters*, 27(4) :213–215, 2002.
- [123] F. Courvoisier, V. Boutou, V. Wood, J.-P. Wolf, A. Bartelt, M. Roth, et H. Rabitz. Pump-probe depletion spectroscopy discriminates organic and biological molecules. *Applied Physics Letters*, soumis.
- [124] B. Li, H. Rabitz, et J.-P. Wolf. Optimal dynamic discrimination of similar quantum systems with time serie data. *Journal of Chemical Physics*, accepté.
- [125] R.-C. Wiens, R.-E. Arvidson, D.-A. Cremers, M.-J. Ferris, J.-D. Blacic, et Seelos. Combined remote mineralogical and elemental identification from rovers : Field and laboratory tests using reflectance and laser-induced breakdown spectroscopy. *American Geophysical Research*, 107(11) :8003, 2002.
- [126] Shiv K. Sharma, Paul G. Lucey, Manash Ghosh, Hugh W. Hubble, et Keith A. Horton. Stand-off raman spectroscopic detection of minerals on planetary surfaces. *Spectrochimica Acta Part A : Molecular and Biomolecular Spectroscopy*, 59(10) :2391–2407, 2003.
- [127] Nist atomic spectra database.
- [128] Nadezhda M. Bulgakova et Igor M. Bourakov. Phase explosion under ultrashort pulsed laser ablation : modeling with analysis of metastable state of melt. *Applied Surface Science*, 197-198 :41–44, 2002.
- [129] B. N. Chichkov, C Momma, S. Nolte, F. von Alvensleben, et T. Tünnermann. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids. *Applied Optics A*, 63 :109–115, 1996.
- [130] I. G. Dors, C. Parigger, et J. W. L. Lewis. Spectroscopic temperature determination of aluminium monoxyde in laser ablation with 266-nm radiation. *Optics Letters*, 23(22) :1778–1780, 1998.
- [131] A. Gomes, A. Aubreton, J.J. Gonzalez, et S. Vacquié. Experimental and theoretical study of the expansion of a metallic vapour plasma produced by laser. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 37 :689–696, 2004.
- [132] Samuel S. Mao, Xianglei Mao, Ralf Greif, et Richard E. Russo. Initiation of an early-stage plasma during picosecond laser ablation in solids. *Applied Physics Letters*, 77(16) :2464–2466, 2000.
- [133] R Teghil, L. D’Alessio, A. Santagata, M. Zaccagnino, D. Ferro, et D. J. Sordelet. Picosecond and femtosecond pulsed laser ablation and deposition of quasicrystals. *Applied Surface Science*, 210 :307–317, 2003.
- [134] Jon Scaffidi, William Pearman, Marion Lawrence, J. Chance Carter, Bill W Colston Jr., et S. Michael Angel. Spatial and temporal dependence of interspark interac-

- tions in femtosecond-nanosecond dual-pulse laser-induced breakdown spectroscopy. *Applied Optics*, 43(17) :5243–5250, 2004.
- [135] S. Michael Angel, Dimitra N. Stratis, Kristine L. Eland, Tianshu Lai, Mark A. Berg, et David M. Gold. Libs using dual-and ultrashort laser pulses. *Fresenius J. Anal. Chem*, 369 :320–327, 2001.
 - [136] S. Palanco, S. Conesa, et J. J. Laserna. Field deployable or remote enabled? a portable laser-induced plasma spectrometer for field remote sensing. In *EMSLIBS*, Heronissos, Creta, Greece, 2003.
 - [137] Philippe Chartier, Gilles Drouin, Catherine Dubé, Laurent Fontaine, Philippe Gauthier, Vincent Sicotte, et Anne-Marie Simard. Dompteur de foudre. *Québec Science*, 37(5), 1999.
 - [138] J. R. Greig, D. W. Koopman, R. F. Fernsler, R. E. Pechacek, I. M. Vitkovitski, et A. W. Ali. Electrical discharges guided by pulsed co_2 -laser radiation. *IEEE*, 41(3) :174–177, 1978.
 - [139] D. W. Koopman et T. D. Wilkerson. Channeling of an ionizing electrical streamer by a laser beam. *Journal of Applied Physics*, 42 :1883, 1971.
 - [140] Leonard M. Ball. The laser lightning rod system : thunderstorm domestication. *Applied Optics*, 13(10) :2292–2296, 1974.
 - [141] Megumu Miki, Yoshiro Aihara, et Takatoshi Shindo. Development of long gap discharges guided by a pulsed co_2 laser. *Journal of physics D : Applied physics*, 26 :1244–1252, 1993.
 - [142] Megumu Miki, Takatoshi Shindo, et Yoshiro Aihara. Mechanisms of guiding ability of co_2 laser-produced plasmas on pulsed discharges. *Journal of physics D : Applied physics*, 29 :1984–1996, 1996.
 - [143] Xin Miao Zhao, Jean-Claude Diels, Cai Yi Wang, et Juan M. Elizondo. Femtosecond ultraviolet laser pulse induced lightning discharges in gases. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 31(3) :599–612, 1995.
 - [144] B. La Fontaine, F. Vidal, Z. Jiang, C. Y. Chien, D. Comtois, A. Desparois, T. W. Johnson, J.-C. Kieffer, et H. Pépin. Filamentation of ultrashort pulse laser beams resulting from their propagation over long distances in air. *Physics of plasmas*, 6(5) :1615–1621, 1999.
 - [145] P. R. Krehbiel. *The electrical structure of thunderstorms in the Earth's electrical environment*, pages 90–113. Washington DC : National Academy Press, 1986.
 - [146] Xin Miao Zhao, C. Y. Yeh, Jean Claude Diels, et Yi Cai Wang. Ultrashort pulse propagation for triggering of lightning. In *Proceeding International conference Laser's 91*, 1991.

-
- [147] Patrick Rambo, Jens Schwarz, et Jean-Claude Diels. High-voltage electrical discharges induced by an ultrashort-pulse uv laser system. *Journal of Optics A : Pure and applied optics*, 3 :146–158, 2001.
- [148] H. Pépin, D. Comtois, F. Vidal, C. Y. Chien, A. Desparois, T. W. Johnston, J. C. Kieffer, B. La Fontaine, F. Martin, F. A. M. Rizk, C. Potvin, P. Couture, H. P. Mercure, A. Bondiou-Clergerie, P. Lalande, et I. Gallimberti. Triggering and guiding high-voltage large-scale leader discharges with sub-joule ultrashort laser pulses. *Physics of plasmas*, 8(5) :2532–2539, 2001.
- [149] S. Tzortzakis, M. A. Franco, Y.-B. André, A. Chiron, B. Lamouroux, B. S. Prade, et A. Mysyrowicz. Formation of a conducting channel in air by self-guided femtosecond laser pulses. *Physical Review E*, 60(4) :R3505–R3507, 1999.
- [150] H. Schillinger et R. Sauerbrey. Electrical conductivity of long plasma channels in air generated by self-guided femtosecond laser pulses. *Applied Physics B*, 68 :753–756, 1999.
- [151] Bruno La Fontaine, François Vidal, Daniel Comtois, Ching-Yuan Chien, Alain Deparois, Tudor Wyatt Johnston, Jean-Claude Kieffer, Hubert P. Mercure, Henri Pépin, et Farouk A. M. Rizk. The influence of electron density on the formation of streamers in electrical discharges triggered with ultrashort laser pulses. *IEEE transactions on plasma science*, 27(3) :688–700, 1999.
- [152] M. Rodriguez, R. Sauerbrey, H. Wille, L. Wöste, T. Fujii, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, L. Klingbeil, K. Rethmeier, W. Kalkner, J. Kasparian, E. Salmon, J. Yu, et J.-P. Wolf. Megavolt discharges triggered and guided with laser filaments. *Optics Letters*, 27(9) :772–774, 2002.
- [153] Marcia Baker et Jon Nelson. A new model of charge transfer during ice-ice collisions. *Comptes rendus de l'Académie des Sciences IV : physique-astrophysique*, 3 :1293, 2002.
- [154] Takatoshi Shindo, Megumu Miki, Yoshinori Aihara, et Atsushi Wada. Laser guided discharges in long gaps. *IEEE transactions on Power Delivery*, 8(4) :2016, 1993.
- [155] Chung-Chiegh Cheng, E. M. Wright, et J. V. Moloney. Generation of electromagnetic pulses from plasma channels induced by femtosecond light strings. *Physical Review Letters*, 87(21) :213001, 2001.
- [156] M. A. Hader et M. A. Jog. Effect of drop deformation on heat transfer to a drop suspended in an electrical field. *Journal of heat transfer-transactions of the ASME*, 120, 1998.
- [157] S. Tzortzakis, G. Méchain, G. Pantalano, Y.-B. André, B. Prade, M. Franco, A. Mysyrowicz, J.-M. Munier, M. Gheudin, G. Beaudin, et P. Encrenaz. Coherent sub-terahertz radiation from femtosecond infrared filaments in air. *Optics Letters*, 27(21) :1944–1946, 2002.

- [158] Y. R. Shen. *The principles of nonlinear optics*. John Wiley & Sons, New-York, 1984.
- [159] François Vidal, Daniel Comtois, Ching-Yuan Chien, Alain Desparois, Bruno La Fontaine, Tudor Wyatt Johnston, Jean-Claude Kieffer, Hubert P. Mercure, Henri Pépin, et Farouk A. Rizk. Modeling the triggering of streamers in air by ultrashort laser pulses. *IEEE transactions on plasma science*, 28(2) :418–433, 2000.
- [160] Joachim Noack et Alfred Vogel. Laser-induced plasma formation in water at nano-second to femtosecond time scales : Calculation of threshold, absorption coefficients, and energy density. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 35(8), 1999.
- [161] D. S. Burch, S. J. Smith, et L. M. Branscomb. Photodetachment of o_2^- . *Physical Review*, 112(1) :171–175, 1958.

Liste des tableaux

1.1	Résumé des performances du laser TéraMobile	18
1.2	Jeu de filtres utilisés dans la configuration Schmidt du télescope de Tautenburg	33
2.1	Nombre de filaments après 50 m de propagation. Les dix derniers mètres sont parcourus dans une atmosphère libre ou dans un nuage. On peut comparer le nombre de filaments pour les profils expérimentaux au nombre de filaments issus des profils simulés numériquement.	48
4.1	Paramètres et valeurs de la simulation	104

Liste de publications

Les résultats des travaux de recherche présentés dans ce mémoire ont fait l'objet de diverses publications dont la liste est donnée ci-dessous :

"Towards a supercontinuum-based infrared Lidar"

G. Méjean, J. Kasparian, E. Salmon, J. Yu, J.-P. Wolf, R. Bourayou, R. Sauerbrey, M. Rodriguez, L. Wöste, H. Lehmann, B. Stecklum, U. Laux, J. Esilöffel, A. Scholz, A. P. Hatzes

Applied Physics B **77** : 2-3 (2003)

"Remote Detection and Identification of Biological Aerosols using a Femtosecond Terawatt Lidar System"

G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Samon, J.-P. Wolf

Applied Physics B **79** (2004)

"Femtosecond white-light Lidar for simultaneous particle sizing and relative humidity measurements"

G. Méjean, R. Bourayou, J. Kasparian, M. Rodriguez, E. Salmon, J. Yu, H. Lehmann, B. Stecklum, U. Laux, J. Esilöffel, A. Scholz, A. P. Hatzes, R. Sauerbrey, L. Wöste, J.-P. Wolf

ILRC 2004 (2004)

"UV-Supercontinuum generated by long-range filamentation in air"

G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Samon, J.-P. Wolf, L. Bergé, S. Skupin

soumis à Physical Review E

"Multifilamentation transmission through fog"

G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, E. Salmon, S. Frey, J.-P. Wolf, S. Skupin, A. Vinçotte, R. Nuter, S. Champeaux, L. Bergé

soumis à Physical Review A

"White-Light Filaments for Atmospheric Analysis"

J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf, L. Wöste
Science **301** : 5629 (2003)

"Ultraintense light filaments transmitted through clouds"
F. Courvoisier, V. Boutou, J. Kasparian, E. Salmon, G. Méjean, J. Yu, J.-P. Wolf
Applied Physics Letters **83** : 2 (2003)

"Kilometer-range non-linear propagation of femtosecond laser pulses"
M. Rodriguez, R. Bourayou, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, E. Salmon, A. Scholz, B. Stecklum, J. Eislöffel, U. Laux, A. P. Hatzes, R. Sauerbrey, L. Wöste, J.-P. Wolf
Physical Review E **69** (2004)

"Multiple filamentation of TW laser pulses in air"
L. Bergé, S. Skupin, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J.-P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou, R. Sauerbrey
Physical Review Letters **92** (2004)

"Spatial break-up of femtosecond laser pulses in the atmosphere"
L. Bergé, S. Skupin, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J.-P. Wolf
Physica Scripta **T107** (2004)

"Supercontinuum emission and enhanced self-guiding of infrared femtoseconds filaments sustained by third-harmonic generation in air"
L. Bergé, S. Skupin, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, J.-P. Wolf
Physical Review E **71** (2004)

"Remote LIBS with ultra-short pulses : characteristics in picosecond and femtosecond regimes" P. Rohwetter, J. Yu, G. Méjean, K. Stelmazczyk, E. Salmon, J. Kasparian, J.-P. Wolf, L. Wöste
Journal of Analytical Atomic Spectrometry **19** (2004)

"Triggering and guiding of megavolt discharges by laser-induced filaments under rain conditions"
R. Ackermann, K. Stelmazczyk, P. Rohwetter, G. Méjean, E. Salmon, J. Yu, J. Kasparian, G. Méchain, V. Bergmann, S. Schaper, B. Weise, T. Kumm, K. Rethmeier, W. Kalkner, J.-P. Wolf, L. Wöste
Applied Physics Letters **85** : 23 (2004)

"Filamentation of femtosecond light pulses in the air : Turbulent cells versus long-range clusters"

S. Skupin, L. Bergé, U. Peschel, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J.-P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou, R. Sauerbrey

Physical Review E **70** (2004)

"Long-distance remote laser-induced breakdown spectroscopy using filamentation in air"

K. Stelmaszczyk, P. Rohwetter, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, J. Kasparian, R. Ackermann, J.-P. Wolf, L. Wöste

Applied Physics Letters **85** : 18 (2004)

"White-light Filaments for Multiparameter Analysis of Cloud Microphysics"

R. Bourayou, G. Méjean, J. Kasparian, M. Rodriguez, E. Salmon, J. Yu, H. Lehmann, B. Stecklum, U. Laux, J. Eislöffel, A. Scholz, A. P. Hatzes, R. Sauerbrey, L. Wöste, J.-P. Wolf

Journal of the Optical Society of America B **22** (2005)

"Propagation of fs-TW laser filaments in adverse atmospheric conditions"

G. Méchain, G. Méjean, R. Ackermann, P. Rohwetter, Y.-B. André, J. Kasparian, B. Prade, K. Stelmaszczyk, J. Yu, E. Salmon, W. Winn, A. (Vern) Schlie, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, L. Wöste, J.-P. Wolf

Applied Physics B (à paraître)

"Filament-induced remote ablation for long range LIBS operation" P. Rohwetter, K. Stelmaszczyk, L. Wöste, R. Ackermann, G. Méjean, E. Salmon, J. Kasparian, J. Yu, J.-P. Wolf

Spectrochimica Acta B (à paraître)

Résumé

Les impulsions laser ultra-brèves (fs) et ultra-intenses (TW) forment, au cours de leur propagation non-linéaire dans l'atmosphère, des structures auto-guidées, d'une centaine de microns de diamètre, appelées filaments. Ces filaments résultent d'un équilibre dynamique entre l'effet Kerr qui focalise le faisceau et la défocalisation due au plasma généré au sein de ceux-ci.

Au cours de mon travail de thèse, nous avons mesuré que le spectre de lumière blanche issue de l'automodulation de phase et de la génération de troisième harmonique s'étend de l'ultra-violet (230 nm) à l'infrarouge (4,5 μm). De même, la propagation dans l'air, sous différentes conditions (pluie, brouillard, turbulence), des faisceaux térawatts femtosecondes a été caractérisée afin de développer des applications atmosphériques.

Il nous a ainsi été possible de développer le Lidar à lumière blanche pour réaliser des mesures préliminaires d'ozone et d'aérosols simultanément.

De même, grâce à la propagation fortement non-linéaire du faisceau qui permet de transporter des hautes intensités sur de longue distance, nous avons pu détecter et identifier, à distance, des aérosols biologiques et des cibles solides (LIBS) en induisant *in situ* des effets non-linéaires.

Enfin, nous avons montré que le déclenchement et le guidage de décharges de haute tension par une impulsion laser femtoseconde sous la pluie reste possible avec une efficacité comparable à l'atmosphère sèche. D'autre part, une configuration à double impulsion laser augmente l'efficacité de déclenchement des décharges. Ces résultats nous rapproche de la perspective de déclenchement et guidage de foudre par laser.

Abstract

When ultrashort and high-power laser pulses propagate across the atmosphere, self-guided filaments of 100 μm radius are formed. They result from a balance between Kerr self-focusing and defocusing by the plasma generated by multiphoton ionisation.

During my thesis, we showed that the white light spectrum generated in filament spans from the the infrared (4,5 μm) to the ultraviolet (230 nm) to thanks to Third Harmonic Generation and self-phase modulation. We charaterized the propagation under different conditions (rain, smog, turbulence) to developp different atmospheric applications. In particular, we demonstrated multi-parameters LIDAR for relative humidity as well as atmospheric pollution remote sensing. Furthermore, it is possible to detect and to identify biological aerosols or solid targets (LIBS) at remote distances, by non-linear processes induced *in situ* by the high intensity delivered by filaments. Moreover, we demonstrated that guiding and triggering high-voltage discharge thanks to a femsecond high-powered pulse is possible even under a rain with an efficiency comparable to that observed in dry air. We also improved the efficiency of a two pulses configurations (a femtosecond pulse and a subsequent nanosecond pulse). These results raise hope that lightning could be triggered and guided by laser pulses in the future.