

N° d'ordre: 3232

THESE

présentée à

L'UNIVERSITE BORDEAUX 1

ECOLE DOCTORALE DE MATHÉMATIQUES ET D'INFORMATIQUE DE
BORDEAUX 1

Par **Antoine Vinçotte**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPECIALITE: **Mathématiques Appliquées et Calcul Scientifique**

Titre: **Propagation non-linéaire d'impulsions laser ultra-courtes
dans les milieux transparents**

Soutenue le 20 octobre 2006

Après les avis de:

Mme **Anne de Bouard** (*D.R. CNRS*) Rapporteur

M. **Jean-Pierre Wolf** (*Prof. Université Genève*) Rapporteur

Devant la commission d'examen formée de :

M. **Jean-Claude Gauthier** (*D.R. CNRS/CELIA*) Examineur

M. **Eric Constant** (*C.R. CNRS*) Examineur

M. **Thierry Colin** (*Prof. Université Bordeaux I*) Examineur

Directeur de thèse:

M. **Luc Bergé** (*Ing. Ch. CEA*)

Remerciements

Je tiens à remercier tout d'abord les membres du jury: Mme Anne de Bouard, M. Jean-Pierre Wolf pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ma thèse, ainsi que MM. Jean-Claude Gauthier, Éric Constant et Thierry Colin qui fut mon co-directeur de thèse, pour avoir accepté d'être les examinateurs de ce mémoire. Je remercie plus particulièrement Luc Bergé pour m'avoir proposé ce projet d'étude très intéressant et qui m'a apporté beaucoup d'un point de vue scientifique et personnel. Je le remercie pour m'avoir donné l'opportunité de me plonger dans le monde fascinant de la recherche. A travers Françoise Simonet, chef du Service de Physique des Plasmas et d'Électromagnétisme (SPPE) au sein du Département de Physique Théorique et Appliquée, je remercie le Commissariat à l'Énergie Atomique de Bruyères-le-Châtel pour m'avoir accueilli dans ses locaux et permis d'utiliser ses moyens de calcul sans lesquels les résultats présentés dans cette thèse n'auraient jamais été acquis.

Je ne peux pas oublier les physiciens que j'ai côtoyés durant cette période de trois ans. Les docteurs Stéphanie Champeaux, Rachel Nuter et Stefan Skupin m'ont fait grandement profiter de leur expérience et ont eux aussi participé à donner une direction fructueuse à ce travail. Leur aide a été constante et ils ont largement contribué au bon déroulement de cette thèse.

Enfin je remercie les nombreux ingénieur-chercheurs CEA du service PPE (Gilles Riazuelo, Claude Gouédard et Didier Benisti entre autres) qui m'ont fait bénéficier de leur savoir à de nombreuses occasions et ont ainsi contribué à la réussite de ce projet.

Table des matières

1	Introduction	1
2	Propagation d'impulsions laser ultra-courtes: Le Modèle	7
2.1	Dérivation des équations	7
2.1.1	Vers une description NLS	7
2.1.2	L'ionisation	13
2.2	L'auto-focalisation ultime: l'explosion à distance finie	20
2.3	La dynamique du collapse en 2D	23
2.4	GVD participe à l'arrêt du collapse	24
2.5	Arrêt de l'auto-focalisation par plasma	26
2.6	Auto-modulation de phase et génération de supercontinu	28
2.7	Multifilamentation	30
3	Non-linéarités optiques d'ordre élevé	35
3.1	Un paramètre clé de l'auto-guidage: le seuil d'intensité	36
3.2	Méthode variationnelle à deux échelles	39
3.3	Résultats numériques 2D et 3D	43
4	Propagation atmosphérique d'impulsions optiques femtosecondes avec gradients forts et vortex optiques	51
4.1	Impulsions comportant des gradients forts	52
4.1.1	Résultats numériques 2D et 3D pour les gradients forts	52
4.1.2	Résultats numériques pour les Super-Gaussiennes	54
4.2	Vortex optiques femtosecondes	56
4.2.1	Construction de vortex par une méthode variationnelle statique	58
4.2.2	Quelques estimations analytiques dans le cas cubique-quintique	59

4.2.3	Analyse de stabilité	61
4.2.4	Résultats numériques pour les vortex 2D	64
4.2.5	Résultats numériques pour les vortex femtosecondes 3D	68
5	Filamentation Multiple: Simulations et Expériences	73
5.1	Multifilamentation à travers le brouillard	74
5.1.1	Dispositif expérimental	74
5.1.2	Résultats et discussion	76
5.1.3	Analyse numérique de figures de filamentation en milieu humide	78
5.2	Multifilamentation dans des cellules d'éthanol dopées à la coumarine . .	85
5.2.1	Le modèle physique	86
5.2.2	Résultats numériques	87
5.2.3	Solution éthanol/diluant	90
6	Conclusion	95
A	Taux d'ionisation pour les atomes et les molécules	103
A.1	L'ionisation dans les gaz	103
A.1.1	La théorie de Keldysh	103
A.1.2	La théorie PPT	106
A.1.3	La théorie ADK moléculaire	106
A.2	L'ionisation dans les milieux denses	107
B	Aspects numériques	109
B.1	Schémas numériques pour la propagation d'impulsions dans l'air	109
B.1.1	Code 2D adimensionné et moyenné en temps	111
B.1.2	Code radial	111
B.1.3	Code 3D	112
	Bibliographie	113

Chapitre 1

Introduction

Depuis son invention en 1960, le laser a trouvé et trouve encore de multiples applications dans des domaines toujours nouveaux. Du compact disque aux télécommunications en passant par la chirurgie, l'usinage et le traitement des matériaux, pour n'en citer que quelques uns, ses domaines d'applications sont maintenant très vastes. L'étude du laser, en tant que discipline de l'optique est donc devenue incontournable, et donne lieu à des recherches de plus en plus soutenues dont certaines trouvent déjà des applications à court terme. Pourtant le laser ne cesse d'évoluer dans sa forme et d'étendre ainsi son champ d'application. Si en 1960 on arrivait à produire des impulsions de l'ordre de la milliseconde (10^{-3} s), aujourd'hui, les impulsions se sont considérablement raccourcies: leur durée atteint maintenant la dizaine de femtosecondes ($1 \text{ fs} = 10^{-15}$ s), rendant possible l'observation de phénomènes ultra-rapides jusqu'alors inaccessibles en physique, en chimie et en biologie, avec des applications dans des domaines aussi variés que la femtochimie, l'ablation laser en régime ultra-court, la génération d'harmoniques d'ordre élevé, les plasmas relativistes etc...

Un aspect fondamental de cette physique concerne la propagation de ces impulsions laser ultra-courtes, qui suscite un intérêt croissant de la part des scientifiques, qu'ils soient expérimentateurs ou théoriciens. C'est sous ce double aspect qu'a été réalisée cette thèse, en s'appuyant, pour la confrontation avec les résultats expérimentaux, sur des résultats obtenus lors de campagnes d'expériences réalisées au Laboratoire de Spectroscopie Ionique et Moléculaire (LASIM) par les équipes de l'Université Claude Bernard Lyon 1. Les simulations numériques ont été effectuées sur le cluster COMPAQ alpha (TERA) et le CCRT du Commissariat à l'Énergie Atomique de Bruyères-le-

Châtel.

Comme nous le verrons tout au long de ce travail, les impulsions laser femtosecondes peuvent, sous certaines conditions, se propager sous la forme d'un canal de lumière auto-guidé, résultant de l'équilibre de phénomènes non-linéaires comme l'auto-focalisation Kerr et la génération de plasma. Cette structure auto-guidée s'accompagne d'un élargissement spectral considérable (de 250 nm à 4.5 μm pour des impulsions infrarouges) et de densités électroniques créant un différence de potentiel effective. Ces objets optiques nouveaux, appelés "filaments femtosecondes", peuvent donc être utilisés en spectroscopie Lidar, pour exciter des décharges électriques afin de guider la foudre, ou tout simplement pour transmettre de l'énergie dirigée sur de grandes distances. Pour remplir ces objectifs, il est nécessaire que l'impulsion optique soit intense, robuste et se propage loin. Pour des faisceaux en régime linéaire, la distance de propagation de l'impulsion est limitée à approximativement une longueur de Rayleigh, au bout de laquelle le faisceau diffracte naturellement. Cependant, à des niveaux de puissance et d'intensité élevés, c'est-à-dire lorsque la puissance initiale du faisceau excède la puissance critique d'auto-focalisation ($P_{cr} \sim 3 \text{ GW}$ à 800 nm dans l'air), d'autres phénomènes physiques de nature non-linéaire entrent en jeu, entretenant l'auto-guidage de l'impulsion sur des distances bien plus grandes. L'impulsion s'auto-focalise par effet Kerr [1, 2, 3]. Par ce processus l'intensité du faisceau croît jusqu'à atteindre le seuil au-delà duquel un plasma d'électrons est généré par l'ionisation des molécules de l'air [4, 5, 6, 7, 8, 9]. Ce plasma défocalise l'impulsion. Pour des puissances optiques suffisamment élevées, un équilibre dynamique se met en place entre l'effet Kerr focalisant et le plasma défocalisant: des cycles de focalisation/défocalisation maintiennent le faisceau en état confiné, ce qui produit des filaments étroits de $\sim 150 \mu\text{m}$ de diamètre possédant une énergie d'environ 1 mJ (chap. [2]).

Un filament isolé ne peut couvrir que quelques mètres de propagation dans l'air [10, 11]. Pour des faisceaux de puissance supérieure au Téra watt (TW), de multiples filaments peuvent émerger par le biais de l'instabilité modulationnelle [12, 13] et ils détruisent l'homogénéité de la tache focale laser. Ce processus est appelé "multifilamentation" et chaque cellule optique transporte approximativement une puissance individuelle proche de quelques P_{cr} [14]. Les nombreux filaments préservent l'enveloppe du faisceau confinée sur de très grandes distances, à travers la persistance de clusters

filamenteux initiés par les défauts du faisceau initial et via l'interaction mutuelle et les échanges d'énergie entre filaments [15, 16]. Selon la théorie de l'instabilité modulatoire [12, 13], le faisceau initial, imparfait, développe des instabilités, lesquelles en croissant vont casser le faisceau en cellules de petite taille, dont chacune développera un filament. Ainsi, la filamentation "simple" d'une impulsion ultra-courte et intense ainsi que le processus de filamentation multiple apparaissent comme les phénomènes clés dans la compréhension de l'auto-guidage des faisceaux optiques ultra-courts. C'est pourquoi toutes les études qui suivront seront motivées par la caractérisation de cette filamentation isolée ou multiple. Du point de vue théorique nous décrirons ces phénomènes de la manière la plus proche possible de la réalité observée à partir d'expériences diverses. Dans cette thèse, les premières études concernent les aspects théoriques relatifs à la

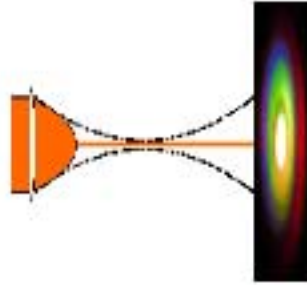


Figure 1.1 : Dispositif expérimental pour la production de filaments femtosecondes dans l'air à la longueur d'onde laser 800 nm. La photo à droite montre une coupe transverse du profil du filament.

propagation non-linéaire d'impulsions ultra-courtes dans les milieux transparents. Dans les deux derniers chapitres, des comparaisons avec des résultats expérimentaux obtenus à l'aide du laser Teramobile de forte énergie (~ 350 mJ) et d'un laser titane:saphir classique d'énergie plus modérée (quelques mJ) seront présentés.

Dans une première partie, nous modélisons mathématiquement la propagation d'impulsions laser ultra-courtes, des équations de Maxwell à l'équation de Schrödinger non linéaire (NLS) étendue, qui sera utilisée tout au long de ce travail. Pour décrire la propagation d'un faisceau unique à symétrie radiale ou celle d'un faisceau large sujet à la multifilamentation sur quelques dizaines de mètres, ce modèle physique pourra être simplifié en nombre de dimensions pour des raisons de limitations numériques. Ainsi, on distinguera les simulations à symétrie radiale, où les dimensions sont le rayon $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ et le temps t . Cette configuration se référera au cas noté (2+1) radial,

le +1 dénotant ici la dimension longitudinale selon laquelle se dirige l'onde (l'axe des z croissants). Les configurations notées (3+1), où les dimensions sont celles du plan de diffraction transverse, x , y , et le temps t , pourront être réduites à une géométrie (2+1), où la dépendance en temps sera supprimée par une procédure de moyennisation. Quelques sous-sections rappellent les phénomènes fondamentaux gouvernant l'évolution d'un filament. Une sous-section est en particulier consacrée à l'étude du collapse du point de vue mathématique [17], mettant en évidence l'existence d'une puissance critique d'auto-focalisation (P_{cr}) au-delà de laquelle le faisceau s'auto-focalise et forme une singularité à distance finie. On montrera alors comment l'auto-guidage d'une impulsion ultra-courte, pourvu que sa puissance initiale excède le seuil d'auto-focalisation P_{cr} résulte d'un équilibre dynamique délicat permettant le maintien du filament, entre des effets non-linéaires focalisants dûs à l'effet Kerr, et des effets défocalisants dûs à la création de plasma dans le sillage de l'onde laser. Le rôle de la dispersion de la vitesse de groupe dans la propagation de l'impulsion sera aussi discuté. Viendront alors les différentes études originales réalisées lors de cette thèse. Afin d'améliorer le modèle de propagation classique, nous envisagerons l'existence de non-linéarités optiques d'ordre élevé dans le vecteur de polarisation du milieu. À travers une analyse théorique et des simulations numériques, nous mettrons en évidence l'importance de prendre en compte un nouveau terme de saturation d'ordre 5 (quintique), celui-ci participant à l'auto-guidage de l'onde, et dont l'existence avait été mise en cause par des travaux antérieurs [18, 19]. Des résultats provenant de simulations numériques (2+1) radial ainsi que (3+1) seront présentés. On comparera ces résultats avec des données expérimentales, de façon à conclure sur l'importance des termes de saturation quintique dans la description de la propagation [20]. La troisième partie concerne la propagation atmosphérique d'impulsions femtosecondes à distributions spatiales particulières. Elle est divisée en deux sous-parties: les impulsions à gradients forts, et les vortex optiques qui possèdent un moment angulaire orbital.

Concernant les impulsions à gradients forts, une étude numérique sera développée sur la base d'estimations analytiques concernant l'instabilité des ondes planes [12, 14]. Les vortex optiques, dont l'étude a été initiée dès la fin des années 80 pour des faisceaux non pulsés (continus) [21, 22], feront l'objet d'une analyse théorique et numérique dans le cadre des impulsions femtosecondes [23, 24]. On insistera plus particulièrement sur

les propriétés de stabilité remarquables de ces objets optiques qui commencent à être produits de nos jours en régime ultra-court [25, 26, 27].

Dans une quatrième partie, nous étudierons l'évolution d'une impulsion ultra-courte dans une chambre à brouillard, lorsque le faisceau entre en collision avec plusieurs milliers de gouttelettes d'eau au cours de sa propagation. Les pertes en énergie et en puissance du faisceau et leur incidence sur la figure de filamentation obtenue en sortie de chambre seront plus particulièrement examinées. Nous concluerons enfin sur la possibilité de propager de telles impulsions dans un ciel "humide" et caractériserons les modifications effectives subies par la figure de filamentation [28].

Une dernière partie est consacrée aux milieux denses. Nous confronterons des résultats de simulations numériques à des expérimentations directes, menées en collaboration avec les chercheurs du LASIM à Lyon, afin d'étudier la filamentation optique dans les liquides. Des cellules d'éthanol contenant ou non un diluant serviront de milieu de propagation, dont nous comparerons les figures de multifilamentation avec les résultats numériques obtenus à l'aide de notre modèle [29].

Chapitre 2

Propagation d'impulsions laser ultra-courtes: Le Modèle

2.1 Dérivation des équations

Nous allons établir les équations de propagation, en prenant comme point de départ les équations de Maxwell gouvernant les ondes électromagnétiques dans un milieu transparent. Nous décrirons les grandes étapes du calcul, et soulignerons les hypothèses à prendre en compte ainsi que leur signification physique, afin de dériver ce modèle le plus rigoureusement possible. L'équation finale sera la "célèbre" équation de Schrödinger non-linéaire, qui sera utilisée dans toutes les études à venir. Cette équation sera couplée à celle décrivant la génération de plasma et incluant les taux d'ionisation appropriés.

2.1.1 Vers une description NLS

Le champ électromagnétique $(\vec{E}, \vec{B}, \vec{H})$ est donné par les équations de Maxwell:

$$\vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\partial_t \vec{B}(\vec{r}, t) \quad (2.1a)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}, t) = \vec{J}(\vec{r}, t) + \partial_t \vec{D}(\vec{r}, t) \quad (2.1b)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{\rho - \vec{\nabla} \cdot \vec{P}(\vec{r}, t)}{\epsilon_0} \quad (2.1c)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B}(\vec{r}, t) = 0 \quad (2.1d)$$

$$\vec{D}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \vec{E}(\vec{r}, t) + \vec{P}(\vec{r}, t) \quad (2.1e)$$

où \vec{E} , \vec{H} représentent les champs électrique et magnétique, \vec{D} , \vec{B} sont les densités de flux électrique et magnétique correspondant. \vec{J} est la densité de courant et ρ la densité

de particules libérées par ionisation du milieu. ϵ_0 , μ_0 représentent respectivement la permittivité électrique et la perméabilité magnétique vérifiant la relation $\epsilon_0\mu_0 = 1/c^2$, où c est la vitesse de la lumière dans le vide. Sous l'approximation $\vec{B}(\vec{r},t) \simeq \mu_0\vec{H}(\vec{r},t)$ et en prenant le rotationnel de l'équation (2.1a), puis en substituant l'équation (2.1e) dans (2.1b), il vient:

$$-\vec{\nabla}[\vec{\nabla} \cdot \vec{E}(\vec{r},t)] + \nabla^2 \vec{E}(\vec{r},t) - \frac{1}{c^2} \partial_t^2 \vec{E}(\vec{r},t) - \mu_0[\partial_t^2 \vec{P}(\vec{r},t) + \partial_t \vec{J}(\vec{r},t)]. \quad (2.2)$$

À ce stade, les effets vectoriels induits par le terme en $-\vec{\nabla}[\vec{\nabla} \cdot \vec{E}(\vec{r},t)]$ peuvent être raisonnablement négligés. Ce terme est en effet égal à $\vec{\nabla} \cdot (\rho - \vec{\nabla} \cdot \vec{P})/\epsilon_0$ en vertu de l'équation (2.1c). Pour des nonlinéarités petites et composantes vectorielles repérées par les nombres d'onde transverse k_\perp ($\sim 2\pi/w_\perp$ où w_\perp est la taille du faisceau optique) et longitudinal $k(\omega)$ ($\sim k_0 = 2\pi/\lambda_0$ où λ_0 désigne la longueur d'onde laser), il est possible de montrer que ce terme reste d'ordre $O(k_\perp^2/k^2)$. Aussi longtemps que le diamètre transverse du faisceau est plus grand que la longueur d'onde centrale laser, ces couplages vectoriels peuvent être ignorés, ce que nous assumons par la suite. L'équation pour le champ électrique laser se réécrit donc

$$\nabla^2 \vec{E}(\vec{r},t) - \frac{1}{c^2} \partial_t^2 \vec{E}(\vec{r},t) - \mu_0[\partial_t^2 \vec{P}(\vec{r},t) + \partial_t \vec{J}(\vec{r},t)], \quad (2.3)$$

où selon la description classique de l'optique non-linéaire perturbative [1, 30, 31] le vecteur polarisation est la somme de la polarisation linéaire $\vec{P}_L(\vec{r},t)$ et de la polarisation non-linéaire $\vec{P}_{NL}(\vec{r},t)$:

$$\vec{P}(\vec{r},t) = \vec{P}_L(\vec{r},t) + \vec{P}_{NL}(\vec{r},t) \quad (2.4)$$

satisfaisant $|\vec{P}_{NL}(\vec{r},t)| \ll |\vec{P}_L(\vec{r},t)|$. Le calcul du terme de polarisation étant délicat, il est plus commode de passer de l'espace des temps à l'espace des fréquences au moyen de la transformée de Fourier classiquement définie pour toute fonction $\vec{F}(\vec{r},t)$ par:

$$\widehat{\vec{F}}(\vec{r},\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \vec{F}(\vec{r},t) e^{i\omega t} dt \quad (2.5a)$$

$$\widehat{\vec{F}}^{-1}(\vec{r},t) = \int_{-\infty}^{\infty} \vec{F}(\vec{r},\omega) e^{-i\omega t} d\omega. \quad (2.5b)$$

Dans un milieu que nous supposons isotrope, homogène, et loin de toute résonance atomique, le terme de polarisation linéaire dépend du tenseur de susceptibilité $\chi^{(1)}$ et s'exprime dans l'espace des fréquences par:

$$\widehat{P}_L(\vec{r}, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \widehat{E}(\vec{r}, \omega) \quad (2.6)$$

où la fonction scalaire diélectrique $\epsilon(\omega)$ est définie par

$$\epsilon(\omega) = 1 + \chi^{(1)}(\omega). \quad (2.7)$$

Cette fonction contient dans sa partie imaginaire les pertes linéaires du milieu. Cependant dans l'air, ces pertes sont en général petites pour des longueurs d'onde laser appartenant à l'intervalle $200 \text{ nm} < \lambda_0 < 1 \text{ }\mu\text{m}$. $\epsilon(\omega)$ sera donc considéré ici comme réel et positif pour les longueurs d'onde allant de l'infrarouge à l'ultraviolet. Il est relié à l'indice de réfraction linéaire par la relation $n(\omega) = \sqrt{\epsilon(\omega)}$ et intervient dans le nombre d'onde du champ électrique laser défini par $k(\omega) = \omega n(\omega)/c$.

Nous considérons une onde polarisée linéairement (par exemple selon l'axe \vec{e}_x) et se dirigeant dans la direction des z croissants. Cette onde oscille à la fréquence ω_0 et son nombre d'onde central est $k(\omega_0) = k_0$. Le champ électrique $\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{e}_x E(\vec{r}, t)$ se réduit donc à la fonction scalaire:

$$E(\vec{r}, t) = \sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}} \mathcal{E}(x, y, z, t) e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + \text{c.c.}, \quad (2.8)$$

où le terme d'amplitude en $\sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}}$ permet d'exprimer les intensités optiques en W/cm^2 . Nous supposons l'enveloppe du champ, \mathcal{E} , lentement variable, c'est-à-dire:

$$|\partial_{x,y,z} \mathcal{E}| \ll k_0 |\mathcal{E}| \quad (2.9a)$$

$$|\partial_t \mathcal{E}| \ll \omega_0 |\mathcal{E}|. \quad (2.9b)$$

Ceci est justifié par le fait que \mathcal{E} ne change pas sur des échelles spatiales de l'ordre de λ_0 et sur des échelles de temps comparables au cycle optique $T_{opt} = 2\pi/\omega_0$. Sous approximation scalaire, l'équation (2.3) peut être projetée sur l'axe \vec{e}_x pour obtenir l'équation du champ $E(\vec{r}, t)$:

$$\nabla^2 E(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \partial_t^2 E(\vec{r}, t) = \mu_0 \partial_t^2 [P_L(\vec{r}, t) + P_{NL}(\vec{r}, t)] + \mu_0 \partial_t J(\vec{r}, t). \quad (2.10)$$

Considérons les deux termes de polarisation. La transformée de Fourier du terme de polarisation linéaire $\mu_0 \partial_t^2 \widehat{P}_L(\vec{r}, t)$ d'après les équations (2.6) et (2.7) devient

$$\mu_0 \widehat{\partial_t^2 P}_L(\vec{r}, t) = -k^2(\omega) \widehat{E}(\vec{r}, \omega) + \frac{\omega^2}{c^2} \widehat{E}(\vec{r}, \omega). \quad (2.11)$$

La polarisation non-linéaire s'exprime dans l'espace des fréquences sous la forme développée en puissance du champ:

$$\widehat{P}_{\text{NL}}(\vec{r}, \omega) = \widehat{P}^{(3)}(\vec{r}, \omega) + \widehat{P}^{(5)}(\vec{r}, \omega) + \widehat{P}^{(7)}(\vec{r}, \omega) + \dots \quad (2.12)$$

où tous les termes d'ordre pair s'annulent exactement pour un milieu ayant une symétrie d'inversion, c'est-à-dire pour tout milieu isotropique et centro-symétrique. Dans la limite $P_{\text{NL}} \ll P_L$, le terme de polarisation non-linéaire est principalement donné par la polarisation d'ordre 3, dont la transformée de Fourier est

$$\begin{aligned} \widehat{P}^{(3)}(\vec{r}, \omega) &= \epsilon_0 \iiint \chi^{(3)}(\omega; \omega_1, \omega_2, \omega - \omega_1 - \omega_2) \\ &\quad \times \widehat{E}(\vec{r}, \omega_1) \widehat{E}(\vec{r}, \omega_2) \widehat{E}(\vec{r}, \omega - \omega_1 - \omega_2) d\omega_1 d\omega_2. \end{aligned} \quad (2.13)$$

Ici, $\chi^{(3)}$ désigne le tenseur de susceptibilité d'ordre 3 du milieu, et dépend à priori de la fréquence ω . En supposant que ce tenseur est principalement fixé par la fréquence centrale ω_0 , l'hypothèse d'enveloppe lentement variable du champ E nous permet d'exprimer la polarisation d'ordre trois dans l'espace des temps sous la forme simplifiée [32]:

$$\begin{aligned} P^{(3)}(\vec{r}, t) &= \epsilon_0 \left(\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0} \right)^{\text{sig}} [3\chi^{(3)}(-\omega_0; \omega_0, -\omega_0, \omega_0) |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + \text{c.c.}] \\ &\quad + \epsilon_0 \left(\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0} \right)^{\text{sig}} [\chi^{(3)}(-3\omega_0; \omega_0, \omega_0, \omega_0) (|\mathcal{E}|^2) \mathcal{E} e^{i(3k_0 z - 3\omega_0 t)} + \text{c.c.}]. \end{aligned} \quad (2.14)$$

Formellement, ce terme prend en compte la génération de la troisième harmonique ($3\omega_0$). Comme cette contribution est généralement faible avec un grand désaccord de phase $\Delta k = 3k_0 - k(3\omega_0)$ entraînant des interférences destructives après une longueur de propagation $\Delta z \sim \pi/\Delta k$ [19, 33], la génération de troisième harmonique ne sera pas prise en compte dans la suite. Ainsi en définissant l'indice non-linéaire de réfraction n_2 par:

$$n_2(\omega_0) = \frac{3\chi^{(3)}(-\omega_0; \omega_0, -\omega_0, \omega_0)}{4\epsilon_0 c n_0^2(\omega_0)}, \quad (2.15)$$

la polarisation d'ordre 3 s'écrit basiquement:

$$P^{(3)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}} [2n_0 n_2 |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + \text{c.c.}]. \quad (2.16)$$

Cette expression est valable tant que l'on suppose une réponse instantanée du milieu, ignorant la contribution des états vibratoires et rotationnels des molécules et leur rotation au terme $\chi^{(3)}$. En fait, pour des impulsions à spectre large (> 0.1 THz), $\chi^{(3)}$

varie avec ω , et le phénomène de rétrodiffusion Raman induit par des molécules anisotropes entre en jeu. Par exemple, les états rotationnels d'une molécule peuvent être représentés par un système d'énergie à trois niveaux $W_3 \gg W_2 - W_1$, où les niveaux 1 et 2 sont des états fondamentaux rotationnels et l'état 3 est un état électronique excité. La diffusion Raman concerne des transitions entre les niveaux 1 et 2 via un état virtuel proche de l'état 3: un photon est émis avec la fréquence $\Omega - \omega_0 - \omega_R$ où ω_R est la fréquence fondamentale de rotation (différence des fréquences des niveaux 1 et 2). Les transitions directes $1 \rightarrow 2$ sont interdites et l'état 3 ne peut pas être peuplé. La polarisation non-linéaire associée à ce processus s'écrit alors $P_{\text{Raman}} = \chi^{(3)} Q(t) E(\vec{r}, t)$ où $Q(t)$ est la fonction oscillante évaluée par $Q(t) = \frac{\mu^2}{\Omega R^2} \int_{-\infty}^t h(t-t') |E(t')|^2 dt'$ avec $h(t) \sim e^{-\Gamma_2 t} \sin(\omega_R t)$ [4, 34]. Ici, μ est l'élément de matrice correspondant à la transition du dipôle électronique vers l'état 3, Ω est la différence des fréquences entre les niveaux 1 et 3, Γ_2 est le taux de déphasage du dipôle, et $\hbar = 1.06 \times 10^{-34}$ J.s. Cette réponse provient du couplage incohérent et non-résonnant entre les niveaux rotationnels de la molécule. Elle complète alors la polarisation non-linéaire en

$$P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(3)}(-\omega_0; \omega_0, -\omega_0, \omega_0) E \int_{-\infty}^{+\infty} \bar{R}(t-t') |E(t')|^2 dt', \quad (2.17)$$

$$\bar{R}(t) = (1 - \theta) \delta(t) + \theta \Theta(t) h(t), \quad (2.18)$$

$$h(t) = \frac{\tau_1^2 + \tau_2^2}{\tau_1 \tau_2} e^{-t/\tau_2} \sin(t/\tau_1), \quad (2.19)$$

δ étant la fonction de distribution de Dirac en s^{-1} et Θ la fonction classique de Heaviside. L'expression (2.17) possède une composante retardée et une composante instantanée dans le rapport θ . Les temps τ_1 et τ_2 sont les inverses des fréquences ω_R et Γ_2 . Lorsque ces temps sont grands devant un cycle optique et satisfont $\tau_1 \sim \tau_2$, la réponse sinusoïdale peut être omise après avoir utilisé la substitution d'enveloppe (2.8), nous pouvons donc retenir la formulation simplifiée de la polarisation d'ordre 3,

$$P^{(3)}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}} 2n_0 n_2 \mathcal{E} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} [(1 - \theta) |\mathcal{E}|^2 + \frac{\theta}{\tau_K} \int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_K}} |\mathcal{E}(t')|^2 dt' + \text{c.c.}], \quad (2.20)$$

où $\tau_K = \tau_2$ désigne le temps de relaxation associé à la diffusion Raman.

Nous devons maintenant exprimer le terme de polarisation linéaire dans l'espace des temps, c'est-à-dire faire une transformée de Fourier inverse de l'équation (2.6). En supposant une étendue spectrale $\Delta\omega = \omega - \omega_0$ suffisamment petite ($\Delta\omega/\omega_0 \ll 1$), $k(\omega)$ peut être développé en une série de Taylor autour de la fréquence centrale ω_0 :

$$k(\omega) = k_0 + k'(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}k''(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}k'''(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (2.21a)$$

$$k^2(\omega) = k_0^2 + 2k_0k'(\omega - \omega_0) + k'^2(\omega - \omega_0)^2 + k_0k''(\omega - \omega_0)^2 + k'k''(\omega - \omega_0)^3 + \frac{1}{3}k_0k'''(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (2.21b)$$

où $k^{(n)} = \partial^n k / \partial \omega^n|_{\omega=\omega_0}$ et en particulier, $k' = \partial k / \partial \omega|_{\omega=\omega_0}$ désigne la vitesse de groupe et $k'' = \partial^2 k / \partial \omega^2|_{\omega=\omega_0}$ est le coefficient associé à la dispersion de la vitesse de groupe (GVD). En substituant à E l'expression donnée par l'équation (2.8), un rapide calcul nous permet d'obtenir la transformée de Fourier inverse de l'équation (2.11):

$$\begin{aligned} \mu_0 \partial_t^2 P_1(\vec{r}, t) &= [-k_0^2 + 2ik_0k'\partial_t \mathcal{E}(\vec{r}, t) + (k'^2 + k_0k'')\partial_t^2 \mathcal{E}(\vec{r}, t) \\ &+ i(k'k'' + \frac{k_0k'''}{3})\partial_t^3 \mathcal{E}(\vec{r}, t) + \frac{\omega_0^2}{c^2}(1 + \frac{i\partial_t}{\omega_0})^2 \mathcal{E}(\vec{r}, t)] \\ &\times \sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + c.c. \end{aligned} \quad (2.22)$$

Sous l'hypothèse d'enveloppe lentement variable, le terme en $-\frac{1}{c^2} \partial_t^2 E$ se développe alors en:

$$-\frac{1}{c^2} \partial_t^2 E(\vec{r}, t) = \frac{\omega_0^2}{c^2} (1 + \frac{i\partial_t}{\omega_0})^2 \mathcal{E}(\vec{r}, t) \sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + c.c., \quad (2.23)$$

tandis que le calcul du terme en $\nabla^2 E$ conduit à l'expression suivante:

$$\nabla^2 E(\vec{r}, t) = [\Delta_{\perp} \mathcal{E}(\vec{r}, t) + (\partial_z - ik_0)^2 \mathcal{E}(\vec{r}, t)] \sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + c.c. \quad (2.24)$$

Après substitution des équations (2.20), (2.22), (2.23) et (2.24), on obtient l'équation pour l'enveloppe \mathcal{E} qui adopte la forme d'une équation de Schrödinger non-linéaire (NLS) étendue:

$$\begin{aligned} &[\Delta_{\perp} \mathcal{E}(\vec{r}, t) + (\partial_z - ik_0)^2 \mathcal{E}(\vec{r}, t) + \frac{\omega_0^2}{c^2} (1 + \frac{i\partial_t}{\omega_0})^2 \mathcal{E}(\vec{r}, t)] \sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} = \quad (2.25) \\ &[-k_0^2 + 2ik_0k'\partial_t \mathcal{E}(\vec{r}, t) + (k'^2 + k_0k'')\partial_t^2 \mathcal{E}(\vec{r}, t)] \sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} \\ &+ [i(k'k'' + \frac{k_0k'''}{3})\partial_t^3 \mathcal{E}(\vec{r}, t) + \frac{\omega_0^2}{c^2} (1 + \frac{i\partial_t}{\omega_0})^2 \mathcal{E}(\vec{r}, t)] \sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} \\ &- \frac{k_0^2 n_2}{n_0} (1 + \frac{i\partial_t}{\omega_0})^2 [(1 - \theta)|\mathcal{E}|^2 + \frac{\theta}{\tau_K} \int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_K}} |\mathcal{E}(t')|^2 dt'] \mathcal{E} \sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} \\ &+ \mu_0 \partial_t J(\vec{r}, t) + c.c. \end{aligned}$$

où Δ_{\perp} désigne le Laplacien dans la direction transverse ($\Delta_{\perp} = \partial_x^2 + \partial_y^2$ en coordonnées cartésiennes; $\Delta_{\perp} = \partial_r^2 + 1/r^2 \partial_{\theta}^2$ en coordonnées polaires).

2.1.2 L'ionisation

Lorsque des électrons libres sont créés, la densité de courant $\vec{J} = q_e \rho \vec{v}_e$ évolue avec la vitesse des électrons \vec{v}_e , leur charge $q_e = -1.6 \times 10^{-19}$ C et leur densité ρ , qui est calculée à partir de l'équation de continuité et l'équation fondamentale de la dynamique [4, 35]:

$$\partial_t \rho + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v}_e) = \mathcal{S}, \quad (2.26)$$

$$\partial_t \vec{v}_e + (\vec{v}_e \cdot \vec{\nabla}) \vec{v}_e = \frac{q_e}{m_e} (\vec{E} + \frac{\vec{v}_e \times \vec{B}}{c}) - \nu_e \vec{v}_e - \mathcal{S} \vec{v}_e / \rho, \quad (2.27)$$

où \mathcal{S} représente les sources externes de plasma et ν_e est la fréquence de collision effective des électrons. Ces équations peuvent être combinées pour donner

$$\partial_t \vec{J} + \nu_e \vec{J} = \frac{q_e^2 \rho}{m_e} \vec{E} + \vec{\Pi}, \quad (2.28)$$

où

$$\vec{\Pi} = \frac{q_e}{m_e c} \vec{J} \times \vec{B} - [\frac{\vec{J}}{\rho q_e} (\vec{\nabla} \cdot \vec{J}) + (\vec{J} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v}_e] \quad (2.29)$$

représentent les forces pondéromotrices non-linéaires agissant sur les enveloppes lentement variables en temps. Pour des champs électromagnétiques (\vec{E}, \vec{B}) polarisés linéairement et oscillant à la haute fréquence ω_0 , le terme $\vec{\Pi}$ admet une fonction d'enveloppe contenant des gradients de l'intensité du champ électrique, la pression de radiation due aux collisions des électrons et les variations de la densité d'électrons. Pour les intensités du champ laser considérées ($< 10^{15}$ W/cm²), ces termes pondéromoteurs peuvent toutefois être négligés.

Ainsi, l'équation pour la densité de courant se réduit à l'équation (2.28) dans laquelle $\Pi = 0$. Aux plus petits ordres en ν_e , la croissance de la densité électronique est gouvernée uniquement par le terme source \mathcal{S} qui inclut les processus d'ionisation photonique, l'ionisation collisionnelle et la recombinaison des électrons ou leur appariement (attachement) avec des ions voisins. Cette équation pour ρ se traduit par

$$\partial_t \rho = W(I) \rho_{nt} + \frac{\sigma}{U_i} \rho I - f(\rho), \quad (2.30)$$

où ρ_{nt} et U_i désignent la densité d'espèces neutres et le potentiel d'ionisation, respectivement, et l'on suppose $\rho \ll \rho_{nt}$. Typiquement, la fonction $f(\rho)$ de recombinaison électronique dans les gaz possède une dépendance quadratique en ρ , si bien que

$f(\rho) = \beta_{\text{recomb}}\rho^2$ avec $\beta_{\text{recomb}}[\text{cm}^3/\text{s}] \sim 2 \times 10^{-8}$, et les temps de recombinaison sont de l'ordre de la nanoseconde pour des températures électroniques de l'ordre de $T_e = 1$ eV [4, 36, 37]. Dans les diélectriques, les temps de recombinaison employés sont beaucoup plus courts, de l'ordre de $\tau_{\text{recomb}} = 50 - 150$ fs, et la décroissance de la densité est linéaire en ρ : $f(\rho) = \rho/\tau_{\text{recomb}}$ [38, 39, 40].

Par ailleurs, la taux de collision des électrons dépend de la fonction de distribution de l'énergie de l'électron et de sa température en fonction du potentiel d'ionisation U_i . En supposant une fonction de distribution Maxwellienne pour la vitesse des électrons, on trouve que ce taux varie linéairement en $\sigma|\mathcal{E}|^2/U_i$ tant que l'énergie thermique de l'électron $\frac{1}{2}m_e v_{\text{th}}^2 = 3k_B T_e/2$ reste petite comparée à U_i . Ici, σ est la section efficace d'ionisation par Bremstrahlung inverse (collisions électrons-neutres) [41, 42]. Son expression peut être obtenue en résolvant la densité de courant (2.28) dans l'espace de Fourier

$$\widehat{\vec{J}} = \frac{q_e^2}{m_e(v_e^2 + \omega^2)}(\nu_e + i\omega)(\widehat{\rho\vec{E}}). \quad (2.31)$$

Le terme de densité de courant dans l'équation (2.10) se transforme en

$$\mu_0 \partial_t \vec{J} \rightarrow \left[-i \frac{\omega n_0 \sigma(\omega)}{c} + \frac{\omega_0^2}{c^2 \rho_c (1 + \nu_e^2/\omega^2)} \right] (\widehat{\rho\vec{E}}), \quad (2.32)$$

après avoir introduit la densité de plasma critique

$$\rho_c \equiv \frac{\omega_0^2 m_e \epsilon_0}{q_e^2} \simeq \frac{1.11 \times 10^{21}}{\lambda_0^2 [\mu\text{m}]} \text{cm}^{-3}, \quad (2.33)$$

à laquelle le nombre d'onde laser s'annule. La section efficace

$$\sigma(\omega) = \frac{q_e^2}{m_e \epsilon_0 n_0 c \nu_e (1 + \omega^2/\nu_e^2)} \quad (2.34)$$

fournit alors le taux de collision dépendant de la fréquence ω .

Dans l'équation (2.30), $W(I)$ dénote le taux d'ionisation photonique. Ce taux a été re-dérivé dans l'annexe A selon les théories de Keldysh, et Perelomov, Popov et Terent'ev (PPT) pour les gaz atomiques et les diélectriques (cristaux) [43, 44, 45, 46]. Afin de décrire l'ionisation d'atomes complexes, la formule de PPT inclut généralement les coefficients "ADK" (pour Ammosov, Delone et Krainov [47]), originellement établis dans la limite des hautes intensités. Ces théories d'ionisation mettent en avant deux limites majeures bornées par le paramètre adiabatique de Keldysh,

$$\gamma = \omega_0 \frac{\sqrt{2m_e U_i}}{|q_e E_{\text{cm}}|}, \quad (2.35)$$

où E_m est l'amplitude pic du champ laser ($E_m = 2|\mathcal{E}|$). On distingue la limite multiphotonique (MPI, $\gamma \gg 1$) pour les faibles intensités et la limite tunnel ($\gamma \ll 1$) pour les hautes intensités, à partir desquelles les électrons acquièrent assez d'énergie pour passer la barrière de Coulomb par effet tunnel. Pour les intensités laser $< 10^{13} - 10^{14}$ W/cm², la limite MPI caractérisée par

$$\gamma \gg 1 \Rightarrow W(|\mathcal{E}|^2) \rightarrow W_{\text{MPI}} = \sigma_K |\mathcal{E}|^{2K}, \quad (2.36)$$

domine, où $K = \text{mod}(U_i/\hbar\omega_0) + 1$ est le nombre de photons nécessaires pour libérer un électron. Pour des intensités laser plus hautes, la contribution de l'ionisation tunnel devient significative, i.e, les électrons sont libérés par effet tunnel dans l'intervalle d'une cycle optique.

Dans l'air, bien qu'en plus faible proportion (20% contre 80%) l'ionisation des molécules d'oxygène domine sur celle des molécules d'azote, car les premières ont un potentiel d'ionisation plus bas que les secondes ($U_i^{\text{O}_2} = 12.1$ eV, $U_i^{\text{N}_2} = 15.6$ eV). Pour décrire l'ionisation des molécules, il est possible d'employer les coefficients dérivés par Tong *et al.* [48] dans une formule du type PPT (cf Annexe A.3.1).

La figure 2.1 illustre quelques taux d'ionisation des molécules O₂ [Fig. 2.1(a)] et de la silice [Fig. 2.1(b)] prédits par les théories précédentes. Les taux d'ionisation PPT et ADK moléculaire, respectivement en courbe pleine et en tirets diffèrent seulement d'une décade. La courbe en pointillés indique un fit expérimental de signaux d'ions O₂⁺ avec le taux PPT en utilisant un nombre de charge effectif $Z_{\text{eff}} = 0.53$ [49]. On observe un bon accord entre ce fit et la courbe de l'ionisation provenant du modèle ADK moléculaire. Il est à noter que tant que le faisceau sature autour de quelques 10¹³ W/cm², il est toujours possible d'employer la limite MPI en conservant valide la physique de l'interaction.

Puisque les porteurs de charge libres sont générés par photo-ionisation, nous devons prendre en compte les pertes correspondants à ce processus. Celles-ci sont déterminées par une version locale du théorème de Poynting:

$$\frac{d}{dt} w(\vec{r}, t) = \vec{J}(\vec{r}, t) \cdot \vec{E}(\vec{r}, t), \quad (2.37)$$

à partir de laquelle la densité d'énergie $w(\vec{r}, t)$ transférée au milieu par l'impulsion lors de l'extraction d'un électron peut être calculée. La quantité d'énergie par unité de temps et de volume (i.e, par particule chargée) est alors donnée par $|\vec{J} \cdot \vec{E}| = U_i W(I) \rho_{\text{cat}}$ [51]. A

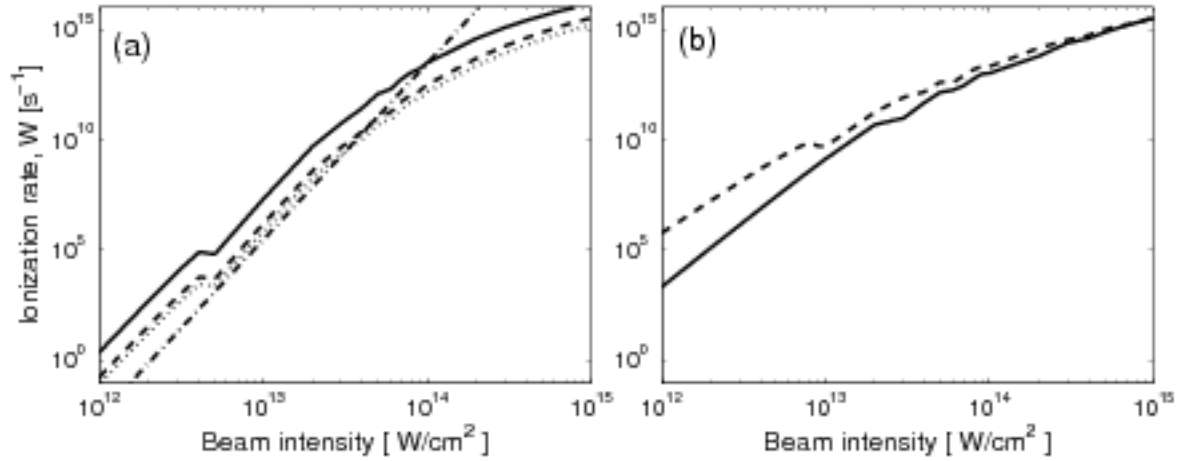


Figure 2.1 : (a) Taux d'ionisation pour les molécules O_2 en fonction de l'intensité laser obtenus à partir de la théorie PPT (courbe pleine), du modèle ADK moléculaire (courbe en tirets), de la courbe "fittant" des mesures expérimentales à partir de PPT avec $Z_{\text{eff}} = 0.53$ (courbe en pointillés) [49] et une formulation MPI avec $K = 8$ (courbe en tirets-points) utilisée dans la référence [50] à 800 nm [$\sigma_K = 2.88 \times 10^{-99} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{2K} / \text{W}^K$]. (b) Taux d'ionisation pour la silice (courbe pleine, $U_i = 7.8$ eV) et l'eau (courbe en tirets, $U_i = 7$ eV) à la même longueur d'onde.

la fréquence centrale, le mouvement des électrons libres est dominé par les oscillations rapides du champ optique de pulsation ω_0 . En utilisant le champ complexe, on peut prouver que le courant associé aux pertes est

$$\vec{J}_{\text{loss}} = \sqrt{\frac{k_0}{2\omega_0\mu_0}} U_i \frac{W(I)}{I} \rho_{\text{nl}}(\vec{\mathcal{E}} + \vec{\mathcal{E}}^*), \quad (2.38)$$

où la contribution du membre de droite provient de l'ionisation multiphotonique. Geissler *et al.* [52] ont dérivé des termes de perte similaires en introduisant un terme additionnel dans le vecteur de polarisation pour les particules libres $\vec{\mathcal{P}} = q_e \rho \vec{x}$, si bien que $\partial_t \vec{\mathcal{P}} = q_e \dot{\rho} \vec{x} + \vec{J}$ doit être utilisé dans l'équation (2.10). L'évaluation de la position $\vec{x}(t)$ où sont ionisés les électrons, $\vec{x}(t) \simeq U_i \vec{E} / (2q_e I)$ conduit au même terme de perte de courant.

Après transformée inverse de Fourier de l'équation (2.31), puis prise en compte des termes de perte (2.38), on tire l'expression de la dérivée en temps de la densité de

courant dans la limite multiphotonique et sous hypothèse $\nu_c^2/\omega_0^2 \ll 1$:

$$\begin{aligned} \partial_t J(\vec{r}, t) = & -i\omega_0 \left[\frac{q_c^2 \rho \nu_c}{m_e \omega_0^2} \mathcal{E} + i \frac{\epsilon_0 \omega_0}{\rho_c} \rho \mathcal{E} + \frac{k_0 \beta^{(K)}}{\omega_0 \mu_0} T |\mathcal{E}|^{2(K-1)} \mathcal{E}(\vec{r}, t) \right] \\ & \times \sqrt{\frac{\omega_0 \mu_0}{2k_0}} e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} + c.c. \end{aligned} \quad (2.39)$$

où $\beta^{(K)} \equiv K \hbar \omega_0 \sigma_K \rho_{nt}$ est le coefficient pour les pertes non-linéaires liées à l'absorption multiphotonique (notée MPA), et l'opérateur T est défini par:

$$T = 1 + \left(\frac{i}{\omega_0} \right) \partial_t \quad (2.40)$$

En substituant (2.39) dans (2.25), on obtient l'équation suivante pour l'enveloppe lentement variable du champ:

$$\begin{aligned} -i \frac{\Delta_\perp \mathcal{E}}{2k_0} - i \frac{(\partial_z - ik_0)^2}{2k_0} \mathcal{E} - \left[i \frac{k_0}{2} + k' \partial_t - i \left(\frac{k'^2}{2k_0} + \frac{k''}{2} \right) \partial_t^2 + \left(\frac{k' k''}{2k_0} + \frac{k'''}{6} \right) \partial_t^3 \right] \mathcal{E} - \\ + i \frac{k_0 n_2}{n_0} T^2 [(1 - \theta) |\mathcal{E}|^2 + \frac{\theta}{\tau_K} \int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_K}} |\mathcal{E}(t')|^2 dt'] \mathcal{E} - i \frac{k_0}{2n_0^2 \rho_c} \rho \mathcal{E} - \frac{1}{2} T [\sigma \rho \mathcal{E} + \beta^K |\mathcal{E}|^{2K-2} \mathcal{E}]. \end{aligned} \quad (2.41)$$

Il est possible de simplifier cette équation en se plaçant dans le référentiel qui se déplace à la vitesse de groupe de l'onde. Avec le changement de variable:

$$\begin{cases} \tau = t - zk' \\ \xi = z, \end{cases} \quad (2.42)$$

les dérivées partielles s'écrivent

$$\begin{cases} \partial_t = \partial_\tau \\ \partial_z = \partial_\xi - k' \partial_\tau \end{cases} \quad (2.43)$$

qui, une fois substituées dans l'équation (2.41), simplifient celles-ci en:

$$\begin{aligned} i \frac{\Delta_\perp \mathcal{E}}{2k_0} + \frac{i}{2k_0} (\partial_\xi - ik_0)^2 \mathcal{E} + \frac{ik_0 n_2}{n_0} T^2 [(1 - \theta) |\mathcal{E}|^2 + \frac{\theta}{\tau_K} \int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_K}} |\mathcal{E}(t')|^2 dt'] \mathcal{E} \\ - \partial_\xi \left[\left(1 + i \frac{k'}{k_0} \partial_\tau \right) - \frac{i}{2k_0} \partial_\xi \right] \mathcal{E} - \frac{ik''}{2} \left[\left(1 + \frac{ik'}{k_0} \partial_\tau \right) + \frac{ik'''}{3k'} \partial_\tau \right] \partial_\tau^2 \mathcal{E} - i \frac{k_0}{2n_0^2 \rho_c} \rho_c \mathcal{E} \\ - \frac{1}{2} T [\sigma \rho_c \mathcal{E} + \beta^K |\mathcal{E}|^{2K-2} \mathcal{E}]. \end{aligned} \quad (2.44)$$

Dans tout milieu propagatif, et pour des impulsions contenant plusieurs cycles optiques, les approximations $k'/k_0 \simeq 1/\omega_0$, $(1 + i \frac{k'}{k_0} \partial_\tau) \simeq (1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_\tau) = T$ s'appliquent. Par ailleurs, nous négligeons la deuxième dérivée par rapport à ξ (hypothèse de paraxialité) et supposons par souci de simplicité $k^{(n)} = 0$ pour $n \geq 3$. En renotant t et

z les nouvelles variables de temps et de propagation par commodité, on obtient enfin l'équation décrivant l'enveloppe du champ laser \mathcal{E} couplée à l'équation d'évolution de la densité d'électrons ρ :

$$\begin{aligned} T\partial_z\mathcal{E} - i\frac{\Delta_\perp}{2k_0}\mathcal{E} - \frac{ik''}{2}T\partial_k^2\mathcal{E} + \frac{ik_0n_2}{n_0}T^2[(1-\theta)|\mathcal{E}|^2 + \frac{\theta}{\tau_K}\int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_K}}|\mathcal{E}(t')|^2 dt']\mathcal{E} \quad (2.45) \\ - i\frac{k_0}{2n_0^2\rho_c}\rho\mathcal{E} - \frac{1}{2}T[\sigma\rho\mathcal{E} + \beta^K|\mathcal{E}|^{2K-2}\mathcal{E}], \\ \partial_t\rho = \sigma_K\rho_m|\mathcal{E}|^{2K} + \frac{\sigma}{U_i}\rho|\mathcal{E}|^2 - f(\rho). \end{aligned}$$

\mathcal{E} s'intègre numériquement avec des conditions initiales du type Super-Gaussienne d'ordre N :

$$\mathcal{E}(x,y,z=0,t) = \mathcal{E}_0 e^{-\left(\frac{r^2}{w_0^2}\right)^N - \frac{t^2}{t_p^2}}, \quad (2.46)$$

où $N = 1$ correspond à un profil Gaussien classique ($\mathcal{E}_0 = \sqrt{\frac{2P_{in}}{\pi w_0^2}}$). Ici, w_0 est le rayon FWHM du faisceau t_p la durée de l'impulsion et P_{in} sa puissance incidente. Notons que ces faisceaux initiaux sont non chirpés et non focalisés.

Par convention, le domaine de l'impulsion se rapportant aux temps négatifs $t < 0$ (temps retardés) est appelé "front" ou "avant" de l'impulsion. Les temps positifs correspondent à sa partie arrière. L'opérateur T est un opérateur de raidissement d'impulsion. En vertu des inégalités (2.9a) et (2.9b), et aussi longtemps que les distorsions temporelles excèdent un cycle optique ($\omega_0 t_p \gg 1$), on peut considérer que l'enveloppe ne varie pas rapidement comparé à la fréquence centrale, et donc $T \simeq \mathbf{I}$. Des comparaisons numériques avec le modèle complet incluant la dispersion aux ordres supérieurs ainsi que les opérateurs T , T^{-1} ont permis de mettre en évidence la similarité (et les différences) des dynamiques spatio-temporelles obtenues lorsque ces opérateurs sont pris en compte ou pas [53]. C'est ce que montre la figure 2.2, qui représente les dynamiques temporelles, ainsi que les maxima d'intensité, les densités d'électrons pic le long de l'axe de propagation, les profils temporels en $r = 0$ et les spectres en puissance à $z = 0.8$ m de la même impulsion sujettée ou pas à ces opérateurs. Ces termes d'ordre supérieur affectent les distributions temporelles du champ laser, mais elles conservent la dynamique qualitative du faisceau, i.e, les mêmes intensités et densités pics, ainsi qu'un nombre de cycles de focalisation/défocalisation comparable. Les chocs qu'ils induisent sur l'arrière de l'impulsion ($t > 0$) impliquent cependant un raccourcissement notable de la propagation auto-guidée. Gardant ces simplifications à l'esprit, l'équation de propagation telle que nous la traiterons par la suite, revêt la forme NLS incluant de

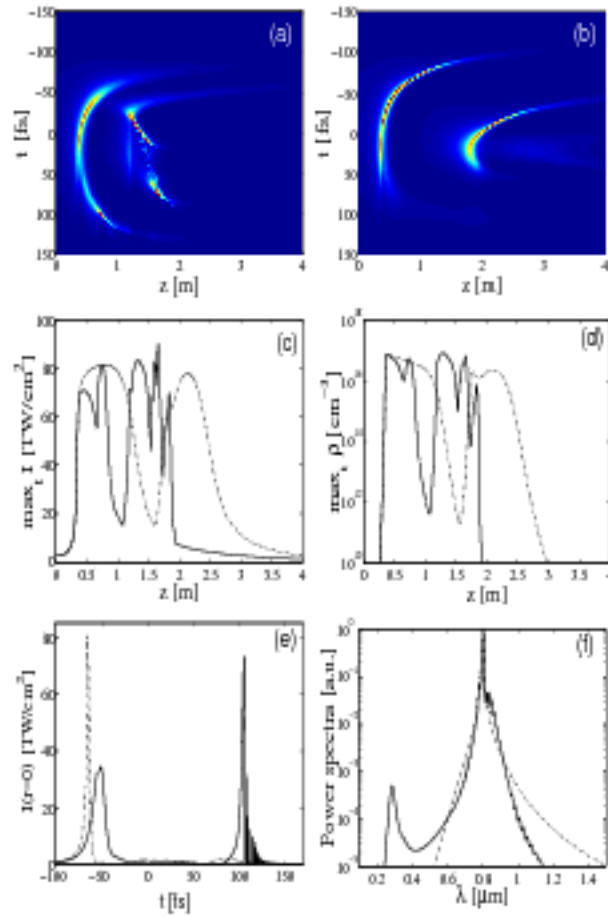


Figure 2.2 : (a,b) Dynamique temporelle d'une impulsion Gaussienne ($w_0 = 5$ mm, $t_p = 150$ fs, $P_{in} = 4P_{cr}$, $\lambda_0 = 800$ nm) dans le plan (t, z) avec (a) ou sans (b) dispersion chromatique d'ordre supérieur et sans les opérateurs T , T^{-1} (c) Intensité pic, (d) densité d'électrons pic, (e) profils temporels à $z = 0.8$ m, (f) et spectres associés (transformée de Fourier de $|\mathcal{E}|^2$). Les courbes solides correspondent au cas (a) (modèle avec T , $T^{-1} \neq 1$ et dispersion complète). Les courbes en tirets-points correspondent au cas (b) (modèle limité à T , $T^{-1} = \mathbb{I}$ et GVD uniquement).

la dispersion du second ordre seulement:

$$\begin{aligned} \partial_z \mathcal{E} - i \frac{\Delta_\perp}{2k_0} \mathcal{E} - \frac{ik''}{2} \partial_t^2 \mathcal{E} + \frac{ik_0 n_2}{n_0} [(1 - \theta) |\mathcal{E}|^2 + \frac{\theta}{\tau_K} \int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_K}} |\mathcal{E}(t')|^2 dt'] \mathcal{E} \\ - i \frac{k_0}{2n_0^2 \rho_c} \rho \mathcal{E} - \frac{1}{2} [\sigma \rho \mathcal{E} + \beta^K |\mathcal{E}|^{2K-2} \mathcal{E}]. \end{aligned} \quad (2.47)$$

2.2 L'auto-focalisation ultime: l'explosion à distance finie

Nous considérons l'équation NLS (2.47) dans le cas de l'air ($n_0 = 1$) et faisons les hypothèses simplificatrices suivantes: on néglige la partie retardée de l'effet Kerr ($\theta = 0$) et l'ionisation par avalanche ($\sigma = 0$). L'équation est ensuite adimensionnée avec le changement de variables suivant: $r \rightarrow w_0 r$, $t \rightarrow t_p t$, $z \rightarrow 4z_0 z$, $\mathcal{E} \rightarrow \sqrt{P_{cr}/4\pi w_0^2} \mathcal{E}$, et $\rho \rightarrow (\rho_c/2k_0 z_0) \rho$ pour enfin obtenir l'équation adimensionnée suivante:

$$i \partial_z \psi - \delta \partial_t^2 \psi + \nabla_\perp^2 \psi + |\psi|^2 \psi - \rho \psi + i\nu |\psi|^{2K-2} \psi = 0 \quad (2.48)$$

$$\partial_t \rho \simeq \Gamma |\psi|^{2K}. \quad (2.49)$$

La longueur de Rayleigh z_0 étant définie par $z_0 = \pi w_0^2 / \lambda_0$, les coefficients adimensionnés sont $\delta = 2z_0 k'' / t_p^2$ pour la dispersion de la vitesse de groupe (GVD), et $\nu = 2z_0 \beta^{(K)} (P_{cr}/4\pi w_0^2)^{K-1}$ pour le coefficient MPA. Le coefficient MPI adimensionné a pour expression $\Gamma = k_0^2 t_p \sigma_K (\rho_{at}/\rho_c) (P_{cr}/4\pi)^K w_0^{2(1-K)}$. Dans cette section, nous présentons comment, en considérant cette équation simplifiée sans réponse plasma, on peut déduire analytiquement l'existence d'un seuil critique en puissance au-delà duquel l'auto-focalisation du faisceau s'enclenche et s'achève par une singularité (ou collapse) à distance de propagation finie [54, 55]. Nous admettons l'existence au moins locale d'une solution unique à l'équation NLS académique suivante:

$$i \partial_z \psi + \Delta \psi + |\psi|^2 \psi = 0, \quad (2.50)$$

où Δ désigne le Laplacien par rapport aux directions transverses et temporelles. Si D désigne la dimension de cet espace, Δ s'écrit $\Delta = \partial_x^2 + \partial_y^2$ pour $D = 2$ ($r = \sqrt{x^2 + y^2}$), et $\Delta = \partial_x^2 + \partial_y^2 + \partial_t^2$ pour $D = 3$ ($r = \sqrt{x^2 + y^2 + t^2}$). Nous supposons que la fonction $\psi(\vec{r}, z = 0)$ appartient à l'espace de Hilbert H^1 admettant la norme

finie $\|\psi\|_{H^1} = (\|\psi\|_2^2 + \|\nabla\psi\|_2^2)^{1/2}$, où la norme L^p d'une fonction f est classiquement définie par $\|f\|_p = (\int |f|^p d\vec{r})^{1/p}$. Cette équation possède les invariants P se référant à la puissance du faisceau et l'Hamiltonien H définis par:

$$P = \|\psi\|_2^2, \quad H = \|\nabla\psi\|_2^2 - \frac{1}{2}\|\psi\|_4^4. \quad (2.51)$$

La norme P est obtenue en multipliant l'équation (2.50) par ψ^* et en intégrant en espace la partie imaginaire du résultat pour des solutions (et leurs dérivées) nulles à l'infini. L'invariant H s'obtient en multipliant l'équation (2.50) par ψ_z^* et en intégrant en espace la partie réelle du résultat pour des solutions (et leurs dérivées) nulles à l'infini. En manipulant l'équation (2.50), on peut obtenir une relation entre le rayon carré moyen de la solution $\langle r^2 \rangle = \int r^2 |\psi|^2 d\vec{r} / P$ et les différents invariants (2.51). Pour cela, on procède en deux étapes: (i) l'équation (2.50) est multipliée par $r^2 \psi^*$ et la partie imaginaire du résultat est intégrée pour avoir $\partial_z \int r^2 |\psi|^2 d\vec{r} = 4 \text{Im} \int \vec{r} \cdot \psi^* \vec{\nabla} \psi d\vec{r}$ (ii) La dérivée en z du membre de droite se traite en multipliant l'équation (2.50) par $\vec{r} \cdot \vec{\nabla} \psi^*$ et en intégrant en espace la partie réelle du résultat. On peut alors établir l'égalité suivante [56, 57]:

$$P d_z^2 \langle r^2 \rangle = 4 \left[2H + \left(1 - \frac{D}{2}\right) \|\psi\|_4^4 \right]. \quad (2.52)$$

– Pour des dimensions $D \geq 2$, l'identité (2.52) peut être intégrée deux fois en z pour obtenir la majoration suivante

$$\langle r^2 \rangle P \leq 4H z^2 + d_z \langle r^2 \rangle|_{z=0} z + \langle r^2 \rangle|_{z=0}. \quad (2.53)$$

Une condition suffisante pour qu'un collapse prenne place est $H < 0$, qui conduit à l'annulation de $\langle r^2 \rangle$ à distance finie. Dans ce cas, l'inégalité suivante $P \leq (2/D)^2 \langle r^2 \rangle \times \|\nabla\psi\|_2^2$ (qui s'obtient par intégration par parties puis application de l'inégalité de Cauchy-Schwarz) implique que la norme du gradient diverge, ce qui empêche la solution d'exister globalement dans l'espace de départ H^1 . Puisque l'Hamiltonien H est fini, cette divergence fait exploser la norme $L^4 \|\psi\|_4^4$ et en vertu du théorème de la valeur moyenne $\int |\psi|^4 d\vec{r} \leq \max_r |\psi|^2 \times P$ [58], elle entraîne l'explosion en temps fini de la solution (de sa norme L_∞ du moins). Rasmussen et Rypdal ont montré en fait que l'explosion arrive avant que le rayon carré moyen de la solution ne s'annule [17].

Par ailleurs l'inégalité de Sobolev (ou de Cagliardo-Nirenberg):

$$\|\psi\|_4^4 \leq C \|\nabla\psi\|_2^D \times \|\psi\|_2^{4-D} \quad (2.54)$$

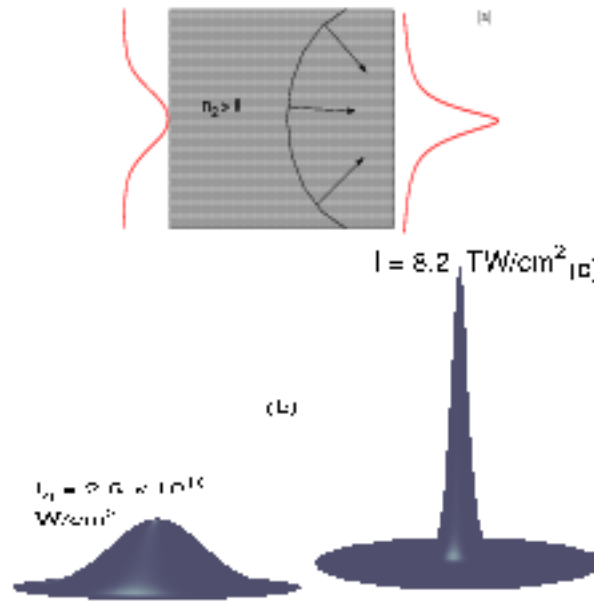


Figure 2.3 : (a) Principe de l'auto-focalisation; (b) et (c) représentent des profils d'intensités à deux distances de propagation différentes ($z = 0$ m et $z = 3.7$ m) pour une impulsion non focalisée se propageant dans l'air, et donnée par l'expression (2.46) avec $w_0 = 100$ μ m, $N = 1$, $P_{in}/P_{cr} = 3$, $t_p = 100$ fs.

appliquée avec $D = 2$ nous permet de minorer l'Hamiltonien de la façon suivante:

$$H \geq \|\nabla\psi\|_2^2 \left(1 - \frac{C}{2}P\right). \quad (2.55)$$

Une condition nécessaire pour qu'il y ait collapse ($\|\nabla\psi\|_2^2 \rightarrow \infty$ à distance finie) est simplement $P \geq 2/C$. Dans les années 80, Weinstein a montré que la meilleure constante pour l'inégalité (2.54) était $C_{opt} = 2/P_c$ où $P_c = \int \phi^2 d\vec{r} = 11.68$, et ϕ est la solution à symétrie radiale (mode de Townes) de l'équation $-\phi + \Delta\phi + \phi^3 = 0$ [59, 60]. P_c est donc la puissance minimale que ψ doit contenir à $z = 0$ pour qu'il puisse y avoir explosion à distance finie. Ces estimations théoriques sur l'équation NLS justifient l'existence d'une puissance critique au-delà de laquelle le faisceau pourra s'auto-focaliser sous l'influence des effets non-linéaires. En unités physiques, cette puissance critique prend la valeur

$$P_{cr} = \frac{3.72\lambda_0^2}{8\pi n_0 n_2}. \quad (2.56)$$

La figure 2.3 montre un schéma de principe de l'auto-focalisation optique, ainsi que des profils spatiaux intégrés à partir de l'équation (2.50) pour des faisceaux Gaussiens de puissance $P_{in} = 3P_{cr}$.

- Pour le cas $D = 3$ (le temps est aussi pris en compte pour de la dispersion anormale par exemple), une condition suffisante pour le collapse est $H < P_c^2/P$. A partir d'arguments reposant sur l'inégalité (2.54), toute solution vérifiant initialement $\|\nabla\psi\|_2^2 > 3P_c^2/P$ est condamnée à subir une explosion 3D à distance finie. P_c correspond ici encore à la puissance du soliton tridimensionnel, solution de $-\phi + \Delta\psi + \psi^3 = 0$ [61].

2.3 La dynamique du collapse en 2D

Une fois le collapse amorcé, la solution s'auto-focalise et se contracte de manière auto-similaire près du point de singularité noté z_c . En se plaçant dans le cas 2D, c'est à dire sans dépendance temporelle, la solution diverge sous la forme auto-similaire suivante [62]

$$\psi(\vec{r}, z) = \frac{1}{R(z)} \Phi\left[\frac{\vec{r}}{R}, \zeta(z)\right] e^{iS(z)}, \quad (2.57)$$

avec $S(z) = \zeta(z) + R_z(z)R(z)\xi^2/4$, $\zeta(z) \equiv \int_0^z du/R(u)^2$, et $\vec{\xi} = \vec{r}/R(z)$. Elle atteint un état exactement auto-similaire satisfaisant $\partial_z\phi \rightarrow 0$ au voisinage de la singularité. Par "auto-similaire", on entend que la distribution spatiale de la solution ne varie pas explicitement en z . Sa contraction est définie par un facteur d'échelle $R(z)$ tandis que son amplitude tend vers l'infini à travers le même facteur d'échelle. Ici, $R(z)$ décrit le rayon de la solution tel que $R(z) \rightarrow 0$ quand $z \rightarrow z_c$. En reportant l'équation (2.57) dans l'équation NLS (2.50), on tire l'équation vérifiée par la fonction Φ .

$$i\partial_z\Phi + \nabla_{\vec{\xi}}^2\Phi + |\Phi|^2\Phi + (1 - \epsilon\xi^2)\Phi = 0, \quad (2.58)$$

avec $\epsilon = -\frac{1}{4}R^3R_{zz}$. L'hypothèse de stationnarité $\partial_z\Phi \rightarrow 0$ quand z tend vers z_c implique $\epsilon \rightarrow \text{const}$, donc $R(z) \sim \sqrt{(z_c - z)}$.

Cependant cette expression n'est pas satisfaisante d'un point de vue mathématique, car la contribution linéaire de la solution Φ à grande distance satisfait alors $\Phi_T \sim 1/\xi^{1+i/2\sqrt{\epsilon}}$, de sorte que la norme L^2 de la solution diverge. On doit donc affiner l'analyse sur l'évolution de ϵ qui doit tendre asymptotiquement vers 0. Pour obtenir un système dynamique gouvernant cette quantité, on multiplie l'équation (2.50) par ψ^* , pour obtenir la relation de continuité:

$$\partial_z \int |\psi|^2 d\vec{r} = -2|\psi|^2 r \partial_r \arg\psi |^{r \rightarrow \infty}. \quad (2.59)$$

En utilisant le développement perturbatif $\Phi = \phi + \epsilon \phi_1$ au voisinage de z_c , nous déduisons

$$\partial_z \int |\psi|^2 d\vec{r} = \frac{A}{R^2} \partial_\zeta \epsilon, \quad (2.60)$$

où l'on montre que $A \sim \mathcal{R} \int (\phi \phi_1 d\vec{\xi})$ est une constante positive [63]. La solution Φ est ensuite décomposée en une contribution "coeur" Φ_c valable pour ξ suffisamment petit, $\xi < \xi_{\text{lim}} = 1/\sqrt{\epsilon}$, région dans laquelle le faisceau est proche du mode de Townes ϕ et une contribution "queue" Φ_T pour $\xi > \xi_{\text{lim}} = 1/\sqrt{\epsilon}$. Une analyse de type BKW permet d'arriver à l'expression du faisceau "queue" sous la forme $\Phi_T \sim (1/\xi) e^{-\pi/(2\sqrt{\epsilon}) + i\sqrt{\zeta}\xi^2/2} \times \frac{1}{\epsilon^{1/4} \xi^{1+1/2\sqrt{\epsilon}}}$. Le membre de droite de l'équation de continuité (2.59) se simplifie alors en:

$$-\frac{2}{R^2} \xi |\phi_T|^2 \partial_\xi \arg \phi_T |^{\xi \gg 1/\sqrt{\epsilon}} = -\frac{2}{R^2} e^{-\frac{\pi}{2\sqrt{\epsilon}}}. \quad (2.61)$$

En reportant les équations (2.60) et (2.61) dans (2.59), on obtient l'équation dynamique suivante pour ϵ :

$$A \partial_\zeta \epsilon = -2e^{-\pi/2\sqrt{\epsilon}}. \quad (2.62)$$

Sa solution est approchée par $2\sqrt{\epsilon} \sim |R_z R| \simeq \frac{\pi}{\ln(\zeta)}$ avec $\zeta(z) \simeq \ln(\frac{1}{z_c - z})$. L'expression du rayon de la solution auto-similaire admet donc une correction doublement logarithmique:

$$R(z) = \frac{R_0 \sqrt{(z_c - z)}}{\sqrt{\ln(\ln(\frac{1}{z_c - z}))}}, \quad (2.63)$$

tandis que le produit $|R_z R| \sim 2\sqrt{\epsilon}$ tend lentement vers 0 lorsque $z \rightarrow z_c$. Le point z_c de collapse pour des faisceaux Gaussiens collimatés (non focalisés initialement) est donné en unités physiques par la formule de Marburger [64]

$$z_c = \frac{0.367 z_0}{\sqrt{(\sqrt{\frac{F_{\text{lin}}}{F_{\text{cr}}}} - 0.852)^2 - 0.0219}}. \quad (2.64)$$

où z_0 est la longueur de Rayleigh du faisceau incident.

2.4 GVD participe à l'arrêt du collapse

Sous certaines conditions, l'auto-focalisation est arrêtée par des termes dispersifs comme la dispersion de la vitesse de groupe (GVD). Pour des faisceaux subissant l'auto-focalisation Kerr, la GVD provoque un étirement en temps pour $k'' > 0$ (dispersion normale) altérant la focalisation dans la direction transverse. La GVD stoppe le collapse

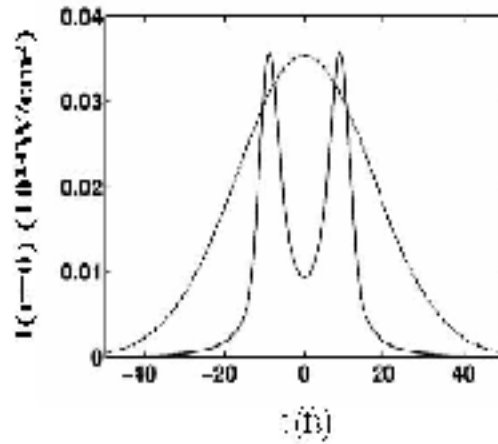


Figure 2.4 : Profils temporels d'une impulsion Gaussienne de 40 fs se propageant dans de l'argon. ($P_{in}/P_{cr} = 1.011$) à la longueur d'onde $\lambda_0 = 586$ nm. Les courbes en pointillés et pleine représentent les distances respectives $z = 0$ cm et $z = 45.6$ cm [67].

en fragmentant symétriquement le faisceau le long de l'axe des temps, comme on peut le voir sur la figure 2.4 qui représente les profils temporels d'une impulsion se propageant dans l'argon, à deux distances différentes [65, 66]. La tranche temporelle $t = 0$ se creuse en intensité, entraînant progressivement une "dispersion" de la puissance du faisceau vers des tranches temporelles $t \neq 0$, puis l'arrêt du collapse. Cette propriété s'applique lorsque P_{in}/P_{cr} est proche de l'unité [67] et $\delta \neq 0$ dans l'équation NLS (2.48). Pour la comprendre, nous pouvons dans une première approche décomposer l'impulsion en tranches de temps ayant chacune la puissance $P_{in}e^{-2t^2/t_p^2}$. En modifiant $P_{in} \rightarrow P_{in}e^{-2t^2/t_p^2}$ dans la formule de Marburger (2.64), chaque tranche de l'impulsion collapse à son foyer propre $z_c(t)$. Le rayon du faisceau évolue comme $R(z,t) = R[z_c(t) - z]$, et l'on peut considérer que l'onde tend vers la forme auto-similaire suivante:

$$\psi(\vec{r}, z, t) \rightarrow \frac{\sqrt{\mathcal{I}(z,t)}}{R(z,t)} \phi(\xi) e^{iS(z,t)}, \quad (2.65)$$

avec $\xi = r/R(z,t)$, $S(z,t) = \zeta(z,t) + R_z(z,t)R(z,t)\xi^2/4$ et $\zeta(z,t) \equiv \int_0^z du/R(u,t)^2$. $\mathcal{I}(z,t)$ représente ici un facteur d'intensité satisfaisant $\partial_z \mathcal{I} = 0$ quand le faisceau collapse de manière conservative (sans terme dissipatif dans l'équation de propagation). À l'approche du collapse, le rayon du faisceau a pour expression $R(z,t) \sim \sqrt{z_c(t) - z}$. Sous cette hypothèse et en ignorant les corrections logarithmiques, l'équation de continuité

(2.59) peut être transformée sous la forme [68, 69]

$$\partial_z P_\perp - 2\delta \int |\psi|^2 \partial_t^2 \arg \psi d\vec{r} \simeq 2\delta \mathcal{I} P_c \partial_t^2 \zeta, \quad (2.66)$$

en tenant compte du fait que $|R\partial_z R| \ll 1$, $\phi \rightarrow \phi_c$. On obtient ainsi l'équation suivante pour l'évolution du facteur d'intensité \mathcal{I} :

$$\frac{\partial_z \mathcal{I}}{\mathcal{I}} - 2\delta \partial_t^2 \zeta. \quad (2.67)$$

Compte-tenu de la nature auto-similaire de la solution au voisinage de z_c , les dérivées en temps se réécrivent sous la forme: $\partial_t \rightarrow -\partial_t z_c \partial_z$ et $\partial_t^2 \rightarrow -\partial_t^2 z_c \partial_z + (\partial_t z_c)^2 \partial_z^2$. L'équation (2.67) s'exprime alors comme suit:

$$\frac{\partial_z \mathcal{I}}{\mathcal{I}} - 2\delta [-\partial_t^2 z_c / R^2 + (\partial_t z_c)^2 \partial_z (1/R)^2]. \quad (2.68)$$

A partir de la formule de Marburger impliquant le rapport de puissance $P_{in} e^{-2t^2/t_p^2}$, on vérifie que $\partial_t^2 z_c > 0$ au voisinage de la tranche centrale $t = 0$, alors que $(\partial_t z_c)|_{t=0} = 0$. L'équation (2.68) montre alors que GVD transfère la puissance du pic le plus puissant vers des temps symétriques non-nuls.

En pratique, l'arrêt du collapse par GVD ($k'' > 0$) ne concerne que des facteurs de dispersion très élevés ($\delta \sim k'' \sim 100 - 1000 \text{ fs}^2/\text{cm}$) et/ou des rapports de puissance P_{in}/P_{cr} faibles [70]. Plus le coefficient GVD est fort, plus large est l'intervalle de puissance dans lequel le collapse est arrêté par le "splitting" de l'impulsion. En résolvant l'équation NLS cubique avec GVD normal, on peut calculer une borne δ_{crit} , fonction du rapport entre la puissance d'entrée et la puissance critique, de manière à ce que les conditions initiales satisfaisant $\delta > \delta_{cr}$ limitent l'auto-focalisation Kerr à travers un splitting temporel (cf. Fig. 2.4). Dans le cadre de notre étude mettant en œuvre des puissances nettement supérieures à P_{cr} , c'est la génération de plasma qui intervient la première dans l'arrêt de l'auto-focalisation.

2.5 Arrêt de l'auto-focalisation par plasma

Incluons maintenant la réponse plasma dans l'équation (2.48). En répétant la procédure variationnelle et en substituant au champ la forme donnée par l'équation (2.65), on obtient la relation suivante pour le rayon [67]:

$$\frac{M}{4P_c} R^3 \partial_z^2 R \simeq 1 - \mathcal{I} - \frac{R^2}{2P_c} \int \phi^2 \xi \partial_\xi \rho d\vec{\xi}, \quad (2.69)$$

où $M = \int \xi^2 \phi^2 d\vec{\xi}$ et le dernier terme décrit la génération de plasma. L'action du plasma d'électrons est de creuser le profil temporel de l'impulsion à travers un front d'ionisation qui défocalise sa partie arrière. En effet, en intégrant l'équation (2.49) après avoir substitué la forme du champ donnée par l'équation (2.65), on trouve

$$\rho \simeq \sqrt{\frac{\pi}{8K}} \Gamma\left(\frac{P_{in}}{P_{cr}} \phi^2\right)^K \frac{\text{erf}(\sqrt{2K}t) + 1}{R^{2K}[z_c(t) - z]} \quad (2.70)$$

où $\text{erf}(x) = (2/\sqrt{\pi}) \int_0^x e^{-u^2} du$ désigne la fonction d'erreur classique. Le dernier terme de l'équation (2.69) est de la forme $R^{2(1-K)} \partial_{\xi} \rho$ où $\partial_{\xi} \rho \sim \partial_{\xi} \phi^{2K}$ est négatif et la fonction $\text{erf}(\sqrt{2K}t) + 1$ est une fonction plateau nulle pour $t < 0$ et égale à 1 pour $t > 0$. Lorsque $R(z,t)$ décroît par auto-compression Kerr, ce terme croît soudain en-deça d'un certain rayon et toutes les tranches temporelles appartenant à l'intervalle $t > 0$ (donc à l'arrière de l'impulsion) sont défocalisées. Pour les temps négatifs (correspondant à l'avant de l'impulsion), l'impulsion continue à s'auto-focaliser et entretient la défocalisation plasma jusqu'à former une seule tranche temporelle localisée en un instant négatif [67]. Avec la dissipation MPA, la composante principale du profil temporel est en partie diminuée en intensité dans le rapport $\partial_z \mathcal{I}/\mathcal{I} \simeq -2\nu A(I/R^2)^{K-1}$. En conséquence, la puissance du faisceau diminue; la densité d'électrons atteint un niveau plus bas, et permet l'émergence d'une portion arrière qui se refocalise sous l'effet Kerr.

Pour résumer, en phase d'auto-focalisation le faisceau génère un plasma, qui défocalise fortement la partie arrière de l'impulsion et crée un pic à l'avant de l'impulsion. Une fois que l'intensité a suffisamment décrû par absorption non-linéaire, la génération de plasma cesse. L'arrière de l'impulsion peut alors se refocaliser, ce qui produit un profil temporel à deux pics [71]. En espace, la réponse plasma a une extension fixée par la distribution ϕ^{2K} ($K \gg 1$). Son rayon d'action est $\sim 1/\sqrt{K}$ plus petit que la taille du faisceau optique. Elle défocalise donc seulement le centre du faisceau et produit des anneaux spatiaux sur l'arrière de l'impulsion [72]. Pour des puissances suffisamment élevées, plusieurs cycles de focalisation et de défocalisation peuvent se manifester, entretenant ainsi l'auto-guidage de l'onde, comme l'atteste la figure 2.5 où sont représentées quelques caractéristiques lors de la propagation d'une impulsion Gaussienne. On peut y observer en particulier les cycles de focalisation/défocalisation, le décalage du maximum d'intensité vers les temps négatifs (l'avant de l'impulsion) ainsi que la formation d'anneaux spatiaux. Ces cycles caractérisent une propagation auto-guidée: sur 2 mètres, le filament se contracte autour d'une taille quasi-constante [Fig. 2.5.(c)], mais les fluctuations d'in-

tensité et les profils temporels [Figs 2.5(a) et 2.5(d)] démontrent que l'équilibre atteint par ce processus est non statique.

2.6 Auto-modulation de phase et génération de supercontinu

La non-linéarité Kerr crée un élargissement spectral à travers l'auto-modulation de phase. Cet effet peut se comprendre à l'aide de la résolution de l'équation simple $i\partial_z\psi - |\psi|^2\psi$ dont la solution exacte $\psi = \psi_0 e^{i|\psi_0|^2 z}$ [$\psi_0 \equiv \psi(z=0)$] décrit un décalage de phase induit sur le faisceau durant sa propagation. Ce décalage en phase dépend de l'intensité laser et est responsable de l'élargissement spectral en vertu de la relation $\Delta\omega = -\partial_t \arg(\psi)$ [1, 30]. L'extension du spectre en fréquence par l'action des non-linéarités Kerr conduit à la génération de supercontinu et à l'émission de lumière blanche pendant que l'intensité de l'onde augmente fortement à travers le processus d'auto-focalisation. Cet élargissement spectral est symétrique. L'évolution de ce "supercontinuum" en présence de génération de plasma a été le sujet d'intenses recherches depuis de nombreuses années [73]. En 1995, Gildenburg *et al.* [74] ont effectué des simulations numériques d'impulsions électromagnétiques ultra-courtes créant une chute du plasma due à l'ionisation en régime tunnel. D'importants décalages vers les bleus de l'ordre de $\Delta\omega/\omega_0 > 40\%$ ont été observés. A cette époque, ce "blueshift" était attribué à la génération de plasma, puisque la croissance du nombre d'électrons libres augmente la fréquence du plasma par $\omega_{pe}^2 = q_e^2 \rho / m_e \epsilon_0$, et implique un décalage positif en fréquence $\Delta\omega \sim \int_0^z \partial_t \rho dl$ [75]. Plus tard, des expériences avec les spectres ont révélé un "continuum de lumière blanche ultra-court" se produisant dans une grande variété de milieux condensés et gazeux, à condition que la puissance du faisceau excède la puissance critique d'auto-focalisation [76, 77]. Les élargissements spectraux apparaissent asymétriques, ce qui ne peut s'expliquer par l'auto-modulation de phase seule.

Puisque ce processus mixe toutes les composantes du spectre visible, le coeur du filament évolue comme un spot blanc, ce qui donne lieu à un "laser blanc" [78]. En notant $\varphi(\vec{r}, t)$ la phase de l'enveloppe lentement variable, la variation en fréquence est dictée par

$$\Delta\omega = -\partial_t \varphi \sim -k_0 z \partial_t (n_2 I - \rho / 2\rho_c), \quad (2.71)$$

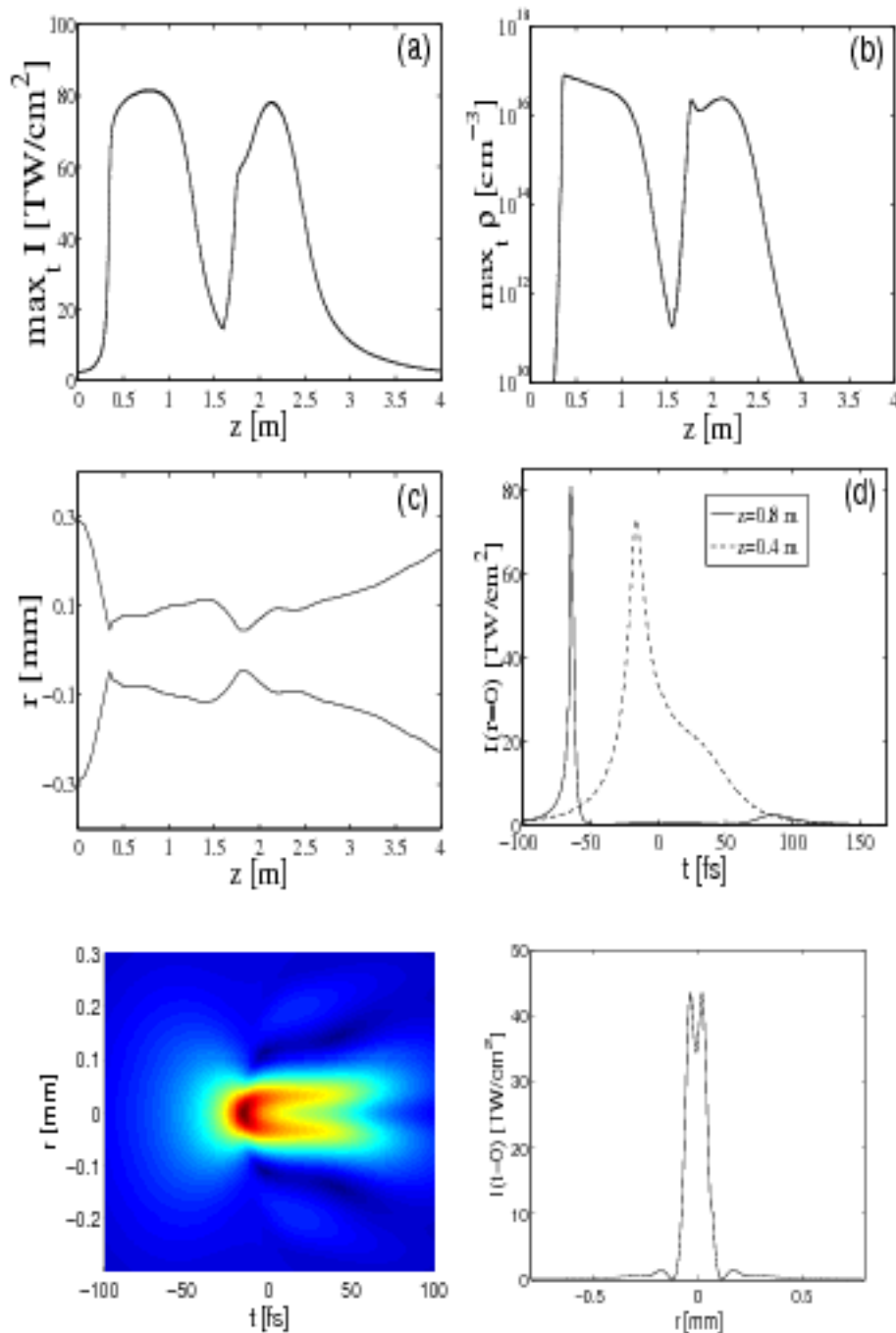


Figure 2.5 : (a) Propagation atmosphérique, maximum d'intensité, (b) densité d'électrons pour une impulsion Gaussienne, (c) rayon d'une impulsion ayant une durée initiale de 150 fs, un rayon initial de 0.5 mm et contenant $\frac{1}{4} P_{cr}$ ($k' = 0.2 \text{ fs}^2/\text{cm}$). (d) Profils temporels à deux distances de propagation successives: $z = 0.4$ m et $z = 0.8$ m. En insert, profils radiaux à z proche de $z_c \simeq 0.4$ m.

qui varie avec la superposition des effets Kerr et plasma. Aux abords du point de focalisation, seul le front avant survit à cette compétition, et un décalage vers le rouge est produit par la défocalisation plasma. Aux distances ultérieures, des séquences de focalisation/défocalisation relaxent le spectre vers les bleus alors que les composantes décalées vers le rouge décroissent en intensité. Ce “blueshift” est aussi amplifié par les phénomènes de raidissement T , T^{-1} qui créent un choc à l’arrière de l’impulsion et génèrent un plateau “bleu” dans le spectre [19] (cf. Fig. 2.2). Les asymétries causées par les premières phases de focalisation sont importantes; elles dessinent le spectre de l’impulsion qui sera préservé bien après les phases non-linéaires de propagation.

Le continuum de lumière blanche généré dans l’air par des impulsions laser ultra-courtes est essentiel pour les applications LIDAR, puisqu’il constitue la source de lumière utilisée dans la détection de polluants à distance. Cette lumière blanche a tout d’abord été caractérisée dans le domaine visible [73, 79]. J. Kasparian *et al.* ont ensuite étudié la région infrarouge [80]. Deux systèmes laser terawatt CPA (A: énergie 60-mJ, durée d’impulsion minimale 35-fs, diamètre FWHM du faisceau 25-mm; B: 100-200 mJ, durée d’impulsion minimale 100-fs, diamètre FWHM du faisceau 35-mm) furent utilisés en géométrie pour mesurer des spectres après 20 mètre de propagation “filamenteuse”. Illustrée dans la figure 2.6(a), la zone du continuum développée par le laser A est très étendue, avec une largeur totale de 4.5 μm . On observe une décroissance presque exponentielle sur 4 ordres de grandeur jusqu’à 3.5 μm , suivie par une décroissance plus lente au-delà. Comme montré dans la figure en insert, les variations d’énergie produites par le faisceau du système B font changer le spectre en intensité de seulement une décade dans certaines régions du spectre. Toutefois, la forme spectrale de ces différentes impulsions demeure quasiment similaire à une décade près. Pour comparaison, la figure 2.6(b) présente les spectres calculés numériquement à partir d’un faisceau de rayon 0.5 mm, $4P_{cr} \sim 10$ GW, et d’une durée d’impulsion de 100 fs après qu’un filament femtoseconde unique a été généré dans l’air [33]. Les formes des spectres numérique et expérimental sont clairement similaires.

2.7 Multifilamentation

Dans le contexte de l’optique non-linéaire, un faisceau intense se propageant dans un milieu Kerr peut se casser en plusieurs cellules résultant des inhomogénéités af-

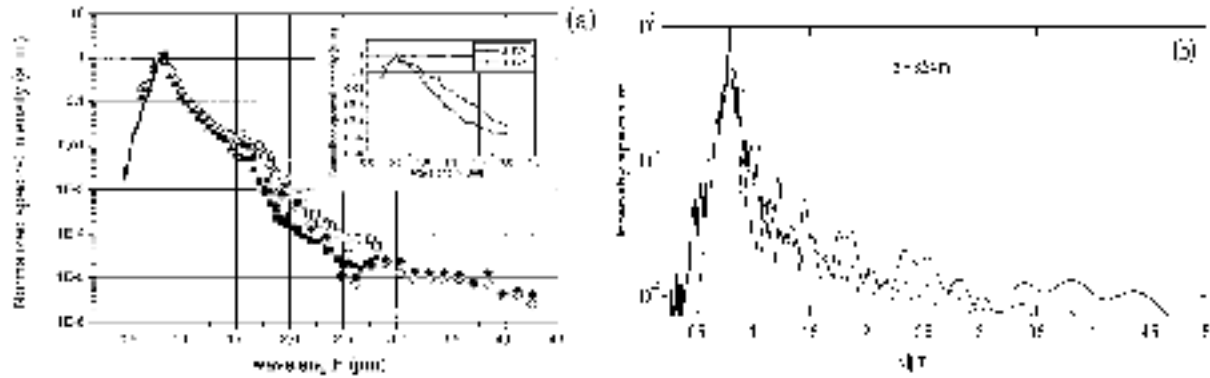


Figure 2.6 : (a) Spectres de lumière blanche produits par des impulsions laser TW (laser système A) ayant une durée initiale de 35 fs sans chirp (symboles noirs) et une durée initiale de 55 fs et un chirp négatif (symboles blancs). En insert, le spectre mesuré par le système laser B. Les deux courbes ont le même facteur de normalisation. (b) Spectres pour un filament unique calculés numériquement à partir de l'équation (2.47) complétée (courbe pleine) ou non (tirets) par de la génération de troisième harmonique (Ref. [33]).

fectant sa distribution initiale. Ce phénomène a été mis en évidence pour la première fois par des expériences d'auto-focalisation dans les liquides [12, 13] et les structures de petite taille en résultant sont couramment appelées "filaments". Puisqu'il concerne principalement les distorsions spatiales, ce processus de "multifilamentation" peut être appréhendé à partir de l'équation NLS adimensionnée (2.48), où les variations temporelles sont éliminées. Pour élaborer ce modèle, nous supposons que la réponse plasma contre-balance l'effet Kerr à une tranche temporelle $t \simeq t_c(z)$, où un unique pic de largeur T domine dans le profil de l'impulsion. Comme la réponse MPI peut raccourcir celui-ci à des durées atteignant 1/10 de sa valeur initiale [cf. Fig. 2.5(d)], T est pris égal à $T - 0.1$ (en unités t_p). Ce choix a été antérieurement validé par des comparaisons directes entre simulations 2D et 3D et confirmé par des expériences impliquant des faisceaux terawatt [81, 82]. Ainsi on décompose \mathcal{E} sous la forme

$$\mathcal{E}(x, y, z, t) = \psi(x, y, z) \times e^{-|t-t_c(z)|^2/T^2}, \quad (2.72)$$

où la distribution temporelle pour le plus haut pic d'intensité est supposée Gaussienne. Pour des applications ultérieures (multifilamentation atmosphérique), nous incluons désormais la version adimensionnée de la réponse Kerr retardée (2.17-2.19) dans les équations (2.48) et (2.49). En reportant l'expression (2.72) dans l'équation de pro-

pagation, en multipliant celle-ci par $e^{-|t-t_c(z)|^2/T^2}$ et en intégrant l'équation résultante sur tous les temps, nous supprimons GVD par une simple transformation de phase, et l'équation réduite gouvernant le profil spatial ψ s'exprime alors sous la forme:

$$i\partial_z\psi + \nabla_{\perp}^2\psi + f(|\psi|^2)\psi + i\nu|\psi|^{2K-2}\psi = 0, \quad (2.73)$$

$$f(|\psi|^2) = \alpha|\psi|^2 - \epsilon|\psi|^4 - \gamma|\psi|^{2K}, \quad (2.74)$$

où nous avons intégré la densité de plasma:

$$\rho \simeq \gamma|\psi|^{2K} \left\{ \operatorname{erf} \left[\frac{\sqrt{2K}(t-t_c(z))}{T} \right] + 1 \right\}. \quad (2.75)$$

Les coefficients α , ϵ , γ et ν sont définis par:

$$\alpha = 1/\sqrt{8} + D/4\tau'_K, \quad (2.76)$$

$$\epsilon = n_4 P_{cr} / (4\pi n_2 \sqrt{3} w_0^2), \quad (2.77)$$

$$\gamma = \sqrt{\pi/(8K)} T t_p k_0^2 \sigma_K (\rho_{ca}/\rho_c) (P_{cr}/4\pi)^K \times w_0^{2(1-K)}, \quad (2.78)$$

$$\nu = (k_0 \beta^{(K)} / \sqrt{K}) (P_{cr}/4\pi)^{(K-1)} \times w_0^{2(2-K)}, \quad (2.79)$$

avec $\tau'_K = \tau_K/t_p$. Le coefficient α prend en compte la réponse Kerr retardée à travers l'intégrale:

$$D = \int_{-\infty}^{\infty} e^{(T^2/8\tau_K^2) - (u/\tau'_K) - (2u^2/T^2)} \times \left[\operatorname{erf} \left(\frac{\sqrt{2}u}{T} - \frac{T}{\sqrt{8}\tau'_K} \right) + 1 \right] du. \quad (2.80)$$

Il est important de constater que seuls α et γ dépendent de t_p . Par exemple, pour la durée $t_p = 250$ fs, on a $\alpha = 0.446$, $\epsilon = 7.3 \times 10^{-7} [\text{cm}^2]/w_0^2$, $\gamma = 8.4 \times 10^{-40} [\text{cm}^{2(K-1)}]/w_0^{2(K-1)}$ et $\nu = 1.2 \times 10^{-38} [\text{cm}^{2(K-2)}]/w_0^{2(K-2)}$, où le rayon du faisceau w_0 est exprimé en cm. Afin de comprendre et étudier ce phénomène de multifilamentation, il est utile de rappeler brièvement la théorie perturbative d'ondes planes développée dans les Refs. [12, 13]. Pour cela, nous considérons une onde perturbée sous la forme $\psi = (\psi_0 + \delta\psi_1 e^{-i\mu z + i\vec{k} \cdot \vec{X}} + \delta\psi_2^* e^{i\mu^* z - i\vec{k} \cdot \vec{X}}) e^{i\lambda z}$, où λ est un paramètre constant. $\operatorname{Im}(\mu)$ est le taux de croissance de la perturbation; $\vec{k} = (k_x, k_y)$ est le nombre d'onde de celle-ci, et $\vec{X} = (x, y)$ le vecteur position dans le plan de diffraction (x, y) . En substituant cette forme dans l'équation (2.73) où l'on suppose les pertes non-linéaires faibles ($\nu \rightarrow 0$), et après linéarisation puis identification en $\delta\psi_1$ et $\delta\psi_2$, nous déduisons que μ vérifie l'équation aux valeurs propres suivante:

$$\tilde{L} \begin{pmatrix} \delta\psi_1 \\ \delta\psi_2 \end{pmatrix} = -\mu \begin{pmatrix} \delta\psi_1 \\ \delta\psi_2 \end{pmatrix}, \quad (2.81)$$

où

$$\widehat{L} = \begin{pmatrix} -\lambda - k^2 + g(\psi_0^2) & f'(\psi_0^2)\psi_0^2 \\ -f'(\psi_0^2)\psi_0^2 & \lambda + k^2 - g(\psi_0^2) \end{pmatrix} \quad (2.82)$$

avec $g(\psi_0^2) = f(\psi_0^2) + \psi_0^2 f'(\psi_0^2)$ et $k^2 = k_x^2 + k_y^2$. L'hypothèse d'onde plane appliquée à ψ_0 , $\nabla_{\perp}^2 \psi_0 = 0$, fournit alors la relation $\lambda = f(\psi_0^2)$, ce qui après substitution dans l'équation (2.82) et résolution du problème aux valeurs propres, fournit le taux de croissance de l'instabilité:

$$\text{Im}(\mu) = k[2f'(|\psi_0|^2)|\psi_0|^2 - k^2]^{\frac{1}{2}}. \quad (2.83)$$

Le nombre d'onde maximal de la perturbation $k_{\text{max}} = \sqrt{f'(|\psi_0|^2)|\psi_0|^2}$ correspond au taux de croissance maximal $\text{Im}(\mu)_{\text{max}} = f'(|\psi_0|^2)|\psi_0|^2 - k_{\text{max}}^2$. En supposant que les filaments sont régulièrement disposés dans le plan de diffraction, la distance les séparant est évaluée par $\lambda_{\text{mod}} = 2\pi/k_{\text{max}}$. Les estimations standard prévoient un nombre de filaments proche de $P_{\text{in}}/P_{\text{fil}}$, où P_{in} est la puissance du faisceau et P_{fil} la puissance contenue dans une cellule. En considérant que chaque filament possède une symétrie radiale, P_{fil} est évaluée par $P_{\text{fil}} = 2\pi \int_0^{\lambda_{\text{mod}}/2} r |\psi_0|^2 dr \simeq 2.65 P_{\text{cr}}/\alpha$ pour un milieu Kerr pur [83]. Ces arguments théoriques fournissent une estimation du nombre de filaments $N = P_{\text{in}}/P_{\text{fil}} \simeq p\alpha/2.65$ pour un faisceau de rapport en puissance $p \equiv P_{\text{in}}/P_{\text{cr}}$. Le taux de croissance maximal $\text{Im}(\mu)_{\text{max}}$ définit la distance longitudinale de filamentation, $z_{\text{fil}} \sim \text{Im}(\mu)_{\text{max}}^{-1}$ proportionnelle à $1/p$ [13, 69], le long de laquelle les filaments croissent de manière exponentielle.

Chapitre 3

Non-linéarités optiques d'ordre élevé

Lors de la propagation d'un faisceau laser ultra-court, un équilibre dynamique entre des effets focalisant et défocalisant se met en place, permettant ainsi la propagation auto-guidée de l'impulsion, jusqu'à ce que celle-ci, perdant trop d'énergie à cause des pertes par absorption multiphotonique (MPA), diffracte. L'effet Kerr causé par l'indice non-linéaire du milieu focalise l'impulsion en espace, tandis que l'ionisation des molécules ambiantes la défocalise. Dans l'air, cet équilibre dynamique permet la formation d'un canal auto-guidé qui résulte en une structure filamenteuse appelée "filament femtoseconde" d'énergie ~ 1 mJ, de diamètre $\sim 100 - 150 \mu\text{m}$, et atteignant des pics d'intensité de l'ordre de $10^{13} - 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (cf. Fig. 2.5). On admet couramment que dans les gaz et dans l'air en particulier la génération de plasma est le processus majeur permettant l'arrêt du collapse. Pourtant d'autres phénomènes de saturation ont été proposés, participant à l'équilibre dynamique du filament. Dans ce chapitre, nous examinons l'effet d'une non-linéarité optique d'ordre supérieur comme processus intervenant dans la saturation de l'auto-focalisation Kerr: la non-linéarité quintique $\chi^{(5)}$. Son étude remonte à quelques années pour des faisceaux continus. Elle est ici développée pour des faisceaux pulsés.

Dans le développement du terme de polarisation (voir chapitre 2), le terme en $\chi^{(3)}|E|^2E$ correspond à l'effet Kerr cubique, tandis que le terme d'ordre supérieur correspondant à la non-linéarité quintique [Eq. (2.12)] est $\chi^{(5)}|E|^4E$, où $\chi^{(5)}$ provient du tenseur de susceptibilité d'ordre 5. Afin d'évaluer sa valeur dans l'air, on utilise la re-

lation suivante satisfaite par les composantes $\chi^{(j)}$ ($j \geq 3$) du tenseur de susceptibilité [1, 2, 84]

$$\frac{\chi^{(k+1)}}{\chi^{(k)}} \cdot \frac{E^{k+1}}{E^k} = \left| \frac{E}{E_{\text{at}}} \right| \ll 1, \quad (3.1)$$

où $|E_{\text{at}}|$ est l'amplitude du champ électrique atomique ($E_{\text{at}} \simeq 3 \times 10^8$ V/cm) d'intensité $I_{\text{at}} > 10^{14}$ W/cm². Typiquement l'évaluation $\chi^{(5)}/\chi^{(3)} \sim 10^{-12}$ est valable pour les interactions non-résonnantes dans les gaz. Malgré le manque de connaissance sur le signe de $\chi^{(5)}$ [85], on attend de la susceptibilité quintique qu'elle sature la focalisation Kerr [86]. Puisque la relation donnée par l'équation (3.1) suggère une décroissance rapide de $\chi^{(j)}$ avec j , nous tronquons la série de Taylor par rapport au champ électrique au cinquième ordre. De même que le terme Kerr s'écrit $+ik_0 n_2/n_0 |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E}$ lorsqu'il intervient dans l'équation (2.47), celui en $\chi^{(5)}$ apparaît comme $-ik_0 n_4/n_0 |\mathcal{E}|^4 \mathcal{E}$, où $n_4 = 5|\chi^{(5)}|/(4n_0^3 c^2 \epsilon_0^2) > 0$ pour une susceptibilité $\chi^{(5)}$ défocalisante. Nous supposons son caractère défocalisant, ce qui justifie le signe négatif de cette contribution. Afin de savoir si la non-linéarité quintique doit ou non être prise en compte, il est intéressant d'évaluer le seuil d'intensité, c'est à dire l'intensité pour laquelle les effets focalisant et défocalisant se compensent exactement. Si ce seuil est modifié notablement lorsque la susceptibilité quintique est prise en compte, cela implique que cette dernière joue un rôle non négligeable dans la saturation de l'intensité et qu'elle participe ainsi à l'auto-guidage du faisceau.

Le coefficient n_4 n'ayant pas de valeur connue, on s'appuie sur les travaux de N. Aközbek *et al.* [18, 19] qui utilisent la valeur $n_4 = 10^{-32}$ cm⁴/W² pour l'Argon. Pour des gaz rares avec un potentiel d'ionisation proche de celui de l'oxygène, n_4 est dans l'intervalle $10^{-33} - 10^{-32}$ cm⁴/W². Sachant cela, nous testerons dans l'étude qui suit trois valeurs de n_4 différentes: $n_4 = 10^{-32}$ cm⁴/W² (n_4 fort), $n_4 = 2.5 \times 10^{-33}$ cm⁴/W² (n_4 faible), et enfin $n_4 = 0$ (aucune non-linéarité optique saturante).

3.1 Un paramètre clé de l'auto-guidage: le seuil d'intensité

Nous écrivons l'équation de propagation de l'onde en faisant apparaître un indice optique effectif $\Delta n/n_0$ prenant en compte la compétition entre les effets Kerr instantané

et Raman-retardé, la saturation quintique et la génération de plasma sous la forme:

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} - \frac{i}{2k_0} \nabla_{\perp}^2 \mathcal{E} - i \frac{k''}{2} \partial_t^2 \mathcal{E} + ik_0 \frac{\Delta n}{n_0} \mathcal{E} - \frac{\beta(|\mathcal{E}|^2)}{2} \mathcal{E} - \frac{\sigma}{2} \rho \mathcal{E}, \quad (3.2)$$

$$\frac{\Delta n}{n_0} \equiv n_2 R(t) - n_4 |\mathcal{E}|^4 - \frac{\rho}{2\rho_c}, \quad (3.3)$$

$$R(t) \equiv (1 - \theta) |\mathcal{E}(t)|^2 + \frac{\theta}{\tau_K} \int_{-\infty}^t e^{-(t-t')/\tau_K} |\mathcal{E}(t')|^2 dt', \quad (3.4)$$

$$\partial_t \rho - W(|\mathcal{E}|^2) \rho_{nt} + \frac{\sigma}{U_i} \rho |\mathcal{E}|^2, \quad (3.5)$$

où nous négligeons la recombinaison électronique, faible dans les gaz [$f(\rho) \simeq 0$]. Nous considérons la longueur d'onde $\lambda_0 = 800$ nm, une dispersion de la vitesse de groupe avec un coefficient $k'' = 0.2$ fs/cm² et une densité de plasma critique $\rho_c = 1.8 \times 10^{21}$ cm⁻³. La réponse Kerr du milieu est caractérisée par un coefficient $n_2 = 4 \times 10^{-19}$ cm²/W. Seule l'ionisation des molécules d'O₂ est prise en compte avec un potentiel d'ionisation $U_i = 12.1$ eV et une densité initiale d'espèces neutres $\rho_{nt} = 5.4 \times 10^{18}$ cm⁻³. Les derniers termes de l'équation (3.2) sont reliés à l'absorption multiphotonique (MPA) exprimée par le terme $\beta(|\mathcal{E}|^2) \equiv \rho_{nt} W(|\mathcal{E}|^2) U_i / |\mathcal{E}|^2$ et à l'ionisation par avalanche avec une section efficace pour le Bremsstrahlung inverse évaluée par $\sigma = 5.44 \times 10^{-20}$ cm². Le seuil d'intensité est donné par les zéros de la relation $\Delta n/n_0 = 0$. Afin d'effectuer les calculs, il faut exprimer la densité d'électrons libres ρ en fonction de l'intensité pour une durée d'impulsion donnée t_p . Nous allons donc utiliser l'équation décrivant la génération de plasma (3.5). Nous modélisons l'impulsion par un profil temporel Gaussien $\mathcal{E} = \sqrt{I} e^{-t^2/t_p^2}$. En intégrant l'équation d'évolution du plasma ($\partial_t \rho \simeq \rho/t_p$), que nous reportons dans l'indice optique effectif, la relation $\Delta n/n_0 = 0$ se réexprime sous la forme:

$$AI - \frac{\rho_{nt} t_p}{2\rho_c n_2} \times W(I) - BI^2 = 0, \quad (3.6)$$

où A est le coefficient de pondération de n_2 dû au fait que la réponse Kerr est composée d'une partie instantanée et d'une fraction θ retardée par diffusion Raman:

$$A = \max_t \left[\frac{e^{-2t^2}}{2} + \frac{1}{2\tau_K} \int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_K} - 2t'^2} dt' \right], \quad (3.7)$$

où $\bar{\tau}_K = \tau_K/t_p$ (fs). Pour $t_p = 42.5$ fs, les calculs fournissent $A = 0.66$, B représente le rapport entre saturation quintique et effet Kerr:

$$B = \left(\frac{n_4}{n_2} \right) e^{-4t_{\max}^2}, \quad (3.8)$$

où t_{max} désigne la valeur de t où la réponse Kerr est maximale.

$W(I)$ représente le taux d'ionisation. Celui-ci est classiquement décrit par le modèle PPT [45] (voir Annexe A). Pour les faibles intensités, ce taux couvre le domaine d'ionisation multiphotonique, $W(I) = \sigma_K I^K$, où K est le nombre de photons nécessaires pour l'ionisation. Pour des intensités plus grandes $I \geq 5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, c'est l'ionisation par effet tunnel qui prévaut. Afin de faciliter le calcul, on utilise une interpolation de $W(I)$ qui est construite comme suit:

$$\log_{10}(W) = a_1[\log_{10}(I)]^{b_1} + c_1, \quad (3.9)$$

pour $10^{12} \text{ W/cm}^2 < I < 6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, a_1 , b_1 , et c_1 désignant les constantes appropriées pour cet intervalle, et

$$\log_{10}(W) = a_2[\log_{10}(I)]^{b_2} + c_2, \quad (3.10)$$

pour $6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2 < I < 10^{15} \text{ W/cm}^2$, a_2 , b_2 , et c_2 sont des constantes calculées par interpolation sur ce dernier intervalle. La figure 3.1 compare le modèle PPT et notre interpolation pour le taux d'ionisation.

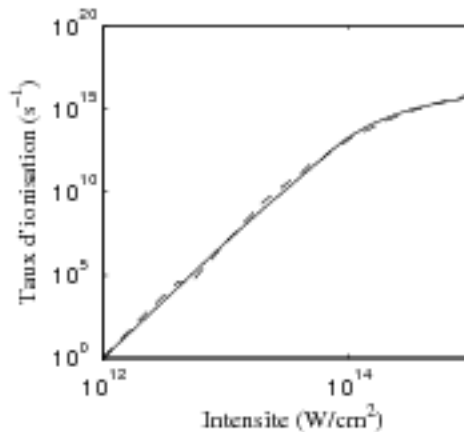


Figure 3.1 : Taux d'ionisation $W(I)$ en fonction de l'intensité laser suivant le modèle PPT (courbe en tirets) et l'interpolation correspondant aux équations (3.9) et (3.10) (courbe pleine).

Cette interpolation est utilisée pour résoudre l'équation (3.6) et en extraire ses racines. La figure 3.2 montre le seuil d'intensité pour les différentes valeurs de n_4 testées, $\theta = 1/2$, et aussi un cas avec $\theta = 0.2$ et n_4 faible, afin d'éclaircir l'importance du rapport Kerr instantané/Kerr retardé dans le processus de saturation. Même une

valeur faible de n_4 contribue à faire baisser le seuil d'intensité. Plus cette valeur est forte, plus le seuil est abaissé. Par ailleurs, on remarque que pour des faibles n_4 , le seuil décroît en fonction de la durée de l'impulsion, alors qu'il augmente pour n_4 fort. Quelle que soit la valeur de la saturation quintique, elle participe à faire baisser le seuil d'intensité, engendrant des pertes d'énergie moindres par MPA. Cette propriété favorise la "survie" du filament sur de longues distances. Notons aussi le rôle important joué par le rapport θ dans la réponse Kerr: une valeur plus faible de θ augmente le poids des non-linéarités cubiques instantanées; le seuil d'intensité du filament s'en trouve alors augmenté.

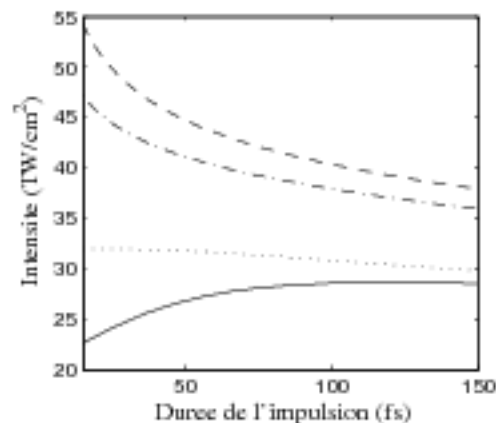


Figure 3.2 : Seuils d'intensité, I_{th} , réalisant $\Delta n/n_0 = 0$ pour $n_4 = 0$ (tirets), $n_4 = 2.5 \times 10^{-33} \text{ cm}^4/\text{W}^2$ (tirets-points) et $n_4 = 10^{-32} \text{ cm}^4/\text{W}^2$ pour $\theta = 0.5$ (courbe pleine) et $\theta = 0.2$ (pointillés).

3.2 Méthode variationnelle à deux échelles

Pour approcher la dynamique de l'impulsion, nous considérons le modèle (2.47) dérivé dans le chapitre 2, où les hypothèses simplificatrices suivantes sont appliquées. La partie retardée de l'effet Kerr est moyennée de telle sorte que la réponse totale Kerr peut être décrite par une contribution instantanée d'indice non-linéaire effectif $\bar{n}_2 = A \times n_2$ [voir Eq. (3.7)]. Pour des impulsions femtosecondes, l'ionisation par avalanche ($\sim \sigma$) est négligée et nous supposons une réponse plasma de type MPI. À partir de l'adimensionnement fait en section 2.2, les équations de propagation s'expriment sous

la forme:

$$i\partial_z \mathcal{E} + \nabla_{\perp}^2 \mathcal{E} + |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} - \delta \partial_t^2 \mathcal{E} - \rho \mathcal{E} + i\nu |\mathcal{E}|^{2K-2} \mathcal{E} - \chi_5 |\mathcal{E}|^4 \mathcal{E} = 0, \quad (3.11a)$$

$$\partial_t \rho - \Gamma |\mathcal{E}|^{2K}, \quad (3.11b)$$

où n_2 est remplacé par \bar{n}_2 et le coefficient χ_5 est relié au coefficient physique n_4 par la relation $\chi_5 = (n_4/\bar{n}_2)P_{cr}/4\pi\omega_0^2$.

En partant de cette équation, nous allons maintenant utiliser une méthode variationnelle originellement développée par Anderson et ses collaborateurs pour les systèmes NLS [87, 88, 89, 90, 91]. Notre méthode implique deux échelles décrivant les longueurs transverse et temporelle, $R(z)$ et $T(z)$ du paquet d'ondes. Elle contient aussi une fonction de perte en puissance $J(z)$ pour la dissipation MPA. L'enveloppe de l'onde est modélisée par la Gaussienne:

$$\mathcal{E} = \frac{\sqrt{J(z)}}{R(z)\sqrt{T(z)}} \phi(\xi, \eta) e^{iR_z(z)R(z)\xi^2/4 - iT_z(z)T(z)\eta^2/4\delta}, \quad (3.12)$$

où $\phi = e^{-\xi^2/2 - \eta^2/2}$, $\xi \equiv \sqrt{x^2 + y^2}/R(z)$, $\eta \equiv t/T(z)$, $\partial_z R \equiv R_z$ et $\partial_z T \equiv T_z$. Les fonctions $R(z)$ et $T(z)$ sont normalisées par rapport au rayon (mesuré au niveau $1/e^2$ de la fluence) du faisceau w_0 et à sa durée t_p respectivement. La procédure variationnelle est construite à partir des étapes suivantes.

Tout d'abord, on définit les rayons carrés moyens transverse et temporel de l'impulsion par:

$$\langle r^2 \rangle = \frac{\int r^2 |\psi^2| d\vec{r} dt}{\int |\psi^2| d\vec{r} dt} \quad (3.13)$$

$$\langle t^2 \rangle = \frac{\int t^2 |\psi^2| d\vec{r} dt}{\int |\psi^2| d\vec{r} dt}. \quad (3.14)$$

Pour dériver les équations satisfaites par $\langle r^2 \rangle$ et $\langle t^2 \rangle$, nous multiplions l'équation NLS (3.11a) par $x_j^2 \psi^*$ ($j = x, y, t$), et intégrons la partie imaginaire en espace et en temps. Dans une seconde étape, nous multiplions la même équation par $x_j \partial_j \psi^*$ ($\partial_j = \partial_x, \partial_y, \partial_t$). Quelques manipulations algébriques nous permettent d'obtenir les relations gouvernant l'évolution des rayons carrés moyens transverse et temporel du faisceau

$$\partial_z^2 \langle r^2 \rangle = \frac{4}{P} [2 \int |\nabla_{\perp} \psi|^2 d\vec{r} dt - \int |\psi|^4 d\vec{r} dt - \int |\psi|^2 \vec{r} \cdot \vec{\nabla}_{\perp} \rho d\vec{r} dt] + \dots \quad (3.15)$$

$$\partial_t^2 \langle t^2 \rangle = \frac{4\delta}{P} [2\delta \int |\partial_t \psi|^2 d\vec{r} dt + \frac{1}{2} \int |\psi|^4 d\vec{r} dt + \int |\psi|^2 t \partial_t \rho d\vec{r} dt] + \dots \quad (3.16)$$

où les points représentent les termes dûs aux pertes et à la saturation $\chi^{(5)}$ que nous avons volontairement omis par souci de clarté. En reportant la forme du faisceau donnée par l'équation (3.12) dans ces identités, nous obtenons le système dynamique suivant pour les tailles transverse et temporelle $R(z)$ et $T(z)$:

$$\begin{aligned} \frac{1}{4}R^3\partial_z^2R &= 1 - J\frac{P_{\text{in}}/P_{\text{cr}}}{2T} + \frac{16}{9\sqrt{3}}\frac{J^2\chi_5}{R^2T^2}(P_{\text{in}}/P_{\text{cr}})^2 + J^\kappa\frac{\Gamma\sqrt{\pi K}}{(K+1)^2}\frac{(2\sqrt{2}P_{\text{in}}/P_{\text{cr}})^\kappa}{R^{2(K-1)}T^{K-1}} \\ &\quad - \frac{\nu(K-1)}{4K^{5/2}}R^4\left(\frac{2\sqrt{2}JP_{\text{in}}/P_{\text{cr}}}{R^2T}\right)^{K-1}\left[\frac{2\nu}{\sqrt{K}}\left(\frac{2\sqrt{2}JP_{\text{in}}/P_{\text{cr}}}{R^2T}\right)^{K-1}\right. \\ &\quad \left.+ (K-1)\frac{\partial_z T}{T} + 2(K-3)\frac{\partial_z R}{R}\right], \end{aligned} \quad (3.17)$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{4}T^3\partial_z^2T &= \delta\left[\delta + J\frac{TP_{\text{in}}/P_{\text{cr}}}{2R^2} - \frac{16}{9\sqrt{3}}\frac{J^2\chi_5}{R^4}(P_{\text{in}}/P_{\text{cr}})^2\right] \\ &\quad - \frac{\nu(K-1)}{4K^{5/2}}T^4\left(\frac{2\sqrt{2}JP_{\text{in}}/P_{\text{cr}}}{R^2T}\right)^{K-1}\left[\frac{2\nu}{\sqrt{K}}\left(\frac{2\sqrt{2}JP_{\text{in}}/P_{\text{cr}}}{R^2T}\right)^{K-1}\right. \\ &\quad \left.+ 2(K-1)\frac{\partial_z R}{R} + 2(K-5)\frac{\partial_z T}{T}\right], \end{aligned} \quad (3.18)$$

$$\partial_z J = -\frac{2\nu}{K^{3/2}}J^\kappa\left(\frac{2\sqrt{2}P_{\text{in}}/P_{\text{cr}}}{R^2T}\right)^{K-1}, \quad (3.19)$$

Dans le membre de droite de l'équation (3.17), le premier terme correspond à la diffraction, le second à la réponse Kerr, le troisième à la susceptibilité $\chi^{(5)}$ et le quatrième à la réponse MPI. Les dernières contributions représentent les pertes MPA.

Pour le profil initial Gaussien adimensionné

$$\mathcal{E} = \sqrt{8P_{\text{in}}/P_{\text{cr}}}\exp^{-(x^2+y^2)-t^2}, \quad (3.20)$$

Nous identifions $R(0) = T(0) = 1/\sqrt{2}$, $\partial_z R(0) = \partial_z T(0) = 0$, et $J(0) = 2\sqrt{2}P_{\text{in}}/P_{\text{cr}}$. Un rapide calcul fournit alors le maximum d'intensité sur l'axe (I_{max}) et la densité d'électrons maximale (ρ_{max}):

$$I_{\text{max}}(z) = \frac{R(0)^2T(0)J(z)}{R(z)^2T(z)J(0)}J_0, \quad (3.21)$$

$$\rho_{\text{max}}(z) = \sqrt{\pi/2K}t_p\sigma_K\rho_{\text{nl}}I_0^K\left[\frac{R(0)}{R(z)}\right]^{2K}\left[\frac{T(0)}{T(z)}\right]^{K-1}J(z). \quad (3.22)$$

La figure 3.3 présente, pour les trois valeurs de n_4 précisées plus haut, la longueur transverse $R(z)$, la longueur temporelle $T(z)$ ainsi que le coefficient de perte d'énergie $J(z)$ en fonction de la distance de propagation pour une impulsion de longueur d'onde $\lambda_0 = 800$ nm, de durée $t_p = 42$ fs, et de puissance $P_{\text{in}} = 10P_{\text{cr}}$. On remarque que

l'existence de la saturation quintique favorise l'auto-guidage de l'impulsion puisque plus n_4 est fort, et plus le rang de propagation est grand, avant que n'intervienne la diffraction finale du faisceau (où R et T divergent). En parallèle, les pertes en énergie dûes au MPA sont d'autant plus faibles (J décroît plus lentement). La figure

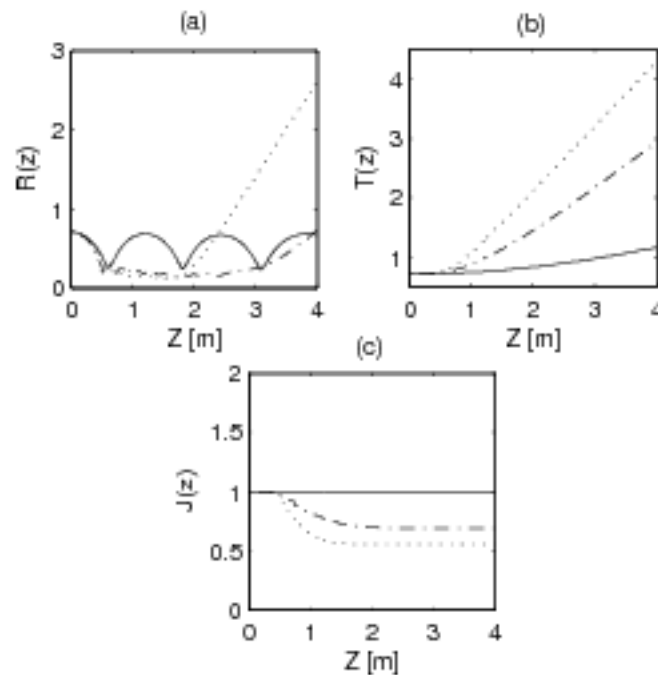


Figure 3.3 : (a) Rayon transverse $R(z)$, (b) rayon temporel $T(z)$ et (c) facteur d'intensité $J(z)$ en fonction de la distance de propagation pour trois valeurs de n_4 différentes: $n_4 = 0$ (pointillés), $n_4 = 2.5 \times 10^{-32} \text{cm}^4/\text{W}^2$ (tirets-points) et $n_4 = 1 \times 10^{-32} \text{cm}^4/\text{W}^2$ (courbe pleine).

3.4 présente le maximum d'intensité ainsi que le maximum de densité électronique calculés sur l'axe en fonction de la distance de propagation pour les trois valeurs de n_4 étudiées. Plus la valeur de n_4 est grande, et plus le seuil d'intensité s'en trouve diminué, donc moins la génération de plasma est importante. Il est à noter aussi que pour $n_4 = 1 \times 10^{-32} \text{cm}^4/\text{W}^2$, la densité de plasma atteint des valeurs suffisamment faibles ($\rho_{\text{max}} \leq 10^{15} \text{W}/\text{cm}^2$) pour que l'impulsion se comporte en fait comme un soliton optique dans un milieu Kerr saturé. Ce comportement est caractérisé par la périodicité des oscillations des maximums d'intensité et de densité d'électrons, ainsi que du rayon transverse $R(z)$ dans la figure 3.3.

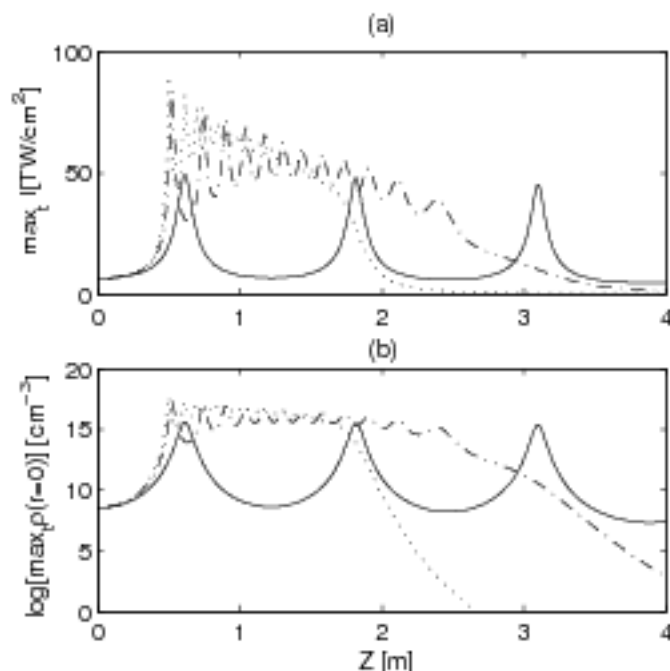


Figure 3.4 : (a) Intensités et (b) densités maximales en fonction de la distance de propagation pour $n_4 = 0$ (pointillés), $n_4 = 2.5 \times 10^{-33} \text{cm}^4/\text{W}^2$ (tirets-points) et $n_4 = 1 \times 10^{-32} \text{cm}^4/\text{W}^2$ (courbe pleine).

3.3 Résultats numériques 2D et 3D

Même si elle permet une approche du problème, la méthode variationnelle ne fournit pas de résultats exacts puisque l'onde est modélisée par une enveloppe Gaussienne en temps et en espace, qui est supposée inchangée au cours de la propagation. Cette hypothèse n'est pas valide dès que des distorsions temporelles affectent le profil temporel du faisceau. Afin d'affiner ces comportements, il est nécessaire de simuler numériquement la propagation de l'onde laser, en symétrie radiale (r, t, z) tout d'abord, puis en géométrie 3D (x, y, z, t) ensuite.

Pour les simulations à symétrie radiale, nous avons utilisé le code de propagation (2+1) radial du CEA de Bruyères-le-Châtel. Des schémas numériques pour l'ensemble des codes de propagation sont détaillés en annexe (Annexe B). L'impulsion initiale est la même que celle utilisée dans la méthode variationnelle à deux échelles. Pour un rayon de $w_0 = 0.5 \text{ mm}$ et une durée de l'impulsion $t_p = 42 \text{ fs}$, nous avons utilisé une boîte de simulation de taille $6t_p$ en temps (8192 points) et $5w_0$ en espace (2048 points), ce qui conduit à une résolution de $3 \times 10^{-2} \text{ fs}$ en temps et $1.2 \mu\text{m}$ en espace.

La figure 3.5 présente le maximum d'intensité, le rayon moyen, le maximum de densité électronique, ainsi que l'énergie de l'onde en fonction de la distance de propagation pour les trois valeurs standard de n_4 . Ces résultats confirment ceux indiqués par la méthode variationnelle à deux échelles: la saturation quintique $\chi^{(5)}$ abaisse le seuil d'intensité [Fig. 3.5(a)] augmentant ainsi le rang d'auto-guidage [Fig. 3.5(b)] dicté par les pertes MPA. Ce rang approché par l'intervalle longitudinal $\frac{1}{\Delta z} \sim \frac{\beta(I)}{2} \sim I_{\max}^{K-1}$ augmente avec des intensités de saturation moindres [Fig. 3.5(d)], ce qui justifie la robustesse du filament pour $n_4 \neq 0$ [Fig. 3.5(d)]. En retour, la densité d'électrons est diminuée, même si elle conserve un niveau maximal relativement élevé $\rho_{\max} \simeq 10^{15} - 10^{16} \text{cm}^{-3}$ [Fig. 3.5(c)].

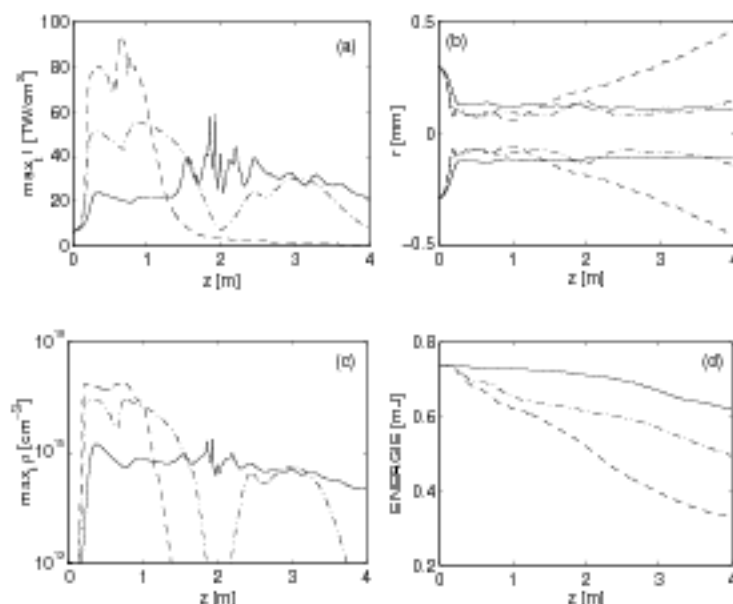


Figure 3.5 : (a) Maximum d'intensité, (b) rayon moyen de la distribution de fluence $\mathcal{F} = \int_{-\infty}^{\infty} |\mathcal{E}|^2 dt$, (c) maximum de densité électronique, et (d) pertes en énergie pour une impulsion de 42 fs, un rayon de 0.5 mm pour $n_4 = 0$ (tirets), n_4 faible (tirets-points) et n_4 fort (courbe pleine).

La saturation quintique a aussi un effet local sur les coupes en temps et sur le spectre en puissance. La figure 3.6(a) détaille le profil temporel de l'impulsion à une distance $z = 0.9$ m pour les mêmes valeurs de n_4 . En l'absence de saturation quintique, le scénario classique de propagation auto-guidée est observé dans la distribution temporelle: lors de la défocalisation plasma, un pic domine à l'avant de l'impulsion

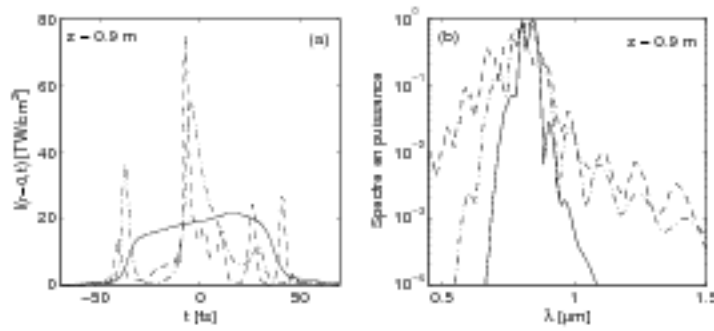


Figure 3.6 : (a) Profil temporel et (b) spectre en puissance à $z = -0.9$ m pour l'impulsion utilisée dans la figure 3.5 utilisant la même convention pour le style de trait.

($t < 0$) avant que la génération de plasma ne soit stoppée, et que l'arrière de l'impulsion ($t > 0$) ne se refocalise à son tour. En présence de saturation quintique, le profil tend à se symétriser autour de $t = 0$ et son maximum d'intensité diminue fortement prouvant ainsi que la génération de plasma n'est plus l'effet de saturation dominant. De même le spectre en longueurs d'ondes [Fig. 3.6(b)], dont l'étendue est gouvernée par l'auto-modulation de phase et donc le rapport de l'intensité maximale sur la durée de l'impulsion [30], se rétrécit sous l'effet de la saturation quintique et se symétrise autour de la longueur d'onde principale $\lambda_0 = 800$ nm.

Afin de terminer cette étude consacrée à la susceptibilité $\chi^{(5)}$ dans la propagation d'une impulsion ultra-courte, nous envisageons maintenant la simulation 3D d'une impulsion de taille réaliste, afin de pouvoir étudier les conséquences de la saturation quintique sur une figure de filamentation proches de situations expérimentales. L'impulsion initiale, correspondant à un faisceau utilisé expérimentalement est donnée par

$$\mathcal{E}(z = 0) = \sqrt{I_0} \exp(-[(x^2 + y^2)/w_0^2]^{3/2} - t^2/t_p^2) [1 + 0.1 \times \text{bruit}] \quad (3.23)$$

L'intensité maximale d'entrée est $I_0 \simeq 0.7$ TW/cm², le rayon du faisceau est $w_0 = 3$ mm, la durée de l'impulsion est $t_p = 42$ fs, et sa puissance initiale $P_{in} = 28P_{cr}$, où $P_{cr} = 2.54$ GW. Afin de pouvoir observer la filamentation, qui est induite par les inhomogénéités du faisceau initial, nous avons introduit un bruit blanc noté "bruit" (un nombre aléatoire entre 0 et 1 pour chaque point du maillage et calculé sur le champ initial) qui peut modifier l'amplitude du champ au maximum de 10%. Nous avons utilisé une boîte de simulation de taille $6t_p$ en temps (1024 points) et $6w_0$ en x et en y (1024^2), ce qui conduit à une résolution de 0.2 fs en temps et 17 μ m en espace.

Remarquons que, si dans le code radial la résolution était largement suffisante, elle est ici calculée au plus juste de manière à obtenir des quantités de données raisonnables (à chaque pas en z , le tableau du champ discrétisé dans la boîte numérique reste de taille comparable au Go). Elle est aussi suffisamment fine en espace pour décrire le filament et son canal plasma (diamètres respectifs de 150 et 50 μm environ), et suffisamment fine en temps pour décrire le raccourcissement de l'impulsion jusqu'au cycle optique. Le filament étant de diamètre $\sim 100 \mu\text{m}$, et les pics en temps de largeur $\sim 1 \text{ fs}$, on voit que la résolution utilisée est convenable. Par ailleurs, le calcul étant distribué sur 128 processeurs, la taille du tableau stocké à chaque pas en temps par un processeur est de l'ordre de $\sim 1024/128 \times 1024 \times 1024 \sim 1 \text{ Go}$, ce qui est à la limite des capacités mémoire de la machine. La simulation de la propagation de l'impulsion sur 10 m a nécessité ~ 150 heures de calcul qui ont été réalisés sur la machine TERA du CEA de Bruyères-le-Châtel. Des précisions sur la méthode numérique mise en oeuvre pour ces simulations sont présentées en Annexe B.

La figure 3.7 compare les fluences calculées pour une impulsion de 42 fs et 3 mm de rayon à différentes distances de propagation à partir de simulations numériques 3D [Fig. 3.7 (a-f)] à des données expérimentales collectées pour les mêmes paramètres de faisceau (cf. Ref. [92], [Insert de la figure 3.7]). Pour ces simulations numériques, deux valeurs de n_4 ont été prises en compte: $n_4 = 0$ [Fig 3.7(a)-3.7(c)] et $n_4 = 10^{-32} \text{ cm}^4/\text{W}^2$ [Fig 3.7(d)-(f)]. Expérimentalement, à $z = 4.5 \text{ m}$, deux "spots" résultant de l'instabilité modulationnelle du faisceau s'auto-focalisent, et restent robustes sur quelques mètres. Ils fusionnent à $z = 8.5 \text{ m}$ en un seul filament qui garde sa forme sur plusieurs mètres [92]. Les simulations restituent les comportements suivants: pour $n_4 = 0$ à $z = 3.7 \text{ m}$, on observe de nouveau les deux "spots" résultant de l'instabilité modulationnelle, mais ceux-ci se cassent rapidement en six ou sept cellules. Les deux sous-faisceaux primaires ne sont plus robustes comme dans l'expérience. Une simple estimation permet de prévoir le nombre de filaments $N \sim P_{\text{in}}/P_{\text{fil}}$, où $P_{\text{fil}} \simeq \pi^2 P_{\text{cr}}/4A$ [14], ce qui donne $N \sim 7$. Ces filaments fusionnent en un seul lobe central à $z = 6.5 \text{ m}$. Pour la valeur $n_4 = 10^{-32} \text{ cm}^4/\text{W}^2$, on observe toujours les deux premiers filaments résultant de l'instabilité modulationnelle. Cependant, ceux-ci ne se décomposent pas en filaments secondaires et fusionnent en un seul à $z = 6.5 \text{ m}$. Le scénario de filamentation obtenu, et en particulier le nombre de filaments observés lors de la prise en compte d'une

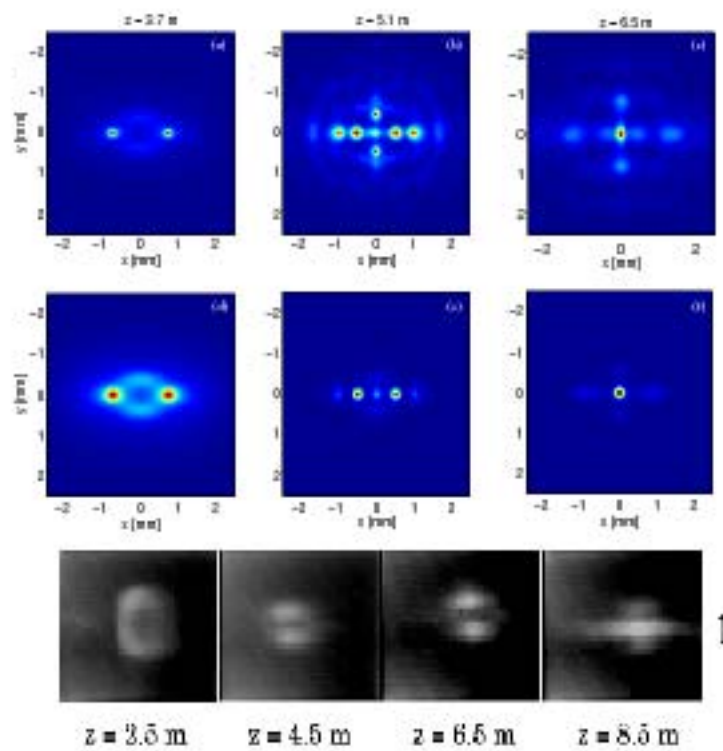


Figure 3.7 : Distribution de fluence pour une impulsion de 42 fs et 3 mm de rayon, à différentes distances de propagation pour (a),(b),(c) $n_4 = 0$ et (d),(e),(f) $n_4 = 10^{-32} \text{ cm}^4/\text{W}^2$. Dans l'insert (dernière ligne), des fluences expérimentales sont relevées à des distances comparables pour une impulsion ayant des paramètres de faisceau identiques. La flèche indique un longueur de 2 mm [92].

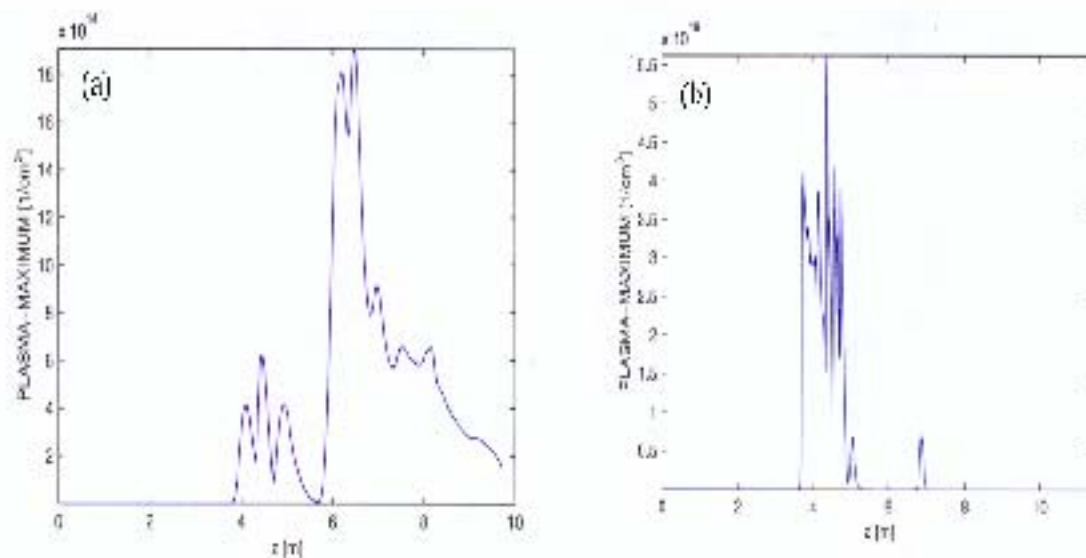


Figure 3.8 : Densité maximale d'électrons avec (a) et (b) sans effet $\chi^{(5)}$ fort.

saturation quintique, est donc plus proche de l'expérience que lorsque cette saturation est omise. La saturation quintique conduit à une puissance par filament plus importante avec $P_{fil} \simeq \pi^2 P_{cr} / 4A \times (1 - 2n_4 I_{max}^{optic} / An_2)$ conduisant à $N \sim 2 - 3$ avec $I_{max}^{optic} \simeq 10$ TW/cm². Le nombre de filaments est diminué, devenant ainsi plus proche du nombre relevé expérimentalement. La différence dans la distance de fusion finale ($z = 8.5$ m expérimentalement, et $z = 6.5$ m dans les simulations 3D) est attribuée aux incertitudes sur le diamètre du faisceau mesuré ainsi que sur sa structure temporelle et spatiale transverse. Il est important de rappeler l'absence de production de plasma mentionnée expérimentalement en ref. [92] avant l'évènement de fusion des cellules multiples. La figure 3.8 confirme cette propriété lorsqu'on prend en compte la susceptibilité $\chi^{(5)}$ dans l'air.

En fait, l'influence de la saturation $\chi^{(5)}$ dépend du modèle d'ionisation considéré: si l'intensité laser sature au-delà de 10^{14} W/cm² par la génération de plasma seul, alors mêmes des faibles valeurs de n_4 peuvent adoucir le pic d'intensité et maintenir le faisceau confiné sur de grandes distances. Dans le cas contraire, la saturation quintique a un rôle plus limité. La figure 3.9 montre les intensités pics, le rayon du faisceau, le maximum de densité électronique et les pertes en énergie pour une impulsion Gaussienne de durée 70 fs et de rayon 0.5 mm se propageant en géométrie parallèle dans l'air [53]. La croissance de l'impulsion est limitée par différentes sources d'ionisation. L'une

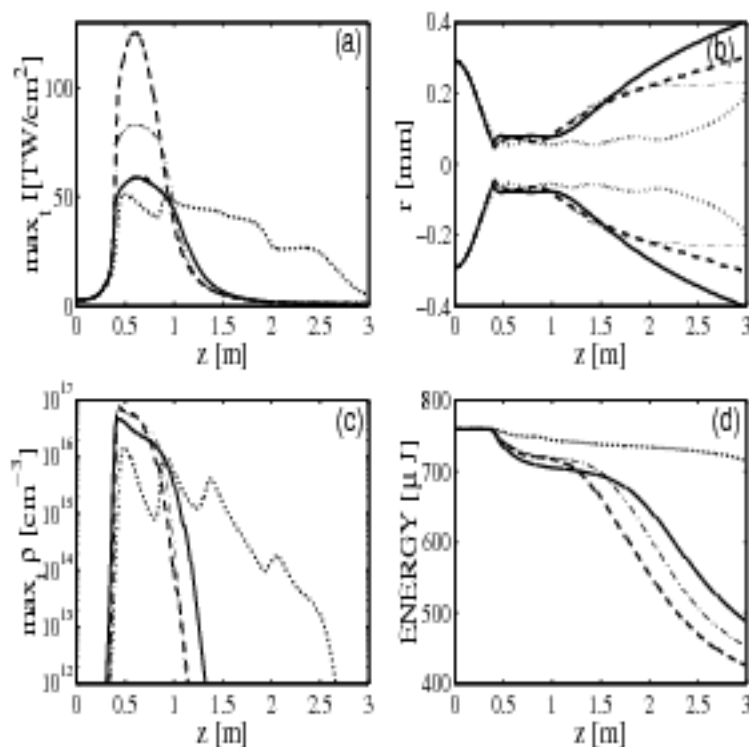


Figure 3.9 : (a) Intensités pics, (b) rayons de l'impulsion, (c) densités électroniques, et (d) pertes énergétiques pour des impulsions Gaussiennes de rayon $w_0 = 0.5$ mm, de durée $t_p = 70$ fs en présence des différents modèles d'ionisation: PPT (courbe pleine), ADK moléculaire (tirets), ADK moléculaire + susceptibilité $\chi^{(5)}$ (pointillés) et approximation MPI de la figure 2.1 (tirets-points) [53].

d'elles implique un taux d'ionisation du type ADK moléculaire sans (tirets) et avec (pointillés) une saturation quintique ($n_4 = 2.5 \times 10^{-33}$ W/cm²). L'intensité pic mesurée, 5×10^{13} W/cm², est la même que celle trouvée dans la configuration précédente. La susceptibilité $\chi^{(5)}$ abaisse l'intensité pic et la densité, ce qui augmente sa longueur d'auto-guidage.

À travers cette étude théorique confrontée à des données expérimentales, nous avons mis en évidence l'importance d'un terme de saturation quintique qui devrait être pris en compte dans l'équation de propagation d'une impulsion laser ultra-courte se propageant dans l'air. Même si la valeur précise du $\chi^{(5)}$ pour les molécules dioxygène est inconnue, son influence peut être pertinente. La saturation quintique n'empêche pas la génération de plasma, même si celui-ci atteint des niveaux de densité moindres. Elle abaisse le maximum d'intensité lumineuse à partir de laquelle l'auto-guidage se développe. Elle génère des pertes en énergie plus faibles et stabilise le filament femto-

seconde en accroissant notablement son domaine d'auto-guidage.

Chapitre 4

Propagation atmosphérique

d'impulsions optiques

femtosecondes avec gradients forts

et vortex optiques

La propagation d'une impulsion ultra-courte et de forte puissance dans un milieu transparent s'accompagne nécessairement de la filamentation de celle-ci, voire même de multifilamentation, si sa puissance initiale est suffisamment élevée, c'est-à-dire supérieure à P_{cr} . Cette dynamique altère les profils temporels et spatiaux de l'enveloppe de l'onde de manière peu déterministe, et rend donc difficile une propagation contrôlée. Le contrôle de cette filamentation apparaît donc comme un enjeu important dans la maîtrise de la propagation laser. L'idée que nous allons développer dans ce chapitre est de donner une certaine forme initiale à l'impulsion, afin de prévoir la distance d'apparition des filaments, ainsi que leur disposition dans le plan de diffraction transverse. Dans une première étape, à partir des équations 2D adimensionnées (2.73) et (2.74), et de la théorie élémentaire de la multifilamentation exposées dans le chapitre 2, nous tenterons de prévoir la figure de filamentation lors de la propagation d'une impulsion. La même étude incluant des variations temporelles en géométrie $(3+1)$ sera développée plus tard.

Pour commencer, nous envisagerons des impulsions présentant une direction privilégiée, c'est-à-dire comportant des gradients forts, ou se localisant sur les anneaux de

diffraction d'une impulsion de type Super-Gaussienne. L'analyse perturbative exposée dans la section 2.7 fournira des estimations théoriques sur le nombre de filaments obtenus et sur leur distance d'apparition. Dans une deuxième partie, nous étudierons la propagation d'impulsions de type vortex comportant un moment angulaire orbital. A l'aide d'une méthode variationnelle, nous déterminerons les paramètres clés de ce type d'impulsions. Une analyse de stabilité linéaire sera menée afin de prévoir le nombre de filaments ainsi que leur distance d'apparition. Ces évaluations seront confirmées par des résultats de simulation numériques 2D. Extrapolés en présence de dispersion temporelle, ces distributions de paquets d'ondes conserveront leur remarquable propriété de stabilité en géométrie 3D.

4.1 Impulsions comportant des gradients forts

Dans cette partie, nous cherchons à comprendre le phénomène de multifilamentation sur des figures de diffraction simples pour des faisceaux ayant des directions privilégiées. Nous chercherons ensuite à contrôler cette multifilamentation sur de grandes distances à l'aide d'objets du type vortex optiques.

4.1.1 Résultats numériques 2D et 3D pour les gradients forts

Nous présentons ici des résultats issus de la simulation d'impulsions à gradients forts. Pour les simulations 2D, nous résolvons les équations issues du modèle 3D adimensionné moyenné en temps [Eqs. (2.73) et (2.74)] et réexprimons les résultats en unités physiques. Pour les calculs numériques 3D, nous intégrons l'équation de propagation de référence (2.47).

Dans une première série de simulations, l'impulsion considérée est formée d'un prisme triangulaire posé sur sa face rectangulaire et tourné de $\pi/4$ rad. dans le plan (x,y) (cf figure 4.1). En géométrie 3D (x,y,t) , la forme est la même en espace mais elle est multipliée par une Gaussienne en temps e^{-t^2/t_p^2} . Dans les deux cas, les paramètres spatiaux sont les mêmes et un bruit aléatoire de 10% est introduit. La puissance initiale moyenne est de $\sim 60P_{cr}$ pour une impulsion ayant un rayon initial de 3 mm et une durée $t_p = 42.5$ fs. Pour ces paramètres, le coefficient α de l'équation (2.74) prend la valeur 0.37. En 2D, un maillage de 2048 points en x et y est requis, avec une boîte

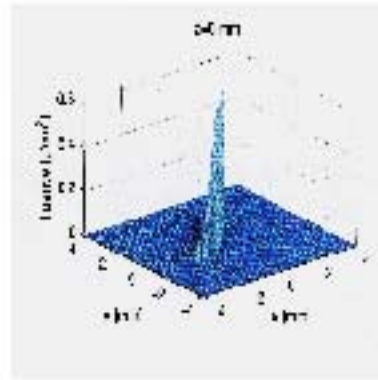


Figure 4.1 : Profil spatial en intensité de l'impulsion type gradient utilisé pour les simulations 2D et 3D.

de simulation de $16w_0$ en x et y , ce qui conduit à une résolution de 23 microns. Le calcul a été réparti sur 32 processeurs et effectué sur les machines du CCRT au CEA de Bruyères-le-Châtel. Le temps de calcul pour “parcourir” 4.2 m a été de ~ 20 heures. En 3D, le maillage utilisé est de 1024 points en t et 512 en x et y , avec une boîte de simulation de $4w_0$ en x et y et $6t_p$ en t , ce qui conduit à une résolution de 23 microns en espace et 0.2 fs en temps. Les résolutions temporelle et spatiale sont donc compatibles avec la physique des filaments femtosecondes (temporellement, on peut estimer des raccourcissements de l'ordre de $t_p/10 \simeq 4$ fs et le diamètre d'un filament est de $\sim 100 - 150 \mu\text{m}$). Le calcul a été réparti sur 128 processeurs et effectué sur la machine TERA au CEA de Bruyères-le-Châtel. Le temps de calcul pour “parcourir” 3 m a été de ~ 50 heures. Des précisions sur les méthodes numériques mises en oeuvre en géométrie 2D et 3D, ainsi que sur le schéma de parallélisation, sont présentées en Annexe B.

Pour ce type d'impulsion illustrée en figure 4.1, l'instabilité se produit à la distance $z_{\text{fil}} \sim 40 - 60$ cm le long de la direction du gradient, à partir de laquelle les filaments croissent et se répartissent de manière aléatoire [Fig. 4.2(a)]. Ces comportements sont quasiment les mêmes en 2D et 3D [Fig. 4.2(b)]. La principale différence est que les filaments dans le cas de la simulation 3D se forment plus tôt et leur nombre est un peu plus élevé, ce que l'on attribue aux distorsions temporelles induites par le plasma, qui produit davantage de pics dans les profils d'intensité. Le nombre de filaments $N \sim p\alpha/2.65 \simeq 9$ reste cependant en bon accord qualitatif avec les estimations du chapitre 2.

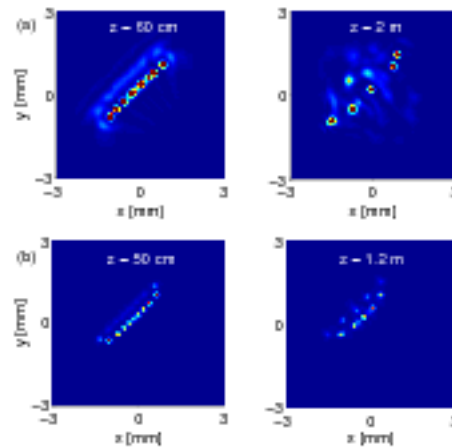


Figure 4.2 : Fluence de faisceaux comportant un fort gradient ayant une puissance initiale $\sim 60P_{cr}$, $t_p = 42.5$ fs et un rayon $w_0 = 3$ mm pour différentes distances de propagation z : (a) simulations (2 + 1) et (b) simulations (3 + 1).

4.1.2 Résultats numériques pour les Super-Gaussiennes

On peut maintenant se demander si le fait que la filamentation se produise le long d'une ligne de gradient perdure dans le cas d'une impulsion qui comporterait plusieurs directions de gradient différentes. C'est ce point que nous allons éclaircir en étudiant la propagation de Super-Gaussiennes respectivement données en 2D et en 3D par:

$$\mathcal{E}(x,y,z=0) = \sqrt{I_0} e^{-(10\frac{x^4}{w_0^4} + 25.6\frac{y^8}{w_0^8})} \quad (4.1)$$

et

$$\mathcal{E}(x,y,z=0,t) = \sqrt{I_0} e^{-(10\frac{x^4}{w_0^4} + 25.6\frac{y^8}{w_0^8} + \frac{t^2}{t_p^2})}, \quad (4.2)$$

que nous perturbons encore par un bruit aléatoire de 10%. Tout d'abord, nous considérons la propagation d'une Super-Gaussienne étendue dans la direction y [Eq. (4.1)]. Les paramètres physiques sont $t_p = 42.5$ fs, $w_0 = 3$ mm et $P_{in} \sim 60P_{cr}$. Moyenné en temps selon l'équation (2.73), le faisceau se casse en plusieurs filaments à la distance $z_{fil} \sim 0.85-1.2$ m. Ces filaments apparaissent régulièrement espacés le long des lignes de gradient, comme prévu [Fig. 4.3(a)]. Le nombre de cellules $\simeq 10$ est en bon accord avec celui prévu par la théorie ($N \simeq 9$). Afin d'examiner l'influence de t_p sur le modèle 2D, nous avons reconduit cette simulation pour un impulsion aux mêmes caractéristiques, sauf la durée de l'impulsion qui est maintenant élargie à $t_p = 250$ fs [Fig. 4.3(b)]. La filamentation se produit un peu plus tôt, alors que le nombre de filaments est augmenté par un facteur 1.2. Ces modifications proviennent du fait que le nombre de filaments est

proportionnel au coefficient Kerr moyenné α , lequel augmente avec t_p [Eq. (2.76)]. Ce nombre est ici augmenté par le rapport $\alpha(t_p = 250 \text{ fs})/\alpha(t_p = 42.5 \text{ fs}) \sim 1.2$. Prenant en compte maintenant les variations temporelles décrites par l'équation (2.47), Fig. 4.4(a) et Fig. 4.4(b) présentent les fluences 3D pour la même forme initiale multipliée par une Gaussienne en temps avec deux t_p différents [Eq. (4.2)]. Après une courte propagation, le faisceau se casse encore une fois en plusieurs filaments localisés sur les bords. Pour t_p grand, la filamentation apparaît plus tôt ($z_{\text{fil}} \sim 0.65 - 1 \text{ m}$) et engendre plus de cellules dans un rapport 1.2, pour les raisons expliquées précédemment. Le nombre final de cellules continue encore à augmenter (~ 15) à cause des fortes variations temporelles induites par la réponse plasma, qui promeut l'apparition de multiples pics dans la distribution temporelle de l'impulsion.

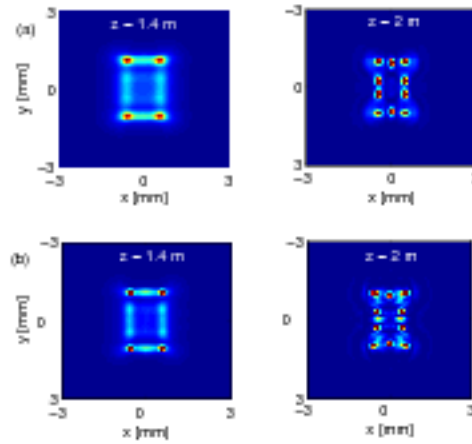


Figure 4.3 : Fluence ($\mathcal{F} = \int_{-\infty}^{\infty} |\mathcal{E}|^2 dt$) de faisceaux 2D comportant une puissance initiale $\sim 60P_{cr}$ et un rayon initial $w_0 = 3 \text{ mm}$ pour deux durées d'impulsion: (a) $t_p = 42.5 \text{ fs}$ et (b) $t_p = 250 \text{ fs}$.

Concernant les détails numériques pour ces dernières simulations, la résolution a été globalement inchangée en 2D et en 3D comparée aux simulations précédentes pour une impulsion de type gradient. Les temps de calcul respectifs sont restés dans les mêmes ordres de grandeur.

Les résultats précédents peuvent être comparés aux évaluations classiques des distances de filamentation. D'après le chapitre 2, la distance le long de laquelle les filaments croissent est $z_{\text{fil}} \sim [2\pi I_0 \alpha / (k_0 P_{cr})]^{-1}$, où I_0 dénote l'intensité initiale. Pour un faisceau donné, cette quantité peut être facilement reliée au rapport de sa puissance initiale sur la puissance critique, et à sa longueur de Rayleigh. Par exemple, un faisceau Gaus-

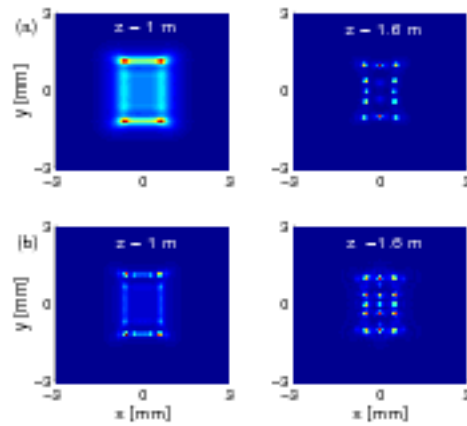


Figure 4.4 : Fluence de faisceaux 3D comportant une puissance initiale $\sim 60P_{cr}$ et un rayon initial $w_0 = 3$ mm pour les durées d'impulsion (a) $t_p = 42.5$ fs et (b) $t_p = 250$ fs.

sien possédant une intensité initiale égale à $2P_{in}/\pi w_0^2$ produira des filaments sur des distances en z voisines de $z_0 P_{cr}/2P_{in}$. La dépendance $z_{fil} \sim P_{cr}/P_{in}$ a été récemment confirmée dans la référence [69] pour des faisceaux Gaussiens transportant suffisamment de puissance ($> 40P_{cr}$). La procédure suivie nous permet de généraliser cette propriété à tout type de forme optique, puisque toute l'information qui conditionne l'instabilité modulationnelle dépend du niveau de l'intensité initiale seulement. En appliquant ces estimations numériques, l'intensité moyenne dans la figure (4.2) est de 10 TW/cm², conduisant à un z_{fil} égal à 9 cm dans ce cas. Pour les figures (4.3) et (4.4), on a $I_0 \simeq 10$ TW/cm² et $z_{fil} \simeq 70$ cm. Ces valeurs supportent la comparaison avec les distances numériques relevées à partir des Super-Gaussiennes ($z_{fil} > 65$ cm). Elles sont cependant moins pertinentes pour les gradients forts ($z_{fil} > 20$ cm), dont la distribution s'éloigne beaucoup plus de celle d'une onde plane.

4.2 Vortex optiques femtosecondes

Avec les impulsions à gradients forts et les Super-Gaussiennes, nous avons mis en évidence la possibilité de prévoir globalement certaines figures de filamentation, ainsi que la distance d'apparition des filaments. Malgré des intensités initiales, des formes ou des durées d'impulsion différentes, le faisceau obéit aux lois classiques de l'instabilité modulationnelle. Pour des puissances relativement élevées ($\sim 60 P_{cr}$) et

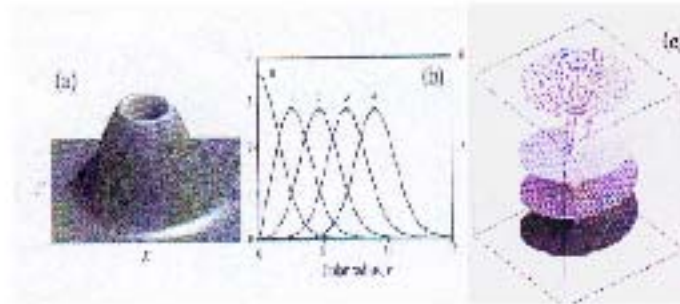


Figure 4.5 : (a) Amplitude d'un vortex optique et (b) sa distribution radiale (les valeurs de la charge m sont indiquées près des courbes). (c) Front d'onde hélicoïdal.

des extensions spatiales petites (quelques mm), il filamente toujours après une courte distance de propagation (~ 5 m), ce qui est incompatible avec le transport d'énergie sur des grandes distances. Afin d'accroître cette distance, nous nous intéressons donc maintenant à des formes plus complexes: les vortex optiques femtosecondes.

Découverts par Kruglov *et al.* [21, 22] à la fin des années 80, les vortex optiques sont caractérisés par une phase $\sim e^{im\theta}$ contenant une charge topologique m (θ est la variable angulaire azimuthale en coordonnées polaires), par une amplitude formant un trou au centre, par un moment orbital constant [Fig. 4.5(a)-(b)], et par un front d'onde hélicoïdal [Fig. 4.5(c)]. Ils apparaissent comme des solutions singulières aux équations non-linéaires d'enveloppe, conservant leur forme sur plusieurs longueurs de Rayleigh avant que l'instabilité modulationnelle azimuthale ne les casse spatialement. L'existence et la stabilité de ces états particuliers sont étudiés depuis des années. Pour des milieux 2D à non-linéarités purement auto-focalisante (cubique) ou saturante (cubique-quintique), Michinel *et al.* [93] ont montré la possibilité pour des faisceaux en rotation ayant une puissance suffisante de préserver leur profil radial lorsque $|m| = 1$ (voir aussi [94, 95, 96, 97, 98, 99, 100, 101, 102]). Pour des valeurs plus grandes de m , les vortex se propagent sur de grandes distances avant de devenir instable et de se casser en petites cellules. Ces cellules forment des filaments qui suivent le mouvement curviligne initial, ce qui empêche leur fusion. L'existence et la stabilité des vortex spatio-temporels avec $|m| = 1$ a aussi été démontrée pour des milieux 3D à non-linéarité cubique-quintique et à dispersion anormale [103] (voir aussi [104] pour les clusters de solitons). Des simulations numériques pour des grandes valeurs de la charge topologique m ont montré une propagation remarquable sur plusieurs longueurs de Rayleigh, avant que les vortex 3D ne se cassent en plusieurs solitons. Les structures résultantes ne peuvent pas fusionner à

cause de la conservation de leur moment angulaire orbital, mais elles peuvent s'éloigner l'une de l'autre en tournant tangentiellement à l'anneau du vortex initial au cours de la propagation. Des expérimentations pionnières dans des milieux cw ont définitivement confirmé cette dynamique pour la charge $m = 2$ [105, 106]. Plus récemment, Maryienko *et al.* [107] ont réussi à créer des nouveaux types de vortex ultra-courts à charge topologique $m = 1$ à partir de sources laser femtosecondes.

Notre objectif a été de définir analytiquement les paramètres caractéristiques de ces vortex dans le contexte présent et de prévoir la distance d'apparition des instabilités modulationnelles ainsi que le nombre de filaments formés. Nous avons réalisé des simulations en géométrie (2+1) et (3+1) afin de vérifier ces prédictions analytiques.

4.2.1 Construction de vortex par une méthode variationnelle statique

Les vortex optiques étant de forts attracteurs vers lesquels des impulsions optiques sont supposées converger, nous n'avons pas opté pour leur identification numérique via des méthodes de relaxation standard, comme cela a été souvent fait jusqu'à présent [93, 94, 95, 96, 97, 98, 99, 100]. Notre démarche a été de développer une méthode semi-analytique les caractérisant avant d'en tester la robustesse par des simulations 2D et 3D. La procédure est élaborée en trois temps: (i) Nous construisons des vortex solutions des équations simplifiées 2D, comme des minimiseurs pour les invariants de ces équations à partir d'une fonction d'essai Gaussienne. (ii) Nous évaluons les taux de croissance de l'instabilité modulationnelle de ces objets par une théorie perturbative de type onde plane sur un anneau, que nous validons par des simulations numériques 2D. (iii) Nous étendons ces vortex 2D à leur contrepartie 3D incluant la dispersion temporelle. D'un point de vue mathématique, un vortex optique est un état stationnaire de l'équation de Schrödinger non-linéaire indexé par un nombre de phase m , et par le paramètre du soliton (fréquence) λ . Ici, les solutions du modèle réduit 2D [Eq. (2.73)] sont cherchées sous la forme [22, 108]:

$$\psi_{m,\lambda} = A_{m,\lambda} r^{|m|} \exp(-r^2/(2a_{m,\lambda}^2) + im\theta + i\lambda z), \quad (4.3)$$

où θ est l'angle azimuthal. En négligeant la contribution MPA [dans l'air et pour des faisceaux millimétriques, ν reste proche de 0 comme on peut le vérifier à partir de

l'expression (2.79)], l'Hamiltonien

$$H_{m,\lambda} = 2\pi \int_0^{+\infty} \{ |\partial_r \psi_{m,\lambda}|^2 + m^2 |\psi_{m,\lambda}|^2 / r^2 - \int_0^{|\psi_{m,\lambda}|^2} f(u) du \} r dr \quad (4.4)$$

et l'intégrale de puissance:

$$P_{m,\lambda} = 2\pi \int_0^{+\infty} |\psi_{m,\lambda}|^2 r dr \quad (4.5)$$

sont des invariants des équations (2.73) et (2.74). Ainsi l'amplitude et le diamètre du vortex $A_{m,\lambda}$ et $a_{m,\lambda}$ sont déterminés en résolvant le problème variationnel

$$\delta(H_{m,\lambda} + \lambda P_{m,\lambda}) = 0. \quad (4.6)$$

En différentiant l'intégrale d'action $S_{m,\lambda} = H_{m,\lambda} + \lambda P_{m,\lambda}$ par rapport à $A_{m,\lambda}$ et $a_{m,\lambda}$ nous sommes conduits à résoudre les équations $\partial S_{m,\lambda} / \partial A_{m,\lambda} = \partial S_{m,\lambda} / \partial a_{m,\lambda} = 0$, qui s'écrivent alors:

$$a_{m,\lambda}^{-2} - \alpha_m A_{m,\lambda}^2 a_{m,\lambda}^{2|m|} + \epsilon_m A_{m,\lambda}^4 a_{m,\lambda}^{4|m|} + \gamma_m A_{m,\lambda}^{2K} a_{m,\lambda}^{2|m|K} + \frac{\lambda}{|m| + 1} = 0, \quad (4.7)$$

$$\begin{aligned} a_{m,\lambda}^{-2} & - \frac{(2|m| + 1)\alpha_m}{2|m|} A_{m,\lambda}^2 a_{m,\lambda}^{2|m|} + \frac{(3|m| + 1)\epsilon_m}{3|m|} A_{m,\lambda}^4 a_{m,\lambda}^{4|m|} \\ & + \frac{(|m|(K + 1) + 1)\gamma_m}{|m|(K + 1)} A_{m,\lambda}^{2K} a_{m,\lambda}^{2|m|K} + \frac{\lambda}{|m|} = 0, \end{aligned} \quad (4.8)$$

où

$$\alpha_m = \alpha (2|m|)! / [2^{2|m|+1} (|m| + 1)!],$$

$$\epsilon_m = \epsilon (3|m|)! / [3^{3|m|+1} (|m| + 1)!],$$

$$\gamma_m = \gamma (|m|(K + 1))! / [(K + 1)^{|m|(K+1)+1} (|m| + 1)!].$$

La résolution des équations ci-dessus fournit une estimation raisonnable des paramètres d'amplitude et de rayon de vortex non-linéaires, classiquement obtenus par méthode numérique de relaxation.

4.2.2 Quelques estimations analytiques dans le cas cubique-quintique

Avant de poursuivre cette étude, notons les impératifs à respecter pour choisir la durée de l'impulsion t_p . Même si nous nous concentrons ici sur la dynamique spatiale,

le paramètre de durée intervient préalablement dans les coefficients α et γ ci-dessus. Afin de maintenir la puissance d'un vortex 3D quasiment constante, il est nécessaire de préserver la distribution en temps de l'impulsion sur des distances aussi grandes que possible. Nous choisissons donc des durées d'impulsion relativement larges, par exemple $t_p = 250$ fs, conduisant à une longueur de dispersion $\sim t_p^2/k''$ (distance de propagation au bout de laquelle l'impulsion ne reste plus localisée temporellement et subit une dispersion efficace due au GVD) qui est rejetée à des distances kilométriques. Cette durée d'impulsion choisie, il est important d'avoir à l'esprit que les ordres de grandeur des paramètres α , ϵ et γ de l'équation adimensionnée (2.73) qui apparaissent dans les équations du problème variationnel α_m , ϵ_m et γ_m varient fortement avec le rayon w_0 . Les faisceaux étudiés étant destinés à être exploités dans des expériences futures, nous fixons w_0 entre $50 \mu\text{m}$ (borne inférieure pour le filament fs dans l'air) et 3 mm (imposé par les limitations numériques). Pour l'ensemble de ces valeurs, les coefficients MPI et MPA ($\gamma \leq 1.4 \times 10^{-7}$, $\nu \leq 5 \times 10^{-8}$) restent très inférieurs au coefficient Kerr et à celui de la non-linéarité quintique ($\alpha = 0.446$ et $\epsilon_{\text{max}} = 3 \times 10^{-2}$). Pour l'étude analytique, il est donc justifié de ne pas prendre en compte les termes MPI et MPA, pour un rayon w_0 sélectionné entre $50 \mu\text{m}$ et 3 mm . Dans ces conditions, on considère l'équation NLS dans sa limite cubique-quintique ($f(|\psi|^2) = \alpha|\psi|^2 - \epsilon|\psi|^4$, $\gamma, \nu = 0$), et les équations (4.7) et (4.8) peuvent être résolues de manière analytique:

$$P_{m,\lambda} = \frac{\pi}{\alpha} \times \frac{2^{2|m|+2}(|m|!)^2}{(2|m|)!} \times \frac{(|m|+1)}{\sqrt{1 - \frac{\lambda}{\lambda_\infty}}}, \quad (4.9)$$

$$A_{m,\lambda}^2 = \frac{2^{2|m|+2}(|m|+1)!}{\alpha(2|m|)! \sqrt{1 - \frac{\lambda}{\lambda_\infty}}} \times \frac{1}{a_{m,\lambda}^{2|m|+2}}, \quad (4.10)$$

$$a_{m,\lambda}^2 = \frac{(|m|+1)}{2\lambda} \times \left[1 + \left(1 - \frac{\lambda}{\lambda_\infty}\right)^{-1/2}\right], \quad (4.11)$$

$$\bar{r}_{m,\lambda} = a_{m,\lambda} \sqrt{|m|+1}. \quad (4.12)$$

où $\bar{r}_{m,\lambda} = [\int r^2 |\psi_{m,\lambda}|^2 d\bar{r} / P_{m,\lambda}]^{1/2}$ est le rayon moyen du vortex. Le fait que $a_{m,\lambda}^2$ doit être positif et réel conduit à la condition:

$$\lambda < \lambda_\infty = \frac{3^{3|m|+2}[(2|m|)!]^2}{2^{4|m|+6}|m|!(3|m|)!} \times \frac{\alpha^2}{\epsilon}, \quad (4.13)$$

où λ_∞ fixe le domaine d'existence du vortex. Cette borne est pratiquement égale à $0.16 \times \alpha^2/\epsilon$ quelle que soit la valeur de m , ce qui est en excellent accord avec le cut-off

trouvé dans des travaux antérieurs utilisant des méthodes numériques de relaxation [93, 94, 104] (par exemple, $\lambda < 0.18/\epsilon$ pour $\alpha = 1$). Physiquement cette borne est liée au rayon w_0 par la valeur de ϵ . À titre d'exemple, la figure 4.6(a) montre la puissance du vortex $P_{m,\lambda}$ en fonction de λ pour un rayon initial $w_0 = 50 \mu\text{m}$, calculé pour $m = 1, 2$ et 3. La saturation cubique est effective avec $\epsilon = 0.03$. La figure 4.6(b) montre la même quantité calculée à partir des équations complètes (2.73) et (2.74) pour $w_0 = 3 \text{ mm}$, fournissant les valeurs des coefficients cubique et quintique $\alpha \simeq 0.446$ et $\epsilon \simeq 8.1 \times 10^{-6}$. Il faut noter que plus le nombre de charge m est grand, plus la puissance du vortex est élevée. Pour le petit rayon, le cut-off près duquel la puissance diverge est $\lambda_\infty \sim 1$. Pour le grand, le cut-off est rejeté à l'infini, justifiant le fait que λ peut être pris égal à 1 (comme dans l'équation NLS purement cubique), sans perte de généralité lorsqu'on traitera le faisceau de "grand rayon" $w_0 = 3 \text{ mm}$.

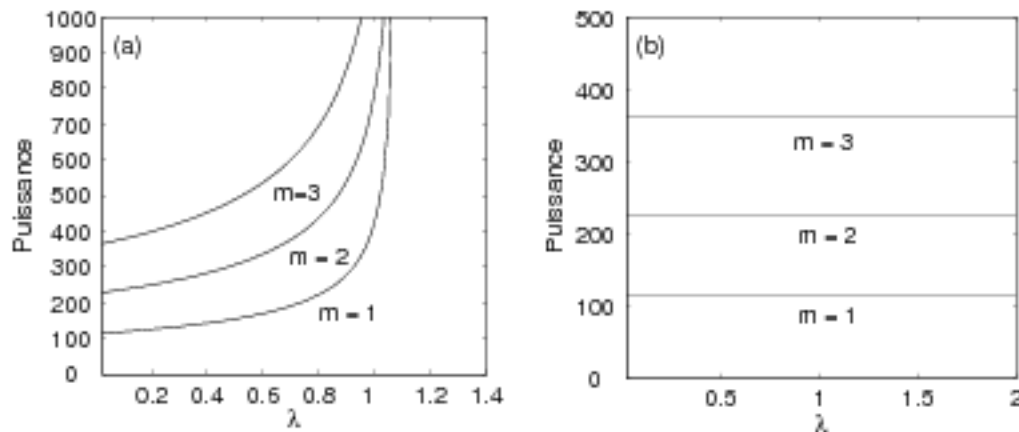


Figure 4.6 : Puissance du vortex calculée à partir de l'équation (2.73) sans prendre en compte γ et ν pour $m = 1, 2$ et 3 et $t_p = 250 \text{ fs}$: (a) $w_0 = 50 \mu\text{m}$ et (b) $w_0 = 3 \text{ mm}$ ($\alpha = 0.446$).

4.2.3 Analyse de stabilité

Les vortex comportant un moment orbital sont généralement instables lorsqu'ils sont soumis à l'instabilité modulationnelle azimuthale qui les casse en plusieurs filaments. Ici, on développe une méthode perturbative afin d'analyser la stabilité de ces objets en rotation, en généralisant la méthode originellement proposée dans la Ref. [109] pour des états propres à charge topologique $m \neq 0$. Nous considérons des perturbations sur un

anneau de rayon moyen $\bar{r}_{m,\lambda}$ [Eq. (4.12)]. En supposant une intensité constante et une uniformité spatiale pour cet anneau, l'opérateur de diffraction se réécrit $\nabla_{\perp}^2 = \partial_x^2$ avec $x = \bar{r}_{m,\lambda}\theta$. Nous déterminons le taux de croissance $\text{Im}(\mu)$ de perturbations azimuthales en écrivant la solution sous la forme $\psi = (\psi_0 + \delta\psi_1 e^{-i\mu z + iM\theta} + \delta\psi_2^* e^{i\mu^* z - iM\theta}) e^{i\lambda z + im\theta}$, M désignant l'indice de la perturbation. En reportant ce champ dans l'équation (2.73), après linéarisation ($\delta\psi_1, \delta\psi_2 \ll \psi_0$) et identification des termes en $e^{-i\mu z + iM\theta}$ et $e^{i\mu^* z - iM\theta}$, on obtient le problème aux valeurs propres suivant:

$$\widehat{L} \begin{pmatrix} \delta\psi_1 \\ \delta\psi_2 \end{pmatrix} = -\mu \begin{pmatrix} \delta\psi_1 \\ \delta\psi_2 \end{pmatrix}, \quad (4.14)$$

où

$$\widehat{L} = \begin{pmatrix} -\lambda + \widehat{D}_{m+M} + g(\psi_0^2) & f(\psi_0^2)\psi_0^2 \\ -f(\psi_0^2)\psi_0^2 & \lambda - \widehat{D}_{m-M} - g(\psi_0^2) \end{pmatrix} \quad (4.15)$$

avec $g(\psi_0^2) = f(\psi_0^2) + \psi_0^2 f'(\psi_0^2)$ et $\widehat{D}_m = -m^2/\bar{r}_{m,\lambda}^2$. Ensuite nous appliquons l'hypothèse d'onde plane pour l'anneau initial, i.e. $\psi_0 = |\psi_{m,\lambda}(r - \bar{r}_{m,\lambda})|$, où $\psi_{m,\lambda}$ a été défini par l'équation (4.3). Cette expression mène à la relation $\lambda = \widehat{D}_m + f(\psi_0^2)$ dans la limite $\nu \rightarrow 0$. Après substitution dans l'Eq. (4.15) et résolution du problème aux valeurs propres, nous obtenons l'expression du taux de croissance

$$\text{Im}(\mu) = \frac{M}{\bar{r}_{m,\lambda}} \text{Re} \left[2f'(|\psi_0|^2) |\psi_0|^2 - \frac{M^2}{\bar{r}_{m,\lambda}^2} \right]^{\frac{1}{2}}. \quad (4.16)$$

Il est intéressant de constater que ce taux de croissance pour un vortex optique perturbé sur sa surface annulaire a la même expression que celui obtenu avec la théorie d'instabilité sur les ondes planes perturbées sur toute leur surface [Eq. (2.83)], le nombre d'onde perturbatif k étant remplacé par $M/\bar{r}_{m,\lambda}$ pour un anneau. La partie entière de M pour laquelle $\text{Im}(\mu)$ est maximal donne approximativement le nombre de modulations qui vont affecter l'anneau. L'instabilité a lieu dès que $f'(|\psi_0|^2) > 0$, qui est directement relié aux non-linéarités, et donc à la taille du faisceau w_0 . Après de rapides calculs, on trouve $\bar{r}_{m,\lambda}^2 = a_{m,\lambda}^2 (|m| + 1)$ et $f'(|\psi_0|^2) = \alpha - 2\epsilon |\psi_0|^2$, où $|\psi_0|^2 = A_{m,\lambda}^2 a_{m,\lambda}^{2|m|} (|m| + 1)^{|m|} e^{-(|m|+1)}$.

Pour un petit diamètre de faisceau, ϵ n'est pas négligeable. L'instabilité s'amorce dès que $\lambda < \lambda_{\text{crit}}$, où le paramètre du soliton λ_{cr} dépend de m et change le signe de $f'(\psi_0^2)$ de positif à négatif. Avec $w_0 = 50 \mu\text{m}$, nous déduisons $\lambda_{\text{cr}} \simeq 1$ pour $m = 1$, conduisant à la stabilité du vortex dès que $\lambda > \lambda_{\text{cr}}$. Pour le plus grand rayon $w_0 = 3$

mm, les coefficients de saturation sont négligeables et l'instabilité se développe quelle que soit la valeur de λ .

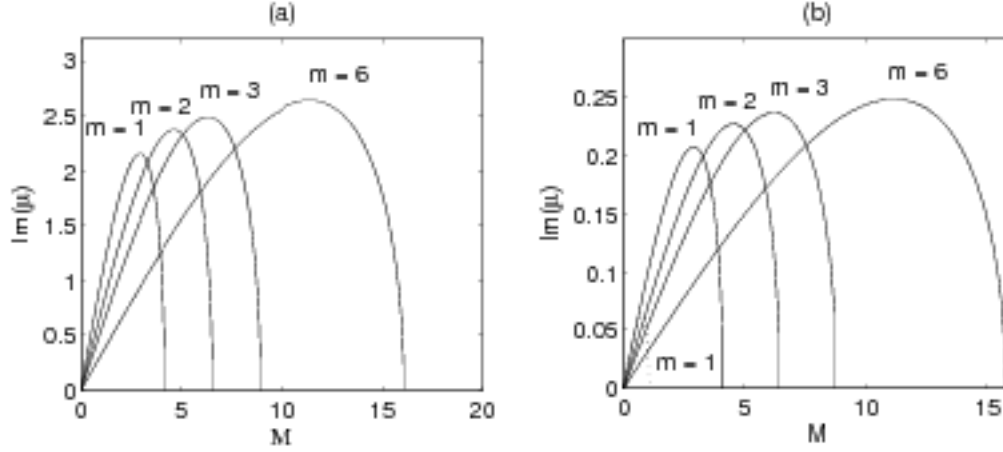


Figure 4.7 : Taux de croissance des vortex NLS 2D calculés à partir des Eqs. (2.73)-(2.74) avec $t_p = 250$ fs et (a) $w_0 = 3$ mm: $\alpha = 0.446$ et $\epsilon = 8.1 \times 10^{-6}$, $\lambda = 1$; (b) $w_0 = 50$ μ m, $\epsilon = 3 \times 10^{-2}$ (courbe pleine: $\lambda = 0.1$; courbe pointillée: $\lambda = 0.99$ pour $m = 1$). Les charges m des vortex sont indiquées près des courbes.

Afin de prédire le nombre de modulations qui vont effectivement casser l'anneau du vortex, l'indice M_{\max} pour lequel le taux de croissance est maximal doit être déterminé. Pour les deux valeurs sélectionnées de w_0 , on peut considérer la limite cubique-quintique, et tirer une expression analytique de l'indice de perturbation maximale:

$$M_{\max}^2 = \frac{(|m| + 1)^{4-|m|}}{(2\lambda)^{1-|m|} (2|m|)!} \times \frac{2^{2|m|+2} |m|! e^{-|m|-1}}{\sqrt{1 - \frac{\lambda}{\lambda_{\infty}}}} \times \frac{(1 - \frac{2\epsilon}{\alpha} |\psi_0|^2)}{(1 + \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{\lambda}{\lambda_{\infty}}}})^{|m|-1}}. \quad (4.17)$$

Il est intéressant de constater qu'aux ordres dominants en $\epsilon/\alpha^2 \ll 1$, M_{\max} est indépendant du coefficient Kerr α . Comme seulement les valeurs entières ont une signification physique, le tracé de M_{\max} en fonction de m met en relief la relation $M_{\max} \simeq 2|m| + 1$ quand $\epsilon/\alpha^2 \rightarrow 0$ ou $M_{\max} \simeq 2|m|$ sinon. La figure (4.7) confirme ces comportements. La figure 4.7(a) illustre la taux de croissance de la perturbation en fonction de M pour $w_0 = 3$ mm et différentes valeurs de la charge m . Comme les non-linéarités sont négligeables, $f(|\psi_0|^2) \simeq \alpha |\psi_0|^2$ et $\lambda = 1$. La figure 4.7(b) représente $\text{Im}(\mu)$ pour $w_0 = 50$ μ m, $\lambda = 0.1$ (domaine d'instabilité). Pour $\lambda = 0.99$ et $m = 1$ (limite de l'instabilité),

le taux de croissance est considérablement réduit. La stabilité s'ensuit [$\text{Im}(\mu) = 0$] dès que λ excède $\lambda_{cr} \simeq 1$, valeur à partir de laquelle $f'(|\psi_0|^2) < 0$. En effectuant cette même analyse pour le problème cubique-quintique académique $\alpha = \epsilon - 1$ ($\lambda \leq 0.16$), l'instabilité modulationnelle se produit pour un index azimuthal maximal $M_{max} \simeq 2|m|$ et cesse lorsque que λ dépasse $\lambda_{cr} \sim 0.147$ pour $m = 1$. Ces résultats sont en bon accord avec ceux déduits des méthodes numériques de "tir" (shooting) ou de relaxation [94, 95, 96, 97, 98, 99, 100].

4.2.4 Résultats numériques pour les vortex 2D

Dans cette partie, nous examinons numériquement les vortex précédents en résolvant les équations complètes (2.73) et (2.74), afin de vérifier les résultats analytiques concernant leur instabilité, le nombre de modulations et la distance de filamentation. La taille du faisceau est fixée à 3 mm et la durée de l'impulsion à 250 fs. Pour chaque valeur de m , $\lambda = 1$ et $\epsilon/\alpha^2 \rightarrow 0$. Les équations (4.7) et (4.8) fournissent les valeurs de $A_{m,1}$ et $a_{m,1}$. Les vortex, une fois exprimés en unités physiques, sont créés alors sous la forme

$$\mathcal{E}(z = 0) = A_{m,1}(r/w_0)^{|m|} e^{-r^2/(2\bar{r}_{m,1}^2) + im\theta}, \quad (4.18)$$

perturbés par un bruit aléatoire d'amplitude 10%, où $\bar{r}_{m,1} \simeq (|m| + 1)w_0$ représente leur rayon moyen. La puissance et l'intensité de chaque mode de vortex sont quantifiées par la charge m , c'est-à-dire

$$P_{m,1} \simeq 2^{2|m|} P_{cr} |m|!(|m| + 1)! / [\alpha(2|m|)!], \quad (4.19)$$

$$A_{m,1}^2 = P_{m,1} / [\pi w_0^2 |m|!(|m| + 1)^{|m|+1}], \quad (4.20)$$

dont les valeurs sont résumées dans le tableau 4.1. Nous avons alors effectué des si-

Tableau 4.1 : $A_{m,1}^2, \bar{r}_{m,1}$ et $P_{m,1}$ pour $m = 1, 2, 3$ et 6.

	$m = 1$	$m = 2$	$m = 3$	$m = 6$
$A_{m,1}^2$ (GW/cm ²)	20	3	0.17	1×10^{-6}
$\bar{r}_{m,1}$ (mm)	6	9	12	21
$P_{m,1}$ (GW)	23	45.5	73	177

mulations numériques 2D avec les profils initiaux donnés par l'équation (4.18) pour

différentes charges topologiques m . La figure 4.8 résume les figures de filamentation obtenues. Pour chaque valeur de m , le vortex correspondant apparaît remarquablement robuste dans le sens où les modulations ne se développent pas avant une centaine de mètres de propagation. Le rayon de l'anneau augmente avec m , en accord avec le tableau 4.1, alors que la distance d'apparition des modulations $z_{\text{fil}} \sim 4z_0 \times \text{Im}(\mu)_{\text{max}}^{-1}$ décroît avec m , ce qui est en accord qualitatif avec la figure 4.7(a). Le nombre de modulations apparaît en excellent accord avec celui trouvé d'après nos évaluations théoriques, puisqu'il évolue en $\sim 2|m| + 1$. Les rapports des distances de filamentation en fonction de m , par exemple, $z_{\text{fil}}(m = 1)/z_{\text{fil}}(m = 6) \simeq 1.5$, apparaissent aussi raisonnablement en accord avec les résultats numériques (~ 1.3). Notons cependant que, bien qu'elle reste de magnitude comparable avec celle des résultats numériques, la distance de filamentation prévue par notre théorie $z_{\text{fil}} \sim 70$ m reste relativement petite. Les différences proviennent des hypothèses simplificatrices faites à la base de notre modèle (les fonctions test Gaussiennes approchent des faisceaux en rotation et les anneaux des vortex sont modélisés par des ondes planes).

Pour mettre en avant la stabilité remarquable des vortex optiques, nous avons simulé la dynamique non-linéaire d'un faisceau annulaire qui n'appartient pas à la famille des conditions initiales (4.18):

$$\mathcal{E}_0 = A_{\text{in}}(r/w_0)e^{-r^2/w_0^2+i\theta}. \quad (4.21)$$

Les figures 4.9(a) et 4.9(b) représentent les fluences de tels faisceaux contenant la même puissance que les vortex optiques correspondants aux charges $m = 1$ ($P_{\text{in}} \simeq 9P_{\text{cr}}$) et $m = 6$ ($P_{\text{in}} \simeq 70P_{\text{cr}}$), respectivement. Ces ondes se propagent sur plusieurs mètres, mais deviennent rapidement instables. Elles développent $\sim 2 - 3$ modulations et amplifient deux filaments pour le cas $P_{\text{in}} = 9 P_{\text{cr}}$ [Fig. 4.9(a)]. Avec une puissance plus grande de $70 P_{\text{cr}}$, environ 9 modulations apparaissent à une distance encore plus courte; les faisceaux se cassent en $\sim 6 - 7$ filaments qui se répartissent aléatoirement dans le plan de diffraction [Fig. 4.9(b)]. Le nombre de cellules est donc du même ordre que celui constaté avec les vortex solitoniques, mais les modulations apparaissent à des distances beaucoup plus courtes.

Pour tous les types d'impulsions simulées impliquant un rayon $w_0 = 3$ mm et une durée d'impulsion $t_p = 250$ fs, le calcul était parallélisé sur 32 processeurs. Concernant les temps de calcul, ainsi que les maillages utilisés pour la propagation des vortex op-

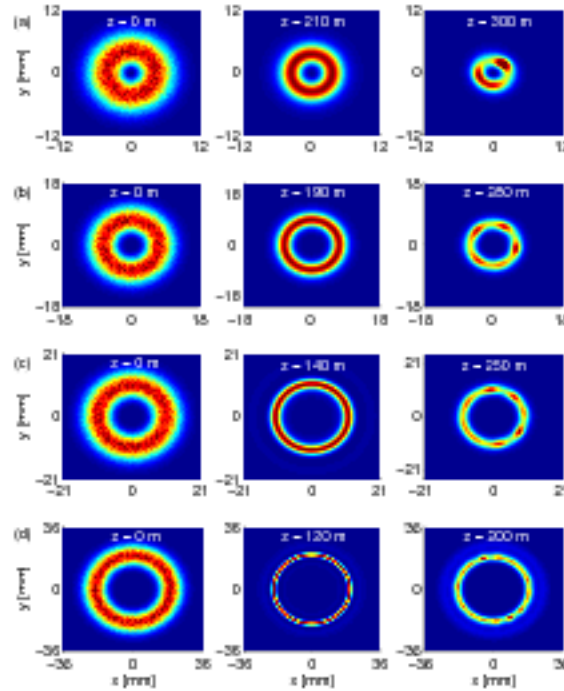


Figure 4.8 : Fluence des vortex optiques 2D calculés à partir des Eqs. (2.73) et (2.74) pour $w_0 = 3 \text{ mm}$, $t_p = 250 \text{ fs}$ et les charges topologiques: (a) $m = 1$, (b) $m = 2$, (c) $m = 3$, et (d) $m = 6$.

tiques et de l'anneau (4.21), toutes les indications sont reportées dans le tableau 4.2. $L_x \times L_y$ représente la taille de la boîte de simulation numérique utilisée en unités w_0^2 , $N_x \times N_y$ le nombre de points en x et en y , $\Delta_x \times \Delta_y$ la résolution en x et en y en μm^2 . D_{num} est la distance parcourue (en mètres) et T_{num} le temps de calcul correspondant (en heures).

Afin de compléter cette étude, nous avons effectué quelques simulations supplémentaires. En particulier, nous avons vérifié qu'en modifiant artificiellement la valeur de α à travers sa dépendance en T (fixée à $T = t_p/10$ et modifiée à $T = t_p$), la dynamique de filamentation d'un vortex restait inchangée. En outre, on pourrait s'interroger si la stabilité d'un vortex optique n'est pas due simplement au fait que sa puissance initiale est suffisamment faible ($P_{in} = 9P_{cr}$) pour rejeter la longueur de filamentation z_f à de grandes distances, ou si elle persisterait en l'absence de rotation du faisceau, c'est-à-dire en supprimant la charge topologique dans le vortex initial. Pour clarifier ce point, nous avons simulé la propagation d'un faisceau Gaussien contenant $9P_{cr}$ et un rayon initial

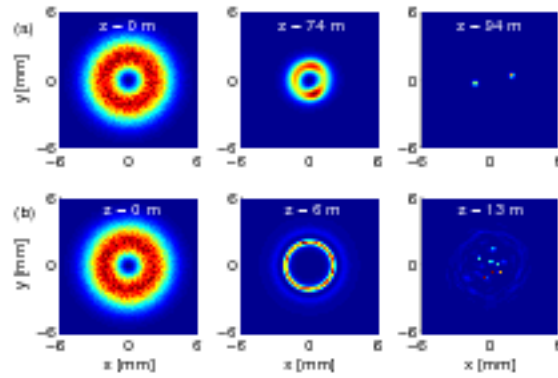


Figure 4.9 : Fluences calculées à partir du faisceau annulaire (4.21) pour un rayon de 3 mm, $t_p = 250$ fs avec les puissances: (a) $P_{in} = 9 P_{cr}$ et (b) $P_{in} = 70 P_{cr}$.

Tableau 4.2 : Paramètres numériques utilisés dans le code 2D résolvant les équations (2.73) et (2.74) pour la propagation de vortex optiques avec $m = 1, 2, 3$ et 6, ainsi que la propagation de impulsions en forme d’anneau (4.21) pour deux puissances différentes, notées Anneau $_{9P_{cr}}$ et Anneau $_{70P_{cr}}$.

	$m = 1$	$m = 2$	$m = 3$	$m = 6$	Anneau $_{9P_{cr}}$	Anneau $_{70P_{cr}}$
$L_x \times L_y$	$(16w_0)^2$	$(16w_0)^2$	$(18w_0)^2$	$(28w_0)^2$	$(16w_0)^2$	$(16w_0)^2$
$N_x \times N_y$	$(3072)^2$	$(3072)^2$	$(3072)^2$	$(4096)^2$	$(3072)^2$	$(3072)^2$
$\Delta_x \times \Delta_y$	$(15\mu\text{m})^2$	$(15\mu\text{m})^2$	$(17\mu\text{m})^2$	$(20\mu\text{m})^2$	$(15\mu\text{m})^2$	$(15\mu\text{m})^2$
D_{num}	350 m	350 m	310 m	250 m	50 m	26 m
T_{num}	50 h	50 h	30 h	50 h	24 h	24 h

égal à 8.5 mm, ayant la même puissance et une largeur spatiale comparable à celles d’un vortex à charge simple $m = 1$. Nous avons alors observé que le faisceau Gaussien se relaxait rapidement en un filament unique sur des distances comprises entre 50 et 80 m [Figure 4.10(a)]. Nous avons aussi simulé la propagation d’un anneau, sans rotation, avec la même forme radiale que celle utilisée pour le vortex avec $m = 1$. Les simulations ont montré que le centre de cet anneau focalisait ultimement sur des distances plus courtes $z \leq 100 - 125$ m [Figure 4.10(b)].

Finalement, seul un vortex optique est capable de se propager sur plusieurs centaines de mètres sans modifier notablement sa forme spatiale, ce que nous attribuons à sa dynamique de rotation qui “retarde” les effets propres à l’auto-focalisation, comme

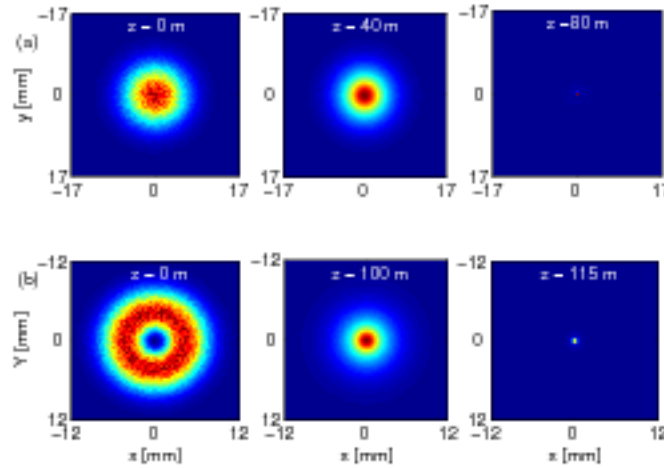


Figure 4.10 : (a) Fluences d'un faisceau Gaussien possédant la même puissance que celle du vortex pour $m = 1$, $t_p = 250\text{ fs}$, $P_{in} = 9P_{cr}$ et $w_0 = 8.5\text{ mm}$ (b) Fluences d'un anneau optique de forme radiale analogue à celle du vortex optique pour $m = 1$ avec $t_p = 250\text{ fs}$, mais sans rotation.

l'instabilité modulationnelle.

4.2.5 Résultats numériques pour les vortex femtosecondes 3D

La dernière partie de cette étude concerne l'extension des vortex 2D au modèle de propagation en géométrie $(3 + 1)$. La question soulevée ici est: Est-ce que les vortex optiques sont toujours robustes en présence de dispersion temporelle? Pour répondre à cette question, nous avons intégré l'équation complète de propagation (2.47) pour des vortex qui présentent maintenant une distribution temporelle de type Gaussienne. Afin de préparer ces structures, nous avons utilisé les mêmes impulsions initiales que celles présentées dans l'équation (4.18), que nous avons multipliées par une Gaussienne en temps, e^{-t^2/t_p^2} , et perturbées par un bruit aléatoire d'amplitude 10%. Cette onde sert de condition initiale pour l'équation (2.47). Contrairement au modèle 2D qui ignore la dispersion temporelle, la distance de dispersion caractéristique $\sim t_p^2/k''$ joue ici un rôle crucial durant la propagation. Avec une faible durée d'impulsion, $t_p = 42.5\text{ fs}$, la distance de GVD caractéristique est relativement courte ($\sim 90\text{ m}$), et des simulations 3D préliminaires ont montré que l'impulsion "s'effondrait" rapidement à cause de l'élargissement temporel causé par la dispersion. Un élargissement temporel implique

une baisse de puissance si bien que le faisceau s'éloigne rapidement des paramètres requis pour un vortex optique (état propre de NLS). Il se comporte alors comme un faisceau classique, diffractant au bout de quelques mètres. Pour des durées d'impulsion suffisamment longues, $t_p = 250$ fs, les distorsions temporelles deviennent assez faibles pour permettre au faisceau de préserver sa puissance et de converger vers un mode de type vortex préservant sa distribution radiale sur de longues distances.

La figure 4.11 montre la propagation d'un tel faisceau pour le nombre de charge $m = 1$. Le faisceau converge de manière continue vers un état de vortex radial, qui se propage sur plus de 100 m. Après quoi, il est affecté par trois modulations qui finalement donnent lieu à trois filaments, comme prévu dans la figure 4.7(a). Les filaments tournent mais ne fusionnent pas, car ils doivent préserver le moment angulaire orbital total du faisceau initial. Il faut noter que la phase de filamentation se produit plus tôt que dans le cas 2D, à cause de la GVD qui, même faible, induit un petit élargissement temporel qui réduit la distance d'apparition des filaments [figure 4.11(c)]. Cette propriété s'applique aux vortex contenant une faible puissance ($P_{in} \simeq 9P_{cr}$), mais est aussi observée pour des faisceaux contenant plus de puissance. En effet la figure 4.12 montre les images de fluence pour un vortex ayant une charge topologique $m = 6$ et $P_{in} \simeq 70P_{cr}$. Encore une fois, le faisceau converge vers un état de vortex radial qui reste stable sur une centaine de mètres, avant que treize modulations ne l'affectent, qui amplifient finalement ~ 8 filaments. Dans la figure 4.12(b), les distorsions temporelles dans le plan $(x, y = 0, t)$ sont limitées, puisque l'extension temporelle de l'impulsion occupe toujours un intervalle d'environ $2t_p$. Ceci permet au faisceau de converger vers le vortex radial dont le mode est le plus proche, de manière quasi-conservative.

Cette robustesse semble s'appliquer uniquement aux vortex, puisque les faisceaux Gaussiens classiques ou même les profils en anneau se cassent en filaments beaucoup plus rapidement (cf. Ref. [23]). Afin de démontrer cette propriété, la figure 4.13 illustre la filamentation d'une impulsion 3D Gaussienne perturbée par un bruit aléatoire de 10% en amplitude, ayant une puissance et un rayon analogues à ceux du vortex de charge topologique $m = 1$. On voit clairement qu'aucune modulation hors-axe n'apparaît, comme attendu pour les Gaussiennes à faible puissance [69, 83]. Au lieu de cela, le faisceau s'auto-focalise en son centre sur une distance relativement courte (≤ 48 m), où un filament unique résulte de la saturation de la réponse Kerr par l'ionisation des

molécules de l'air. La figure 4.13(b) détaille la compression temporelle induite par l'action défocalisante du plasma d'électrons.

Pour terminer cette étude, nous présentons les détails numériques qui ont été nécessaires pour mener à bien ces calculs numériques (voir aussi Annexe B). Le tableau (4.3) présente les rayons des faisceaux w_0 , les tailles des boîtes de simulation ($L_t \times L_x \times L_y$), le nombre de points utilisés ($N_t \times N_x \times N_y$), et donc la résolution ($\Delta_t \times \Delta_x \times \Delta_y$), ainsi que les temps de calcul T_{num} et la distance parcourue D_{num} , pour les simulations de propagation des vortex optiques de charge topologique $m = 1$ et $m = 6$, ainsi que pour l'impulsion Gaussienne de paramètres analogues à ceux utilisés pour le vortex $m = 1$ (notée Gaussienne_{Gr}). Pour la simulation des deux vortex optiques, le maillage a été modifié en deux étapes au cours du calcul. En effet, avant que l'impulsion ne commence à subir l'instabilité modulationnelle, une résolution inférieure à $70 \mu\text{m}$ en x et en y n'est pas nécessaire. 512^2 points suffisent, ce qui conduit à un temps de calcul relativement court. Cependant, au voisinage de l'instabilité, l'intensité maximale monte subitement aux alentours des distances $z_r = 120$ mètres pour $m = 1$ et $z_r = 160$ m pour $m = 6$. Dans ce cas, nous raffinons le maillage aux alentours de ces distances en doublant le nombre de points en x et y , de manière à ce que les pics optiques soient correctement résolus (résolution effective $\sim 35 - 50 \mu\text{m}$). Le raffinement de maillage a été fait suivant un principe d'interpolation linéaire du champ: le champ au centre de la maille carrée du maillage initial est interpolé par la moyenne des champs aux sommets de ce carré.

Tableau 4.3 : Paramètres numériques utilisés dans le code 3D résolvant l'équation (2.47) pour la propagation des vortex optiques avec différentes charges topologiques $m = 1$ et 6, ainsi que pour l'impulsion Gaussienne simulée en Fig. 4.13 et notée Gaussienne $_{9P_{cr}}$

	$m = 1$	$m = 6$	Gaussienne $_{9P_{cr}}$
w_0	3 mm	3 mm	8.5 mm
$L_t \times L_x \times L_y$	$6t_p \times (12w_0)^2$	$6t_p \times (28w_0)^2$	$6t_p \times (5w_0)^2$
z_R	120 m	160 m	
$N_t \times N_x \times N_y (z < z_R)$	$512 \times (512)^2$	$896 \times (768)^2$	$896 \times (896)^2$
$N_t \times N_x \times N_y (z > z_R)$	$512 \times (1024)^2$	$896 \times (1536)^2$	$896 \times (896)^2$
$\Delta_t \times \Delta_x \times \Delta_y (z < z_R)$	$3 \text{ fs} \times (70 \mu\text{m})^2$	$1.6 \text{ fs} \times (100 \mu\text{m})^2$	$1.6 \text{ fs} \times (47 \mu\text{m})^2$
$\Delta_t \times \Delta_x \times \Delta_y (z > z_R)$	$3 \text{ fs} \times (35 \mu\text{m})^2$	$1.6 \text{ fs} \times (50 \mu\text{m})^2$	$1.6 \text{ fs} \times (47 \mu\text{m})^2$
D_{num}	140 m	178 m	68 m
T_{num}	200 h	155 h	100 h

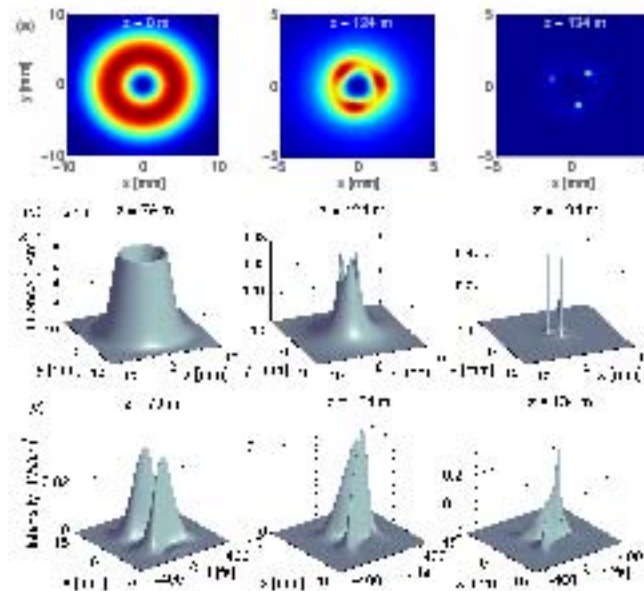


Figure 4.11 : (a) Fluences de vortex pour $m = 1$ avec $w_0 = 3 \text{ mm}$, $t_p = 250 \text{ fs}$ calculées à partir de l'équation (2.47) pour $P_1 = 9P_{cr}$, (b) "surface plot" pour les distances analogues, excepté la première détaillant le vortex à $z = 79 \text{ m}$. (c) Profils temporels correspondants. Notez les changements d'échelles et les distances de propagation.

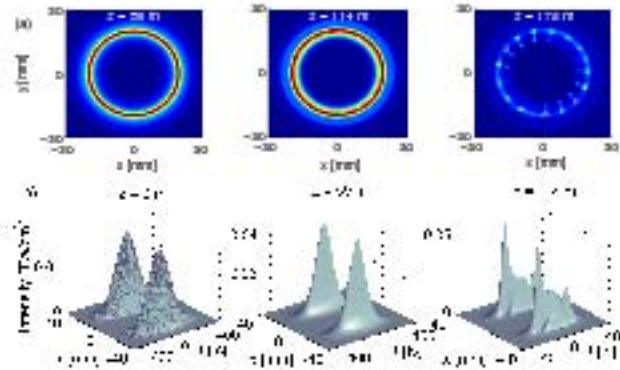


Figure 4.12 : (a) Fluences de vortex pour $m = 6$ ($w_0 = 3$ mm et $t_p = 250$ fs) calculées à partir de l'équation (2.47) pour $P_0 = 69.6P_{cr}$. (b) Distorsions temporelles dans le plan $(x, y = 0, t)$.

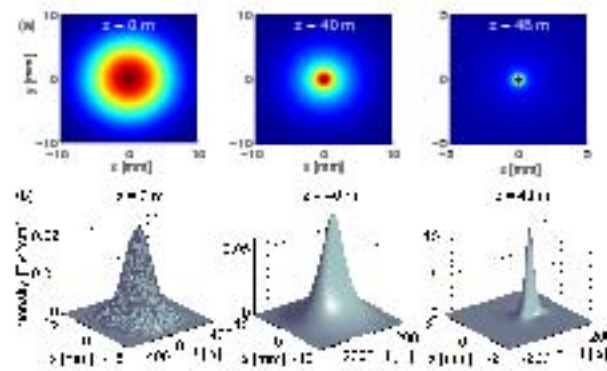


Figure 4.13 : (a) Fluences et (b) profils temporels pour une impulsion Gaussienne avec $w_0 = 8.5$ mm; $t_p = 250$ fs, et $P_{in} \simeq 9P_{cr}$.

Chapitre 5

Filamentation Multiple: Simulations et Expériences

Nous nous intéressons dans cette dernière partie à la propagation des impulsions dans des milieux divers, atmosphériques ou denses. Dans une première partie, nous examinons la propagation d'un faisceau terawatt mobile (laser Teramobile) en milieu "humide", c'est-à-dire traversant une chambre à brouillard. En effet, lorsqu'on effectue un tir laser en extérieur, le faisceau peut être altéré par une traversée de nuages composés de gouttelettes d'eau. Il est alors important de savoir prévoir les pertes éventuelles en énergie ainsi que la modification de la figure de filamentation lors du passage du faisceau à travers ces obstacles. C'est l'objectif de cette étude qui comparera des résultats numériques avec des données issues d'expériences menées par les équipes du Teramobile.

Dans une seconde partie, nous nous intéressons à la filamentation d'impulsions ultra-courtes et de forte puissance dans les liquides, en particulier l'éthanol. Nos simulations seront confrontées à des expériences directes. On montrera numériquement, et en s'appuyant sur des résultats issus d'expériences menées par les équipes du LASIM (université Lyon 1), que la filamentation multiple peut être contrôlée sous la forme de figures géométriques régulières (hexagonales) en dopant le milieu avec des concentrations appropriées de diluant (ici la coumarine 153).

5.1 Multifilamentation à travers le brouillard

Les domaines d'application ouverts par la propagation d'impulsions ultra-courtes dans l'atmosphère, par exemple les applications Lidar [110], motivent une connaissance plus approfondie de la robustesse des filaments femtosecondes en atmosphère perturbée et en particulier à travers le brouillard et la pluie. De récents résultats provenant d'expériences effectuées en laboratoire [111] ainsi que de travaux théoriques [11, 112], ont montré qu'un filament isolé pouvait survivre et se reformer après collision avec un obscurant de diamètre de $100\ \mu\text{m}$, c'est à dire de taille comparable avec la sienne. Ils ont aussi montré que la filamentation d'un faisceau gigawatt pouvait assurer sa propagation à travers un nuage permettant une transmission de 5% seulement. La robustesse du filament est due à la refocalisation de certaines composantes du faisceau qui restent intactes lors de la collision et dont la puissance demeure au-dessus de la puissance critique. Ces composantes s'auto-focalisent à nouveau sur l'axe du faisceau et "cicatrisent" le filament sur quelques cm. Pour des impulsions sujettes à la multifilamentation [16, 81], des faisceaux de forte puissance peuvent se propager librement sous la forme de clusters de filaments (appelés "pilliers optiques") provenant des fluctuations initiales du faisceau. De tels clusters sont capables de couvrir plusieurs dizaines de mètres, alors que les filaments les constituant apparaissent et disparaissent de manière récurrente sur quelques mètres en échangeant de l'énergie avec le bain de photons environnant, selon le scénario proposé dans la référence [15]. En présence de gouttes d'eau, la survie de multiples filaments a été observée qualitativement. La propagation à travers un brouillard de 5 m contenant $0.3\ \text{gouttes}/\text{cm}^3$ réduit très peu l'efficacité du faisceau de 5 TW utilisé pour le déclenchement et le guidage de décharges électriques à haut-voltage [113]. Toutefois, malgré tous ces résultats, on ne dispose d'aucune donnée expérimentale ou de simulations numériques concernant la filamentation multiple de faisceaux terawatt se propageant à travers un brouillard et interagissant aléatoirement avec des milliers de gouttes d'eau sur des distances relevantes pour le cas de la propagation atmosphérique.

5.1.1 Dispositif expérimental

Les expériences ont été réalisées à l'aide du système laser femtoseconde terawatt mobile appelé "Teramobile" [114] permettant des tests à l'air libre sous n'importe quelle



Figure 5.1 : laser et chambre à brouillard pour l'étude de la filamentation en milieu humide.

condition climatique. Le Teramobile produit des impulsions centrées à 800 nm à 220 mJ en énergie, à des taux de répétition de 10 Hz. Le faisceau est émis en géométrie collimatée avec un diamètre initial de 3 cm. La durée minimale de l'impulsion est de 80 fs; un "chirp" l'élargissant peut être initialement introduit afin de précompenser l'action de la dispersion de la vitesse de groupe (GVD) dans l'air au cours de la propagation du faisceau. Dans ce cas, les impulsions sont refocalisées temporellement après une certaine distance [110, 115]. Le faisceau Teramobile se propage horizontalement (Lyon, 170 m d'altitude). Après 40 mètres de propagation libre, il traverse une chambre à brouillard de 10 m de long, constituée de gouttelettes d'eau comme décrit dans la référence [28] (cf. Fig. 5.1). Le chirp initial a été ajusté de manière à ce que la filamentation commence juste avant que le faisceau ne pénètre dans la chambre, ce qui correspond à une durée effective de l'impulsion de 600 fs. Puis, les filaments se propagent sur 10 mètres à travers un brouillard quasi-homogène. La densité du nuage a été estimée par des mesures de transmission élastique à partir d'un laser He:Ne de faible puissance. La distribution des gouttelettes est centrée autour d'un rayon moyen de $R \simeq 1\mu\text{m}$ (beaucoup plus petit que la taille du filament) en utilisant un "optical sizer".

La propagation en atmosphère humide est caractérisée par les profils du faisceau. Ceux-ci sont obtenus en prenant des photos sur écran. Les images ont été prises sur l'intégralité du spectre avec une forte sensibilité au continuum de la lumière blanche et

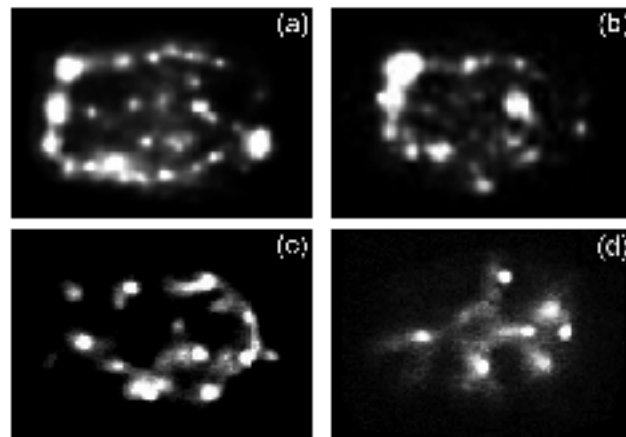


Figure 5.2 : Profils expérimentaux du faisceau en sortie de chambre, dans le cas (a,c) d'une propagation libre avec des puissances respectives de $123 P_{cr}$ (220 mJ, 600 fs) et $51 P_{cr}$ (~ 90 mJ, 600 fs), et (b,d) d'une propagation à travers 10 mètres de brouillard avec les mêmes puissances. Les dimensions des fenêtres sont d'environ 5×3.5 cm².

à la région infrarouge, donnant une bonne restitution du profil du faisceau à la distance considérée, comme démontré dans les références [16, 81].

5.1.2 Résultats et discussion

Afin de voir l'effet de l'interaction des gouttelettes avec le faisceau laser, les expérimentateurs du LASIM ont enregistré le profil transverse des impulsions en sortie de la chambre humide pour deux énergies laser différentes dans le cas d'une propagation libre sur 50 mètres, et dans celui d'un passage à travers le brouillard. La densité des gouttes est choisie de telle manière qu'elle corresponde à une transmission en énergie de 50 % sur 10 mètres. La figure 5.2 montre les résultats obtenus.

Comme on le voit sur cette figure, l'énergie du faisceau transmise est modifiée, ce qui influence fortement la distribution des filaments, et en particulier leur nombre. La figure de filamentation obtenue pour des énergies transmises proches, i.e, 90 mJ à l'air libre [Fig. 5.2(c)] et 220 mJ avec une atténuation de 50 % (110 mJ d'énergie transmise) [Fig. 5.2(b)], sont en effet similaires. La plupart des filaments sont localisés sur l'anneau du profil de diffraction, d'autres sont nucléés à l'intérieur de l'anneau. Pour une énergie donnée, seul un petit nombre de sites filamentateux ont disparu le long du chemin optique à travers le brouillard [voir Figs 5.2(a,c) versus 5.2(b,d)]. Le nombre de filaments décroît selon la puissance laissée à la sortie de la chambre. Ceci

P_{in}/P_{cr}	123		51	
Propagation	libre	brouillard	libre	brouillard
Nombre de filaments	24	13	11	6

Tableau 5.1 : Nombre de filaments moyen en fonction de la puissance du faisceau d'entrée après 50 mètres de propagation, avec ou sans les 10 mètres de brouillard.

montre que le brouillard agit globalement comme un atténuateur de puissance sur la totalité du faisceau. Il promet l'extinction élastique du "bain de photons" et de ses filaments.

Afin de confirmer cette théorie, les expérimentateurs ont examiné la dépendance de la puissance transmise avec le nombre de filaments. On sait qu'un faisceau dont la puissance initiale excède la puissance critique d'auto-focalisation se casse en de multiples cellules qui s'auto-focalisent à leur tour, chacune contenant quelques puissances critiques. Typiquement, la théorie des instabilités modulationnelles [cf chap. 2] prédit qu'environ $3P_{cr}$ sont engagées dans chaque cellule [14], ce qui est valable tant qu'un seul filament "voit" le champ environnant comme une onde plane uniforme. Pour chacune des conditions expérimentales de la figure 5.2, le nombre de filaments a été moyenné sur quatre à sept profils enregistrés. Les résultats ont été résumés dans le tableau 5.1.

En supposant une faible absorption causée par la génération de plasma [15], la puissance du faisceau transmise sur 50 mètres sans atténuation est pratiquement constante, alors que celle traversant la chambre à brouillard sur la même distance de propagation peut être estimée à $P_{tr} \simeq P_{in}/2$. Un fit linéaire montre sur la figure 5.3 un filament pour 15 GW de puissance transmise avec $P_{cr} \simeq 3$ GW. Cette courbe indique clairement qu'environ 5 puissances critiques sont engagées dans chaque filament, que le faisceau passe à travers le brouillard ou non. Cette estimation est en bon accord avec les valeurs attendues. Cela situe la puissance par filament entre les évaluations appliquées aux milieux Kerr purs ($P_{fil} \sim 3P_{cr}$) [14] et des simulations 3D récentes de filaments auto-guidés dans l'air ($P_{fil} \sim 7P_{cr}$) [11].

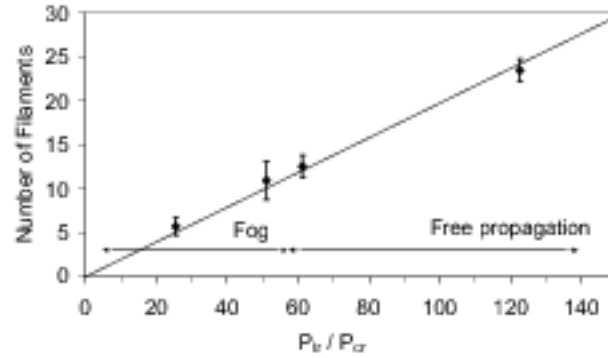


Figure 5.3 : Dépendance de la puissance transmise (P_t) sur le nombre de filaments pour une propagation libre ou à travers le brouillard [$P_{cr} \simeq 3$ GW].

5.1.3 Analyse numérique de figures de filamentation en milieu humide

Afin de compléter cette étude sur la filamentation en atmosphère humide, nous proposons un modèle numérique permettant de simuler la propagation d'un faisceau ultra-court dans un brouillard constitué de gouttes micrométriques distribuées aléatoirement dans le plan de diffraction. L'équation utilisée est l'équation de Schrödinger non-linéaire décrivant l'évolution de l'enveloppe du champ laser \mathcal{E} couplée au modèle décrivant l'évolution de la densité d'électrons libres. Ces équations ont été établies dans le chapitre 2. Les expériences impliquant des faisceaux très larges, des simulations directes en géométrie (3+1) seraient trop coûteuses en terme de temps de calcul et de taille mémoire pour stocker les fichiers pour une propagation sur quelques dizaines de mètres. De plus, la simulation des collisions avec des gouttelettes micrométriques devient impossible à gérer compte tenu de la résolution spatiale requise qui devrait être typiquement $\leq 1 \mu\text{m}$ pour une fenêtre numérique de $6 \times 6 \text{ cm}^2$ dans le plan (x,y) . C'est pourquoi les calculs numériques seront faits à partir du modèle 2D moyenné en temps [Eqs. (2.73) et (2.74)] dérivées en section 2.7. Exprimée en unités physiques et pour un modèle d'ionisation MPI, l'équation de l'enveloppe ψ du champ est gouvernée par l'équation

$$\begin{aligned} \frac{\partial \psi}{\partial z} = & \frac{i}{2k_0} \nabla_{\perp}^2 \psi + i\alpha k_0 n_2 |\psi|^2 \psi - ik_0 \frac{n_4}{\sqrt{3}} |\psi|^4 \psi \\ & - i\gamma |\psi|^{2K} \psi - \frac{\beta^{(K)}}{2\sqrt{K}} |\psi|^{2K-2} \psi - \frac{\epsilon}{2} \psi, \end{aligned} \quad (5.1)$$

avec $\alpha = 1/\sqrt{8} + D/4\tau_K$, $\gamma = k_0\sigma_K\rho_{nb}\sqrt{\pi/8KT}/2\rho_c$ et

$$D \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} e^{\frac{y^2}{8\tau_K} - \frac{u}{\tau_K} - \frac{2u^2}{\tau_K^2}} \left\{ \operatorname{erf}\left(\frac{\sqrt{2}u}{T} - \frac{T}{\sqrt{8\tau_K}}\right) + 1 \right\} du. \quad (5.2)$$

La fonction D dépend du temps de relaxation ($\tau_K = 70$ fs) de la réponse retardée Raman-Kerr, et vaut 44 fs ($\alpha = 0.51$) pour une durée temporelle $t_p \simeq 510$ fs (FWHM = 600 fs). Les autres coefficients de l'Éq. (5.1) font intervenir des paramètres appropriés au cas de la propagation dans l'air, plus précisément, $\rho_{nb} = 5.4 \times 10^{18}$ cm⁻³, la densité critique plasma à 800 nm, $\rho_c \simeq 1.8 \times 10^{21}$ cm⁻³, l'absorption multiphotonique (MPA) avec un coefficient $\beta^{(K)} \simeq 3.1 \times 10^{-98}$ cm^{2K-3}/W^{K-1}, le taux d'ionisation avec un coefficient MPI $\sigma_K = 2.9 \times 10^{-99}$ s⁻¹ cm^{2K}/W^K et le nombre de photons $K = 8$. Afin de compléter le modèle, un coefficient $n_4 = 2.5 \times 10^{-33}$ cm⁴/W² de saturation quintique a été introduit. Sa pertinence a été discutée dans le chapitre 3. Le terme d'amortissement impliquant le coefficient ϵ (en m⁻¹) modélise la perte linéaire de puissance lorsque le faisceau passe dans la chambre humide.

Une fois le modèle établi, intéressons-nous au contexte physique des expériences. Nous considérons les changements dans la figure de filamentation occasionnés par la collision du faisceau avec des gouttes aléatoirement distribuées dans le plan (x,y) . De telles collisions peuvent être décrites par la théorie de Mie [116] pour la diffusion de la lumière par des sphères. Puisque la diffusion est presque indépendante des propriétés optiques du diffuseur, il est possible de modéliser les gouttelettes par des écrans opaques de taille adaptée pour les simulations numériques. Cette propriété avait déjà été exploitée dans la référence [11] où les gouttelettes avaient été numériquement modélisées par des masques circulaires de rayon R et d'opacité maximale (transmission nulle) en leur centre. Cette modélisation fournit de bons résultats pour l'interaction d'un filament avec une gouttelette. Ces simulations ont prouvé qu'un filament unique était capable de s'auto-régénérer sur seulement 2 cm de propagation avec une perte d'énergie limitée à environ 10%, ce qui est en accord avec les observations expérimentales [10]. Cette propriété ne garantit pas toutefois que plusieurs filaments puissent survivre après de nombreuses interactions avec des milliers d'obscurements micrométriques placés le long du chemin optique.

Afin de vérifier cette propriété, nous avons intégré l'équation (5.1) pour un faisceau de taille millimétrique ($w_0 = 2$ mm), ayant une durée FWHM de 600 fs, contenant ~ 100 puissances critiques et perturbé par un bruit aléatoire d'amplitude 20% dans

une première campagne de simulations, nous avons laissé propager le faisceau librement sur 1 mètre avant qu'il n'atteigne une zone au cours de laquelle la dissipation linéaire devient active avec un coefficient $\epsilon = 0.07 \text{ m}^{-1}$, valeur assurant un taux d'atténuation de 50 % sur 10 mètres de long. Dans une deuxième série de calculs, nous avons imposé $\epsilon = 0$, mais nous modélisons les collisions aléatoires du faisceau avec les obstacles micrométriques utilisés dans la référence [11]. Dans ce dernier cas, la distribution aléatoire de gouttes est réalisée numériquement selon une distribution de Poisson [28] suivant la procédure exposée ci-après.

Un nombre aléatoire de gouttelettes est calculé à chaque pas en z . On s'assure de leur distribution uniforme en x et y . Ainsi, pour chaque gouttelette, nous générons un nombre aléatoire entre -0.5 et 0.5 que nous multiplions par L_x et L_y , qui désignent les tailles des fenêtres de calcul. Puisque le nombre de gouttes à chaque pas en z est petit comparé à leur nombre total, on utilise une statistique de Poisson pour modéliser leur distribution. Nous fixons le nombre moyen de gouttes à chaque pas en z , Δz , par $\lambda = \Delta z L_x L_y N$, où N est la densité de gouttes. La fonction densité de Poisson $\mathcal{P}(l) = \lambda^l / l! \times \exp(-\lambda)$ donne alors la probabilité de trouver exactement l gouttes entre z et $z + \Delta z$. Le nombre l est calculé par la fonction de distribution de Poisson $\mathcal{F}_{\mathcal{P}}(l) = \sum_{l'=0}^l \mathcal{P}(l')$ au moyen de la théorie standard des probabilités. En suivant cette procédure, le nombre moyen de gouttes λ est relié au paramètre de dissipation ϵ , lorsque l'on spécifie les pertes relatives moyennes induites par une seule goutte. En supposant que les gouttes ne se superposent pas, les pertes causées par des obstacles à chaque pas en z peuvent être évaluées par $\lambda \pi R^2 / L_x L_y$ (R désigne le rayon moyen d'une goutte). Par ailleurs, la perte induite par le coefficient ϵ est $\epsilon \Delta z$, puisque $\exp(-\epsilon \Delta z) \simeq 1 - \epsilon \Delta z$. En identifiant ces deux contributions, on en déduit que la perte induite par le coefficient ϵ vérifie $\epsilon = N \pi R^2$, ce qui corrobore les estimations expérimentales données pour ϵ , N et R .

A cause des limitations de calcul (espace de stockage, temps de calcul), nous n'avons pas pu utiliser des gouttes de $1 \mu\text{m}$ de diamètre, et nous avons donc adapté la densité pour des gouttes plus larges de rayons différents ($R \geq 25 \mu\text{m}$) au moyen de la normalisation $N \rightarrow N/R^2$, de manière à garder constante la perte moyenne. Les résultats sont illustrés dans la figure 5.4.

La figure 5.4(a) montre la décroissance de la puissance optique dans la chambre

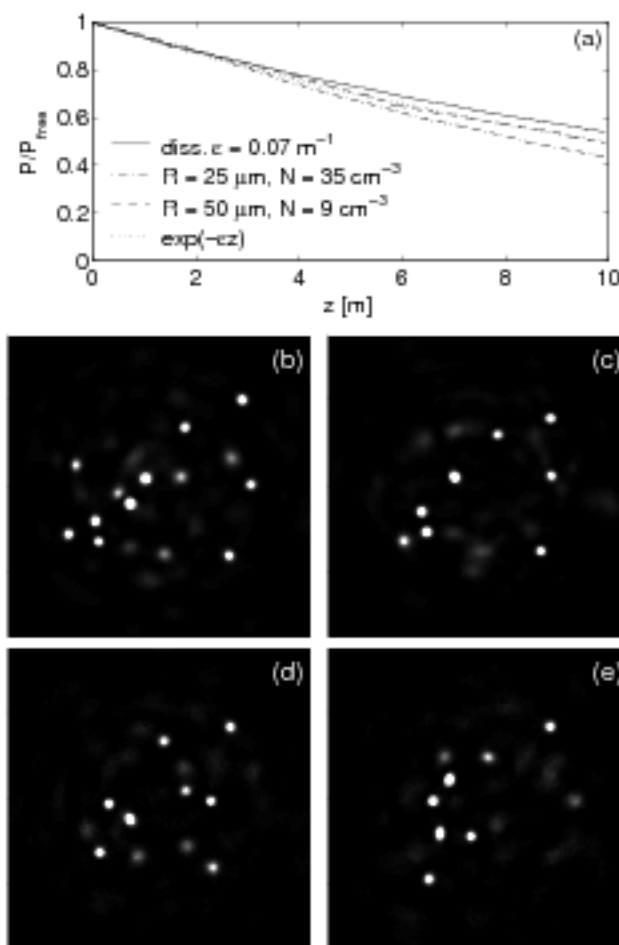


Figure 5.4 : (a) Puissance du faisceau calculée numériquement et normalisée par celle d'un faisceau se propageant librement ($w_0 = 2 \text{ mm}$) et de puissance initiale $\sim 110 P_{\text{cr}}$ à travers un brouillard de 10 mètres de long avec un coefficient d'amortissement linéaire ($\epsilon = 0.07 \text{ m}^{-1}$, courbe pleine), ou subissant une distribution aléatoire de gouttes de $25 \mu\text{m}$ (courbe tirets-points) ou de $50 \mu\text{m}$ (courbe en tirets). La courbe en pointillés indique la décroissance théorique exponentielle de la puissance. La distance $z = 0$ représente l'entrée dans la chambre à brouillard. (b-e) Figures de filamentation après 4 mètres de propagation dans la chambre contenant le brouillard: (b) propagation libre, (c) avec un amortissement linéaire, ou avec une distribution aléatoire de gouttes de rayons (d) $25 \mu\text{m}$ et (e) $50 \mu\text{m}$, respectivement. Les dimensions sont $7 \times 7 \text{ mm}^2$. Les niveaux d'intensité sont deux fois plus élevés que l'intensité initiale.

à brouillard, normalisée par la puissance du même faisceau se propageant librement. Toutes les courbes sont très proches avec une différence relative de moins de 5 % autour de la décroissance exponentielle $e^{-\alpha z}$ (les courbes obtenues numériquement proviennent de simulations prenant en compte les effets Kerr, MPI et MPA, et ne peuvent donc se superposer exactement à la courbe exponentielle. Elles en sont cependant très proches). Cette propriété persiste en utilisant différentes valeurs de la densité N , tant que le coefficient de dissipation linéaire ϵ est adapté. Ici, la décroissance en puissance causée par les collisions aléatoires avec des gouttelettes de $25 \mu\text{m}$ ou de $50 \mu\text{m}$ de rayon est presque superposable avec celle induite par la dissipation linéaire sur les 4 premiers mètres de propagation. Les figures 5.4(b)-5.4(e) détaillent les profils du faisceau. Après 4 mètres de propagation en milieu "humide", la figure de filamentation reste similaire en régime linéairement amorti et en présence de gouttelettes aléatoirement réparties (~ 8 cellules). Comparé avec le régime de propagation libre [Fig. 5.4(b)], le nombre de filaments a déjà décré d'un facteur $\sim 3/2$ [Figs. 5.4(c)-5.4(e)]. L'analogie dans la perte de puissance et dans le nombre de filaments entre les gouttelettes de différentes tailles provient du fait que même si les petites gouttes dissipent la moitié de l'énergie consommée par des grosses gouttes par collision [10], leur densité est quatre fois plus grande et cause des dommages équivalents sur la figure de filamentation.

A plus grande distance ($z \rightarrow 10 \text{ m}$), le nombre de filaments décroît, mais ce nombre est ensuite préservé entre dissipation linéaire et gouttelettes aléatoirement distribuées. Cela confirme le bon accord entre la perte de puissance induite par des collisions stochastiques et l'amortissement linéaire. Il est à noter toutefois que la perte de puissance due aux collisions avec les gouttelettes peut atteindre 55 %. Le désaccord avec les valeurs observées expérimentalement est expliqué par le fait que la boîte de calcul est finie, et une certaine partie du champ s'en échappe, conduisant ainsi à des pertes supplémentaires (qui n'ont pas de réalité physique). Cette tendance est amplifiée par l'opacité des gouttes qui favorise une diffraction à angle large vers les bords de la boîte. Malgré cette tendance, les pertes induites par la collision avec des gouttes sont donc les mêmes à produit $N \times R^2$ constant. Elles suivent une décroissance de type exponentielle comparable à la perte d'énergie produite par un amortissement linéaire. Ces résultats prouvent bien l'équivalence entre les collisions d'un faisceau optique avec des gouttelettes aléatoirement distribuées et une atténuation exponentielle de la puissance.

Compte tenu de cette analogie, nous nous sommes intéressés aux conséquences d'un amortissement linéaire sur des gros faisceaux dans un brouillard de 10 mètres de long après 40 mètres de propagation libre, dans des conditions proches des expériences précédentes. Nous avons donc élargi le faisceau à un diamètre de $w_0 = 1$ cm appliqué au fichier digitalisé représentant la fluence d'entrée utilisée dans l'expérience Teramobile. Cette valeur est volontairement choisie plus petite que le diamètre du faisceau expérimental à cause des limitations de l'équation (5.1). Ce modèle ne peut en effet pas prendre en compte la compression temporelle induite par un "chirp" négatif. La contrainte de devoir obtenir une tache de filamentation émergente *avant* l'entrée dans la chambre à brouillard justifie le choix d'une longueur de Rayleigh plus petite que la distance de diffraction expérimentale, et impose ainsi $w_0 = 1$ cm.

La figure 5.5 montre les figures de filamentation du faisceau en sortie de tube à $z = 50$ m, après avoir traversé un nuage de 10 mètres de long, avec 50 % de transmission. Ces figures de filamentation sont en bon accord qualitatif avec leur contrepartie expérimentale montrée dans la figure 5.2. En l'absence de brouillard, le profil transverse du faisceau contient environ 25 filaments [Fig. 5.5(a)]. Ce nombre est pratiquement divisé par deux lorsque le faisceau subit un amortissement linéaire [Fig. 5.5(b)]. Le nombre résultant de filaments $\sim 12 - 15$ est du même ordre que celui obtenu après 50 mètres de propagation libre lorsque le faisceau possède une puissance initiale divisée par un facteur d'environ 2 [Fig. 5.5(c)]. Le même faisceau contenant $51 P_{cr}$ subit une réduction significative de filaments lorsqu'il se propage à travers la chambre à brouillard avec un amortissement linéaire de 50 %. La figure en insert démontre enfin que les pertes non-linéaires induites par MPA restent faibles sur 50 mètres, comparées à un amortissement linéaire, ce qui est un argument pour approcher la puissance transmise par $P_{tr} \simeq P_{in}/2$. Les filaments comptés correspondent aux spots brillants visibles sur la figure 5.5. Leur nombre, résumé dans le tableau 5.2, est en très bon accord *quantitatif* avec ceux fournis par le tableau 5.1. On peut attribuer les différences dans le nombre exact et la localisation des filaments expérimentaux à la taille du faisceau numérique qui est plus petite, et aux fluctuations de moindre importance (diffusion locale, turbulence atmosphérique...) que l'équation (5.1) ne prend pas en compte.

Ces résultats sont très instructifs puisqu'ils valident l'estimation expérimentale de $5P_{cr}$ par filament dans l'air. Dans le régime de propagation libre, ils soulignent aussi la

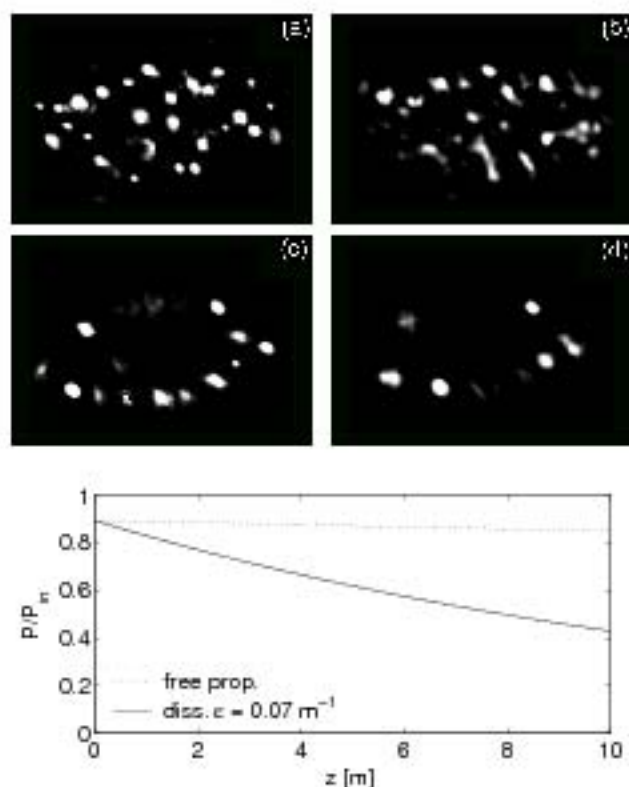


Figure 5.5 : Profils du faisceau calculés numériquement à $z = 50$ m, dans le cas (a,c) de la propagation libre aux puissances respectives de $123 P_{cr}$ et $51 P_{cr}$ et (b,d) de la propagation à travers 10 mètres de brouillard avec les mêmes puissances. Les échelles sont de 2.3×1.6 cm². Les niveaux d'intensité correspondent au double de l'intensité initiale. La figure en insert compare les pertes de puissance normalisées à la puissance initiale P_{in} entre la propagation libre et le régime linéairement amorti pour $P_{in} \simeq 123 P_{cr}$, $z = 0$ correspondant à l'entrée dans la chambre de brouillard.

P_{in}/P_{cr}	123		62	51	
Propagation	libre	brouillard	libre	brouillard	libre
Nombre de filaments	25	12-15	13	12	6

Tableau 5.2 : Nombre de filaments en fonction de la puissance du faisceau fourni par les simulations numériques. La donnée supplémentaire avec $62P_{cr}$ correspond au même faisceau dans un régime de propagation libre (non montré dans la Fig. 5.5).

forte corrélation existante entre le nombre de puissances critiques dans le faisceau initial et le nombre de filaments formés au cours de la propagation. Enfin, ils confirment à nouveau que l'effet d'un brouillard dense contenant des gouttelettes de taille suffisamment petite est identique à celui d'une source de dissipation linéaire agissant sur le réservoir d'énergie formé par l'enveloppe du faisceau et ses filaments.

5.2 Multifilamentation dans des cellules d'éthanol dopées à la coumarine

Depuis peu, la propagation d'impulsions optiques femtosecondes dans les liquides a donné lieu à de nombreuses études afin de comprendre les mécanismes complexes qui assurent l'auto-guidage de la lumière sur des courtes distances dans les milieux transparents [117, 118, 119]. Les milieux condensés, en effet, possèdent la propriété d'amplifier le rôle des acteurs clés comme la dispersion et la génération de plasma dans le maintien de l'impulsion ultra-courte en état focalisé. Dans la référence [117], une étude détaillée d'un filament femtoseconde auto-guidé dans du méthanol a démontré la possibilité de promouvoir de multiples phases de focalisation/défocalisation le long de l'axe de la propagation, à cause de la compétition entre la réponse Kerr, la dispersion du milieu, et l'ionisation à cinq photons du méthanol. En ajoutant une petite quantité de coumarine, qui entraînait ici de l'absorption à trois photons, les auteurs ont observé une limitation de l'intensité maximale et un accroissement de la divergence spatiale du faisceau. Les échanges d'énergie entre le cœur du filament et sa périphérie rendent possibles des événements de re-focalisation. Dans la présente étude, nous nous intéressons aux figures de filamentation multiple créées par les impulsions ultra-courtes comportant une puissance initiale de plusieurs centaines de puissances critiques. Nous examinerons en particulier les modifications observées dans les figures obtenues en champ proche dans les cellules d'éthanol contenant ou non une faible concentration de molécules d'un colorant, la coumarine 153, promouvant de l'absorption à deux photons à 800 nm. Dans ce qui suit, nous analysons l'influence de la géométrie du faisceau initial en utilisant une distribution optique fermée (le faisceau passe par un diaphragme) ou ouverte (le faisceau n'est pas coupé), ainsi que l'action du colorant sur la figure de filamentation.

5.2.1 Le modèle physique

Pour modéliser la propagation de l'impulsion, nous considérons l'équation 3D NLS pour le champ électrique $\mathcal{E}(x, y, z, t)$ dans le référentiel de l'onde se déplaçant à la vitesse de groupe v_g , couplée au modèle d'ionisation en régime MPI:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} &= \frac{i}{2k} \nabla_{\perp}^2 \mathcal{E} - i \frac{k''}{2} \partial_z^2 \mathcal{E} + ik_0 n_2 |\mathcal{E}|^2 \mathcal{E} - \left(\frac{\sigma}{2} + i \frac{k_0}{2n_0 \rho_c} \right) \rho \mathcal{E} \\ &\quad - \frac{\beta^{(K)}}{2} |\mathcal{E}|^{2K-2} \mathcal{E} - \frac{\sigma_{\text{abs}}^{(n)}}{2} \rho_{\text{abs}} |\mathcal{E}|^{2n-2} \mathcal{E}, \end{aligned} \quad (5.3)$$

$$\partial_t \rho = \sigma_K \rho_{\text{nt}} |\mathcal{E}|^{2K} + \frac{\sigma}{U_i} \rho |\mathcal{E}|^2 - \frac{\rho}{\tau_r}. \quad (5.4)$$

Dans le membre de droite de l'équation (5.3), le nombre d'onde central est défini par $k = n_0 k_0$ pour $k_0 = 2\pi/\lambda_0 = \omega_0/c$, $\lambda_0 = 810$ nm et $n_0 = 1.36$ est l'indice de refraction linéaire pour l'éthanol pur. La GVD dans l'éthanol pur a un coefficient élevé $k'' \simeq 403$ fs²/cm [120] et la réponse Kerr est caractérisée par l'indice non-linéaire $n_2 = 2.6 \times 10^{-16}$ cm²/W. En l'absence de mesures précises, lorsque le colorant est mélangé à l'éthanol, cet indice peut augmenter significativement par un facteur > 10 [121, 122]. C'est pourquoi nous considérons la valeur $n_2^{\text{dilue}} = 2.6 \times 10^{-15}$ cm²/W pour des solutions diluées. La puissance critique toujours définie par $P_{\text{cr}} = \lambda_0^2/2\pi n_0 n_2$ vaut donc $P_{\text{cr}} \simeq 3$ MW pour l'éthanol pur, et $P_{\text{cr}} \simeq 0.3$ MW lorsque le diluant est présent. Les trois autres termes correspondent aux gain et perte par plasma, incluant l'absorption multiphotonique de coefficient $\beta^{(K-6)} = 8.53 \times 10^{-65}$ cm⁹/W⁵, dûe à l'ionisation des molécules d'éthanol principalement. Les transitions électroniques dans la bande de conduction ont lieu avec le potentiel d'ionisation $U_i = 8.4$ eV, entraînant une transition à 6 photons à 800 nm avec une section efficace multiphotonique $\sigma_{K=6} = 5.63 \times 10^{-69}$ s⁻¹ cm¹²/W⁶, pour une densité d'espèces neutres $\rho_{\text{nt}} = 1.03 \times 10^{22}$ cm⁻³, une densité critique de plasma $\rho_c = 1.7 \times 10^{21}$ cm⁻³ et une section efficace pour le Bremstrahlung inverse $\sigma \simeq 1.22 \times 10^{-17}$ cm² [43, 123, 124]. À cause de la faible concentration de coumarine (10^{-4} fois plus faible que ρ_{nt}), l'extraction des électrons libres des molécules du diluant n'est pas prise en compte, même si leur potentiel d'ionisation est proche de celui de l'éthanol. La coumarine 153 contribue principalement à baisser l'intensité du faisceau à travers un processus d'absorption à deux photons (TPA). Le dernier terme de coefficient $\sigma_{\text{abs}}^{(n)} \times \rho_{\text{abs}}$ concerne l'excitation à deux photons [125] [$d_z I = -\sigma_{\text{abs}}^{(n-2)} \rho_{\text{abs}} I^2$]. La densité de coumarine ρ_{abs} varie entre 2.5×10^{18} et 7.8×10^{18} cm⁻³ dans les expériences

(resp. 1.3 à 4 g/l). Nous utiliserons cette dernière valeur pour la densité. La section efficace de l'absorption à deux photons est $\sigma_{\text{abs}}^{(2)} = 6.76 \times 10^{-31} \text{ cm}^4/\text{W}$ [126, 127]. L'équation (5.4) prend en compte la formation de plasma par transitions multiphotoniques ainsi que l'ionisation par avalanche (cascade) et la recombinaison électronique. Concernant cette dernière, nous optons pour un temps de recombinaison $\tau_r = 450 \text{ ps}$ [128].

Lors des expériences, la taille du faisceau laser varie entre 1 et 1.5 mm, et la puissance initiale atteint plusieurs centaines de puissances critiques. Le faisceau se propage dans une cellule d'éthanol (diluée ou non) d'1 cm de long. Pour simuler ce type d'expériences, nous considérons un champ laser initial avec un faisceau de taille millimétrique, pour lequel la puissance et l'intensité initiales sont choisies proches des valeurs expérimentales, c'est-à-dire $I(z=0) \simeq 3-4 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$, tout en conservant les valeurs du diamètre w_0 et de la puissance initiale P_{in} comparables avec celles employées dans les expériences. Les deux types de configuration (le faisceau passe ou ne passe pas par un diaphragme) sont modélisées par les profils suivants, que l'on désignera respectivement par "faisceau ouvert" ou "faisceau fermé".

Pour simuler des faisceaux ouverts, on suppose des profils spatial et temporel Gaussiens perturbés par un bruit aléatoire de 15%:

$$\mathcal{E}(x,y,t,z=0) = \sqrt{\frac{2P_{\text{in}}}{\pi w_0^2}} \times (1 + 0.15 \times \text{bruit}) \times e^{-\frac{x^2+y^2}{w_0^2} - \frac{t^2}{t_p^2}}, \quad (5.5)$$

avec $t_p = 102 \text{ fs}$, $w_0 = 1 \text{ mm}$, et $P_{\text{in}} \simeq 6.3 \text{ GW}$, ce qui représente la moitié de la puissance initiale expérimentale. Ces paramètres assurent un intensité d'entrée maximale de $I_0 = 4 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$. La simulation des faisceaux fermés se fait par un profil Super-Gaussien en espace, complété par un profil Gaussien en temps:

$$\mathcal{E}(x,y,t,z=0) = \sqrt{\frac{2^{\frac{1}{N}} P_{\text{in}}}{\Gamma(1 + \frac{1}{N}) \pi w_0^2}} \times (1 + 0.15 \times \text{bruit}) \times e^{-\left(\frac{x^2+y^2}{w_0^2}\right)^N - \frac{t^2}{t_p^2}}, \quad (5.6)$$

où $\Gamma(x)$ est la fonction d'Euler, $w_0 = 0.5 \text{ mm}$, $t_p = 102 \text{ fs}$, et $P_{\text{in}} \simeq 2.8 \text{ GW}$, valeurs similaires à celles utilisées expérimentalement. L'exposant $N = 10$ fixe l'intensité maximale proche de celle délivrée dans les expériences $I_0^{\text{max}} \simeq 4 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$.

5.2.2 Résultats numériques

La propagation des impulsions ci-dessus est simulée numériquement en résolvant les équations (5.3) et (5.4) dans une géométrie (3+1). La taille de la boîte numérique

spatiale est de $6w_0$ et le nombre de points pour la discrétisation en espace 1536×1536 , conduisant à une résolution spatiale de $2 \mu\text{m}$. L'axe des temps est de $5t_p$ pour 512 points, conduisant à une résolution spatiale de 1 fs. Les simulations ont nécessité des dizaines d'heures de calcul réparties en parallèle sur 64 processeurs.

Nous nous sommes d'abord intéressés à l'influence de la géométrie du faisceau sur la figure de filamentation issue de la propagation à travers une cellule d'éthanol pur de 1 cm de long. Le terme ρ_{abs} est alors pris égal à zéro dans l'équation (5.3).

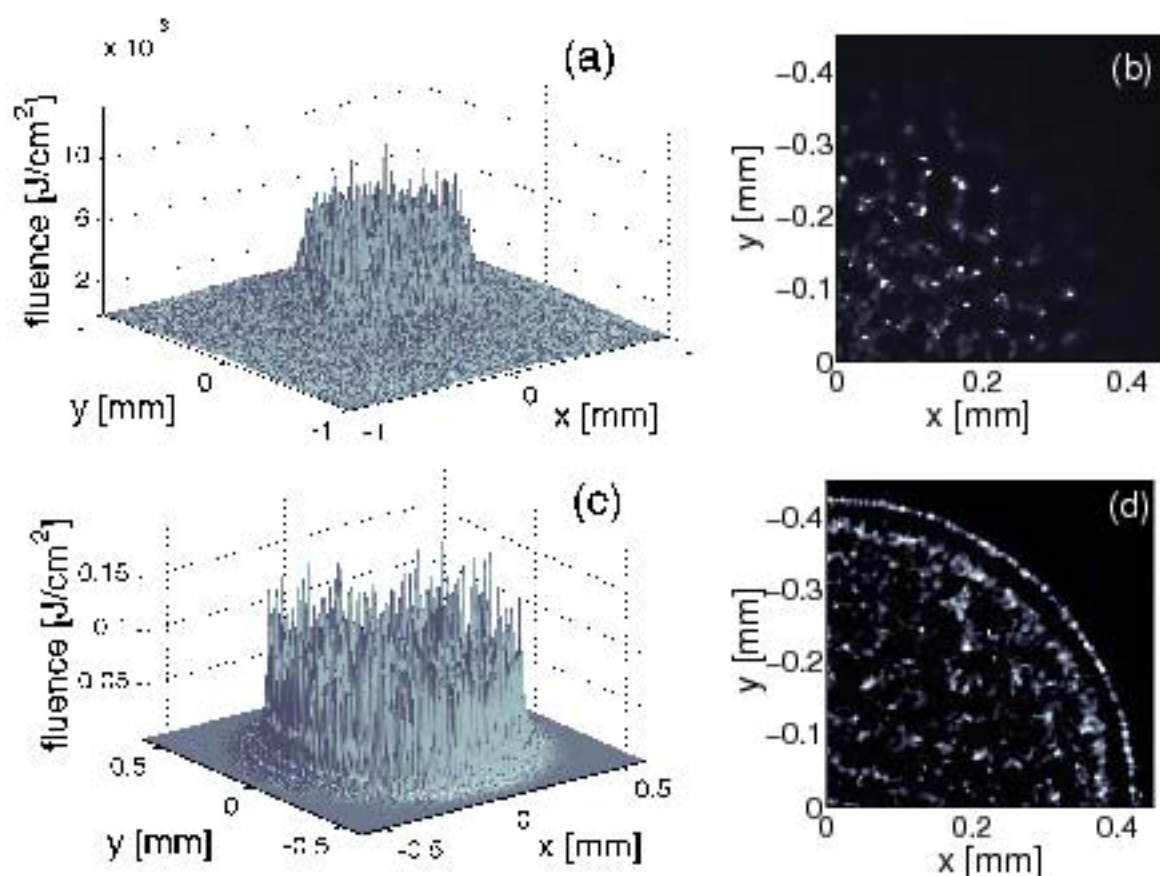


Figure 5.6 : Fluence 3D calculées à $z = 1 \text{ cm}$ pour des champs laser se propageant dans une cellule d'éthanol pur. La forme spatiale du faisceau initial est définie en (a), (b) faisceau ouvert ou (c), (d) faisceau fermé. Les paramètres laser sont définis sous les Eqs. (5.5) et (5.6), respectivement.

La figure 5.6 représente les profils de fluence dans le plan (x, y) calculés à la sortie de la cellule, pour deux formes spatiales du faisceau initial distinctes: La première rangée correspond au faisceau Gaussien ouvert [Eq. (5.5)], et la deuxième au faisceau Super-Gaussien coupé spatialement (faisceau fermé) [Eq. (5.6)]. Les deux configurations [Fig. 5.6(a-d)] mettent en évidence des structures filamenteuses avec un diamètre de quelques

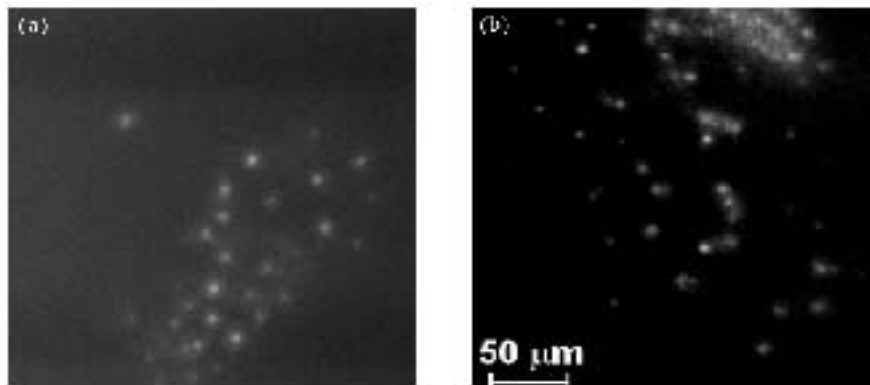


Figure 5.7 : Profils d'intensité expérimentaux à la sortie de la cellule après 1 cm de propagation dans de l'éthanol pur (a) pour un faisceau ouvert et (b) pour un faisceau diaphragmé ($\sim 4 \times 10^{11} \text{W/cm}^2$).

microns. Ces figures sont en bon accord qualitatif avec les mesures expérimentales présentées dans la figure 5.7. En particulier, le faisceau ouvert [Fig. 5.7(a)] se casse en un nombre de filaments plus restreint qu'en configuration fermée [Fig. 5.7(b)]. Le faisceau Gaussien est plus résistant à l'instabilité de filamentation, dont les cellules ne s'amplifient qu'au centre de l'impulsion (voir Ref. [14]). Le faisceau Super-Gaussien produit tout d'abord une structure en anneaux, provenant de la diffraction de faisceaux étendus. L'intensité de ces anneaux est alors amplifiée par l'effet Kerr, ce qui induit un croissance de leur gradient (i.e, sur le bord de l'anneau). C'est cette zone qui se casse préférentiellement en petites cellules par instabilité modulationnelle azimuthale. Ceci donne lieu à de petits filaments qui envahissent le centre du faisceau au cours de la propagation. Cette observation est en accord avec la référence [14], où il a été montré que la filamentation se produit principalement dans les zones de forts gradients du champ.

Nous retrouvons ce type de comportements dans la figure 5.8 montrant la fluence du champ laser filtré spatialement par une fente d'1 mm de largeur. Afin de modéliser l'action de cette fente, nous utilisons un profil de Super-Gaussienne devenant asymétrique:

$$\mathcal{E}(x,y,t,z=0) = \sqrt{\frac{2^{\frac{1}{2N}-2} P_{in}}{\sqrt{\frac{\pi}{2}} \Gamma(1 + \frac{1}{2N}) w_0^2}} \times (1 + 0.15 \times \text{bruit}) \times e^{-\left(\frac{x}{w_0}\right)^N - \frac{y^2}{4w_0^2} - \frac{t^2}{\tau_p^2}}, \quad (5.7)$$

avec $w_0 = 0.5 \text{ mm}$, $t_p = 102 \text{ fs}$, $N = 10$ et $P_{in} \simeq 4.7 \text{ GW}$. Dans cette situation, les filaments sont concentrés le long de deux lignes $x \simeq \pm 0.5 \text{ mm}$, comme observé en Fig. 5.8. Dans la région de forts gradients, l'intensité du faisceau s'amplifie et les

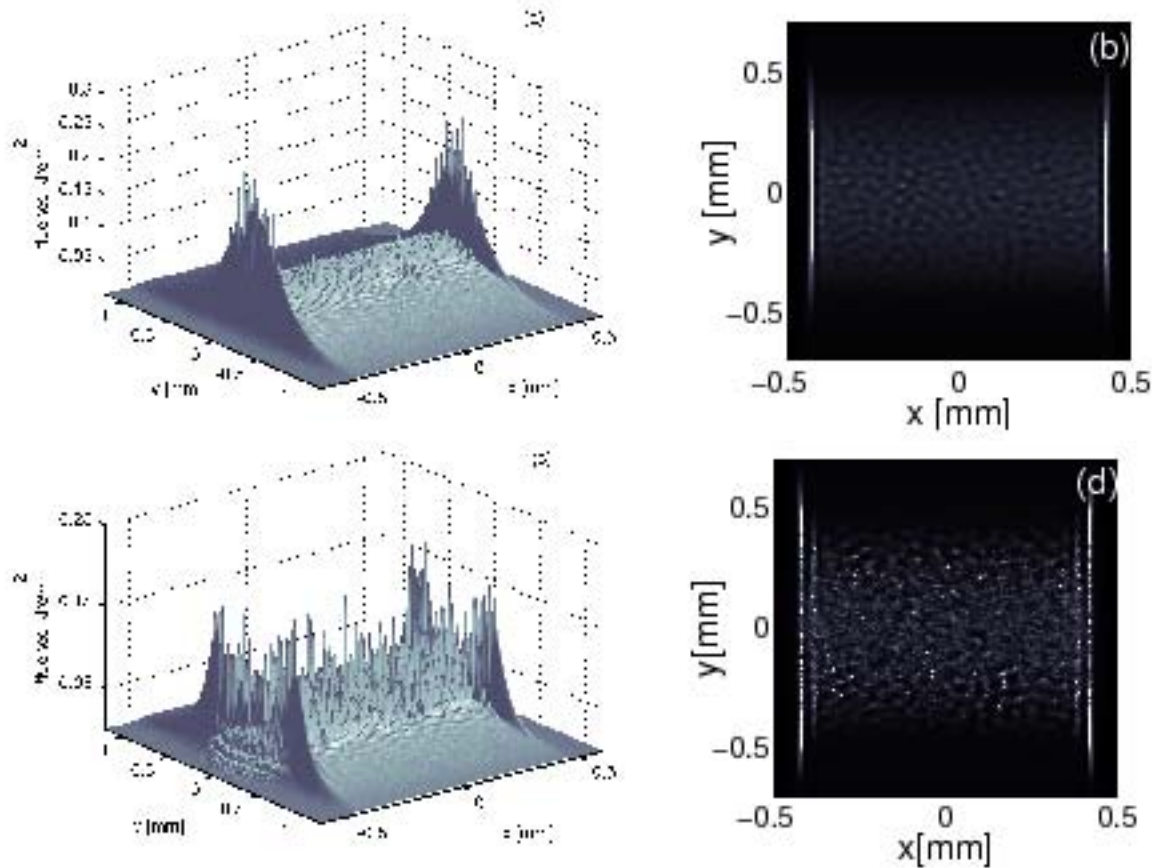


Figure 5.8 : Fluence 3D calculées à différentes distances (a), (b) $z = 0.7$ cm et (c), (d) $z = 1$ cm pour des impulsions laser se propageant dans une cellule d'éthanol pur. Le faisceau laser initial est filtré par une fente [Eq. (5.7)].

premiers filaments apparaissent sur les bords [Figs. 5.8(a-b)]. Puis, l'impulsion continue à s'auto-focaliser produisant de fortes modulations et des multiples filaments dans les zones centrales [Figs. 5.8(c-d)]. Les bords de la fente possédant les plus forts gradients en intensité sont les lieux de support des filaments initiaux, comme confirmé expérimentalement (cf. figure 5.9).

5.2.3 Solution éthanol/diluant

A partir de maintenant, nous considérons le faisceau en configuration fermé [Eq. (5.6)] et concentrons notre attention sur l'action de la coumarine 153 sur les processus non-linéaires. La figure 5.10 compare la propagation du faisceau fermé dans un échantillon d'éthanol contenant ou non 4g/l de molécules de coumarine. Dans une cellule d'éthanol pur, le champ s'auto-focalise en intensité jusqu'à 18 TW/cm^2 [5.10(a)] à la distance $z_c \simeq 7$ mm. Le collapse du faisceau est alors stoppé par la génération

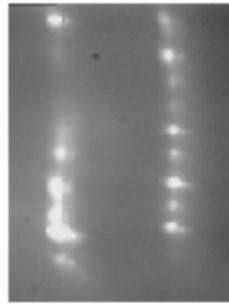


Figure 5.9 : Champ proche expérimental à la sortie d'une cellule d'éthanol pur d'1 cm de long après passage du faisceau par une fente.

de plasma, celui-ci atteignant une densité électronique pic autour de 10^{19} cm^{-3} [Fig. 5.10(b)]. Le faisceau est ensuite auto-guidé sur 3 mm par l'équilibre dynamique entre l'auto-focalisation Kerr et la défocalisation plasma. Ce processus est accompagné par une faible perte en énergie (6%) causée par l'ionisation des molécules d'éthanol [Fig. 5.10(c)]. Lorsque la coumarine est introduite, des phénomènes similaires sont observés, excepté que l'absorption à deux photons de la coumarine ne permet pas un auto-guidage efficace du faisceau. Tout d'abord le foyer non-linéaire apparaît prématurément à $z_c \simeq 0.8 \text{ mm}$, principalement à cause de la plus forte valeur de n_2 . À partir de cette distance, le pic d'intensité atteint une valeur plus faible (8 TW/cm^2) et la densité de plasma atteint pratiquement 10^{16} cm^{-3} , avant de chuter à des niveaux limités à 10^{14} cm^{-3} . Dans ce cas, l'auto-focalisation est en compétition avec deux processus non-linéaires: la défocalisation plasma et l'absorption à deux photons de la coumarine. Aucun équilibre dynamique n'a lieu entre ces phénomènes, si bien que le faisceau s'élargit jusqu'à dépasser les limites de la cellule, ce qui se traduit aussi par une perte importante d'énergie dès le début de la propagation [Fig. 5.10(c)]. Dans le même ordre d'idée, il est intéressant de remarquer que, contrairement à la référence [117] où l'absorption à trois photons du diluant était peu dissipative, la section efficace du TPA est si importante (plus de 80% de l'énergie est absorbée sur 1 cm) que la réponse Kerr du milieu est incapable d'engendrer de nouvelles phase de re-focalisation.

La figure 5.11 présente les fluences des profils 3D obtenus expérimentalement [Fig. 5.11(a)] et calculés numériquement [Fig. 5.11(b)] à la sortie de la cellule d'éthanol dilué. En comparant ces résultats avec les figures 5.6(d) et 5.6(b), on remarque que le diluant éteint de nombreux sites de filamentation. Les cellules optiques encore actives sont séparées mutuellement par une distance de l'ordre de 50-100 μm et forment une

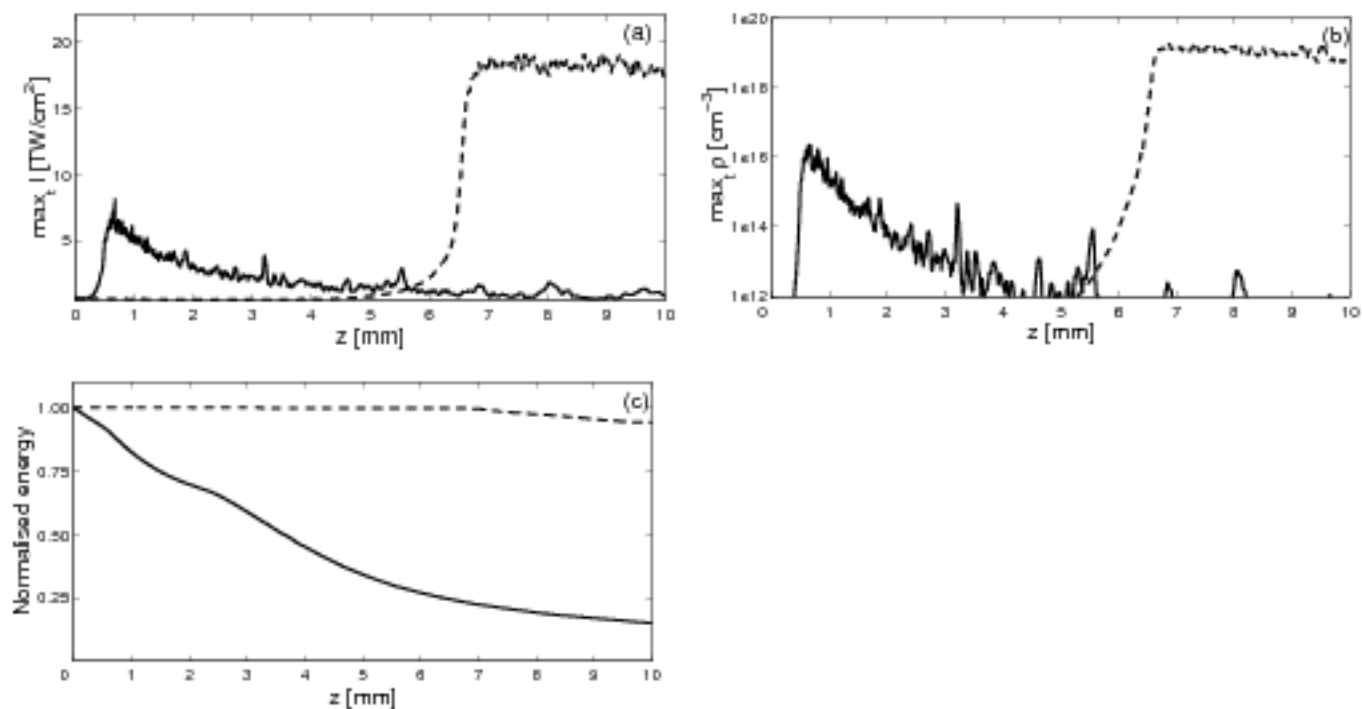


Figure 5.10 : (a) Pic d'intensité, (b) densité d'électrons, et (c) rapport de l'énergie du faisceau sur son énergie initiale en fonction de la distance de propagation pour un faisceau en configuration fermée évoluant dans une cellule d'éthanol pur (tirets) et dans de l'éthanol dilué à 4g/l de coumarine (courbe pleine).

figure de type "réseau". Plus la concentration en diluant est élevée, plus le nombre de filaments est abaissé. Ce comportement présente des analogies avec l'atténuation des filaments traversant un tube de brouillard avec densités élevées de gouttes d'eau [28]. En accord avec la figure expérimentale 5.11(a), la figure 5.11(b) montre aussi que les filaments sont distribués dans le plan (x,y) avec des distances de séparation variant entre 50 et 100 μm ; ils possèdent un diamètre plus large qu'à la sortie d'une cellule d'éthanol pur. Ceci est directement lié à l'action de l'amortissement non-linéaire de la coumarine, qui contribue à l'arrêt du collapse du faisceau à des niveaux d'intensité plus faibles.

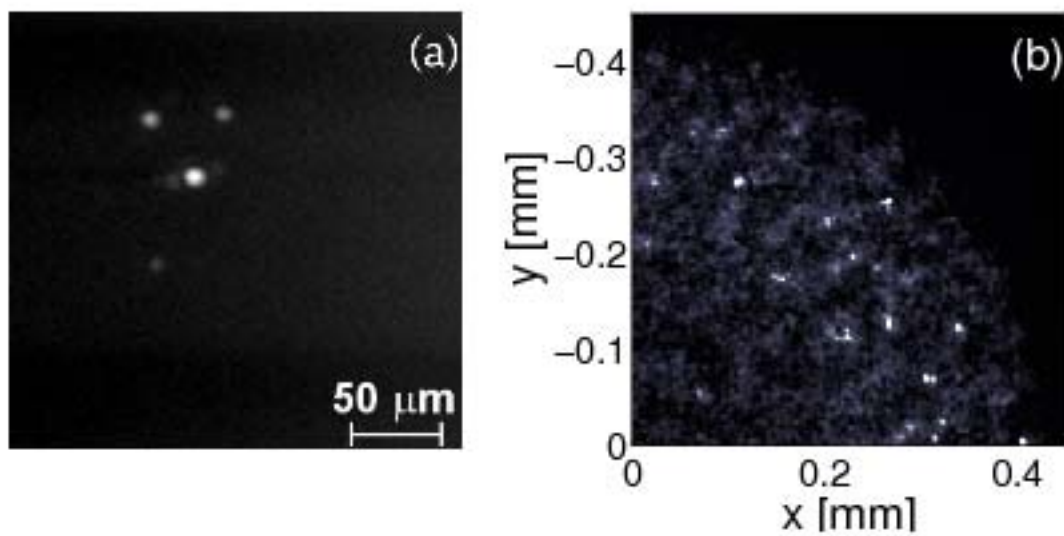


Figure 5.11 : (a) Fluences 3D photographées à $z = 1$ cm pour un faisceau fermé se propageant dans une solution d'éthanol diluée avec de la coumarine 153 (concentration = 4 g/L). Seuls quelques filaments subsistent: le diamètre typique d'un filament est plus large ($\leq 20 \mu\text{m}$). La distance moyenne entre deux filaments voisins est d'environ 50-100 μm . (b) Fluence 3D calculée numériquement à la même distance pour le faisceau se propageant dans la même solution d'éthanol et de coumarine.

Chapitre 6

Conclusion

Dans cette thèse, nous avons abordé différents aspects de la propagation non-linéaire d'une impulsion laser ultra-courte dans les milieux transparents, gazeux et liquides. Nous avons affiné les équations du modèle de propagation, proposé de nouveaux concepts, comme les vortex optiques femtosecondes, testés à partir de simulations numériques sur des codes parallèles du Commissariat à l'Énergie Atomique de Bruyères-le-Châtel (CCRT et Tera). Par ailleurs, des comparaisons directes entre nos résultats numériques et des observations expérimentales nous ont permis de valider les modèles d'une part, et d'avoir une meilleure compréhension des phénomènes physiques mis en jeu d'autre part.

En guise d'introduction, nous avons établi les équations de propagation sous hypothèse d'enveloppe lentement variable. Nous avons rappelé quelques résultats fondamentaux concernant l'équation NLS de base dans le domaine de l'optique non-linéaire. En particulier, le phénomène élémentaire de collapse d'ondes et ses conséquences sur des faisceaux ultra-puissants ont été redémontrés: au-delà de la puissance critique d'auto-focalisation, le faisceau s'auto-focalise et son amplitude diverge à distance finie. Pour arrêter ce comportement singulier, la dispersion de la vitesse de groupe (GVD) apparaît comme un candidat potentiel, qui entraîne un "splitting temporel" de l'impulsion pour des puissances proches du seuil d'auto-focalisation. Pour des puissances plus élevées, la génération de plasma dans le sillage de l'onde par ionisation locale des molécules du milieu entraîne une défocalisation partielle du faisceau. Ces phénomènes sont ceux qui affectent principalement la propagation et dictent la dynamique spatio-temporelle d'une impulsion de forte puissance. Leur équilibre résulte dans la formation d'un guide

d'ondes étroit en taille et robuste le long de l'axe de la propagation, communément appelé "filament femtoseconde".

Dans une première partie, nous nous sommes intéressés au terme de polarisation non-linéaire induit par la réponse des électrons liés du milieu. La plupart des modèles développés jusqu'à présent prenaient en compte, outre le terme de polarisation linéaire, uniquement la contribution cubique provenant du développement du vecteur de polarisation en série entière de l'intensité laser. Nous avons proposé de prendre en compte l'ordre supérieur de polarisation quintique, attaché au tenseur de susceptibilité $\chi^{(5)}$. Une étude analytique appuyée par des simulations numériques a montré l'importance relative de ce terme dans le modèle décrivant la propagation d'une impulsion ultra-courte dans l'air. Le terme quintique n'empêche pas la génération d'électrons libres. Il augmente la robustesse du filament ainsi que son domaine d'auto-guidage, en abaissant le seuil de saturation de l'intensité laser. La valeur précise du coefficient n_4 lié à la susceptibilité $\chi^{(5)}$ est difficilement mesurable expérimentalement. Cependant les valeurs retenues, $n_4 = 0.25 - 1 \times 10^{-32} \text{ cm}^4/\text{W}^2$, permettent de retrouver numériquement les intensités pics, les figures de filamentation et leur évolution générique observées lors des expériences. Notons à ce propos que l'inclusion d'une non-linéarité quintique se justifie aussi par sa capacité à reproduire l'effet de saturation joué par l'onde harmonique d'ordre trois sur la propagation d'une onde de pompe infra-rouge [33].

Dans une deuxième partie, nous nous sommes intéressés à la phase de filamentation multiple d'une impulsion ultra-courte contenant plusieurs puissances critiques. La question étant de savoir comment parvenir à maîtriser (ou rendre plus déterministe) ce processus. Partant de configurations tout d'abord simples, nous avons examiné la propagation de faisceaux quasi-1D contenant un fort gradient le long d'une direction privilégiée. Des simulations numériques menées sur le code 2D (issu des équations 3D moyennées en temps) ainsi que sur le code pleinement 3D ont montré que le faisceau filamentait tout d'abord sur les lieux de fort gradients, avant que les filaments ne se répartissent ensuite de manière aléatoire dans le plan transverse. Dans le même ordre d'idée, la simulation de faisceaux Super-Gaussiens a mis en évidence des comportements analogues. Des estimations théoriques, fondées sur le modèle simplifié des ondes planes, ont permis de prévoir le nombre de modulations apparaissant sur les gradients du faisceau et d'approcher leur distance d'apparition. En utilisant des impulsions com-

portant un fort gradient en intensité, on peut maîtriser le lieu d'apparition des premières modulations. L'estimation de leur distance d'apparition, qui est guidée principalement par le rapport de puissance P_{in}/P_{cr} contenu dans l'impulsion laser initiale, se dégrade cependant pour des formes de faisceaux s'éloignant de l'hypothèse d'onde plane. Elle s'améliore néanmoins pour des faisceau étendus de forme Super-Gaussienne.

Nous avons ensuite proposé de nouveaux types d'impulsions: les vortex optiques femtosecondes. Une première étude analytique fondée sur l'équation NLS pour les ondes non pulsées a permis de "calibrer" cet objet, c'est à dire quantifier numériquement la puissance, l'anneau et l'amplitude du vortex, en fonction de sa charge topologique m . Ces paramètres étant définis, nous avons testé la stabilité de ces formes particulières à partir de simulations numériques 2D. Les résultats ont montré des propriétés de robustesse remarquables, ainsi qu'un nombre de modulations et donc de filaments créés en très bon accord avec celui prévu par la théorie. Pour un faisceau évoluant en phase Kerr pure, ce nombre varie comme $2|m| + 1$. La question était alors de savoir si ces résultats persisteraient en géométrie 3D, c'est-à-dire pour des conditions physiques réelles prenant en compte les variations temporelles de l'impulsion et donc la dispersion de la vitesse de groupe (GVD). Pour une durée d'impulsion trop faible, nous avons constaté que la dispersion temporelle devenait trop forte. L'impulsion ne peut ni converger ni maintenir un état de vortex stable. Pour des durées d'impulsion suffisamment larges, $t_p = 250$ fs, la GVD devient négligeable, la distance de dispersion temporelle est repoussée à des kilomètres, et l'impulsion peut alors converger vers son état de vortex radial. Pour des durées femtosecondes mais larges, des vortex optiques peuvent être produits et se propager sur une centaine de mètres avant de se casser par instabilité modulationnelle en $2|m| + 1$ filaments. Ce résultat est à comparer aux quelques mètres de propagation atteints par une impulsion classique de type Gaussienne possédant la même puissance initiale. Cette étude a donc mis en évidence la possibilité de propager des impulsions ultra-courtes sur de grandes distances (la centaine de mètres), lorsque celles-ci sont préparées sous forme de vortex optiques comportant une charge topologique m , la puissance et la taille du vortex étant alors quantifiés de manière unique par rapport à ce paramètre de charge. Notons à ce propos que ces vortex optiques ont été mis au point lors d'expériences récentes faites par Guo *et al.* [129] et plus particulièrement en régime femtoseconde par Maryienko *et al.* [130].

Dans une dernière partie, nous nous sommes intéressés à la multifilamentation (la filamentation de faisceaux en plusieurs dizaines de cellules optiques) en milieu atmosphérique humide et dans les milieux denses.

À partir d'expériences menées avec l'installation Teramobile, nous avons cherché à caractériser la propagation d'un faisceau ultra-court à travers un brouillard. Nous avons évalué les pertes en énergie induites par la collision du faisceau avec des gouttelettes d'eau micrométriques, et leur conséquence sur la figure de filamentation. D'un point de vue théorique, nous avons examiné les différences dans la transmission de ces figures lorsque les équations du modèle prennent en compte un terme d'amortissement linéaire ou décrivent la collision stochastique du faisceau avec des obstacles distribués aléatoirement. Nos simulations ont montré que la collision du faisceau avec des gouttelettes opaques induisait des pertes de puissance comparables avec une atténuation de type exponentielle causée par une dissipation linéaire. L'équivalence entre un amortissement linéaire et les pertes induites par des gouttelettes micrométriques nous ont permis de reproduire numériquement les figures de filamentation obtenues expérimentalement et de mettre en évidence un très bon accord entre les simulations numériques et les expériences concernant le nombre de filaments obtenus. Le brouillard n'empêche pas le processus de filamentation ; seul le nombre de filaments est réduit de manière quasi-linéaire par la perte de puissance induite. Donc même pour une forte densité d'humidité, les filaments femtosecondes conservent leur propriété remarquable de robustesse. Cette propriété est essentielle pour l'utilisation de ces objets non-linéaires à des fins de détection et d'identification Lidar des aérosols à grande distance dans l'air.

Enfin, nous avons utilisé le code 3D pour reproduire numériquement certaines figures de filamentation multiple créées par des impulsions laser de forte puissance dans l'éthanol. Nos résultats numériques ont montré un bon accord avec les figures de fluence obtenues en champ proche mesurées expérimentalement par les équipes du LASIM. En étudiant l'influence de la géométrie du faisceau initial, nous avons montré que les filaments apparaissaient généralement sur les lieux de forts gradients du champ, ce qui est en parfait accord avec les résultats expérimentaux. Dans les liquides, les filaments produits sont de petite taille (quelques microns) et sont beaucoup plus nombreux à des puissances d'entrée équivalentes à plusieurs centaines (voire des milliers) de puissances critiques. Enfin, nous avons examiné la propagation de tels faisceaux dans des cellules

d'éthanol contenant une forte concentration de coumarine 153. Cette molécule induit de l'absorption à deux photons que nous avons introduite dans l'équation de propagation à partir d'une section efficace reportée expérimentalement. Après avoir adapté la valeur de l'indice Kerr pour un tel milieu, nous avons démontré que cette absorption n'empêchait pas le faisceau de s'auto-focaliser, mais qu'elle diminue notablement l'action de l'effet Kerr en induisant des pertes d'énergie importantes. Le nombre de filaments varie de manière inversement proportionnelle avec la concentration de la coumarine. En accord avec les expérimentations, le diluant peut être utilisé pour contrôler et régulariser la filamentation multiple dans des mélanges liquides.

Annexes

Annexe A

Taux d'ionisation pour les atomes et les molécules

Cette appendice détaille les différentes théories de l'ionisation photonique pour les gaz et les milieux transparents denses.

A.1 L'ionisation dans les gaz

Afin de modéliser la génération d'électrons libres par un champ laser intense interagissant avec un milieu gazeux, les théories de l'ionisation photonique ont été développées tout d'abord pour les atomes d'hydrogène par Keldysh [43], puis par Perelomov, Popov et Terent'ev (PPT) pour des atomes plus complexes [45], avant d'être affinées par Ammosov, Delone et Krainov (ADK) vingt ans plus tard [47]. Plus récemment, Tong *et al.* ont proposé une théorie pour les espèces moléculaires en régime d'ionisation tunnel [48].

A.1.1 La théorie de Keldysh

La théorie de Keldysh est limitée aux atomes hydrogénoïdes dans leur état électronique fondamental et ne prend pas en compte l'interaction Coulombienne entre l'électron et l'ion résiduel. Le taux d'ionisation W d'un atome irradié par un champ laser $\vec{E} \cos(\omega t)$ est évalué par

$$W = \frac{e^2}{h^2} \lim_{t \rightarrow \infty} \int \frac{d\vec{p}}{(2\pi\hbar)^3} \frac{d}{dt} \left| \int_0^t dt' \cos(\omega t') \right|^2$$

$$\times \left\langle \Psi_{\vec{p}}(\vec{r}, t') \left| \vec{r} \cdot \vec{E} \right| \Psi_g(\vec{r}, t') \right\rangle^2, \quad (\text{A.1})$$

où $\epsilon = -q_e$, et l'état fondamental de l'atome caractérisé par l'énergie $E_g = -U_i$ (potentiel d'ionisation) est

$$\Psi_g(\vec{r}, t) = \frac{1}{\sqrt{\pi a^3}} e^{-\frac{r}{a}} e^{-\frac{1}{\hbar} E_g t}. \quad (\text{A.2})$$

Ici, $a = a_B/Z$ inclut le rayon de Bohr a_B de l'hydrogène. Les états du continu électronique sont décrits par les fonction de Volkov

$$\Psi_{\vec{p}}(\vec{r}, t) = e^{\frac{i}{\hbar} (\vec{p} - e\vec{A}(t)) \cdot \vec{r} - \frac{1}{2m_e} \int_0^t dt' (\vec{p} - e\vec{A}(t'))^2}, \quad (\text{A.3})$$

où $\vec{A}(t)$ est le vecteur potentiel du champ laser. L'insertion de (A.2) et (A.3) dans l'équation (A.1) et l'intégration sur les coordonnées spatiales fournit l'expression

$$W = \frac{2}{\hbar^2} \lim_{t \rightarrow \infty} \text{Re} \left[\int \frac{d\vec{p}}{(2\pi\hbar)^3} \times \int_0^t dt' \cos(\omega t) \cos(\omega t') L(\vec{p}, t') L^*(\vec{p}, t) \right], \quad (\text{A.4})$$

avec

$$L(\vec{p}, t) = V_0 \left(\vec{p} + \frac{e}{\omega} \vec{E} \sin(\omega t) \right) \times e^{\frac{i}{\hbar} \left[U_i t + \frac{1}{2m_e} \int_0^t dt' (\vec{p} + \frac{e}{\omega} \vec{E} \sin(\omega t'))^2 \right]}, \quad (\text{A.5})$$

$$V_0(\vec{p}) = 8ie\sqrt{\pi a^3} \hbar \vec{E} \cdot \vec{\nabla}_{\vec{p}} \left[\frac{1}{(1 + \frac{e^2 p^2}{\hbar^2})^2} \right].$$

La fonction $L(\vec{p}, t)$ est périodique avec une période égale à $T = 2\pi/\omega$. Elle peut donc être décomposée en séries de Fourier. Après utilisation de cette expression sous forme de séries dans l'équation (A.4), on obtient

$$W = \frac{2\pi}{\hbar} \int \frac{d\vec{p}}{(2\pi\hbar)^3} |L(\vec{p})|^2 \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta[U_i + \frac{p^2}{2m_e} + \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2} - n\hbar\omega], \quad (\text{A.6})$$

avec

$$L(\vec{p}) = -16ie \frac{\sqrt{\pi a^3}}{\hbar\pi} U_i^3 \int_{-1}^1 du \frac{\vec{E} \cdot [\vec{p} + \frac{e}{\omega} \vec{E} u]}{[U_i + \frac{1}{2m_e} (\vec{p} + \frac{e}{\omega} \vec{E} u)^2]^3} \times e^{\frac{i}{\hbar} \int_0^{\frac{\pi}{2\omega}} \frac{du}{\sqrt{1-u^2}} [U_i + \frac{1}{2m_e} (\vec{p} + \frac{e}{\omega} \vec{E} u)^2]}. \quad (\text{A.7})$$

En supposant que l'électron quitte l'atome avec une faible énergie cinétique ($\frac{p^2}{2m_e} \ll U_i$), les pôles du dénominateur de $L(\vec{p})$ s'écrivent sous la forme

$$u_{\pm}^{\pm} = i\gamma \left[\pm 1 + i \frac{p \cos(\theta)}{\sqrt{2m_e U_i}} \pm p^2 \frac{\sin^2(\theta)}{2m_e U_i} \right], \quad (\text{A.8})$$

où θ est l'angle entre le vecteur impulsion \vec{p} et le champ électrique \vec{E} . $\gamma = \omega\sqrt{2m_e U_i}/(eE)$ est le *paramètre de Keldysh*. Au moyen de la méthode du col et du théorème des résidus, l'équation (A.7) est ensuite intégrée pour donner

$$W = 4\sqrt{2}\omega\sqrt{\frac{U_i}{\hbar\omega}}\left[\frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}}\right]^{\frac{3}{2}} \times e^{-\frac{2U_i}{\hbar\omega}(\sinh^{-1}(\gamma) - \frac{\gamma\sqrt{1+\gamma^2}}{1+\gamma^2})} S(\gamma, \frac{\bar{U}_i}{\hbar\omega}), \quad (\text{A.9})$$

où $\bar{U}_i \equiv U_i + e^2 E^2/4m_e\omega^2$ et la fonction $S(\gamma, x)$ est définie par

$$S(\gamma, x) = \sum_{n=0}^{+\infty} e^{-2[\sinh^{-1}(\gamma) - \frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}}|\langle x+1 \rangle - x+n|]} \times \int_0^{\sqrt{\frac{2\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}}|\langle x+1 \rangle - x+n|}} e^{y^2 - \frac{2\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}}|\langle x+1 \rangle - x+n|} dy. \quad (\text{A.10})$$

Pour prendre la corrélation électron-ion en compte, Keldysh, enfin, multiplie le taux d'ionisation par le facteur $(U_i/\hbar\omega)\gamma/\sqrt{1+\gamma^2}$. Exprimé en unités atomiques, $m = e = \hbar = a_B = 1$ [131], le taux d'ionisation résultant prend l'expression finale

$$W = 2\sqrt{2}\left[\frac{2E_0}{E\sqrt{1+\gamma^2}}\right]^{\frac{1}{2}} U_i \frac{\gamma^2}{1+\gamma^2} e^{-2\nu[\sinh^{-1}(\gamma) - \frac{\gamma\sqrt{1+\gamma^2}}{1+\gamma^2}]} \times \sum_{\kappa \geq \nu_0}^{+\infty} e^{-\alpha|\kappa - \nu|} \Phi_0[\sqrt{\beta(\kappa - \nu)}], \quad (\text{A.11})$$

où

$$E_0 = [2U_i]^{3/2}, \gamma = \omega\sqrt{2U_i}/E, \nu = \bar{U}_i/\hbar\omega, \beta = 2\gamma/\sqrt{1+\gamma^2}, \alpha = 2\left[\sinh^{-1}(\gamma) - \frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}}\right], \nu_0 = \langle \nu + 1 \rangle \text{ et } \Phi_m(x) = e^{-x^2} \int_0^x (x^2 - y^2)^{|m|} e^{y^2} dy.$$

Cette théorie a été la première capable de décrire l'ionisation d'un atome dans les deux régimes de faible ($\gamma \gg 1$) et forte ($\gamma \ll 1$) intensité. Le premier régime se réfère à l'ionisation multiphotonique (MPI), à travers laquelle l'électron est libéré quand l'atome absorbe $K = \langle U_i/(\hbar\omega) + 1 \rangle$ photons. Le second correspond à l'ionisation par effet tunnel, pour lequel l'électron quitte l'ion en passant à travers la barrière de Coulomb. En régime MPI, le taux d'ionisation est obtenu en prenant la limite $\gamma \rightarrow +\infty$ dans l'équation (A.11) qui se réduit alors à

$$W = \sigma^{(K)} \times I^K, \quad (\text{A.12})$$

où I est l'intensité laser et $\sigma^{(K)}$ est la section efficace d'ionisation photonique

$$\sigma^{(K)} = 4\sqrt{2}\omega\left[\frac{U_i}{\omega}\right]^{2K+3/2} \times \frac{e^{2K-U_i/\omega}}{E_0^{2K}} \Phi_0\left[\sqrt{2K - \frac{2U_i}{\omega}}\right], \quad (\text{A.13})$$

avec $w \equiv (\hbar\omega)$ (u.a). Exprimé en $s^{-1}cm^{2K}/W^K$, le paramètre de “section efficace” ci-dessus doit être converti en $\sigma^{(K)} \rightarrow \sigma^{(K)}[\text{a.u.}]/(2.42 \times 10^{-17} \times [3.51 \times 10^{16}]^K)$.

A.1.2 La théorie PPT

Plus tard, Perelomov, Popov et Terent'ev [45] ont développé un modèle plus élaboré. Tout d'abord, ils ont inclus l'interaction Coulombienne entre l'ion et l'électron lorsque ce dernier quitte le noyau de l'atome. Ensuite, ils ont considéré tous les états atomique bornés comme un état initial. Le taux résultant est alors donné par

$$W = \frac{4\sqrt{2}}{\pi} |C_{n^*,l^*}|^2 \left[\frac{2E_0}{E\sqrt{1+\gamma^2}} \right]^{2n^* - \frac{3}{2} - |m|} U_i \frac{\gamma^2}{1+\gamma^2} \frac{f(l,m)}{|m|!} \times e^{-2\nu \left[\sinh^{-1}(\gamma) - \frac{\gamma\sqrt{1+\gamma^2}}{1+\gamma^2} \right]} \sum_{\kappa \geq \nu} e^{-\alpha|\kappa-\nu|} \Phi_m \left[\sqrt{\beta(\kappa-\nu)} \right], \quad (\text{A.14})$$

où $n^* = Z/\sqrt{2U_i}$ est le nombre quantique effectif, Z est la charge résiduelle de l'ion, $l^* = n^* - 1$ et n, l, m sont respectivement les nombres quantiques principaux, le moment orbital et le nombre quantique magnétique. Les facteurs $|C_{n^*,l^*}|$ et $f(l,m)$ sont

$$|C_{n^*,l^*}|^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^* \Gamma(n^* + l^* + 1) \Gamma(n^* - l^*)}, \quad (\text{A.15})$$

$$f(l,m) = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|} |m|! (l-|m|)!}. \quad (\text{A.16})$$

Même si l'équation (A.14) est usuellement présentée comme la formule de “PPT”, les coefficients $|C_{n^*,l^*}|$ sont en fait extraits de la théorie dérivée par Ammosov, Delone et Krainov [47] dans la limite tunnel. Les différences entre les coefficients PPT et ADK proviennent essentiellement du fait que la théorie ADK utilise des fonctions d'onde électroniques prenant en compte le potentiel de Coulomb (états de Volkov), qui sont modifiées pour les relier aux états du continu aux grandes distances ($r \gg 1/\sqrt{2U_i}$).

A.1.3 La théorie ADK moléculaire

Le taux PPT [Eq. (A.14)] est valable pour décrire l'ionisation multiphotonique des atomes. Il peut cependant conduire à des erreurs lorsqu'il est appliqué à des systèmes moléculaires, à cause des coefficients $|C_{n^*,l^*}|$, originellement évalués à partir de fonctions d'onde atomiques. Celles-ci ne peuvent pas reproduire les particularités inhérentes

a l'état moléculaire comme par exemple la suppression de l'ionisation de la molécule de O_2 [132]. Afin de palier de telles limitations, nous pouvons remplacer les coefficients $|C_{n^*,p^*}|^2$ par leurs équivalents moléculaires calculés par Tong *et al.* [48] en limite tunnel et prolonger la formule PPT obtenue aux régimes de basses intensités (MPI) de manière analytique. Ainsi, l'équation (A.14) peut décrire l'ionisation moléculaire après la substitution

$$|C_{n^*,l^*}|^2 f(l,m) \rightarrow \left[\sum_l \frac{C_l}{(2U_l)^{(n^*/2)+(1/4)}} \sqrt{\frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}|m|!(l-|m|)!}} \right]^2, \quad (\text{A.17})$$

où les coefficients C_l ont été établis pour différentes molécules. Pour la molécule O_2 , nous utilisons $C_2 = 0.683$ et $C_4 = 0.033$, alors que $C_1 = C_3 = 0$, et $m = 1$ [48].

A.2 L'ionisation dans les milieux denses

La génération de plasma dans les milieux denses est décrite par le taux d'ionisation pour les cristaux dérivé par Keldysh [43]. Son évaluation analytique est identique à celle appliquée aux atomes, excepté le fait que les états initiaux sont maintenant modélisés par des fonctions d'onde de Bloch. Suivant le même type de procédure, le taux d'ionisation dans des cristaux ayant un seuil d'énergie E_g et irradié par un champ électromagnétique d'amplitude $E_0 \cos(\omega t)$ est donné par

$$W = \frac{2\omega}{9\pi} \left(\frac{\sqrt{1+\gamma^2} m^* \omega}{\gamma \hbar} \right)^{\frac{5}{2}} \times Q\left(\gamma, \frac{\bar{\Delta}}{\hbar\omega}\right) \times e^{-\pi < \frac{\bar{\Delta}}{\hbar\omega} + 1 > \times \left[\frac{\kappa \left(\frac{\gamma^2}{1+\gamma^2} \right) - \varepsilon \left(\frac{\gamma^2}{1+\gamma^2} \right)}{\varepsilon \left(\frac{1}{1+\gamma^2} \right)} \right]} \quad (\text{A.18})$$

avec $\gamma = \omega \sqrt{m^* E_g} / e E_0$, $m^{*-1} = m_e^{-1} + m_h^{-1}$,

$$\begin{aligned} \bar{E}_g &= \frac{2}{\pi} E_g \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{\gamma} E\left(\frac{1}{1+\gamma^2}\right), \\ Q(\gamma, x) &= \sqrt{\frac{\pi}{2K\left(\frac{1}{1+\gamma^2}\right)}} \times \sum_{n=0}^{+\infty} e^{-\pi n \left[\frac{\kappa \left(\frac{\gamma^2}{1+\gamma^2} \right) - \varepsilon \left(\frac{\gamma^2}{1+\gamma^2} \right)}{\varepsilon \left(\frac{1}{1+\gamma^2} \right)} \right]} \\ &\quad \times \Phi_0 \left[\sqrt{\frac{\pi^2}{4} \frac{2 < x + 1 > - 2x + n}{K\left(\frac{1}{1+\gamma^2}\right) E\left(\frac{1}{1+\gamma^2}\right)}} \right]. \end{aligned} \quad (\text{A.20})$$

Ici les fonctions $K(x) \equiv \int_0^{\pi/2} (1 - x \sin^2 \theta)^{-1/2} d\theta$ et $E(x) \equiv \int_0^{\pi/2} (1 - x \sin^2 \theta)^{1/2} d\theta$ sont les intégrales elliptiques complètes de première et seconde espèce [133] et m^* est la masse réduite pour la paire électron/ion. Il est à noter que, alors que W est exprimé par unité de temps pour les gaz [Eq. (A.11)], il est exprimé par unité de temps et par unité de volume pour les milieux condensés [Eq. (A.18)]. Le taux d'ionisation se réduit pour des faibles intensités à sa limite multiphotonique ($\gamma \rightarrow +\infty$) prenant la forme

$$W = \sigma^{(K)} \times I^K \quad (\text{A.21})$$

où

$$\sigma^{(K)} = \frac{2\omega}{9\pi} \left(\frac{m^* \omega}{\hbar} \right)^{\frac{3}{2}} \Phi \left[\sqrt{2 \left(K - \frac{E_g}{\hbar\omega} \right)} \right] e^{2K} \left[\frac{e^2}{8m^* \omega^2 E_g \epsilon_0 c n_0} \right]^K \quad (\text{A.22})$$

et $n_0 = n(\omega - \omega_0)$ est l'indice de réfraction linéaire.

Annexe B

Aspects numériques

Dans cette annexe, nous exposons brièvement les détails relatifs aux codes développés et utilisés pour nos simulations numériques.

À cause des contraintes de résolution “hyperfine” (quelques μm en espace, ≤ 1 fs en temps), ces simulations numériques relèvent d’une réelle difficulté technique et nécessitent du calcul parallèle massif. Elles ont été réalisées sur les machines cluster COMPAQ alpha (TERA) du Commissariat à l’Énergie Atomique en employant jusqu’à 128 processeurs pour des runs consommant plusieurs dizaines, voire des centaines d’heures de calcul. Malgré ces moyens de calcul importants, il est impossible, à l’heure actuelle, de simuler des faisceaux larges (centimétriques) en géométrie (3+1) sur des centaines de mètres. Tous les codes sont écrits en Fortran90 et parallélisés pour une architecture à mémoire distribuée en utilisant la communication MPI (Message Passing Interface) et ses bibliothèques. Les transformées de Fourier rapides sont effectuées par des routines de la FFTW library, version 3.

B.1 Schémas numériques pour la propagation d’impulsions dans l’air

Nous avons utilisé un schéma de type “split-step” pour résoudre numériquement les équations NLS que ce soit en symétrie radiale, 2D ou pleinement 3D. Basiquement, l’idée du “splitting” est la suivante. Nous devons résoudre une équation différentielle du type:

$$\frac{\partial}{\partial z}\psi - \hat{\mathcal{L}}\psi, \tag{B.1}$$

où $\hat{\mathcal{L}}$ est un opérateur quelconque. Notre objectif est de développer un schéma qui calculerait ψ en $z + \Delta z$ à partir de sa valeur en z , ce que nous pouvons écrire de manière formelle comme:

$$\psi(z + \Delta z) = e^{\int \hat{\mathcal{L}} dz} \psi(z), \quad (\text{B.2})$$

où \int signifie $\int_z^{z+\Delta z}$. Nous supposons que $\hat{\mathcal{L}}$ peut être décomposé en m opérateurs

$$\hat{\mathcal{L}} = \hat{\mathcal{L}}_1 + \hat{\mathcal{L}}_2 + \dots + \hat{\mathcal{L}}_m, \quad (\text{B.3})$$

et nous connaissons un schéma pour faire évoluer ψ de z à $z + \Delta z$ pour chaque opérateur. La solution "splittée" prend alors la forme suivante:

$$\psi(z + \Delta z) = e^{\int \hat{\mathcal{L}}_1 dz} e^{\int \hat{\mathcal{L}}_2 dz} \dots e^{\int \hat{\mathcal{L}}_m dz} \psi(z). \quad (\text{B.4})$$

Un aspect crucial pour tous les codes est le contrôle adaptatif de l'incrément en z , Δz . Nous divisons l'opérateur $\hat{\mathcal{L}}$ en une partie linéaire $\hat{\mathcal{L}}_{lin}$, contenant les termes de diffraction et de dispersion, et une partie non-linéaire $\hat{\mathcal{L}}_{nl}$ contenant tous les autres termes. On voit que $\hat{\mathcal{L}}_{lin}$ est indépendant de z . À l'opposé, l'opérateur non-linéaire $\hat{\mathcal{L}}_{nl}$ dépend fortement de z , et va donc imposer une condition sur l'incrément Δz . Considérons par exemple l'équation

$$\frac{\partial}{\partial z} \psi - i \frac{\partial^2}{\partial t^2} \psi + i |\psi|^2 \psi. \quad (\text{B.5})$$

Nous avons $\hat{\mathcal{L}}_{lin} = i \partial_z^2$ et $\hat{\mathcal{L}}_{nl} = i |\psi|^2$. Trois contraintes sont requises sur Δz : Les deux premiers schémas $\exp(\int \hat{\mathcal{L}}_{lin} dz)$ et $\exp(\int \hat{\mathcal{L}}_{nl} dz)$ doivent fonctionner et Δz doit être assez petit pour résoudre les termes non-linéaires. La phase linéaire peut être résolue de manière exacte dans l'espace de Fourier $\exp(\int \hat{\mathcal{L}}_{lin} dz) = \text{FFT}^{-1} \exp(-i \omega^2 \Delta z) \text{FFT}$. Il n'y a pas de limitation sur Δz due à ce schéma. Pour la phase non-linéaire, nous devons calculer $\int |\psi|^2 dz \approx |\psi|^2 \Delta z$, sachant qu'une erreur relative sur cette approximation est de l'ordre de $\sim |\psi|^4 \Delta z^2$. Afin de contrôler cette erreur, nous optons pour un encadrement $c_2 < |\psi|^2 \Delta z < c_1$. La constante c_1 garantit une erreur suffisamment faible, et c_2 un pas en z raisonnablement large. Le splitting nécessite aussi de contrôler la valeur de $\|\hat{\mathbb{I}} - \exp(\int \hat{\mathcal{L}}_{lin} dz)\| \sim \Delta z / \Delta t^2$ et de $\|\hat{\mathbb{I}} - \exp(\int \hat{\mathcal{L}}_{nl} dz)\| \sim |\psi|^2 \Delta z$, où Δt est l'incrément sur la coordonnée t . Ainsi, nous devons introduire une troisième constante $c_3 > \Delta z / \Delta t^2$. Parce que Δt est constant pour un maillage homogène, c_3 détermine une deuxième limite supérieure pour Δz indépendante de $|\psi|^2$. Pour des applications pratiques, les valeurs $c_1 = 0.01$, $c_2 = c_1/2.5$ et $c_3 = 1$ donnent des résultats satisfaisants, à condition que la discrétisation en temps (t) soit suffisamment fine.

B.1.1 Code 2D adimensionné et moyenné en temps

Le code intégrant l'équation (2+1) moyennée en temps [Eq. (2.73)] fait intervenir les opérateurs

$$\begin{aligned}\hat{\mathcal{L}}_{lin} &= i \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right), \\ \hat{\mathcal{L}}_{nl} &= i\alpha|\psi|^2 - i\epsilon|\psi|^4 - i\gamma|\psi|^{2K} - \nu|\psi|^{2K-2}.\end{aligned}$$

$\hat{\mathcal{L}}_{lin}$ est traité dans l'espace de Fourier et $\hat{\mathcal{L}}_{nl}$ en multipliant la solution résultante par $\exp(\int \hat{\mathcal{L}}_{nl} dz)$. L'intégrale est calculée par approximation: $\int_x^{x+\Delta z} \hat{\mathcal{L}}_{nl} dz \approx \hat{\mathcal{L}}_{nl}(z)\Delta z$. Puisque l'utilisation de la FFT nécessite des conditions aux limites périodiques, on ne peut pas utiliser une boîte transparente. Toutefois, quelques couches absorbantes (~ 16) donnent des résultats satisfaisants, à condition que l'intensité du champ sortant de la boîte numérique soit faible.

Pour paralléliser le schéma numérique, nous divisons le tableau $n_x \times n_y$ qui contient le champ complexe discrétisé $\psi(x,y)$ en "bandes" selon y . Si nous utilisons p processeurs (n_x et n_y doivent être des multiples de p), le processeur numéro 0 stocke $\psi(x_i, y_j)$, $i = 1, \dots, n_x$, $j = 1, \dots, n_y/p$, le processeur numéro 1 stocke $\psi(x_i, y_j)$, $i = 1, \dots, n_x$, $j = n_y/p + 1, \dots, 2n_y/p$ et ainsi de suite. La multiplication par $\exp(\int \hat{\mathcal{L}}_{nl} dz)$ peut être faite indépendamment sur chaque processeur. La multiplication par $\exp[-i(k_x^2 + k_y^2)\Delta z]$ dans l'espace de Fourier est aussi locale. La difficulté réside dans la parallélisation de la FFT en deux dimensions, qui est composée de $n_x + n_y$ vecteurs colonnes de dimension 1. Afin d'effectuer la FFT en une dimension, toutes les données importantes doivent être réunies sur un processeur. Ainsi on effectue tout d'abord n_y FFT par rapport à x et n_y/p transformées sur chaque processeur. Après cette opération, le tableau est transposé afin de le découper en "bandes" suivant x et de faire les FFT par rapport à y . Ainsi le processeur numéro 0 stocke $\hat{\psi}(k_{yj}, k_{xi})$, $j = 1, \dots, n_y$, $i = 1, \dots, n_x/p$, le processeur numéro 1 stocke $\hat{\psi}(k_{yj}, k_{xi})$, $j = 1, \dots, n_y$, $i = n_x/p + 1, \dots, 2n_x/p$ et ainsi de suite.

B.1.2 Code radial

Le code radial résout l'équation (2.47), ce qui signifie que les coordonnées transverses x et y sont remplacées par $r = \sqrt{x^2 + y^2}$. L'opérateur associé à l'équation (2.47)

est séparé comme suit

$$\begin{aligned}\hat{\mathcal{L}}_{lin1} &= \frac{i}{2k_0 r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right), & \hat{\mathcal{L}}_{lin2} &= -\frac{ik''}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}, \\ \hat{\mathcal{L}}_{nl} &= \frac{ik_0 n_2}{n_0} \int \mathcal{R}(t-t') |\mathcal{E}(t')|^2 dt' - i \frac{k_0}{2n_0^2 \rho_c} \rho - \frac{\sigma}{2} \rho - \frac{\beta^{(\kappa)}}{2} |\mathcal{E}|^{2\kappa-2},\end{aligned}$$

où $R(t) = e^{-t/\tau_K} \Theta(t)$ désigne la fonction Kerr complète, incluant sa composante Raman. On traite $\hat{\mathcal{L}}_{lin1}$ par un schéma de Crank-Nicholson (voir Ref. [134]), $\hat{\mathcal{L}}_{lin2}$ dans l'espace de Fourier et $\hat{\mathcal{L}}_{nl}$ en multipliant la solution linéaire par $\exp(\int \hat{\mathcal{L}}_{nl} dz)$. L'intégrale est approximée comme dans le code (2+1) moyenné en temps. Afin d'effectuer l'intégration en temps pour la réponse Kerr retardée et pour la densité d'électrons, un simple schéma de type Euler fonctionne [134], à condition que la résolution en temps soit suffisamment fine. Les bords de la boîte numérique sont absorbants en t , et transparents en r [135].

B.1.3 Code 3D

Ce code résout l'équation (2.47) où l'opérateur de diffraction est $\Delta_{\perp} = \partial_x^2 + \partial_y^2$. Nous séparons l'opérateur $\hat{\mathcal{L}}$ selon

$$\begin{aligned}\hat{\mathcal{L}}_{lin} &= \frac{i}{2k_0} \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) - \frac{ik''}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}, \\ \hat{\mathcal{L}}_{nl} &= \frac{ik_0 n_2}{n_0} \int \mathcal{R}(t-t') |\mathcal{E}(t')|^2 dt' - i \frac{k_0}{2n_0^2 \rho_c} \rho - \frac{\sigma}{2} \rho - \frac{\beta^{(\kappa)}}{2} |\mathcal{E}|^{2\kappa-2},\end{aligned}$$

où l'on traite $\hat{\mathcal{L}}_{lin}$ dans l'espace de Fourier et $\hat{\mathcal{L}}_{nl}$ par multiplication avec $\exp(\int \hat{\mathcal{L}}_{nl} dz)$. L'intégrale est calculée comme dans le code radial. Les bords de la boîte numérique sont absorbants en x, y et t . Le schéma de parallélisation est le même que celui utilisé dans le code (2+1) moyenné en temps. Nous devons simplement compléter un élément du tableau à deux dimensions par un vecteur comportant n_t éléments. Les transformées de Fourier 1D en t peuvent être effectuées avant la transposition du tableau complet.

Bibliographie

- [1] Y. R. Shen. **The Principles of Nonlinear Optics**. Wiley, New York, 1984.
- [2] R. W. Boyd. **Nonlinear Optics**. Academic, San Diego, 1993.
- [3] P. W. Milonni and J. H. Eberly. **Lasers**. Wiley, New York, 1988.
- [4] P. Sprangle, E. Esarey, and J. Krall. Self-guiding and stability of intense optical beams in gases. *Phys. Rev. E*, **54**:4211, 1996.
- [5] P. Sprangle, E. Esarey, and J. Krall. Laser driven electron acceleration in vacuum, gases, and plasmas. *Phys. Plasmas*, **3**:2183, 1996.
- [6] R. Rankin, C. E. Capjack, N. H. Burnett, and P. Corkum. Refraction effects associated with multiphoton ionization and ultrashort-pulse laser propagation in plasma wave-guides. *Opt. Lett.*, **16**:835, 1991.
- [7] W. P. Leemans, C. E. Clayton, W. B. Mori, K. A. Marsh, P. K. Kaw, A. Dyson, C. Joshi, and J. M. Wallace. Experiments and simulations of tunnel-ionized plasmas. *Phys. Rev. A*, **46**:1091, 1992.
- [8] S. C. Rae. Ionized-induced defocusing of intense laser-pulses in high-pressure gases. *Opt. Commun.*, **97**:25, 1993.
- [9] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou. Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser-pulses in air. *Opt. Lett.*, **20**:73, 1995.
- [10] F. Courvoisier, V. Boutou, J. Kasparian, E. Salmon, G. Méjean, J. Yu, , and J.-P. Wolf. Ultraintense light filaments transmitted through clouds. *Appl. Phys. Lett.*, **83**:213, 2003.
- [11] S. Skupin, L. Bergé, U. Peschel, and F. Lederer. Interaction of femtosecond light filaments with obscurant in aerosols. *Phys. Rev. Lett.*, **93**:023901, 2004.
- [12] V. I. Bespalov and V. I. Talanov. Filamentary structure of light beams in nonlinear liquids. *JETP Lett.*, **3**:307, 1966.

- [13] A.J. Campillo, S.L. Shapiro, and B.R. Suydam. Periodic breakup of optical beams due to self-focusing. *Appl. Phys. Lett.*, **23**:268, 1973.
- [14] L. Bergé, C. Gouédard, J. Schjødt-Eriksen, and H. Ward. Filamentation patterns in kerr media vs. beam shape robustness, nonlinear saturation and polarization states. *Physica D*, **176**:181, 2003.
- [15] M. Mlejnek, M. Kolesik, J. V. Moloney, and E. M. Wright. Optically turbulent femtosecond light guide in air. *Phys. Rev. Lett.*, **83**:2938, 1999.
- [16] L. Bergé, S. Skupin, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J.-P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou, and R. Sauerbrey. Multiple filamentation of terawatt laser pulses in air. *Phys. Rev. Lett.*, **92**:225002, 2004.
- [17] J. J. Rasmussen and K. Rypdal. Blow-up in nonlinear Schrödinger equations-I. A general review. *Phys. Scr.*, **33**:481, 1986.
- [18] N. Aközbek, C. M. Bowden, A. Talebpour, and S. L. Chin. Femtosecond pulse propagation in air: Variational analysis. *Phys. Rev. E*, **61**:4540, 2000.
- [19] N. Aközbek, M. Scalora, C. M. Bowden, and S. L. Chin. White-light continuum generation and filamentation during the propagation of ultra-short laser pulses in air. *Opt. Commun.*, **191**:353, 2001.
- [20] A. Vinçotte and L. Bergé. χ^5 susceptibility stabilizes the propagation of ultra-short laser pulses in air. *Phys. Rev. A*, **70**:061802, 2004.
- [21] V. I. Kruglov and R. A. Vlasov. Spiral self-trapping propagation of optical beams in media with cubic nonlinearity. *Phys. Lett. A*, **111**:4101, 1985.
- [22] V. I. Kruglov, Yu. A. Logvin, and V. M. Volkov. The theory of spiral laser-beams in nonlinear media. *J. Mod. Opt.*, **39**:2277, 1992.
- [23] A. Vinçotte and L. Bergé. Femtosecond optical vortices in air. *Phys. Rev. Lett.*, **95**:193901, 2005.
- [24] A. Vinçotte and L. Bergé. Atmospheric propagation of gradient-shaped and spinning femtosecond light pulses. Submitted to *Physica D*, 2005.
- [25] N. R. Heckenberg, R. McDuff, C. P. Smith, and A. G. White. Generation of optical-phase singularities by computer-generated holograms. *Opt. Lett.*, **17**:221, 1992.

- [26] V. Tikhonenko, J. Christou, and B. Luther-Davies. Three dimensional bright spatial soliton collision in a saturable nonlinear medium. *Phys. Rev. Lett.*, **76**:2698, 1996.
- [27] D. V. Petrov, L. Torner, J. Martorell, R. Vilaseca, J.-P. Torres, and C. Cojocaru. Observation of azimuthal modulational instability and formation of patterns of optical solitons in a quadratic nonlinear crystal. *Opt. Lett.*, **23**:1444, 1998.
- [28] G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, E. Salmon, J.-P. Wolf, S. Skupin, A. Vinçotte, R. Nuter, S. Champeaux, and L. Bergé. Multifilamentation transmission through fog. *Phys. Rev. E*, **72**:026611, 2005.
- [29] L. Guyon, F. Courvoisier, V. Boutou, R. Nuter, A. Vinçotte, S. Champeaux, L. Bergé, P. Glorieux, and J.-P. Wolf. Self-organized bundle of lasing filaments in dense media. *Phys. Rev. A*, **73**:051802, 2006.
- [30] G. P. Agrawal. **Nonlinear Fiber Optics**. Academic Press, San Diego, third edition, 2001.
- [31] Y. R. Shen. Recent advances in nonlinear optics. *Rev. Mod. Phys.*, **1**:48, 1976.
- [32] S. Skupin and L. Bergé. Self-guiding of femtosecond light pulses in condensed media: Plasma generation versus chromatic dispersion. Submitted to *Physica D*, 2005.
- [33] L. Bergé, S. Skupin, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, and J. P. Wolf. Supercontinuum emission and enhanced self-guiding of infrared femtosecond filaments sustained by third-harmonic generation in air. *Phys. Rev. E*, **71**:016602, 2005.
- [34] P. Sprangle, J. R. Peñano, and B. Hafizi. Propagation of intense short laser pulses in the atmosphere. *Phys. Rev. E*, **66**:046418, 2002.
- [35] E. Esarey, P. Sprangle, J. Krall, and A. Ting. Self-focusing and guiding of short laser pulses in ionizing gases and plasmas. *IEEE J. Quant. Electron.*, **33**:1879, 1997.
- [36] S. Tzortzakis, B. Prade, M. Franco, and A. Mysyrowicz. Time-evolution of the plasma channel at the trail of a self-guided IR femtosecond laser pulse in air. *Opt. Commun.*, **181**:123, 2000.
- [37] M. Mlejnek, E. M. Wright, and J. V. Moloney. Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air. *Opt. Lett.*, **23**:382, 1998.

- [38] P. Audebert, Ph. Daguzan, A. Dos Santos, J.-C. Gauthier, J.-P. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Martin, G. Petite, and A. Antonetti. Space-time observation of an electron gas in SiO_2 . *Phys. Rev. Lett.*, **73**:1990, 1994.
- [39] S. Tzortzakis, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon, and L. Bergé. Self-guided propagation of ultrashort IR laser pulses in fused silica. *Phys. Rev. Lett.*, **87**:213902, 2001.
- [40] J. R. Peñano, P. Sprangle, B. Hafizi, W. Manheimer, and A. Zigler. Transmission of intense femtosecond laser pulses into dielectrics. *Phys. Rev. E*, **72**:036412, 2005.
- [41] W. Lotz. An empirical formula for the electron-impact ionization cross-section. *Zeitschrift Phys.*, **206**:205, 1967.
- [42] W. Lotz. Ionization potentials of atoms and ions from hydrogen to zinc. *J. Opt. Soc. Am. B*, **57**:873, 1967.
- [43] L. V. Keldysh. Ionization in field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP*, **20**:1307, 1965.
- [44] A. M. Perelomov and V. S. Popov. Ionization of atoms in an alternating electric field: III. *Sov. Phys. JETP*, **25**:336, 1967.
- [45] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent'ev. Ionization of atoms in an alternating electric field. *JETP Lett.*, **23**:924, 1966.
- [46] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent'ev. Ionization of atoms in an alternating electric field: II. *Sov. Phys. JETP*, **24**:207, 1967.
- [47] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, **64**:1191, 1986.
- [48] X. M. Tong, Z. X. Zhao, and C. D. Lin. Theory of molecular tunneling ionization. *Phys. Rev. A*, **66**:033402, 2002.
- [49] A. Talebpour, J. Yang, and S. L. Chin. Semi-empirical model for the rate of tunnel ionization of N_2 and O_2 molecule in an intense Ti:sapphire laser pulse. *Opt. Commun.*, **163**:29, 1999.
- [50] A. Couairon, S. Tzortzakis, L. Bergé, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz. Infrared femtosecond light filaments in air: simulations and experiments. *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**:1117, 2002.

- [51] V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, I. S. Golubtsov, W. Liu, A. Becker, N. Aközbeck, C. M. Bowden, and S. L. Chin. Self-transformation of a powerful femtosecond laser pulse into a white-light laser pulse in bulk optical media (or supercontinuum generation). *Appl. Phys. B*, **77**:149, 2003.
- [52] M. Geissler, G. Tempea, A. Scrinzi, M. Schnürer, F. Krausz, and T. Brabec. Light propagation in field-ionizing media: Extreme nonlinear optics. *Phys. Rev. Lett.*, **83**:2930, 1999.
- [53] R. Nuter and L. Bergé. Pulse chirping and ionization of O₂ molecules for the filamentation of femtosecond laser pulses in air. *J. Opt. Soc. Am. B*, **23**:874, 2006.
- [54] P. L. Kelley. Self-focusing of optical beams. *Phys. Rev. Lett.*, **15**:1005, 1965.
- [55] C. Sulem and P.-L. Sulem. **The Nonlinear Schrödinger Equation: Self-focusing and Wave collapse**. Springer-Verlag, New York, first edition, 1999.
- [56] R. T. Glassey. On the blowing-up of solutions to the Cauchy problem for nonlinear Schrödinger equations. *J. Math. Phys.*, **18**:1794, 1977.
- [57] S. N. Vlasov, V. A. Petrishchev, and V. I. Talanov. Averaged description of wave beams in linear and nonlinear media (the method of moments). *Radiophys. Quant. Electron.*, **14**:1062, 1974.
- [58] E. A. Kuznetsov. Wave collapse in plasmas and fluids. *CHAOS*, **6**:381, 1996.
- [59] R. Y. Chiao, E. Garmire, and C. H. Townes. Self-trapping of optical beams. *Phys. Rev. Lett.*, **13**:479, 1964.
- [60] M. I. Weinstein. **Nonlinear Schrödinger equations and sharp interpolation estimates**. Springer Verlag, 1983.
- [61] E. A. Kuznetsov, J. J. Rasmussen, K. Rypdal, and S. K. Turitsyn. **Sharper criteria for the wave collapse**. Elsevier Science Bv, 1995.
- [62] K. Rypdal, J. Juul Rasmussen, and K. Thomsen. Similarity structure of wave-collapse. *Physica D*, **16**:339, 1985.
- [63] L. Bergé. Wave collapse in physics: Principles and applications to light and plasma waves. *Phys. Rep.*, **303**:259, 1998.
- [64] J. H. Marburger. Self-focusing: Theory. *Prog. Quantum Electron.*, **4**:35, 1975.
- [65] P. Chernev and V. Petrov. Self-focusing of short light pulses in dispersive media. *Opt. Commun.*, **87**:28, 1992.

- [66] P. Chernev and V. Petrov. Self-focusing of light pulses in the presence of normal group-velocity dispersion. *Opt. Lett.*, **17**:172, 1992.
- [67] S. Champeaux and L. Bergé. Femtosecond pulse compression in pressure-gas cells filled with argon. *Phys. Rev. E*, **68**:066603, 2003.
- [68] G. Fibich, W. Ren, and X.-P. Wang. Numerical simulations of self-focusing of ultrashort laser pulses. *Phys. Rev. E*, **67**:056603, 2003.
- [69] G. Fibich, S. Eisenmann, B. Ilan, Y. Erlich, M. Fraenkel, Z. Henis, A.L. Gaeta, and A. Zigler. Self-focusing distance of very high power laser pulses. *Opt. Express*, **13**:5897, 2005.
- [70] G. G. Luther, A. C. Newell, and J. V. Moloney. The effects of normal dispersion on collapse events. *Physica D*, **74**:59, 1994.
- [71] M. Mlejnek, E. M. Wright, and J. V. Moloney. Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air. *Opt. Lett.*, **23**:382, 1998.
- [72] V. P. Kandidov, O. G. Kosareva, and S. A. Shlenov. Influence of transient self-defocusing on the propagation of high-power femtosecond laser pulses in gases under ionization conditions. *Quant. Electron.*, **24**:905, 1994.
- [73] R. R. Alfano and S. L. Shapiro. Emission in the region 4000 to 7000 Å via four-photon coupling in glass. *Phys. Rev. Lett.*, **24**:584, 1970.
- [74] V. B. Gil'denburg, V. I. Pozdnyakova, and I. A. Shereshevskii. Frequency self-upshifting of focused electromagnetic pulse producing gas ionisation. *Phys. Lett. A*, **203**:214, 1995.
- [75] E. Yablonovitch. Self-phase modulation and short-pulse generation from laser-breakdown plasmas. *Phys. Rev. A*, **10**:1888, 1974.
- [76] A. Brodeur and S. L. Chin. Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media. *J. Opt. Soc. Am. B*, **16**:637, 1999.
- [77] A. Brodeur and S. L. Chin. Band-gap dependence of the ultrafast white-light continuum. *Phys. Rev. Lett.*, **80**:4406, 1998.
- [78] S. L. Chin, S. Petit, F. Borne, and K. Miyazaki. The white light supercontinuum is indeed an ultrafast white light laser. *Jpn. J. Appl. Phys.*, **38**:L126, 1999.
- [79] H. Nishioka, W. Odajima, K. Ueda, and H. Takuma. Ultrabroadband flat continuum generation in multichannel propagation of terawatt titanium:sapphire laser pulses. *Opt. Lett.*, **20**:2505, 1995.

- [80] J. Kasparian, R. Sauerbrey, D. Mondelain, S. Niedermeier, J. Yu, J. P. Wolf, Y. B. André, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, M. Rodriguez, H. Wille, and L. Wöste. Infrared extension of the supercontinuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere. *Opt. Lett.*, **25**:1397, 2000.
- [81] 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, and R. Sauerbrey. Filamentation of femtosecond light pulses in the air: Turbulent cells versus long-range clusters. *Phys. Rev. E*, **70**:046602, 2004.
- [82] L. Bergé, S. Skupin, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J. P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou, and R. Sauerbrey. Multiple filamentation of terawatt laser pulses in air. *Phys. Rev. Lett.*, **92**:225002, 2004.
- [83] L. Bergé, M.R. Schmidt, J. Juul Rasmussen, P.L. Christiansen, and K.Ø. Rasmussen. Amalgamation of interacting light beamlets in kerr-type media. *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**:2550, 1997.
- [84] Th. Brabec and F. Krausz. Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics. *Rev. Mod. Phys.*, **72**:545, 2000.
- [85] L. Pan, K. T. Taylor, and C. W. Clark. Perturbation theory study of high-harmonic generation. *J. Opt. Soc. Am. B*, **7**:509, 1990.
- [86] M. Nurhuda, A. Suda, and K. Midorikawa. Saturation of dynamic nonlinear susceptibility of noble gas atom in intense laser field. *RIKEN Rev.*, **48**:40, 2002.
- [87] D. Anderson, M. Bonnedal, and M. Lisak. Self-trapped cylindrical laser beams. *Phys. Fluids*, **22**:1838, 1979.
- [88] D. Anderson. Variational approach to nonlinear pulse propagation in optical fibers. *Phys. Rev. A*, **27**:3135, 1983.
- [89] A. Bondeson, M. Lisak, and D. Anderson. Soliton perturbations: A variational principle for the soliton parameters. *Phys. Scr.*, **20**:479, 1979.
- [90] D. Anderson and M. Bonnedal. Variational approach to nonlinear self-focusing of gaussian laser beams. *Phys. Fluids*, **22**:105, 1979.
- [91] M. Desaix, D. Anderson, and M. Lisak. Variational approach to collapse of optical pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, **8**:2082, 1991.

- [92] S. Tzortzakis, L. Bergé, A. Couairon, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz. Breakup and fusion of self-guided femtosecond light pulses in air. *Phys. Rev. Lett.*, **86**:5470, 2001.
- [93] M. Quiroga-Teixeiro and N. Michinel. Stable azimuthal stationary state in quintic nonlinear optical media. *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**:2004, 1997.
- [94] V. I. Berezhiani, V. Sarka, and N. B. Aleksić. Dynamics of localized and non-localized optical vortex solitons in cubic-quintic nonlinear media. *Phys. Rev. E*, **64**:057601, 2001.
- [95] H. Michinel, J. R. Salgueiro, and M. J. Paz-Alonso. Square vortex solitons with a large angular momentum. *Phys. Rev. E*, **70**:066605, 2004.
- [96] D. Mihalache, D. Mazilu, B. A. Malomed, and F. Lederer. Stable vortex solitons supported by competing quadratic and cubic nonlinearities. *Phys. Rev. E*, **69**:0666114, 2004.
- [97] W. J. Firth and D. V. Skryabin. Optical solitons carrying orbital angular momentum. *Phys. Rev. Lett.*, **79**:2450, 1997.
- [98] D. Mihalache, D. Mazilu, L.-C. Crasovan, B. A. Malomed, F. Lederer, and L. Torner. Robust solitons clusters in media with competing cubic and quintic nonlinearities. *Phys. Rev. E*, **68**:046612, 2003.
- [99] I. Towers, A. V. Buryak, B. A. Malomed, L.-C. Crasovan, and D. Mihalache. Stability of spinning ring solitons of the cubic-quintic nonlinear schrödinger equation. *Phys. Lett. A*, **288**:292, 2001.
- [100] A. S. Desyatnikov, Y. S. Kivshar, and L. Torner. Optical vortices and vortex solitons. *Prog. Opt.*, **47**:291, 2005.
- [101] V. Skarka, N. B. Aleksić, and V. I. Berezhiani. Evolution of singular optical pulses towards vortex solitons and filamentation in air. *Phys. Lett. A*, **319**:317, 2003.
- [102] N. N. Rosanov, S. V. Federov, and N. Shatsev. Curvilinear motion of multi-vortex laser-soliton complexes with strong and weak coupling. *Phys. Rev. Lett.*, **95**:053903, 2005.
- [103] D. Mihalache, D. Mazilu, L.-C. Crasovan, I. Towers, A. V. Buryak, B. A. Malomed, L. Torner, J. P. Torres, and F. Lederer. Stable spinning optical solitons in three dimensions. *Phys. Rev. Lett.*, **88**:073902-1, 2002.

- [104] D. Mihalache, D. Mazilu, L.-C. Crasovan, B. A. Malomed, F. Lederer, and L. Torner. Soliton clusters in three-dimensional media with competing cubic and quintic nonlinearities. *J. Opt. B*, **6**:S333, 2004.
- [105] B. Luther-Davies, J. Christou, and V. Tikhonenko. Optical vortex solitons: experiments versus theory. *J. Opt. Soc. Am. B*, **14**:3045, 1997.
- [106] V. Tikhonenko, J. Christou, and B. Luther-Davies. Three dimensional bright spatial soliton collision and fusion in saturable nonlinear medium. *Phys. Rev. Lett.*, **76**:2698, 1996.
- [107] I. G. Maryienko, J. Strohaber, and C. J. G. J. Uiterwaal. Creation of optical vortices in femtosecond pulses. *Opt. Exp.*, **13**:7599, 2005.
- [108] T. Alexander and L. Bergé. Ground states and vortices of matter-wave condensates and optical guided waves. *Phys. Rev. E*, **65**:026611, 2002.
- [109] J. Atai, Y. Chen, and J. M. Soto-Crespo. Stability of three-dimensional self-trapped beams with a dark spot surrounded by bright rings of varying intensity. *Phys. Rev. A*, **49**:R3170, 1994.
- [110] J. Kasparian and J. P. Wolf. A new transient srs analysis method of aerosols and application to a nonlinear femtosecond lidar. *Opt. Commun*, **152**:355, 1998.
- [111] F. Courvoisier, V. Boutou, J. Kasparian, E. Salmon, G. Méjean, J. Yu, and J. P. Wolf. Ultraintense light filaments transmitted through clouds. *Appl. Phys. Lett.*, **83**:023901, 2003.
- [112] M. Kolesik and J. V. Moloney. Self-healing femtosecond light filaments. *Opt. Lett.*, **29**:023901, 2004.
- [113] R. Ackermann, K. Stelmaszczyk, P. Rohwetter, G. Méjean, E. Salmon, J. Yu, J. Kasparian, G. Méchain, V. Bergmann, S. Schaper, B. Weise, T. Kumm, K. Rethmeier, W. Kalkner, J. P. Wolf, and L. Wöste. Triggering and guiding of megavolt discharges by laser-induced filaments under rain conditions. *Appl. Phys. Lett.*, **85**:5781, 2004.
- [114] H. Wille, M. Rodriguez, J. Kasparian, D. Mondelain, J. Yu, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J. P. Wolf, and L. Wöste. Teramobile: A mobile femtosecond-terawatt laser and detection system. *Eur. Phys. J.: Appl. Phys.*, **20**:183, 2002.
- [115] R. Nuter, S. Skupin, and L. Bergé. Chirp-induced dynamics of femtosecond filaments in air. *Opt. Lett.*, **30**:917, 2005.

- [116] G. Mie. Beiträge zur optik trüber medien, speziell kolloidaler metallösungen. *Ann. Phys.*, **25**:337, 1908.
- [117] W. Liu, S. L. Chin, O. Kosareva, I. S. Golubtsov, and V. P. Kandidov. Multiple refocusing of a femtosecond laser pulse in a dispersive liquid (methanol). *Opt. commun.*, **225**:193, 2003.
- [118] H. Schroeder and S. L. chin. Visualization of the evolution of multiple filaments in methanol. *Opt. commun.*, **234**:399, 2004.
- [119] H. Schroeder, J. Liu, and S. L. chin. From random to controlled small-scale filamentation in water. *Opt. Express*, **12**:4768, 2004.
- [120] J. Rheims, J. Köser, and T. Wriedt. Refractive-index measurements in the near-ir using an abbe refractometer. *Meas. Sci. Technol*, **8**:601, 1997.
- [121] S. Yamakawa, K. Hamashima, T. Kinoshita, and K. Sasaki. Temporal solitary subpicosecond pulse propagation in a dye-doped polymer slab waveguide with a negative nonlinear refractive index. *Appl. Phys. Lett.*, **72**:1562, 1998.
- [122] R. A. Ganeev, M. Baba, M. Morita, A.I. Ryasnyansky, M. Suzuki, M. Turu, and H. Kuroda. Fifth-order optical nonlinearity of pseudoisocyanine solution at 529 nm. *J. Opt. A, Pure Appl. Opt.*, **6**:282, 2004.
- [123] J. M. Jung and H. Gress. Single-photon absorption of liquid methanol and ethanol in the vacuum ultraviolet. *Chem. Phys. Lett.*, **359**:153, 2002.
- [124] J. M. Yung. Single-photon ionisation of liquid methanol and ethanol. *Chem. Phys. Lett.*, **366**:67, 2002.
- [125] P. Donnat, C. Gouédard, D. Véron, O. Bonville, C. Sauteret, and A. Migus. Induced spatial incoherence and nonlinear effects in nd-glass amplifiers. *Opt. Lett.*, **17**:331, 1992.
- [126] A. Fischer, C. Cremer, and E. h. K. Stelzer. Fluorescence of coumarins and xanthenes after 2-photon absorption with a pulsed titanium-sapphire. *Appl. Opt.*, **34**:1989, 1995.
- [127] B. Kovac and I. Novak. Electronic structure of coumarins. *Spectrochimica Acta Part A*, **58**:1483, 2002.
- [128] Q. Feng, J. V. Moloney, A. C. Newell, E. M. Wright, K. Cook, P. K. Kennedy, D. X. Hammer, B. A. Rockwell, and C. R. Thompson. Theory and simulation

- on the threshold of water breakdown induced by focused ultrashort laser pulses. *J. Quant. Electron.*, **33**:127, 1997.
- [129] Cheng-Shan Guo, Yan Zhang, Yu-Jing Han, Jian-Ping Ding, and Hui-Tian Wang. Generation of optical vortices with arbitrary shape and array via helical phase spatial filtering. *Opt. Commun.*, **259**:449, 2005.
- [130] I. G. Mariyenko, J. Strohaber, and C. J. G. J. Uiterwaal. Creation of optical vortices in femtosecond pulses. *Opt. Express*, **13**:7599, 2005.
- [131] B. H. Bransden and C. J. Joachain. **Physics of Atoms and Molecules**. Pearson Education Limited, Prentice Hall, 2003.
- [132] M. J. DeWitt, E. Wells, and R. R. Jones. Radiometric comparison of intense field ionization of atoms and diatomic molecules. *Phys. Rev. Lett.*, **87**:153001, 2001.
- [133] M. Abramovitz and I. A. Stegun. **Handbook of Mathematical Functions**. Dover, New York, 1972.
- [134] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, and W. T. Vetterling. **Numerical Recipes**. Cambridge University Press, Cambridge, 1989.
- [135] G. R. Hadley. Transparent boundary-condition for beam propagation. *Opt. Lett.*, **16**:624, 1991.

Liste des publications de l'auteur

- A. Vinçotte and L. Bergé. " $\chi^{(5)}$ susceptibility stabilizes the propagation of ultra-short laser pulses in air." *Phys. Rev. A*, **70**:061802-1 (2004).
- G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, E. Salmon, J.-P. Wolf, S. Skupin, A. Vinçotte, R. Nuter, S. Champeaux and L. Bergé. "Multifilamentation transmission through fog." *Phys. Rev. E*, **72**:026611 (2005).
- A. Vinçotte and L. Bergé. "Femtosecond optical vortices in air." *Phys. Rev. Lett.*, **95**:193901, (2005).
- L. Guyon, F. Courvoisier, V. Boutou, R. Nuter, A. Vinçotte, S. Champeaux, L. Bergé, P. Glorieux and J.-P. Wolf. "Self-organized bundle of lasing filaments in dense media." *Phys. Rev. A*, **73**:051802 (2006)
- A. Vinçotte and L. Bergé. "Atmospheric propagation of gradient-shaped and spinning femtosecond light pulses". En cours de soumission à *Physica D* (2006).

$\chi^{(5)}$ susceptibility stabilizes the propagation of ultrashort laser pulses in air

Antoine Vinçotte and Luc Bergé

Département de Physique Théorique et Appliquée, CEA/DAM Ile de France, Boîte Postale 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France

(Received 16 July 2004; published 13 December 2004)

The influence of higher-order optical nonlinearities on the self-guiding of femtosecond pulses in the atmosphere is investigated theoretically. $\chi^{(5)}$ susceptibility, even small, is shown to significantly affect the propagation dynamics and enhance the robustness of femtosecond filaments by lowering the threshold intensity at which the beam saturates and by enlarging the self-channeling range.

DOI: 10.1103/PhysRevA.70.061802

PACS number(s): 42.65.Jx, 42.65.Re, 42.68.Ay

Femtosecond laser pulses are known to produce intense channels of light in the atmosphere [1], which result from the competition between the Kerr focusing of the beam and self-induced ionization of air molecules. These channels consist of filamentary structures with ~ 1 mJ energy, 100 μm waist, peak intensities attaining 10^{13} – 10^{14} W/cm², and generating an electron plasma with densities around 10^{16} cm⁻³ [2,3].

So far, attention has mostly been paid to the previous interplay, where only plasma generation arrests the beam collapse. Several authors, however, proposed other stabilizers for this saturation process. For instance, chromatic dispersion was recently shown to promote a self-guiding with no major role from ionization in condensed media such as water [4]. Nonetheless, this property does not usually hold in air, for which the dispersion is so weak that it cannot stop the collapse of high-power beams before plasma occurs. Instead, $\chi^{(5)}$ contributions originating from the expansion of the nonlinear polarization vector may arise in the atmosphere at intensity levels close to the ionization threshold. Therefore, they appear as potential key players in the self-channeling mechanism. In Refs. [5,6], $\chi^{(5)}$ defocusing nonlinearities were shown to affect both the saturation intensity of self-guided filaments and their associated peak electron densities. In contrast, a recent investigation [7] proposed that quintic saturation should be omitted in current models, as ionization processes dominate with an intensity threshold below that of the $\chi^{(5)}$ effects. Here, comparisons were performed from intensity thresholds considered independently of each other. The analysis, moreover, applied to a reduced model ignoring the role of the Raman-delayed Kerr response in air and multiphoton absorption. Thus, the question of knowing whether and why $\chi^{(5)}$ nonlinearities are important in the self-channeling of ultrashort light pulses still remains open.

In this paper, we provide theoretical arguments displaying evidence of the importance of such terms in the pulse dynamics, even when they exhibit a small $\chi^{(5)}$ coefficient. We show that a combination of both $\chi^{(5)}$ and free electron excitation makes a quintic susceptibility have noticeable influence on the filamentation process and enlarges the self-guiding range. A two-scale variational approach supports these theoretical expectations. Numerical simulations of radially symmetric and fully (3D+1)-dimensional pulses clearly demonstrate this property.

To start with, we consider the propagation equations for the slowly varying envelope $\mathcal{E}(x, y, t, z)$ of the beam evolving along the z axis, written as [8,9]

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} = \frac{i}{2k_0} \nabla_{\perp}^2 \mathcal{E} - i \frac{k''}{2} \partial_t^2 \mathcal{E} + ik_0 \frac{\Delta n}{n_0} \mathcal{E} - \frac{\beta(|\mathcal{E}|^2)}{2} \mathcal{E} - \frac{\sigma}{2} \rho \mathcal{E}, \quad (1)$$

$$\frac{\Delta n}{n_0} \equiv n_2 R(t) - n_4 |\mathcal{E}|^4 - \frac{\rho}{2\rho_c}, \quad (2)$$

$$R(t) \equiv (1 - \theta) |\mathcal{E}(t)|^2 + \frac{\theta}{\tau_K} \int_{-\infty}^t e^{-(t-t')/\tau_K} |\mathcal{E}(t')|^2 dt', \quad (3)$$

$$\partial_t \rho = W(|\mathcal{E}|^2) \rho_{\text{nt}} + \frac{\sigma}{U_i} \rho |\mathcal{E}|^2. \quad (4)$$

These equations apply to femtosecond pulses moving in their group-velocity frame, with the central wave number $k_0 = 2\pi/\lambda_0$ and $\nabla_{\perp}^2 \equiv \partial_x^2 + \partial_y^2$. We consider the laser wavelength $\lambda_0 = 800$ nm, normal group-velocity dispersion with coefficient $k'' = 0.2$ fs²/cm, and a critical plasma density $\rho_c = 1.8 \times 10^{21}$ cm⁻³. Only ionization of dioxygen molecules is considered, with the gap potential $U_i = 12.1$ eV and an initial neutral density $\rho_{\text{nt}} = 5.4 \times 10^{18}$ cm⁻³. The last terms in Eq. (1) are related to multiphoton absorption (MPA) expressed as $\beta(|\mathcal{E}|^2) \equiv \rho_{\text{nt}} W(|\mathcal{E}|^2) U_i / |\mathcal{E}|^2$ and to avalanche ionization with a cross section for inverse bremsstrahlung $\sigma = 5.44 \times 10^{-20}$ cm², respectively. In Eq. (2), $\Delta n/n_0$ is the effective optical index ($n_0 = 1$). It describes the competition between the instantaneous and Raman-delayed Kerr responses of air in ratio θ ($\tau_K = 70$ fs, $n_2 = 4 \times 10^{-19}$ cm²/W), the quintic saturation with coefficient $n_4 \sim |\chi^{(5)}|$, and plasma generation. The critical power for self-focusing is $P_{\text{cr}} = \lambda_0^2 / 2\pi n_2 = 2.55$ GW. As no precise value for n_4 is nowadays available for dioxygen molecules, we adopt the same reasoning as in Ref. [6]: For noble gases with ionization potential close to oxygen, $\chi^{(5)}$ is expected to scale as $\chi^{(5)} \sim 10^{-29}$ – 10^{-28} (esu), leading to n_4 contained in the interval 10^{-33} – 10^{-32} cm⁴/W². Therefore, two different reasonable estimates will be tested here, namely, $n_4 = 10^{-32}$ cm⁴/W² and $n_4 = 2.5 \times 10^{-33}$ cm⁴/W².

Equation (4) describes the evolution of the plasma density ρ , whose ionization rate $W(I)$ with $I \equiv |\mathcal{E}|^2$ follows the so-called PPT model proposed by Perelomov *et al.* in [10]. At moderate intensities $I \leq 5 \times 10^{13}$ W/cm², $W(I)$ recovers the multiphoton ionization (MPI) rates $W(I) = \sigma_{(K)} I^K$, where K is the number of photons required for ionization. At higher intensities, tunnel ionization dominates, and the functional de-

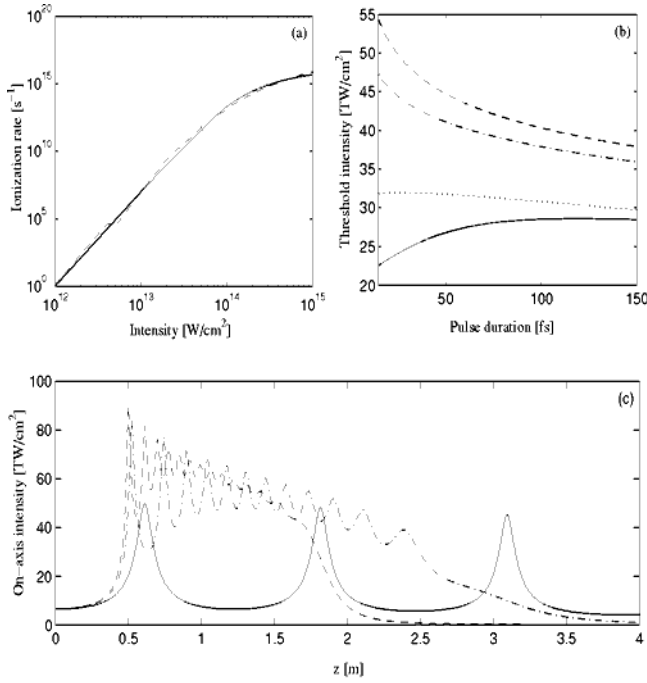


FIG. 1. (a) Ionization rates $W(I)$ vs laser intensity following the PPT model [10] (dashed curve) and the fitting function Eq. (5) (solid curve). (b) Threshold intensities, I_{th} , realizing $\Delta n/n_0=0$ when $n_4=0$ (dashed curve), $n_4=2.5 \times 10^{-33} \text{ cm}^4/\text{W}^2$ (dash-dotted curve), and $n_4=10^{-32} \text{ cm}^4/\text{W}^2$ for $\theta=0.5$ (solid curve) and $\theta=0.2$ (dotted curve). (c) On-axis intensity ($\xi=\eta=0$) computed from the two-scale variational approach in the same configurations.

dependencies of $W(I)$ depart from the MPI expression. The complete curve $W(I)$ has been plotted in Fig. 1(a) with a dashed line. This will be used in the coming radial and 3D numerical simulations. For further convenience, it can be approximated by the fitting function represented with a solid line:

$$\log_{10}(W) = a_{1,2}[\log_{10}(I)]^{b_{1,2}} + c_{1,2}, \quad (5)$$

where the twofold constants $a_{1,2}$, $b_{1,2}$, and $c_{1,2}$, differing from one another on either side of $I \approx 6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, have been evaluated to reproduce the PPT rate.

Below, we emphasize that even weak $\chi^{(5)}$ contributions can be responsible for significant changes in the filament dynamics. To prove this assertion, let us compute the intensity for which $\Delta n/n_0=0$ and compare it when the $\chi^{(5)}$ nonlinearity is discarded or not. To estimate $\Delta n/n_0$, we first model the pulse by a Gaussian temporal profile $\mathcal{E} = \sqrt{I_0} e^{-t^2/t_p^2}$ with half-width duration t_p . By plugging $|\mathcal{E}|^2$ into Eq. (2), we find that the intensity thresholds (noted I_{th}), at which a self-guided filament can be realized, follow from the roots of the relation

$$AI - \frac{\rho_{nt} t_p}{2\rho c n_2} W(I) - BI^2 = 0, \quad (6)$$

where the density ρ is approximated by $\rho \approx t_p W(I) \rho_{nt}$ with $W(I)$ given by Eq. (5). $A \equiv \max_t R(t)$ yields the maximum Kerr response reached at the instant $t=t_{max}$, while B

$= (n_4/n_2) e^{-4t_{max}^2}$ measures the weight of $\chi^{(5)}$ over $\chi^{(3)}$ susceptibilities stated at the same time.

Figure 1(b) shows the solutions of Eq. (6) involving three values of n_4 versus the pulse duration t_p for $\theta=1/2$ [8,9]. Even weak, $\chi^{(5)}$ significantly decreases the threshold intensity I_{th} , at which the pulse starts to saturate. Consequently, ionization is not the only effect that contributes to the equilibrium resulting into a self-guided filament. This decrease is more pronounced when n_4 is strong, but it becomes more attenuated at large values of t_p . The effective Kerr response determined by A increases with t_p . When plasma generation dominates (weak n_4), I_{th} decreases with t_p . In the opposite case (strong n_4), I_{th} increases. In both situations, however, quintic saturation participates in diminishing the overall intensity threshold. Hence, energy losses caused by MPA should be weaker and preserve the filament over longer distances.

It is also important to underline the role played by the ratio θ in the delayed Kerr response [Eq. (3)]. A weaker value of θ indeed increases the weight of the instantaneous cubic nonlinearity and the intensity threshold is augmented in turn [dotted curve in Fig. 1(b)].

To proceed further, we use a two-scale variational approach solving Eq. (1) and elaborated on the procedure exposed in [11] (see also [12]). The pulse dynamics is described by transverse $[R(z)]$ and temporal $[T(z)]$ lengths depending both on the propagation distance z . The wave envelope is modeled by the Gaussian test function:

$$\mathcal{E} = \frac{\sqrt{J(z)}}{R(z)\sqrt{T(z)}} \phi(\xi, \eta) e^{iR_z(z)R(z)\xi^2/4 - iT_z(z)T(z)\eta^2/4\delta}, \quad (7)$$

where $\phi = e^{-\xi^2/2 - \eta^2/2}$, $\xi \equiv \sqrt{x^2 + y^2}/R(z)$, $\eta \equiv t/T(z)$, and $\delta = 2\pi n_0 w_0^2 k''/\lambda_0 t_p^2$. Here, the sizes $R(z)$ and $T(z)$ have been normalized with respect to the input beam waist w_0 and duration t_p , while $J(z)$ measures the loss of power induced by MPA. For technical convenience, $W(I)$ is simplified by considering the MPI formulation $W(I) \approx \sigma_{(K)} I^K$ with $K=8$ and $\sigma_{(8)} \approx 2.9 \times 10^{-99} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{16}/\text{W}^8$, which is close to Eq. (5) for $I \approx 10^{13} - 10^{14} \text{ W/cm}^2$ [8]. Plugging the ansatz (7) into virial identities provides a set of differential equations in the form $R_{zz} = F_R + \chi_5 J^2 p^2/R^5 T^2$, $T_{zz} = F_T - \delta \chi_5 J^2 p^2/R^4 T^3$, $J_z = F_J$, where $p \equiv P_{in}/P_{cr}$ is the ratio of input power over critical and $\chi_5 \equiv 16n_4 P_{cr}/(9\sqrt{3}n_2 \pi w_0^2)$ accounts for the quintic saturation. The quantities F_R , F_T , and F_J denote cumbersome functions depending on (R, T, J) , which can be found already established in [11,12].

Figure 1(c) illustrates the normalized on-axis intensity integrated from this variational method with $p=10$, $\theta=1/2$, for the values of n_4 selected in Fig. 1(b). The parameters for the laser pulse are $t_p=42 \text{ fs}$ ($A=0.66$), $w_0=0.5 \text{ mm}$ and enter the input Gaussian profile $\mathcal{E}(r, t, 0) = \sqrt{2P_{in}/\pi w_0^2} \exp(-r^2/w_0^2 - t^2/t_p^2)$. We observe that the larger n_4 , the lower the peak intensity. The typical ratio of peak intensities between the two extreme cases is 1.8, in agreement with Fig. 1(b). $\chi^{(5)}$ saturation promotes a longer self-guiding length, along which oscillations develop with increasing n_4 , until the beam

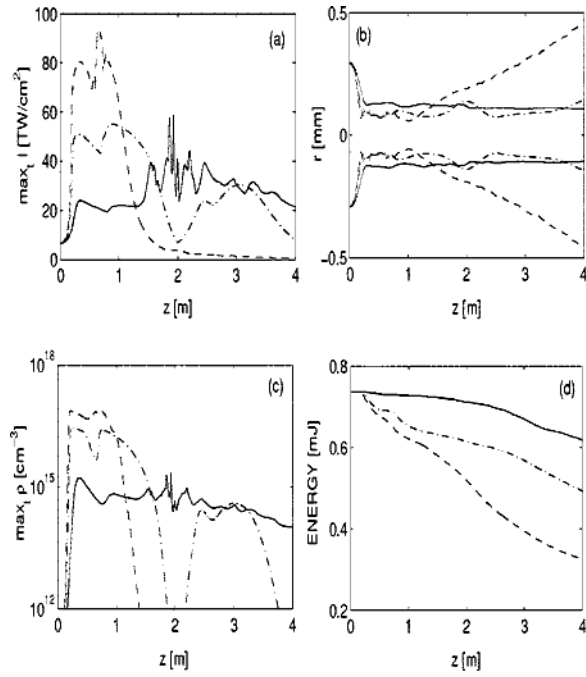


FIG. 2. (a) Peak intensity, (b) mean radius of the fluence distribution $\mathcal{F} \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{E}|^2 dt$, (c) peak electron density, and (d) energy losses for a 42 fs, 0.5-mm-waisted pulse undergoing plasma defocusing alone (dashed curves), plasma defocusing and $\chi^{(5)}$ saturation with weak n_4 (dash-dotted curves), and plasma and $\chi^{(5)}$ saturation with strong n_4 (solid curves).

behaves like a bright soliton in an optically saturated Kerr medium [14]. As the peak intensity decreases under the influence of $\chi^{(5)}$, the filament length increases.

For comparison we numerically solve Eqs. (1)–(4) using a parallel radial code ($\nabla_{\perp}^2 \equiv r^{-1} \partial_r r \partial_r$, $r = \sqrt{x^2 + y^2}$) for the same initial Gaussian pulse as above. Figure 2 shows that $\chi^{(5)}$ decreases the saturation intensity and enhances the self-guiding over longer distances. This effect is reinforced when n_4 is stronger, so that the $\chi^{(5)}$ nonlinearities promote a longer and stabler propagation. By increasing the values of n_4 , the peak intensity, $I_{\text{peak}} > I_{\text{th}}$, decreases more and more on the average, in agreement with Fig. 1(b). This has a direct consequence on the self-guiding length dictated by MPA, $\Delta z \sim 2/\beta^{(K)} I_{\text{th}}^{K-1}$ [Fig. 3(b)], which becomes enlarged by the order of magnitude $(I_{\text{th}}^{n_4 \neq 0}/I_{\text{th}}^{n_4=0})^{1-K}$ where the values of I_{th} can be estimated from Fig. 1(b). Moreover, the peak electron density diminishes in turn, as can be seen from Fig. 2(c). However, $\chi^{(5)}$ saturation does not prevent plasma generation with electron densities exceeding $10^{15} - 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. Lowering I_{th} also decreases the energy losses in proportion [Fig. 2(d)] and justifies the robustness of the light filament when $n_4 \neq 0$. Note the *qualitative* agreement between Figs. 1(c) and 2(a): The variational approach predicts intensity growths and self-channeling ranges comparable with the numerical simulations, even if this method cannot reproduce the pulse dynamics in detail (variational models based on Eq. (7) capture the overall beam power and are unable to describe, e.g., radiation of energy to the boundaries [11]). In particular, as n_4 is increased to $10^{-32} \text{ cm}^4/\text{W}^2$, a soliton regime characterized by quasiperiodic oscillations takes place.

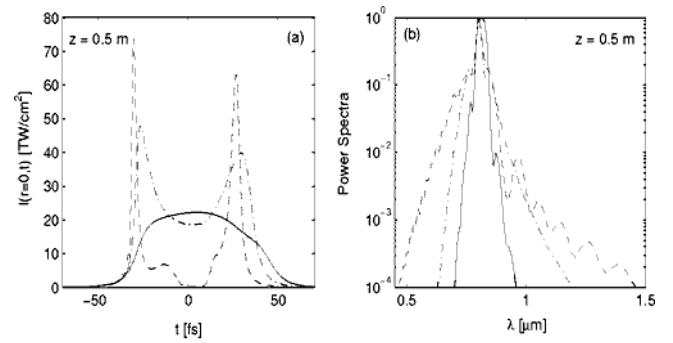


FIG. 3. (a) Temporal profiles and (b) power spectra at $z = 0.5 \text{ m}$ for the pulses shown in Fig. 2, using the same plot style convention for the different values of n_4 .

Figure 3(a) details the temporal profiles at $z=0.5 \text{ m}$, where the pulse is close to its maximum intensity. With no quintic saturation ($n_4=0$), the back of the pulse is depleted by plasma defocusing. A sharp leading edge first survives, before plasma turns off and makes a trailing edge refocus following the scenario of Ref. [3]. This dynamics induces an asymmetry in the spectrum plotted from the Fourier transform in time of the laser intensity [Fig. 3(b)]. As n_4 departs from zero, the temporal profile, however, becomes more symmetric and less intense. Thus, the pulse spectrum, whose frequency variations are governed by the ratio of the peak intensity over the pulse duration [13], exhibits broadenings of lesser extent and becomes more symmetric as $\chi^{(5)}$ increases.

To end the present investigation, we find it instructive to display fluence distributions computed from a realistic input beam, as currently used in experiments. The goal of these computations is not to identify a proper value of the $\chi^{(5)}$ susceptibility in air, but, instead, to underline its potential role in the multiple filamentation patterns developed by ultrashort pulses. In Refs. [2,8], femtosecond beams were shown to form a ringlike structure at $z=2.5 \text{ m}$. This ring became modulationally unstable and decayed into two small-scale spots self-focusing over 2–4 m. The couple of spots finally coalesced into a central lobe at $z=8.5 \text{ m}$. Before this distance, no plasma excitation was detected. In spite of this, the two spots remained robust upon at least 2 m before fusing. Beam parameters were $w_0=3 \text{ mm}$, $t_p=42 \text{ fs}$, and $P_{\text{in}}=28P_{\text{cr}}$. To reproduce these data, we used a 3D parallel spectral code [9] solving Eqs. (1)–(4) with the previous parameters. The initial condition, chosen closely to the experimental beam, was perturbed by a 10% amplitude random noise: $\mathcal{E}(z=0) = \sqrt{I_0} \exp\{-([x^2 + 2y^2]/w_0^2)^{3/2} - t^2/t_p^2\} [1 + 0.1 \times (\text{noise})]$, with $I_0 \approx 0.7 \text{ TW/cm}^2$.

Figures 4(a)–4(c) show the fluence distribution of the pulse at increasing propagation distances (from left to right) when $n_4=0$. At $z=3.7 \text{ m}$, two spots resulting from the modulational instability of the input beam self-focus [Fig. 4(a)]. At $z=5.1 \text{ m}$, these filaments break up into six or seven cells, i.e., the two-spot pattern ceases to be robust [Fig. 4(b)]. At $z=6.5 \text{ m}$, fusion occurs (discrepancy with the experimental fusion point, $z=8.5 \text{ m}$, is attributed to the uncertainty in the measured input waist and in the temporal and transverse structure of the initial pulse) and the central lobe becomes

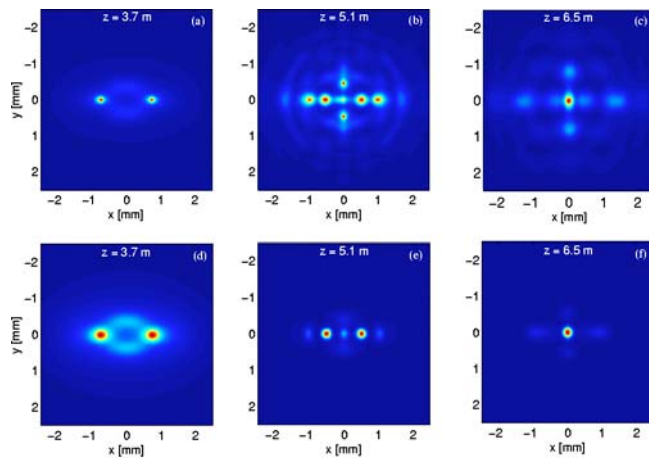


FIG. 4. (Color online) Fluence distribution of a 42 fs pulse with a 3-mm-waist computed at different propagation distances for (a)–(c) $n_4=0$ and (d)–(f) $n_4=10^{-32}$ cm⁴/W².

unstable at further distances. Maximum plasma density ($>5 \times 10^{16}$ cm⁻³) takes place as soon as $z \geq 3.7$ m. Figures 4(d)–4(f) show the same pieces of information when $n_4 = 10^{-32}$ cm⁴/W². Two broader cells continue to self-focus at $z=3.7$ m [Fig. 4(d)]. They keep a robust state at $z=5.1$ m [Fig. 4(e)] before fusing at $z=6.5$ m into one filament [Fig. 4(f)], which holds its shape along several meters. In this case, maximum plasma density ($>10^{15}$ cm⁻³) arises from z

$=6.2$ m. It stays clamped at levels less than 10^{14} cm⁻³ (i.e., below the electron detection threshold of [2]) during the preceding stages. Note that these simulations do not plead in favor of n_4 as high as 10^{-32} cm⁴/W². They, nevertheless, strongly indicate that a $\chi^{(5)}$ response of air should not be omitted in current modelings. It is interesting to notice that, without higher-order saturation, the number of filaments formed in optical regime should be close to $P_{\text{in}}/P_{\text{fil}} \approx 7$ with a power per filament evaluated by $P_{\text{fil}} \approx \pi^2 P_{\text{cr}}/4A$ [14]. With a quintic saturation, this number decreases by the factor $(1 - 2n_4 I_{\text{max}}^{\text{optic}}/An_2)$, where $I_{\text{max}}^{\text{optic}} \leq 10$ TW/cm² denotes the maximal intensity reached without plasma formation, which suits better the experimental observations.

In conclusion, we have shown the stabilizing role of $\chi^{(5)}$ defocusing nonlinearities in the meter-range propagation of ultrashort pulses in air. Although the precise value of $\chi^{(5)}$ susceptibility for dioxygen molecules remains unknown, its influence should not be ignored. $\chi^{(5)}$ saturation does not prevent plasma generation, although the latter occurs with weaker density levels. It lowers the maximum light intensity from which self-channeling develops and stabilizes femto-second filaments by enlarging significantly their self-guiding range.

The authors thank S. Skupin for technical advices on the numerical simulations and Dr. R. Nuter for providing them with the PPT ionization rate used in this work.

-
- [1] A. Braun *et al.*, *Opt. Lett.* **20**, 73 (1995); E. T. J. Nibbering *et al.*, *ibid.* **21**, 62 (1996); B. LaFontaine *et al.*, *Phys. Plasmas* **6**, 1615 (1999).
 [2] S. Tzortzakis *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5470 (2001).
 [3] M. Mlejnek, E. M. Wright, and J. V. Moloney, *Opt. Lett.* **23**, 382 (1998).
 [4] M. Kolesik, E. M. Wright, and J. V. Moloney, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 253901 (2004).
 [5] N. Aközbek, C. M. Bowden, A. Talebpour, and S. L. Chin, *Phys. Rev. E* **61**, 4540 (2000).
 [6] N. Aközbek, M. Scalora, C. M. Bowden, and S. L. Chin, *Opt. Commun.* **191**, 353 (2001).
 [7] A. Couairon, *Phys. Rev. A* **68**, 015801 (2003).
 [8] A. Couairon *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 1117 (2002).
 [9] L. Bergé *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 225002 (2004).
 [10] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent'ev, *Sov. Phys. JETP* **23**, 924 (1966). See also L. V. Keldysh, *ibid.* **20**, 1307 (1965); M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov, *ibid.* **64**, 1191 (1986).
 [11] L. Bergé and A. Couairon, *Phys. Plasmas* **7**, 210 (2000).
 [12] P. Sprangle, J. R. Peñano, and B. Hafizi, *Phys. Rev. E* **66**, 046418 (2002).
 [13] G. P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics*, 3rd ed. (Academic, New York, 2001).
 [14] L. Bergé, Cl. Gouédard, J. Schjødt-Eriksen, and H. Ward, *Physica D* **176**, 181 (2003).

Multifilamentation transmission through fog

G. Méjean, J. Kasparian,* J. Yu, E. Salmon, S. Frey, and J.-P. Wolf
*Teramobile, LASIM, UMR CNRS 5579, Université Claude Bernard Lyon 1, 43 bd du 11 Novembre 1918,
 F-69622 Villeurbanne Cedex, France*

S. Skupin,† A. Vinçotte, R. Nuter, S. Champeaux, and L. Bergé
Département de Physique Théorique et Appliquée, CEA/DAM Ile de France, B.P. 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France
 (Received 11 April 2005; revised manuscript received 15 June 2005; published 19 August 2005)

The influence of atmospheric aerosols on the filamentation patterns created by TW laser beams over 10 m propagation scales is investigated, both experimentally and numerically. From the experimental point of view, it is shown that dense fogs dissipate quasi-linearly the energy in the beam envelope and diminish the number of filaments in proportion. This number is strongly dependent on the power content of the beam. The power per filament is evaluated to about 5 critical powers for self-focusing in air. From the theoretical point of view, numerical computations confirm that a dense fog composed of micrometric droplets acts like a linear dissipator of the wave envelope. Beams subject to linear damping or to collisions with randomly-distributed opaque droplets are compared.

DOI: [10.1103/PhysRevE.72.026611](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.72.026611)

PACS number(s): 42.68.Ay, 42.68.Ge

I. INTRODUCTION

High-power, ultrashort (femtosecond) laser pulses can propagate in air within a self-guided mode. This regime is often referred to as “filamentation” [1]. It requires that the beam power exceeds a critical power $P_{cr}=3.7\lambda_0^2/8\pi n_2$, where n_2 denotes the nonlinear Kerr index coefficient of dioxygen molecules and λ_0 the central laser wavelength ($P_{cr} \approx 3$ GW at $\lambda_0=800$ nm with $n_2 \sim 3 \times 10^{-19}$ cm²/W). This condition allows Kerr-lens self-focusing to overcome diffraction. For beam powers widely above P_{cr} , several filaments with about 150 μ m in diameter, forming localized structures inside the transverse beam pattern, are nucleated and can propagate over distances much longer than the Rayleigh length, from several hundreds of meters [2] up to the kilometer range [3,4]. Their very high, quasiconstant intensity lying in the order of 10¹⁴ W/cm² [5,6] allows efficient self-phase modulation and generation of a broadband white-light continuum spanning from the ultraviolet [7] to the mid-infrared [8]. Ionization of air molecules [2,9–12] in the vicinity of the filaments crucially contributes to their self-guiding, as the resulting electron plasma defocuses the pulse and keeps up a dynamic balance with the Kerr focusing response of the medium.

The main properties of the filaments (white-light generation, air conductivity, and high intensities at remote distances) open exciting ways for atmospheric applications [13]. The broad white-light continuum allows to extend the Lidar (light detection and ranging) technique with nonlinear and multispectral measurements [3,14–16]. The continuously ionized plasma channels generated in the filaments are also

suitable for high-voltage discharge switching and guiding, opening the perspective for laser lightning control [17–20]. Finally, the ability of filaments to deliver high intensities at long distances permits remote elemental analysis by laser-induced breakdown spectroscopy techniques [21].

The above open-field applications stimulate the need for a better knowledge of the filament propagation in perturbed atmospheres, such as adverse weather, and especially through clouds and rain. Recent results on laboratory scales, both experimental [22] and theoretical [23,24], have shown that single filaments can survive their interaction with obscuring droplets of diameters up to ~ 100 μ m, comparable with the filament size. They have also shown that the filamentation of a GW beam can survive the transmission through a cloud with an optical thickness as high as 3, corresponding to 5% transmission. Filament robustness is due to the refocusing of some beam components that are kept untouched after the collision and whose power remains above critical. These components again self-focus onto the beam axis and replenish the filament within a few cm. In connection with this aspect, the role of elastic losses inside the overall beam envelope (i.e., the whole focal spot playing the role of an “energy reservoir” or “photon bath” for the enclosed filaments) is crucial for maintaining the filamentary dynamics over longer distances. In Refs. [25,26], high-power beams were shown to freely propagate through long-range clusters of filaments (so-called “optical pillars”) created from the initial fluctuations of the beam. Such clusters are capable of covering several tens of meters, while their constituent filaments appear and disappear recurrently over ~ 1 m by exchanging energy with the surrounding photon bath, in agreement with the scenario proposed in Ref. [27]. In the presence of water droplets, the survival of multiple filaments has been observed qualitatively. The propagation through 5 m of a water cloud with 0.3 droplets/cm³ having a mean diameter of 0.5 mm reduces only slightly the efficiency of a ~ 1.5 TW beam to trigger and guide high-voltage discharges [20]. However, neither systematic experimental data nor numerical simula-

*Electronic address: jkaspari@lasim.univ-lyon1.fr

†Also at: Institute for Condensed Matter Theory and Solid State Optics, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Max-Wien-Platz 1, 07743 Jena, Germany

tions are available to date concerning the multifilamentation of TW-class beams propagating in clouds or rain over propagation scales relevant for atmospheric applications.

In this work, we investigate for the first time the influence of a 10 m long fog on multifilamenting TW beams that propagate upon 50 m. Section II presents the experimental setup and main observations. Section III is devoted to numerical computations performed in this field.

II. EXPERIMENTAL RESULTS

A. Experimental setup

The experiments were conducted with the mobile femtosecond-Terawatt “*Teramobile*” laser system [28], allowing for outdoor experiments under any weather condition. The *Teramobile* produces 220 mJ pulses at 10 Hz repetition rate, centered at 800 nm. The beam is emitted in collimated geometry, with an initial diameter of 3 cm. The minimum pulse duration is 80 fs, although a chirp enlarging it up to 1 ps can be applied, in order to precompensate for group velocity dispersion (GVD) in air. In that case, the pulses are refocused temporally after a given propagation distance [29,30].

The *Teramobile* beam was propagated horizontally at the sea level (Lyon, 170 m altitude). After 40 m of free propagation, it hit a synthetic fog of water droplets produced in an open cloud chamber, already depicted in Ref. [16]. The initial laser chirp was adjusted, so that filamentation began shortly before the beam enters the cloud. This corresponds to an initial pulse duration of 600 fs. Then, the filaments propagated over 10 meters through a quasihomogeneous cloud. The cloud density was estimated by measuring the elastic transmission of a low-power He:Ne laser. Its droplet size distribution was centered at 1 μm radius (i.e., much smaller than the filament size), as monitored by using an optical sizer (Grimm model G 1-108).

Propagation in cloudy atmosphere was characterized by recording beam profiles. These were acquired by taking photographs of the beam imaged on a screen, using a digital camera. The exposure time of 1/8 s was chosen to assure that each picture corresponds to a single-shot picture. Images have been taken both over the whole spectrum, with high sensitivity to the white-light continuum and to the conical emission, and in the infrared (fundamental) region of the spectrum, yielding a good approximation of the beam profile at the considered distance, as demonstrated in Refs. [25,26].

B. Results and discussion

In a first series of experiments, we analyzed the beam pattern at the exit of the cloud chamber for high droplet densities (not shown here). The minimal input power required for observing transmission of light by one filament at the chamber exit was about 28 GW, i.e., close to $9P_{\text{cr}}$. At higher powers, filaments were clearly transmitted through the cloud and the transmitted beam energy lied above 25 mJ (power ~ 45 GW). For a cloud length of 10 m crossed by pulses with 220 mJ incident energy, this corresponds to 12% transmission, i.e., a dense fog with an extinction coefficient

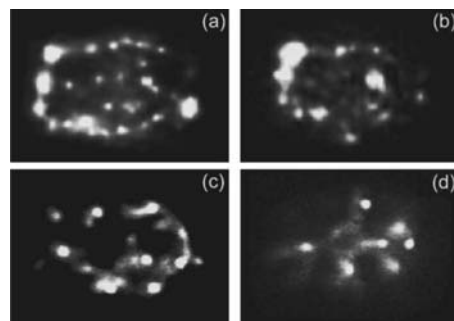


FIG. 1. Beam profiles at the exit of the 10 m long cloud chamber, in the case of both free propagation [(a) and (c)] at the respective powers of $123P_{\text{cr}}$ (220 mJ, 600 fs) and $51P_{\text{cr}}$ (~ 90 mJ, 600 fs), and propagation through 10 m of a dense fog [(b) and (d)] with the same powers. Subplot dimensions are about 5×3.5 cm².

of $\epsilon \approx 0.21$ m⁻¹. Thus, filamentation can survive the propagation in a fog over a distance comparable with the fog visibility. In the cloud, the droplet density is $N = 6.7 \times 10^4$ cm⁻³, so that the photon mean free path (MFP) is about 5 m. Here, MFP is the average longitudinal length L_M , along which an optical object of radius r will collide a droplet of radius R , $L_M = 1 / \pi(r+R)^2 N$. For an optical ray, we have $r \rightarrow 0$, so that $L_M = 5$ m guarantees a weak interaction of photons with droplets. In contrast, a femtosecond filament with radius $r \sim 100$ μm has a MFP of only ~ 0.5 mm, so that one individual filament hits about 2000 particles per meter of propagation. This may possibly induce substantial damage on the filamentary structure. However, the droplet radius (1 μm) is typically 100 times smaller than the filament size. Since much larger droplets are not sufficient to block the filaments [22–24], these may not be destroyed by the cloud used in our experiment, as long as droplets have a small enough mean size. With that condition, the cloud influence can be expected to occur mainly through the energy losses escaping from the overall beam envelope.

We investigated this effect with a second series of experiments by recording beam profiles at the exit of the cloud chamber for two incident laser energies, both in the free propagation regime and with the synthetic cloud with 50% transmission. This higher transmission corresponds to an extinction coefficient of $\epsilon = 0.07$ m⁻¹, i.e., to a droplet density of 2.2×10^4 cm⁻³ and a photon MFP of 14 m. As shown in Fig. 1, the transmitted beam energy strongly influences the spatial distribution of filaments, and especially their number. The filamentation patterns for close transmitted energies (90 mJ [Fig. 1(c)], and 220 mJ with 50% attenuation, i.e., 110 mJ transmitted energy [Fig. 1(b)]) indeed look similar, with most of the filaments located on a ring at the edge of the beam profile, and several of them arising inside this ring. Only a few filamentary sites have disappeared along the optical path through the fog [see Figs. 1(a)–1(d)]. The number of filaments decreases accordingly with the power left at the output of the cloud chamber. This shows that the cloud globally acts like a power attenuator on the beam as a whole. It promotes elastic extinction of the “photon bath” and its embedded filaments.

To confirm this finding, we investigated the dependency of the transmitted power on the number of filaments. It is

TABLE I. Average filament number vs input beam power after 50 m of propagation, thereof 10 m in free or foggy atmospheres.

P_{in}/P_{cr}	123		51	
Propagation	Free	Fog	Free	Fog
Filament No.	24	13	11	6

generally known that beams highly exceeding the critical power for self-focusing break up into many self-focusing cells, each containing several critical powers. Typically, the modulational instability theory predicts that about $3P_{cr}$ is engaged in each cell [31], which holds as long as a single filament experiences the surrounding background field as a uniform plane wave. For each experimental condition of Fig. 1, the filament number has been averaged over four to seven recorded profiles. Results have been summarized in Table I. Assuming weak absorption caused by plasma generation [27], the beam power transmitted over 50 m of free propagation is almost constant, whereas that crossing the cloud chamber upon the same propagation distance can be estimated by $P_{tr} \approx P_{in}/2$. A linear fit shows in Fig. 2 a ratio of one filament cell for every 15 GW of transmitted power with $P_{cr} \approx 3$ GW. This curve clearly indicates that about five critical powers are engaged in each filament, regardless of whether the beam propagates through a cloud or not. This estimate is in reasonably good agreement with previous expectations. It lies between the theoretical evaluations applying to purely Kerr media ($P_{fil} \sim 3P_{cr}$) [31] and recent (3+1)-dimensional simulations of femtosecond filaments self-channeling in air ($P_{fil} \sim 7P_{cr}$) [24].

Furthermore, besides energy losses, the cloud may reduce the peak power by increasing the pulse duration, because of multiple scattering. We estimated this effect by means of ray-tracing techniques and Monte Carlo simulations. Multiple scattering induced by $1 \mu\text{m}$ large droplets results in random trajectories, modeled as successive segments, whose length is the photon MFP deflected by a small angle with respect to the beam propagation axis. Differences in the trajectory lengths of rays remaining near axis at the exit of the cloud chamber yield a direct information on the modal (temporal) dispersion produced by the droplets. The rays scattered out of the beam axis are considered as lost and are discarded by the calculation. With a cloud transmission of 50%, the pulse stretching is around 100 fs, negligible for the 600 fs pulse used in the present experiment. However, at the

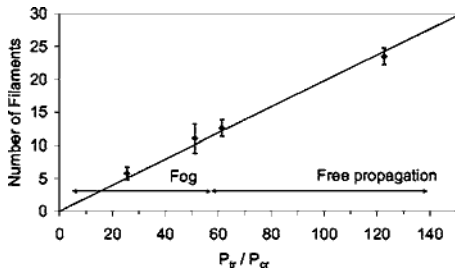


FIG. 2. Dependence of the transmitted power (P_{tr}) on the filament number for free or humid propagation [$P_{cr} \approx 3$ GW].

filamentation threshold (12% transmission), the broadening is in the order of 500 fs, thus doubling the effective pulse duration. The effect would be even stronger in the case of shorter incident pulses. This semiquantitative argument indicates that the cloud affects the filamentation by reducing the laser power together with the beam energy.

III. NUMERICAL ANALYSIS

The extinction of filaments through a dense cloud is now numerically investigated. Our physical model, which captures the essential features of long-distance propagation in air, has been described in Refs. [25,26]. Originally derived in (3+1) dimensions, it consists of an extended nonlinear Schrödinger equation for the laser electric field envelope \mathcal{E} , coupled with a Drude model describing the growth of free electron density. These equations apply to pulses moving in their group-velocity frame, and characterized by a beam waist w_0 , half-width duration t_p and central wave number $k_0 = 2\pi/\lambda_0$. They include effects of transverse diffraction, self-focusing, stimulated Raman scattering, plasma gain and losses that are mainly induced by multiphoton ionization (MPI) of dioxygen molecules.

Because experiments involve broad beams with cm waists, direct simulations in (3+1)-dimensional geometry are costly in computation time and require Terabyte storage systems when propagating the entire pulse over several tens of meters. Moreover, simulating collisions with micrometric droplets become even impossible to deal with, since the requested spatial resolution should typically access the tenth of micron for a numerical box close to $6 \times 6 \text{ cm}^2$. Therefore, the present issue will be addressed in the framework of a reduced (2+1)-dimensional model, which freezes the temporal dependencies of \mathcal{E} . After substituting the *ansatz* $\mathcal{E}(x, y, z, t) = \psi(x, y, z) \times e^{-[t-t_c(z)]^2/T^2}$ whose temporal extent, $T \approx t_p/10$, is assumed constant in the filamentation regime, the model equations are averaged in time following the analytical procedure described in Ref. [25], in order to establish the equation for the spatial envelope ψ as

$$\frac{\partial \psi}{\partial z} = \frac{i}{2k_0} \nabla_{\perp}^2 \psi + i\alpha k_0 n_2 |\psi|^2 \psi - ik_0 \frac{n_4}{\sqrt{3}} |\psi|^4 \psi - i\gamma |\psi|^{2K} \psi - \frac{\beta^{(K)}}{2\sqrt{K}} |\psi|^{2K-2} \psi - \frac{\epsilon}{2} \psi, \quad (1)$$

with $\alpha = 1/\sqrt{8} + D/4\tau_K$, $\gamma = k_0 \sigma_K \rho_{nt} \sqrt{\pi/8KT}/2\rho_c$ and

$$D \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} e^{(T^2/8\tau_K^2) - (u/\tau_K) - (2u^2/T^2)} \left[\text{erf} \left(\frac{\sqrt{2}u}{T} - \frac{T}{\sqrt{8}\tau_K} \right) + 1 \right] du. \quad (2)$$

The function D depends on the relaxation time ($\tau_K = 70$ fs) of the Raman-delayed Kerr response and it takes the value of 44 fs (resulting $\alpha = 0.51$) for a temporal duration of $t_p \approx 510$ fs [full width at half-maximum (FWHM) = 600 fs]. The other coefficients of Eq. (1) involve parameters appropriate to air, namely, the neutral density of dioxygen molecules $\rho_{nt} = 5.4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, the critical plasma density at

800 nm, $\rho_c \approx 1.8 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$, the multiphoton absorption (MPA) coefficient $\beta^{(K)} \approx 3.1 \times 10^{-98} \text{ cm}^{2K-3} / \text{W}^{K-1}$, the MPI rate $\sigma_K = 2.9 \times 10^{-99} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{2K} / \text{W}^K$ and number of photons $K=8$. For completeness, quintic susceptibility has been introduced with weak coefficient $n_4 = 2.5 \times 10^{-33} \text{ cm}^4 / \text{W}^2$, which was justified by recent studies [32,33]. The damping term with coefficient ϵ (in m^{-1}) describes the linear extinction of power in a beam propagating through the cloud chamber. We recall that Eq. (1) restores quantitative features in the long-range evolution of TW filamentation patterns issued from realistic broad beams [25,26]. It is, however, constrained to the approximation limiting the temporal pulse profile to one narrow time slice ($T=0.1t_p$) and cannot account for, e.g., the variations of the nonlinear focus caused by the introduction of a temporally chirped phase [30].

A. Filament decay by linear damping and random collisions with obscurants

We examine the changes occurring in filamentation patterns caused either by a linear damping or by collisions with droplets randomly distributed in the (x, y) plane. Such collisions are currently modeled by means of the Mie theory [34] for light scattering by spheres. Since Mie scattering is almost independent of the optical properties of the scatterers, it is possible to model droplets by opaque screens of suitable size in the simulations. This property was exploited in Ref. [24], where droplets were numerically designed as a circular amplitude mask with radius R and maximum opacity (zero transmission) at their center (x_0, y_0) . This modeling provides good results for the interaction of one filament with a single droplet. For example, simulations proved that a single filament self-heals over only 2 cm of propagation with an energy loss limited to around 10%, which agrees with the experimental observations of Ref. [22]. This property, however, does not guarantee that many filaments can survive sharp interactions with thousands of small obscurants placed upon a long optical path.

To address this point, we first integrate Eq. (1) for a mm-waisted Gaussian beam ($w_0=2 \text{ mm}$) having a FWHM duration of 600 fs and ~ 110 critical powers perturbed by a 20% random noise. On the one hand, we let the beam propagate freely over 1 m, before it reaches a 10 m long zone in which linear dissipation becomes active with $\epsilon=0.07 \text{ m}^{-1}$. This value insures in principle an attenuation rate of 50% over 10 m. On the other hand, we impose $\epsilon=0$, but model the random collisions of the beam with the micrometric obstacles used in Ref. [24]. In this case, a random number of droplets located at random positions is computed at each z step. These positions are assumed to be uniformly distributed with respect to x and y . Hence, for each droplet we generate two random numbers between -0.5 and 0.5 and multiply them by L_x and L_y , that denote the sizes of the computation window. Since the number of droplets in one z step is small compared to their total number, a Poisson statistics may be used. We fix the expected average number of droplets at a z step, Δz , by $\lambda = \Delta z L_x L_y N$, where N is the droplet density. Then, the Poisson density function $\mathcal{P}(l) = \lambda^l / l! \times \exp(-\lambda)$ gives the probability to find exactly l droplets between z and

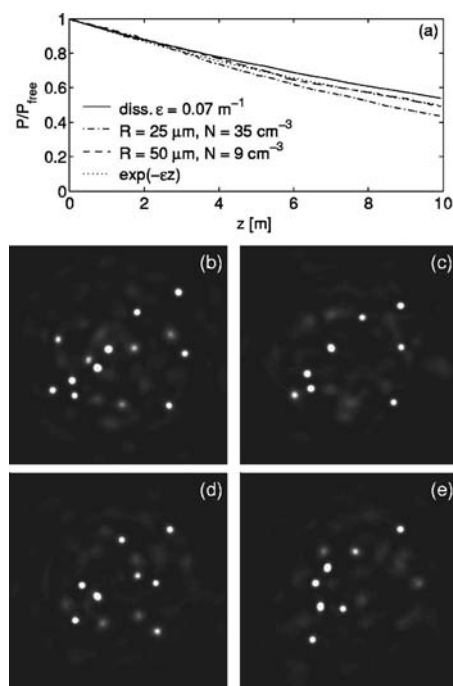


FIG. 3. (a) Numerically computed beam power scaled by the power of a freely propagating narrow beam ($w_0=2 \text{ mm}$) of $\sim 110P_{\text{cr}}$ through a 10 m long fog with linear damping ($\epsilon = 0.07 \text{ m}^{-1}$, solid curve), random distributions of $25 \mu\text{m}$ droplets (dashed-dotted curve), and of $50 \mu\text{m}$ droplets (dashed curve). The distance $z=0$ marks the entrance into the cloud chamber. (b)–(e) Filamentation patterns at 4 m inside the cloud chamber. Subplots correspond to (b) free propagation, (c) linear damping, random droplets with radii of (d) $25 \mu\text{m}$, and (e) $50 \mu\text{m}$, respectively. Subplot dimensions are $7 \times 7 \text{ mm}^2$. Intensity levels are twice higher than the initial intensity.

$z + \Delta z$. The number l is computed from the Poisson distribution function $\mathcal{F}_{\mathcal{P}}(l) = \sum_{l'=0}^l \mathcal{P}(l')$ by means of the standard probability theory. Following this procedure, the average droplet number λ is linked to the dissipation parameter ϵ , when we specify the average relative loss induced by a single droplet. Assuming that droplets do not overlap, the rate of losses caused by the obstacles along one z step can be evaluated by $\lambda \pi R^2 / L_x L_y$. Besides, the equivalent loss rate induced by the extinction coefficient ϵ is $\epsilon \Delta z$, since $\exp(-\epsilon \Delta z) \approx 1 - \epsilon \Delta z$. Identifying both contributions leads to $\epsilon = N \pi R^2$, which agrees with the experimental estimates for ϵ , N and R given in Sec. II.

Because computer limitations prevented us from resolving obstacles of 1 micron large, we adopted the density for larger droplets with different radius $R \geq 25 \mu\text{m}$ by means of the direct rescaling $N \rightarrow N/R^2 [\mu\text{m}]$, in order to keep the average losses constant. Results are illustrated in Fig. 3. Figure 3(a) shows the power decrease inside the cloud chamber, normalized with respect to the power of the freely propagating beam. All curves lie closely to each other, within a margin less than $\pm 5\%$ around the exponential decrease $e^{-\epsilon z}$ (note that the curve for linear damping also accounts for Kerr, MPI, and MPA nonlinearities and cannot exactly fit this exponential function). This property was retrieved when using different densities N and adapted values of ϵ . Here, the decrease of

power undergone by the 2 mm beam from random collisions with droplets of $25\ \mu\text{m}$ as well as $50\ \mu\text{m}$ radius almost superimposes with that induced by linear dissipation over 4 m. Beam profiles at this distance are detailed in Figs. 3(b)–3(e). After only 4 m of “humid” propagation, the filamentation patterns remain similar in linearly damped regime and in the presence of random droplets (~ 8 cells). Compared with the free propagation regime [Fig. 3(b)], the number of filaments has already decreased by a factor $\sim 3/2$ [Figs. 3(c)–3(e)]. Analogy in the power losses and filament number between droplets of different sizes follows from the fact that, even if small droplets embark half-energy of the big ones per collision event (see, e.g., Ref. [22]), their density is four times higher and cause equivalent damage on the filamentation patterns.

At further distances ($z \rightarrow 10$ m), the filaments decrease in number, but this number is preserved with linear dissipation and random droplets (not shown here). This confirms the good agreement between the power losses induced by random collisions with micrometric obscurants and those induced by linear damping. Note, however, that the power lost from random droplets can reach $\sim 55\%$ at large distance. Although small, these discrepancies are related to the finiteness of the numerical box, from which escaping field components increases the losses. This tendency is amplified by the opacity of the droplets, which favors large-angle diffraction to the boundaries.

In summary, droplet-induced losses are identical at constant product $N \times R^2$, i.e., they are similar for droplets with different radii, provided that the density N is tuned accordingly. They follow an exponential-like decrease comparable with the energy fall produced by a linear damping. These findings confirm the equivalence between collisions of an optical beam with randomly distributed droplets and exponential attenuation of its power.

B. Linear damping vs filamentation patterns

Because linear damping and droplet collisions induce analogous power losses, we investigate the consequences of a linear damping on broad beams inside a 10 m dense fog after a 40 m long stage of free propagation, in conditions close to the experimental setup. We enlarge the beam waist to the value $w_0 = 1$ cm, applied to a digitized file of the experimental input beam fluence. This value is willingly chosen smaller than the experimental beam waist, in order to compensate for the limitations of Eq. (1) recalled above. This model cannot indeed account for the temporal compression induced by pulse chirping (see Sec. II) and it artificially decreases the effective ratio of power over critical when imposing $T = 0.1t_p$ (see Ref. [30]). The need to make a fully bloomed filamentation pattern emerge before the cloud chamber ($z < 40$ m) implies us to select a Rayleigh length smaller than the experimental one, which justifies the choice of $w_0 = 1$ cm. Figure 4 shows the filamentary patterns outgoing from the fog tube at $z = 50$ m, after crossing the 10 m long water cloud with 50% transmission. These patterns are in qualitatively good agreement with their experimental counterparts shown in Fig. 1. In the absence of fog, the trans-

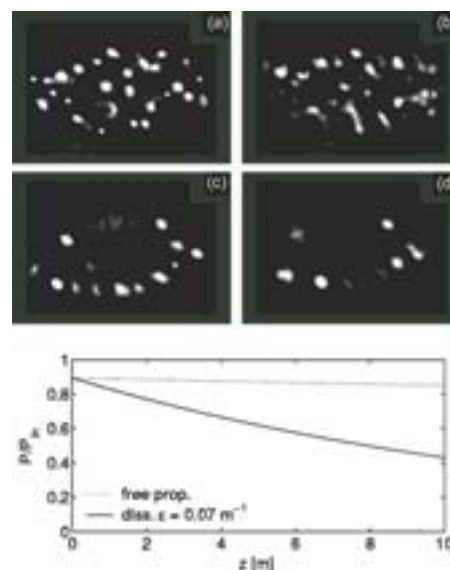


FIG. 4. Numerically computed beam profiles at the exit of the cloud chamber ($z = 50$ m), in the case of both free propagation [(a) and (c)] at the respective powers of $123P_{\text{cr}}$ and $51P_{\text{cr}}$ and propagation through 10 m of a dense fog [(b) and (d)] with the same powers. Window scales are $2.3 \times 1.6\ \text{cm}^2$. Intensity levels correspond to twice the initial intensity. Bottom inset compares the power losses normalized to P_{in} between free propagation and linearly damped regimes for $P_{\text{in}} \approx 123P_{\text{cr}}$. $z = 0$ marks the entrance of the cloud chamber.

verse profile of the beam still contains about 25 filaments [Fig. 4(a)]. This number is almost halved when the beam undergoes linear damping [Fig. 4(b)]. The resulting number of filaments (12–15) is of the same order as that obtained over a 50 m long free propagation range, when the beam only involves an initial power divided by a factor ~ 2 [Fig. 4(c)]. The same beam with 51 critical powers undergoes a drastic reduction of filaments when it propagates through the 10 m tube with a 50% linear damping [Fig. 4(d)]. The bottom inset of this figure demonstrates that MPA losses remain weak over 50 m compared with linear damping, which supports the approximation on the transmitted power $P_{\text{tr}} \approx P_{\text{in}}/2$ made in Sec. II. The counted filaments then correspond to the bright spots visible in Fig. 4. Their number, summarized in Table II, is in very good quantitative agreement with the data mentioned in Table I. Differences in the exact number and location of the filaments compared with the experimental profiles are attributed to the smaller beam waist and to fluctuations of secondary importance (local diffusion, atmospheric turbulence, see Ref. [26]), which we ignore.

TABLE II. Filament number vs input beam power provided by numerical computations. The additional datum with 62 critical powers concerns filaments counted from the same beam in free propagation regime (not shown in Fig. 4).

$P_{\text{in}}/P_{\text{cr}}$	123		62		51	
Propagation	Free	Fog	Free	Free	Free	Fog
Filament No.	25	12–15	13	12	12	6

These last results are instructive: They validate the experimental estimate of about 5 critical powers per filament. In free propagation regime, they also highlight the strong correlation between the number of critical powers in the starting beam and the number of filaments formed along the course of the pulse. They finally confirm again that the effect of a dense cloud enclosing sufficiently small droplets (compared with the filament size) is equivalent to a linear dissipation source acting on the energy reservoir formed by the beam envelope and its filaments.

IV. CONCLUSION

In summary, we have studied both experimentally and numerically the propagation of ultrashort laser pulses with powers much above critical in multifilamentation regimes through dense fogs. We showed that filament transmission through clouds is not restricted to the laboratory scale [22], but also occurs when multiple filaments take place over a distance comparable with the visibility length of the fog.

From the theoretical point of view, we examined differences in the transmitted light, when the model equations account for either linear damping or a stochastic hitting of the beam by micrometric obstacles. Because of computer limitations, we could not access the interaction of femtosecond pulses with $1\ \mu\text{m}$ large droplets. However, our simulations revealed that randomly distributed opaque droplets with ra-

dius $\geq 25\ \mu\text{m}$ induce comparable energy losses, with an exponential fall. The equivalence between linear damping and losses caused by micrometric droplets enabled us to numerically reproduce the experimental filamentation patterns and achieve a very good agreement on their number of filaments.

As a conclusion, the fact that clouds do not significantly affect the filamentation process (only the number of filaments is reduced quasilinearly by power extinction) is of high interest for applications, because it implies that the filament features such as white-light generation, ionization of air or the delivery of high intensities at long distances are not forbidden inside or beyond clouds, as long as their density permits to transmit several critical powers. Therefore, the corresponding applications, respectively, multicomponent Lidar, lightning control or remote laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS or RFIBS [20]) are still feasible within cloudy atmospheres.

ACKNOWLEDGMENTS

This work has been carried out within the framework of the Teramobile project, funded jointly by the CNRS, DFG, and French and German Ministries of Foreign Affairs. The Teramobile website is www.teramobile.org. Numerical simulations were performed on the COMPAQ alpha cluster (TERA) of CEA-France and on the IBM p690 cluster (JUMP) of the Forschungs-Zentrum in Jülich-Germany.

-
- [1] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou, *Opt. Lett.* **20**, 73 (1995).
 - [2] B. La Fontaine, F. Vidal, Z. Jiang, C. Y. Chien, D. Comtois, A. Desparois, T. W. Johnston, J.-C. Kieffer, H. Pépin, and H. P. Mercure, *Phys. Plasmas* **6**, 1615 (1999).
 - [3] 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, and J.-P. Wolf, *Phys. Rev. E* **69**, 036607 (2004).
 - [4] G. Méchain, A. Couairon, Y.-B. André, C. D'amico, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, and R. Sauerbrey, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **B79**, 379 (2004).
 - [5] J. Kasparian, R. Sauerbrey, and S. L. Chin, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **B71**, 877 (2000).
 - [6] A. Becker, N. Aközbeke, K. Vijayalakshmi, E. Oral, C. M. Bowden, and S. L. Chin, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **B73**, 287 (2001).
 - [7] N. Aközbeke, A. Iwasaki, A. Becker, M. Scalora, S. L. Chin, and C. M. Bowden, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 143901 (2002).
 - [8] 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, and L. Wöste, *Opt. Lett.* **25**, 1397 (2000).
 - [9] H. Schillinger and R. Sauerbrey, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **B68**, 753 (1999).
 - [10] S. Tzortzakis, B. Prade, M. Franco, and A. Mysyrowicz, *Opt. Commun.* **181**, 123 (2000).
 - [11] A. Talebpour, A. Abdel-Fattah, and S. L. Chin, *Opt. Commun.* **183**, 479 (2000).
 - [12] A. Talebpour, J. Yang, and S. L. Chin, *Opt. Commun.* **163**, 29 (1999).
 - [13] J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf, and L. Wöste, *Science* **301**, 61 (2003).
 - [14] P. Rairoux, H. Schillinger, S. Niedermeier, M. Rodriguez, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, B. Stein, D. Waite, C. Wedekind, H. Wille, and L. Wöste, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **B71**, 573 (2000).
 - [15] 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, and A. P. Hatzes, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **B77**, 357 (2003).
 - [16] G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, and J.-P. Wolf, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **B78**, 535 (2004).
 - [17] B. La Fontaine, D. Comtois, C. Y. Chien, A. Desparois, F. Gérin, G. Jarry, T. W. Johnston, J.-C. Kieffer, F. Martin, R. Mawassi, H. Pépin, F. A. M. Rizk, F. Vidal, C. Potvin, P. Couture, and H. P. Mercure, *J. Appl. Phys.* **88**, 610 (2000).
 - [18] B. La Fontaine, F. Vidal, D. Comtois, C. Y. Chien, A. Desparois, T. W. Johnston, J.-C. Kieffer, H. P. Mercure, H. Pépin, and F. A. M. Rizk, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **27**, 688 (1999).
 - [19] 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, and J.-P. Wolf, *Opt. Lett.* **27**, 772 (2002).
 - [20] R. Ackermann, K. Stelmaszczyk, P. Rohwetter, G. Méjean, E.

- Salmon, J. Yu, J. Kasparian, G. Méchain, V. Bergmann, S. Schaper, B. Weise, T. Kumm, K. Rethmeier, W. Kalkner, J.-P. Wolf, and L. Wöste, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 5781 (2004).
- [21] K. Stelmaszczyk, P. Rohwetter, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, J. Kasparian, R. Ackermann, J.-P. Wolf, and L. Wöste, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 3977 (2004).
- [22] F. Courvoisier, V. Boutou, J. Kasparian, E. Salmon, G. Méjean, J. Yu, and J.-P. Wolf, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 213 (2003).
- [23] M. Kolesik and J. V. Moloney, *Opt. Lett.* **29**, 590 (2004).
- [24] S. Skupin, L. Bergé, U. Peschel, and F. Lederer, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 023901 (2004).
- [25] L. Bergé, S. Skupin, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J.-P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou, and R. Sauerbrey, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 225002 (2004).
- [26] 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, and R. Sauerbrey, *Phys. Rev. E* **70**, 046602 (2004).
- [27] M. Mlejnek, M. Kolesik, J. V. Moloney, and E. M. Wright, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2938 (1999).
- [28] H. Wille, M. Rodriguez, J. Kasparian, D. Mondelain, J. Yu, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf, and L. Wöste, *Eur. Phys. J.: Appl. Phys.* **20**, 183 (2002).
- [29] J. Kasparian and J.-P. Wolf, *Opt. Commun.* **152**, 355 (1998).
- [30] R. Nuter, S. Skupin, and L. Bergé, *Opt. Lett.* **30**, 917 (2005).
- [31] L. Bergé, Cl. Gouédard, J. Schjødt-Eriksen, and H. Ward, *Physica D* **176**, 181 (2003), and references therein.
- [32] A. Vinçotte and L. Bergé, *Phys. Rev. A* **70**, 061802(R) (2004).
- [33] L. Bergé, S. Skupin, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, and J.-P. Wolf, *Phys. Rev. E* **71**, 016602 (2005).
- [34] G. Mie, *Ann. Phys.* **25**, 337 (1908).

Femtosecond Optical Vortices in Air

Antoine Vinçotte and Luc Bergé

Département de Physique Théorique et Appliquée, CEA/DAM Ile de France, B.P. 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France
(Received 20 June 2005; published 31 October 2005)

We examine the robustness of ultrashort optical vortices propagating freely in the atmosphere. We first approximate the stability regions of femtosecond spinning pulses as a function of their topological charge. Next, we numerically demonstrate that atmospheric optical vortices are capable of conveying high power levels in air over hundreds of meters before they break up into filaments.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.95.193901](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.193901)

PACS numbers: 42.65.Tg, 42.68.Ay, 52.38.Hb

For a decade, the long-range propagation of femtosecond (fs) laser pulses through air [1] has raised increasing interest because of promising applications in lightning discharge control and atmospheric remote sensing [2]. In the self-channeling process, an ultrashort pulse with peak power P_{in} , above the self-focusing threshold P_{cr} , self-contracts by Kerr effect until its intensity reaches the ionization threshold above which an electron plasma is generated by photo-ionization of air molecules. Plasma tightly defocuses the pulse and the dynamic balance between Kerr focusing and plasma defocusing produces narrow filaments, having $\sim 150 \mu\text{m}$ diameter and ~ 1 mJ energy. As isolated entity, a single filament only covers a few meters of propagation in air [3]. In contrast, due to their mutual interaction and energy exchanges, multiple filaments emerging inside powerful (TW) focal spots can maintain the beam envelope localized upon large distances, through the persistence of filamentary clusters initiated by the input beam defects [4].

Because multifilamentation alters the beam homogeneity, several techniques have recently been proposed to organize the fluence patterns, such as introducing astigmatism, amplitude masks, periodic meshes, or even micro-lenses set along the optical path [5]. Such techniques allowed to control beam configurations engaging low powers in air ($\leq 20P_{cr}$) up to 10 m propagation scales. They, however, do not guarantee to efficiently tame broad pulses decaying into hundreds of filaments at TW power levels and km distances [4,6]. For further developments in atmospheric optics, alternatives for preserving the beam shape over 100 m and beyond are thus welcome.

This alternative may be supplied by optical vortices. Since the pioneering works by Kruglov *et al.* [7], optical vortices have been known as special waveforms exhibiting a dark hole at center and a phase with an integer number of windings, m , called the topological charge of the vortex. They have a doughnut shape distribution and a spiral dislocation of their wave front. From the experimental point of view, vortices are currently generated by use of appropriate phase masks and holographic techniques [8]. Although subject to the azimuthal modulational instability (AMI), they constitute robust structures, which can decay

into light cells after covering many diffraction lengths. One reason for their remarkable stability is that spinning beams provide strong attractors of soliton type. As a result, in a medium supporting a cubic-quintic nonlinearity with mixed signs, singly charged ($m = 1$) vortices are linearly stable and may never break up, provided that their associated soliton frequency is high enough [9] (see also Ref. [10] for a review). For the purpose of fs pulses in air, a first investigation [11] discarding time dependencies proposed to use $m = 1$ vortices, in regimes for which plasma saturation competes with the Kerr response of air. Such configurations, nonetheless, rapidly degenerate into filaments. Apart from this preliminary work, the dynamics of pulsed vortex beams self-channeling in the atmosphere has been unexplored so far.

Here, we display evidence of the exceptional robustness of ultrashort optical vortices in air upon propagation ranges *preceding the ionization stage*. We first elaborate on a variational perturbation method approximating the AMI growth rates for cw beams in both saturated and nonsaturated focusing Kerr media. Next, we perform $(2 + 1)$ -dimensional simulations validating the previous theory. Finally, direct $(3 + 1)$ -dimensional simulations highlight the existence and stability of time-dependent femtosecond optical vortices in air: These objects are capable of conveying high powers quantified by the charge number m , without altering their radial distribution up to hundreds of meters along the propagation axis.

We consider the standard propagation equations [4] governing the electric field envelope $\mathcal{E}(x, y, z, t)$ of fs laser pulses in air and the free electron density $\rho(x, y, z, t)$:

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} = \frac{i}{2k_0} \nabla_{\perp}^2 \mathcal{E} + ik_0(n_2 \mathcal{R}(t) - n_4 |\mathcal{E}|^4) \mathcal{E} - i \frac{k''}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{E} - \left(\frac{ik_0}{2\rho_c} + \frac{\sigma}{2} \right) \rho \mathcal{E} - \frac{\beta^{(K)}}{2} |\mathcal{E}|^{2K-2} \mathcal{E}, \quad (1)$$

$$\mathcal{R}(t) = \frac{1}{2} \left(|\mathcal{E}|^2 + \tau_K^{-1} \int_{-\infty}^t e^{-(t-t')/\tau_K} |\mathcal{E}(t')|^2 dt' \right), \quad (2)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \sigma_K \rho_{nt} |\mathcal{E}|^{2K} + (\sigma/U_i) \rho |\mathcal{E}|^2. \quad (3)$$

Light pulses are characterized by a beam waist w_0 , half-width duration t_p , and central wave number $k_0 = 2\pi/\lambda_0 = \omega_0/c$ at the laser wavelength $\lambda_0 = 800$ nm. In Eq. (1), $\nabla_{\perp}^2 \equiv \partial_x^2 + \partial_y^2$ and the Kerr response of air $n_2 \mathcal{R}(t)$ involves a delayed (Raman) contribution where $n_2 = 4 \times 10^{-19}$ cm²/W ($P_{\text{cr}} \simeq 2.5$ GW) and $\tau_K = 70$ fs. Justified by recent studies [12], a quintic saturation with weak coefficient $n_4 = 2.5 \times 10^{-33}$ cm⁴/W² has been introduced, which does not prevent plasma generation. Related to the ionization process, $\rho_c \simeq 1.8 \times 10^{21}$ cm⁻³ is the critical plasma density. Plasma defocusing is essentially driven by multiphoton ionization (MPI) of dioxygen molecules with gap potential $U_i = 12.1$ eV and neutral density $\rho_{\text{nt}} = 5.4 \times 10^{18}$ cm⁻³. It involves the MPI rate $\sigma_K = 2.9 \times 10^{-99}$ s⁻¹ cm^{2K}/W^K and number of photons $K = 8$, and induces multiphoton absorption (MPA) with coefficient $\beta^{(K)} \simeq 3.1 \times 10^{-98}$ cm^{2K-3}/W^{K-1}. Eqs. (1) and (3) also include avalanche ionization ($\sigma = 5.4 \times 10^{-20}$ cm⁻²) and group-velocity dispersion (GVD) with $k'' = 0.2$ fs²/cm.

Stable spinning solitons are already known to exist in $(3 + 1)$ -dimensional geometry, whenever GVD is anomalous ($k'' < 0$) and nonlinearities are noninertial [13]. In that case, stationary vortices exhibit a torus shape in the (x, y, t) space. The purpose is different here, since GVD is normal ($k'' > 0$), which counteracts the formation of localized stationary ground states. To overcome this limitation, we shall henceforth consider an input pulse with large enough duration, $t_p = 250$ fs, in order to reject the dispersion length $\sim t_p^2/k''$ to kilometer distances. With large t_p , the temporal pulse profile may not undergo a significant broadening, which could decrease the vortex power early and provoke a premature beam spreading. This condition justifies the omission of space-time focusing and self-steepening in Eqs. (1)–(3), since $\omega_0 t_p \gg 1$.

Before proceeding with $(3 + 1)$ -dimensional numerical simulations, we first study vortex dynamics in the framework of a reduced $(2 + 1)$ -dimensional model, successfully used in Ref. [6] to describe the multifilamentation of broad, TW beams for weak avalanche ionization, $\sigma \rightarrow 0$. Using the ansatz $\mathcal{E}(x, y, z, t) = \psi(x, y, z) \times e^{-[t-t_c(z)]^2/T^2}$ where $T \simeq t_p/10$ in plasma regime, we average in time Eqs. (1)–(3) following the procedure of Ref. [6] and get rid of the GVD term by a trivial phase shift. This method amounts to freezing the pulse in time, which provides a cw version of the original model equations. The spatial envelope ψ is then described in dimensionless form by the extended nonlinear Schrödinger (NLS) equation

$$i\partial_z \psi + \nabla_{\perp}^2 \psi + f(|\psi|^2)\psi + i\nu|\psi|^{2K-2}\psi = 0, \quad (4)$$

$$f(|\psi|^2) = \alpha|\psi|^2 - \epsilon|\psi|^4 - \gamma|\psi|^{2K}, \quad (5)$$

by means of the substitutions $z \rightarrow 4z_0z$, $t \rightarrow tt_p$, $(x, y) \rightarrow (x, y)w_0$, $\psi \rightarrow \sqrt{P_{\text{cr}}/4\pi w_0^2}\psi$, and $\rho \rightarrow (\rho_c/2z_0k_0)\rho$, where

$z_0 = \pi w_0^2/\lambda_0$ denotes the Rayleigh length for Gaussian beams. Here, only α and γ vary with t_p . For the duration $t_p = 250$ fs, the coefficients of Eq. (4) take the values $\alpha = 0.446$, $\epsilon = 7.3 \times 10^{-7}$ [cm²]/w₀², $\gamma = 8.4 \times 10^{-40}$ [cm^{2(K-1)}]/w₀^{2(K-1)}, and $\nu = 1.2 \times 10^{-35}$ [cm^{2(K-2)}]/w₀^{2(K-2)} with w_0 expressed in cm.

From Eqs. (4) and (5), we develop a perturbative analysis for vortex rings subject to AMI in the limit of weak MPA, $\nu \rightarrow 0$ [4]. On the one hand, as the beam is expected to quickly converge towards an exact vortex profile, spinning modes are approximated by means of trial functions in the form $\psi_m = A_m r^{|m|} \exp(-r^2/(2a_m^2) + im\theta + i\lambda z)$, where $r = \sqrt{x^2 + y^2}$, θ is the azimuthal angle and λ the vortex soliton parameter. The normalized amplitude A_m and waist a_m are determined by solving the variational problem $\delta(H_m + \lambda P_m) = 0$, where $P_m = 2\pi \int_0^{\infty} |\psi_m|^2 r dr$ and $H_m = 2\pi \int_0^{\infty} \{|\partial_r \psi_m|^2 + m^2 |\psi_m|^2 / r^2 - \int_0^{\psi_m^2} f(u) du\} r dr$ are the power and Hamiltonian of the vortex, respectively. For the cubic-quintic NLS equation ($\gamma = 0$), solving for A_m and a_m provides relatively good approximations of the genuine vortex modes [7,9]. On the other hand, we extend the perturbative procedure of Ref. [14] to ring-shaped solutions carrying a nonzero charge m : We consider perturbations acting along a ring of mean radius $\bar{r}_m = [\int r^2 |\psi_m|^2 d\tilde{r} / P_m]^{1/2}$. Assuming constant intensity and spatial uniformity for this ring, we rewrite the diffraction operator as $\nabla_{\perp}^2 = \partial_s^2$ with $s = \bar{r}_m \theta$ and search for the growth rate, $\text{Im}(\mu)$, of azimuthal perturbations entering the solution $\psi = (\psi_0 + \delta\psi_1 e^{i\mu z + iM\theta} + \delta\psi_2^* e^{-i\mu^* z - iM\theta}) \times e^{i\lambda z + im\theta}$. Elementary algebra yields

$$\text{Im}(\mu) = \frac{M}{\bar{r}_m} \left[2f'(|\psi_0|^2) |\psi_0|^2 - \frac{M^2}{\bar{r}_m^2} \right]^{1/2}, \quad (6)$$

where $f'(u) \equiv \partial_u f$ and M denotes the azimuthal index of the perturbation. All required information about the charge m of the input vortex lies in the dependencies of ψ_0 , taken as $\psi_0 = \psi_m(r = \bar{r}_m)$. Figure 1(a) illustrates this growth rate as a function of M in the academic case of a cubic-

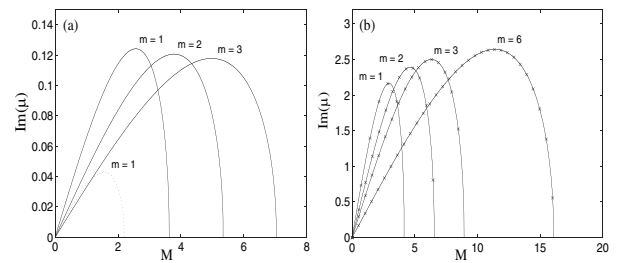


FIG. 1. AMI growth rates of 2D NLS vortices (a) in the cubic-quintic limit $\alpha = \epsilon = 1$ (solid curves: $\lambda = 0.1$; dotted curve: $\lambda = 0.14$ for $m = 1$); (b) in the cubic case $\lambda = 1$ for $\alpha = 0.446$, $\epsilon = 0$. Vortex charges m are indicated next to the curves. In (b), cross symbols mark the points calculated from Eqs. (4) and (5) with $\nu = 0$, $t_p = 250$ fs, and $w_0 = 3$ mm.

quintic nonlinearity $\alpha = \epsilon = 1$ ($\gamma = \nu = 0$). As only integer values of M are physically relevant, we observe that AMI takes place at a maximal azimuthal index $M_{\max} \approx 2|m|$ for the soliton parameter $\lambda = 0.1$. For singly charged vortices, the growth rate significantly diminishes as λ increases. Stability follows [$\text{Im}(\mu) = 0$] as soon as λ exceeds the critical point $\lambda_{\text{cr}} \approx 0.147$, from which $f'(|\psi_0|^2) < 0$. These preliminary results recover those inferred from numerical shooting techniques [9–11]. The present procedure, of course, suffers some approximation, but it yields—for the first time—a clear dependency of the optimal perturbation index M_{\max} over the vortex charge m . Figure 1(b) supplies similar information for the purely cubic NLS equation, in which $\alpha = 0.446$, $\epsilon = \gamma = 0$, and the soliton parameter λ can be set equal to unity without loss of generality. In this case, the AMI growth rate becomes larger, with maxima attained at $M_{\max} \approx 2|m| + 1$. In the same figure, cross symbols indicate the values of $\text{Im}(\mu)$ computed from the complete function Eq. (5) for the realistic waist $w_0 = 3$ mm and $t_p = 250$ fs. Because these parameters make quintic and MPI saturations very small, Eq. (4) is close to the purely cubic NLS equation, which explains why these data superimpose with the curves of Fig. 1(b).

To check these behaviors, we performed direct numerical integrations of Eqs. (4) and (5) from the pulse parameters corresponding to the cross symbols of Fig. 1(b). The results expressed in physical units are summarized in Fig. 2. For given m , the initial condition was chosen as the above Gaussian ansatz ψ_m perturbed by 10% amplitude random noise. The input beams possess a physical power close to $P_m \approx 2^{2|m|} P_{\text{cr}} |m|! (|m| + 1)! / [\alpha (2|m|)!]$, a mean radius $\bar{r}_m \approx (|m| + 1)w_0$, and intensity $A_m^2 = P_m / [\pi w_0^2 |m|! (|m| + 1)^{|m|+1}]$. They rapidly relax onto a vortex ground state, which keeps its shape over long distances (> 200 m). The singly charged vortex with $P_1 \approx 9P_{\text{cr}}$, attained in Fig. 2(a), propagates over several hundreds of meters, before undergoing 2–3 azimuthal modu-

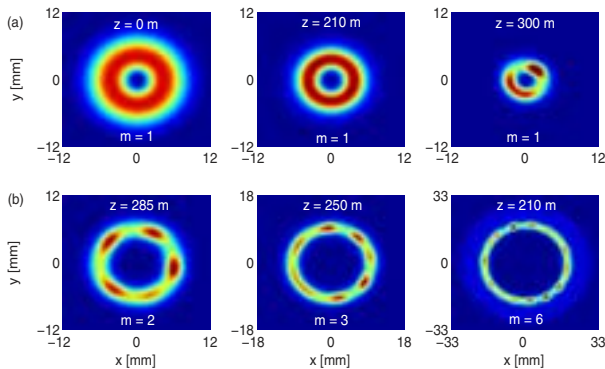


FIG. 2 (color online). Vortex profiles with $w_0 = 3$ mm and $t_p = 250$ fs ($\alpha = 0.446$) computed from Eqs. (4) and (5) for (a) $m = 1$, $P_{\text{in}} = 9P_{\text{cr}}$; (b) $m = 2$, $P_{\text{in}} = 17.9P_{\text{cr}}$; $m = 3$, $P_{\text{in}} = 28.7P_{\text{cr}}$, and $m = 6$, $P_{\text{in}} = 69.6P_{\text{cr}}$. Note the change of scales.

lations. With $|m| \geq 2$ [Fig. 2(b)], $(2|m| + 1)$ modulations break the vortex ring. The number of modulations issued from AMI is thus in excellent agreement with the predictions of Fig. 1(b). Note that the filamentation stage occurs earlier as the value of m is augmented.

From now on we analyze $(3 + 1)$ -dimensional situations, where the former vortices exhibit a temporal distribution. For further comparison, Fig. 3(a) illustrates the fluence ($\mathcal{F} \equiv \int_{-\infty}^{+\infty} |\mathcal{E}|^2 dt$) of pulses computed numerically from Eqs. (1)–(3) with the super-Gaussian input $\mathcal{E}_0 = A_{\text{in}} e^{-r^3/w_0^3 - t^2/t_p^2}$ perturbed by a 10% random noise and having the averaged power $P_{\text{in}} \approx 70P_{\text{cr}}$. Such pulses are currently employed in meter-range propagation experiments [1]. Here, they develop a ringlike diffraction pattern which becomes unstable with 7 modulations after 2.5 m of propagation only. Another example in Fig. 3(b) shows the fluence pattern of an optical doughnut with input profile $\mathcal{E}_0 = A_{\text{in}}(r/w_0)e^{-r^2/w_0^2 - t^2/t_p^2 + i\theta}$ and same power $P_{\text{in}} \approx 70P_{\text{cr}}$, which does not belong to the class of vortex solitons. This beam, although more robust, cannot avoid AMI that induces ~ 12 modulations focusing into a similar number of filaments over a few meters.

Let us now examine genuine vortex solitons. To create them, we plug into Eqs. (1) and (3) initial conditions in the form $\mathcal{E}(z = 0) = A_m(r/w_0)^{|m|} \exp[-r^2/(2\bar{r}_m^2) - t^2/t_p^2 + im\theta]$, which we again perturb by a 10% random noise. The amplitude A_m and radius \bar{r}_m are computed from the above variational method. Such beam configurations should thus converge to a radial (2D) vortex profile and are henceforth called *femtosecond optical vortices* (FOVs). Results from numerical simulations are presented in Fig. 4. Whereas singly humped or arbitrary ringlike distributions decay into filaments at moderate distances < 10 m [Fig. 3], remarkably, FOVs propagate beyond 100 m, before breaking up into filaments. This property applies to low-power ($P_1 \approx 9P_{\text{cr}}$), singly charged ($m = 1$) vortices shown in Figs. 4(a) and 4(b), where the first subplot of Fig. 4(b) illustrates the radial shape of the vortex reached from the perturbed input beam. Three modulations affect the vortex. They give rise to three filaments that grow up and produce an electron plasma at $z \approx 130$ m, when their fluence exceeds ~ 0.2 J/cm². The final filaments rotate and do not fuse, because all of them must preserve the total angular momentum of the incident beam [10]. The same property

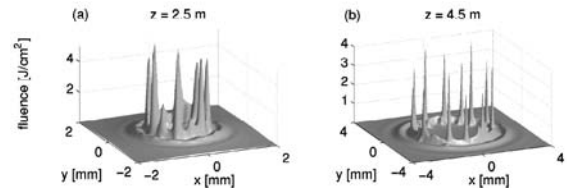


FIG. 3. $(3 + 1)$ -dimensional fluence patterns of beams with $w_0 = 3$ mm and $t_p = 250$ fs having (a) a super-Gaussian shape and (b) an arbitrary ring-shaped profile with $m = 1$.

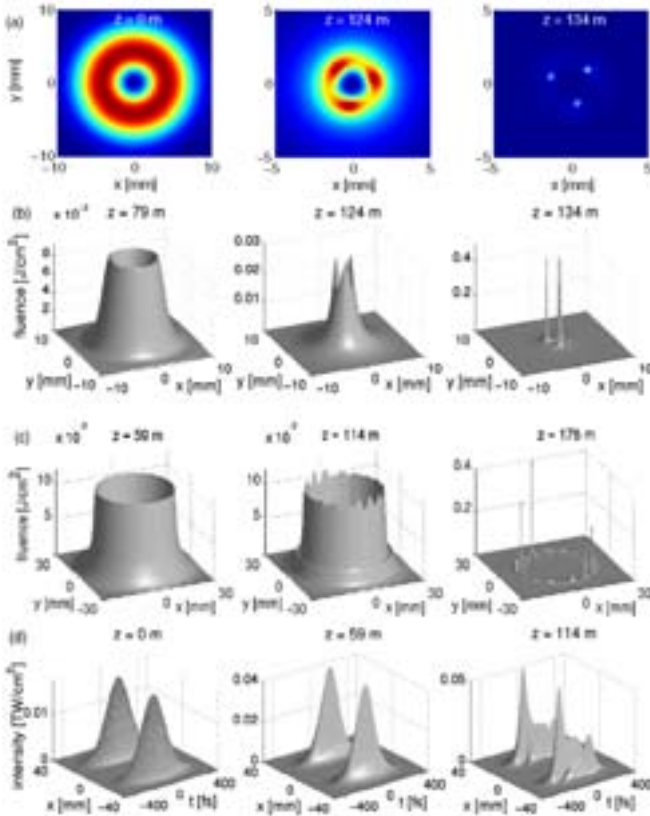


FIG. 4 (color online). Fluences of vortex profiles with 3 mm waist and 250 fs duration computed from Eqs. (1)–(3) for (a), (b) $m = 1$ and $P_1 = 9P_{cr}$, (c) $m = 6$ and $P_6 = 69.6P_{cr}$. Row (d) details pulse distortions in the plane ($x, y = 0, t$) for this latter case. Note the change of scales and propagation distances.

applies to high-power vortices. Figure 4(c) depicts different propagation stages of FOVs with $m = 6$ ($P_6 \simeq 70P_{cr}$). Again, the input beam attains a vortex state that holds its shape at large distances. Beyond $z = 100$ m, AMI starts and forms about 13 modulations. These amplify about 8 filaments which ionize the medium from $z \geq 175$ m. Compared with Fig. 3, the onset distance of filamentation differs between a simple ring profile and a genuine vortex mode. Two reasons explain this feature: (i) The growth rate $\text{Im}(\mu)$ for the initial profiles used in Fig. 3 is ~ 24 times higher than that of the vortex mode in Fig. 1(b). (ii) The diffraction length dictating the self-focusing range for the vortex solitons is proportional to \bar{r}_m^2 , which increases with m . Note that the number of filaments still agrees with the above AMI theory. For vortices with $m = 1$ as well as $m = 6$, differences in the characteristic distances of multifilamentation occur between (2 + 1) [Fig. 2] and (3 + 1) [Fig. 4] dimensional simulations, because the averaged-in-time model [Eq. (4)], limited to one short time slice, overestimates the nonlinear focus at which filaments start to develop. This point, linked to the value of α , was already reported in Ref. [6]. Figure 4(d) details the temporal profile of the pulse along the line $y = 0$. Before the onset distance

of AMI ($z = 114$ m), the distribution in time does not significantly evolve, which maintains the vortex shape stable over long distances, as expected.

In conclusion, we have revealed that new types of vortex configurations (FOV) are able to guide ultrashort pulses over considerable distances in the atmosphere, before the filamentation instability takes place. Nowadays, optical vortices can easily be prepared experimentally [8]. Because their power is quantified as a function of the vortex charge, FOVs can be used as powerful tools to transmit specific high energy levels within a robust shape. Their feasibility opens new trends in the techniques of remote filaments induced breakdown spectroscopy [15], which exploits ionizing femtosecond channels to probe aerosols, bioaerosols, as well as solid materials at remote distances. Controlling the onset of filamentation over long ranges is a key issue in this field, which could be achieved by means of optical vortices.

- [1] A. Braun *et al.*, *Opt. Lett.* **20**, 73 (1995); A. Couairon *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 1117 (2002).
- [2] L. Wöste *et al.*, *Laser Und Optoelektronik* **29**, 51 (1997); J. Kasparian *et al.*, *Science* **301**, 61 (2003).
- [3] F. Courvoisier *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 213 (2003); S. Skupin *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 023901 (2004).
- [4] M. Mlejnek, M. Kolesik, J. V. Moloney, and E. M. Wright, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2938 (1999); L. Bergé *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 225002 (2004).
- [5] G. Fibich, S. Eisenmann, B. Ilan, and A. Zigler, *Opt. Lett.* **29**, 1772 (2004); G. Méchain *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 035003 (2004); K. Cook *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 021105 (2005); V.P. Kandidov *et al.*, *Appl. Phys. B* **80**, 267 (2005).
- [6] S. Skupin *et al.*, *Phys. Rev. E* **70**, 046602 (2004).
- [7] V.I. Kruglov and R.A. Vlasov, *Phys. Lett. A* **111**, 401 (1985); V.I. Kruglov, Yu. A. Logvin, and V.M. Volkov, *J. Mod. Opt.* **39**, 2277 (1992).
- [8] N.R. Heckenberg, R. McDuff, C.P. Smith, and A.G. White, *Opt. Lett.* **17**, 221 (1992); V. Tikhonenko, J. Christou, and B. Luther-Davies, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2698 (1996); D.V. Petrov *et al.*, *Opt. Lett.* **23**, 1444 (1998).
- [9] M. Quiroga-Teixeiro and H. Michinel, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2004 (1997); V.I. Berezhiani, V. Skarka, and N.B. Aleksić, *Phys. Rev. E* **64**, 057601 (2001); I. Towers *et al.*, *Phys. Lett. A* **288**, 292 (2001).
- [10] A.S. Desyatnikov, Yu.S. Kivshar, and L. Torner, *Prog. Opt.* **47**, 291 (2005).
- [11] V. Skarka, N.B. Aleksić, and V.I. Berezhiani, *Phys. Lett. A* **319**, 317 (2003).
- [12] A. Vinçotte and L. Bergé, *Phys. Rev. A* **70**, 061802 (2004); L. Bergé *et al.*, *Phys. Rev. E* **71**, 016602 (2005).
- [13] D. Mihalache *et al.*, *Phys. Rev. E* **61**, 7142 (2000); D. Mihalache *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 073902 (2002).
- [14] J.M. Soto-Crespo, E.M. Wright, and N.N. Akhmediev, *Phys. Rev. A* **45**, 3168 (1992).
- [15] K. Stelmasczyk *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 3977 (2004).

Self-organized bundle of lasing filaments in dense media

L. Guyon, F. Courvoisier, and V. Boutou

LASIM (UMR5579), Université Claude Bernard Lyon 1, 43 bd du 11 Novembre, 69622 Villeurbanne Cedex, France

R. Nuter, A. Vinçotte, S. Champeaux, and L. Bergé

Département de Physique Théorique et Appliquée, CEA-DAM/Île de France, B.P. 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France

P. Glorieux

*Laboratoire de Physique des Lasers, Atomes et Molécules, UMR 8523, Université de Lille I, Bâtiment P5-USTL
59655 Villeneuve d'Ascq Cedex, France*

J.-P. Wolf

GAP, Université de Genève, 20 Rue de l'École de Médecine, 1211 Genève 4, Switzerland

(Received 23 December 2005; published 8 May 2006)

The filamentation of powerful, ultrashort laser pulses in liquids is investigated. It is shown that the multiple filaments produced in ethanol can be modified into controllable, regular patterns by doping the medium with dyes at high concentrations. Experimental results are confirmed by three-dimensional numerical simulations. Pump-dump pulse experiments furthermore reveal that the stimulated emission from excited dye molecules in the bundle can be locked in phase and leads to bright interference patterns.

DOI: [10.1103/PhysRevA.73.051802](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.73.051802)

PACS number(s): 42.65.Tg, 52.38.Hb, 42.68.Ay

When ultrashort laser pulses propagate in transparent media, they create intense filaments, able to self-channel over long ranges. In the atmosphere, the self-channeling mechanism results from the interplay between Kerr focusing and multiphoton ionization [1]. At high enough powers, several filaments can be produced. They originate from modulational instability, which breaks up the beam into small-scale cells that convey a power close to a few critical powers for self-focusing. Multiple filaments first form from the initial beam defects, around which they are randomly nucleated, and further gather into a limited number of clusters, called “optical pillars.” These clusters can then propagate over hundreds of meters, along which self-phase modulation considerably broadens the pulse spectrum [2]. Recently, Luo *et al.* [3] showed that the fluorescence from nitrogen molecules excited by a single filament, moreover, undergoes amplified spontaneous emission. Multifilamentation in air, nowadays, opens new perspectives in atmospheric diagnostics [4], such as multipollutant remote detection and bioaerosol identification using nonlinear terawatt lidars (light detection and ranging), long distance laser-induced breakdown analysis of solid targets, or megavolt-discharge triggering and guiding in view of lightning control.

Besides atmospheric propagation, the physics of femtosecond (fs) optical pulses in dense materials has become a challenging issue to understand the complex mechanisms that channel the light over shorter distances [5–9]. Recently, attempts have also been made to control the spatial position of filaments in water by shaping the spectral phase of an intense laser pulse [10]. Condensed media exhibit the property of amplifying some key parameters such as dispersion and plasma densities responsible for halting the wave collapse or maintaining the beam in focused state. In water, some experiments revealed that light filaments self-channel like an X-shaped wave while they reach an equilibrium be-

tween dispersion and a strong energy flux from the surrounding beam [9]. This apparent self-guiding is supported by important nonlinear losses such as multiphoton absorption. In liquids, the role of this nonlinear absorption in fs filaments can alternatively be investigated by adding dye fluorescent molecules, which, at low concentration, allows one to visualize the filamentation process [6].

In this work, we address two different issues using high concentrations of dye molecules in ethanol. We identify the role of multiphoton absorption losses in arranging filament patterns and prove the feasibility of inducing amplified stimulated emission from each filament. We show in a pump-dump configuration that: (a) A strong two-photon absorption (TPA) of dye molecules considerably reduces the number of filaments that organize within a latticelike arrangement, which is confirmed by three-dimensional (3D) numerical simulations. This leads to amplified spontaneous emission, as described by Prasad and co-workers from, e.g., coumarin [11]. (b) The fluorescence emitted from each filament is further locked in phase by a dump pulse superimposed with the pump, which allows the far-field observation of spectacular interference patterns, as self-organized arrays of “lasing” filaments.

In our experiment, the laser source is a Chirped-Pulse Amplifier mode-locked Ti:sapphire oscillator, delivering 120–150 fs pulses at 810 nm with a 20 Hz repetition rate. A portion of this pump is set apart and focused in a 1-mm sapphire plate to generate a supercontinuum. To prepare the dump pulse, the 810-nm component is removed from the supercontinuum by a glass filter (BG 40) and the resulting beam is sent to an interferential filter centered at 530 ± 5 nm, in order to calibrate its spectrum on the fluorescence band of the dye. The selected dye is coumarin 153, which has an absorption band ideally located for two-photon absorption with the 810-nm pump. The dump pulse energy does not

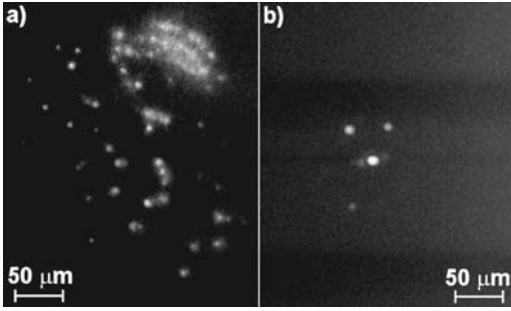


FIG. 1. Experimental fluence profiles at the cell exit after 1-cm-long propagation of an intense ($\sim 4 \times 10^{11}$ W/cm²) pump pulse. (a) For pure ethanol, a multitude of filaments with ~ 8 – 10 μm in diameter are visible, whereas (b) with coumarin 153 ($C=4$ g/l), only a few filaments subsist in the bundle. In (b), the typical diameter of one filament is slightly less than 20 μm . The average distance between two neighboring filaments in the lattice is about 50 – 100 μm .

exceed a few tens of pJ. Both pump and dump pulses can then be recombined and carefully superimposed. They are slightly focused by a 1-m focal lens in order to illuminate a flow cell containing either pure or dye-doped ethanol. The incident pump pulse intensity at the cell entrance is around 4×10^{11} W/cm². Through the sample, the pump pulse not only develops filaments, but also induces two-photon excitation of dye molecules. To change the filamentation pattern, the spatial profile of the pump pulse can be modified with an iris placed a few centimeters before the entrance cell window. A charge-coupled device (CCD) camera is used to image the laser intensity of the pump on the iris and at the exit of the 1-cm-long cell.

We first examined the effect of high concentrations of coumarin up to 4 g/l on the generation of filaments in different beam geometries involving no dump pulse. The iris diameter was about 1 mm. On Fig. 1(a), a myriad of filaments emerges from the cell exit for pure ethanol. The diameter of each filament does not exceed a few microns, typically 8 – 10 μm . In contrast, Fig. 1(b) shows the filamentation pattern created after adding coumarin with concentration $C=4$ g/l. In this configuration, the two-photon absorption kills most of the filaments. The size of the surviving light spots, although still of several microns, appears slightly enlarged to about 15 – 20 μm . The distance between two adjacent filaments is about 50 – 100 μm , designing a kind of lattice. These observations are consistent with previous ones [6], exploiting nonlinear losses to monitor multifilamentation in liquids.

In order to emphasize the role of dye absorption in softening filamentation, we performed numerical calculations based on a nonlinear Schrödinger (NLS) equation for the electric field envelope, \mathcal{E} , coupled to a Drude model for the plasma density, ρ . These equations can already be found in Refs. [1,12]. In the present context, they are integrated in full (3+1)-dimensional geometry, assuming weak contributions from space-time focusing and self-steepening for full width at half maximum (FWHM) pulse durations as large as 120 fs. The central wave number is defined by $k=n_0k_0$ with $k_0=2\pi/\lambda_0=\omega_0/c$, $\lambda_0=810$ nm, and $n_0=1.36$ for ethanol. Group-velocity dispersion (GVD) has

the coefficient $k'' \approx 403$ fs²/cm [13]. We consider an instantaneous Kerr response with basic index $n_2=2.6 \times 10^{-16}$ cm²/W for pure ethanol [14]. When the dye is added, even at weak densities, this coefficient may change significantly. Recent studies indeed reported important changes in the nonlinear refractive index [15], capable of increasing by one to two decades. In the absence of precise measurements of n_2 for dilute solutions, we shall opt for $n_2^{\text{dye}}=2.6 \times 10^{-15}$ cm²/W. The critical power for self-focusing, defined as $P_{\text{cr}}=\lambda_0^2/2\pi n_0 n_2$, is then $P_{\text{cr}} \approx 3$ MW for pure ethanol, but $P_{\text{cr}} \approx 0.3$ MW when the dye is dissolved in the sample. Plasma gain and losses apply to ionization of ethanol molecules mainly. Electron transitions to the conduction band take place with the gap potential $U_i=8.4$ eV, yielding six photon transitions [16] at 810 nm with multiphoton cross section $\sigma_{K=6}=5.63 \times 10^{-69}$ s⁻¹ cm¹²/W⁶ [17], for the neutral density $\rho_{\text{nt}}=1.03 \times 10^{22}$ cm⁻³, critical plasma density $\rho_c=1.7 \times 10^{21}$ cm⁻³, and inverse bremsstrahlung cross section $\sigma \approx 1.22 \times 10^{-17}$ cm². Coumarin 153 mainly contributes to lower the beam intensity through a TPA additional term introduced into the NLS equation such as $d_z I = -\sigma_{\text{abs}}^{(n=2)} \rho_{\text{abs}} I^2$ [18]. The coumarin density ρ_{abs} is 7.8×10^{18} cm⁻³ for $C=4$ g/l and the TPA cross section is $\sigma_{\text{abs}}^{(2)}=6.76 \times 10^{-31}$ cm⁴/W [19]. The model also accounts for avalanche ionization and electron recombination ($\tau_r=450$ ps [20]).

To simulate the previous results, we consider initial laser fields, for which input powers, peak intensities, and beam waist are those of the experimental values. The beam cut by an iris is modeled by a super-Gaussian spatial shape completed by a temporal Gaussian profile;

$$\mathcal{E}(x, y, t, z=0) = \sqrt{\frac{2^{1/N} P_{\text{in}}}{\Gamma\left(1 + \frac{1}{N}\right) \pi w_0^2}} \times e^{-((x^2 + y^2)/w_0^2)^N - t^2/t_p^2}, \quad (1)$$

which we perturb by a 15% amplitude random noise. Here, $\Gamma(x)$ is the usual Euler function, $N=10$, $w_0=0.5$ mm, and $t_p=102$ fs. The peak power $P_{\text{in}} \approx 2.8$ GW together with the input peak intensity $I_0^{\text{max}}=4 \times 10^{11}$ W/cm² are equal to their experimental counterparts.

Figures 2(a,b) display the fluence profiles in the (x, y) plane, computed at the cell exit for the initial condition (1). These patterns are in qualitative agreement with Fig. 1. For pure ethanol, the cut beam decays into a high number of filaments with a diameter close to 8 – 10 μm . More precisely, it first produces two ring structures, originating from the sharp edges of the diaphragm. The intensity of these rings is then amplified by the Kerr effect, which induces a growth of their gradient and breaks them up into light spots by azimuthal modulational instability. This gives rise to small-scale filaments that develop more and more towards the center of the sample as the beam propagates. This observation agrees with Ref. [21], where it was shown that the filamentation process occurs mainly in spatial area with strong field gradients. Figure 2(b) exhibits the fluence profiles calculated at the cell exit for a coumarin/ethanol solution. We observe that

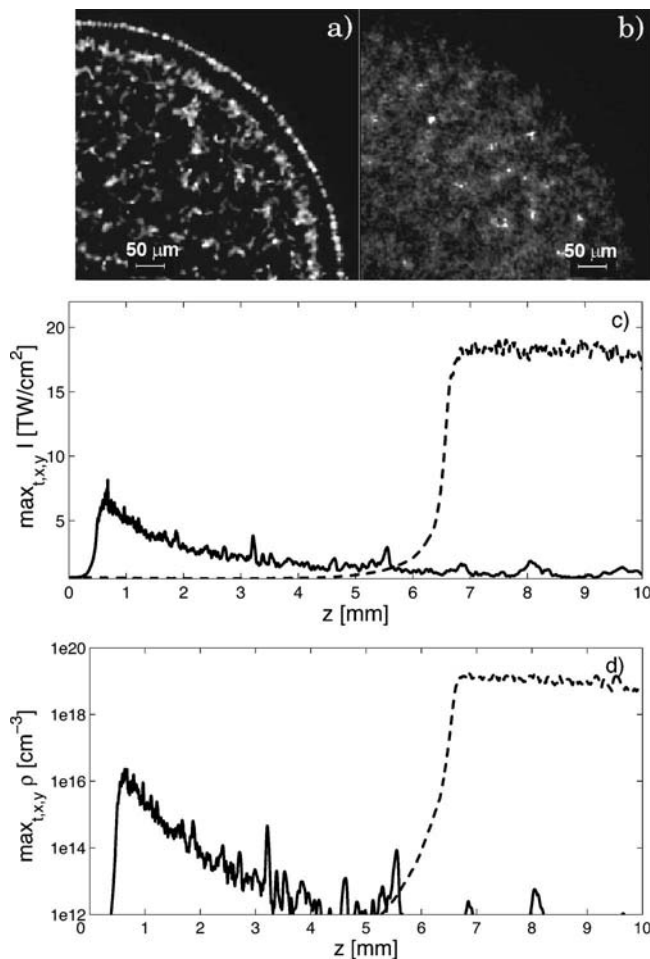


FIG. 2. Calculated fluence profiles at the cell exit for (a) pure ethanol and (b) ethanol + coumarin. Calculations and experiments (Fig. 1) are in good agreement, emphasizing spot average diameters of 8–10 μm in pure ethanol and doubled otherwise, with separation distances of ~50–100 μm. (c) Peak intensity and (d) electron density for pure (dashed curves) and dyed (solid curves) ethanol along the 1-cm-long cell.

the dye turns off some filament sites, decreasing thereby the spot number. In accordance with the experimental measurements, Fig. 2(b) also displays small-scale filaments with an average diameter larger than in pure ethanol. This is directly linked to the nonlinear damping action of coumarin, which contributes to stop the beam collapse at lower intensity values. The interfilament distance of ~50–100 μm is retrieved.

Figures 2(c) and 2(d) show the peak (maximum over x, y, t) intensities and related electron densities for the whole multifilamented beams involving coumarin or not along the z axis. The “ripples” affecting these curves signify that at some distances z the intensity of one filament suddenly takes over that of its most intense neighbors. For pure ethanol, the field self-focuses in intensity up to 18 TW/cm² until the nonlinear focus $z_c \approx 7$ mm. The beam collapse is stopped by the generation of plasma reaching a peak density around 10^{19} cm⁻³. The pulse then self-channels over 3 mm through the dynamic balance between Kerr self-focusing and the defocusing plasma. This process is accompanied by weak energy loss (6%) caused by ionization of the neutral species. When

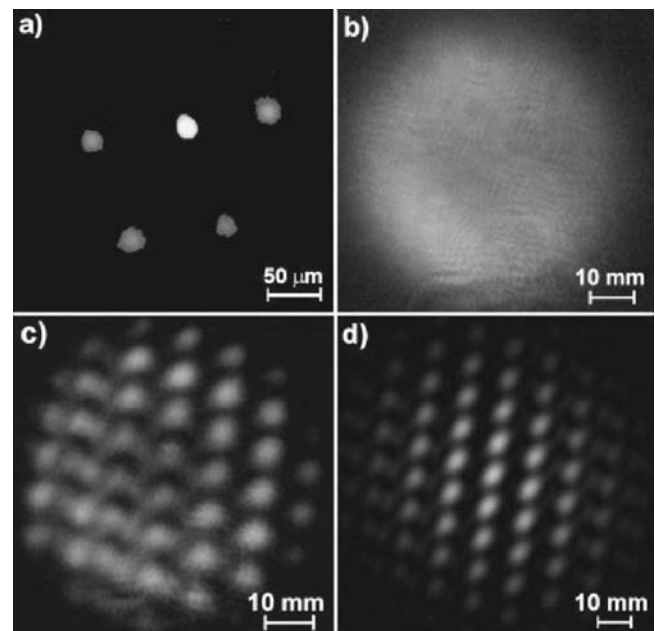


FIG. 3. Complete pump-dump lasing experiment. (a) Filamentary lattice at the cell exit. (b) Incoherent spontaneous emission in the far field. (c) Far-field interference pattern in presence of the dump pulse which stimulates and locks in phase the emission of each filament. (d) Fourier transform of the filament bundle displayed in (a).

the beam propagates in the dilute dyed solution, the coumarin TPA, which is an intensity dependent mechanism, absorbs pulse energy from the early stages, but becomes fully efficient in the filamentation domain where the beam attains high intensities. As a result, it enhances the overall energy loss to ~80% over 1 cm (not shown here) and smoothes spatial distortions as it decreases the filamentation growth rate [18]. We observe a backward motion of z_c to 0.8 mm, mainly due to the higher value of n_2 . From this distance, the peak intensity only reaches 8 TW/cm² and the electron plasma hardly attains the density 10^{16} cm⁻³, before it rapidly falls down to levels lower than 10^{14} cm⁻³. In this case, Kerr self-focusing mainly competes with coumarin TPA that becomes the dominant damping mechanism. Compared with nonlinear losses caused by ethanol ionization (six-photon transitions), TPA not only arrests self-focusing, but it also prevents the pulse from self-channeling by keeping its intensity clamped at constant value. So, no dynamic balance takes place, unlike propagation in pure ethanol.

The agreement between experiments and calculations is fairly good. In the absence of coumarin, the propagation of the pump pulse through 1 cm of ethanol produces many narrow filaments. In contrast, with coumarin the filaments strongly decrease in number and their size is broader. The calculation also exhibits that the filament intensity is weaker than for pure ethanol. However, because of the self-focusing, with a mean intensity of $\langle I \rangle \sim 3$ TW/cm² at $C=4$ g/l, the density of two-photon excited coumarin molecules attains $\rho_{\text{exc}} = \sqrt{\pi} \sigma_{\text{abs}}^{(2)} \rho_{\text{abs}} \langle I \rangle^2 T / (4 \hbar \omega_0) \approx 9 \times 10^{17}$ cm⁻³ using the typical filament duration $T \sim t_p / 10$ [1]. The amount of excited molecules thus appears high enough to trigger amplified stimulated emission and to measure it.

In the second series of experiments, a dump pulse at 530 nm is superimposed to the pump. The purpose is to undertake coherent amplified stimulated emission in the filament bundle. As reported by Cook *et al.* [22], white light filaments emerge in phase in liquids due to the coherence property of the continuum induced by the optical Kerr effect. In contrast, we do not exploit this Kerr-induced coherence. Here, the addition of coumarin does not only allow control of the filamentation pattern, but it also provides each filamentary site with a reservoir of excited dye molecules, ready to fluoresce, to achieve a population inversion. The dump pulse then triggers in-phase stimulated emission from each filament, which leads to an interference pattern, as shown in Fig. 3. Figure 3(a) exhibits the intensity of the pump at the output of the cell filled with an ethanol/coumarin solution (4 g/l). A set of five self-arranged filaments is visible. Far-field pictures of the coumarin emission are then taken in the forward direction, about 2 m after the cell. If the dump pulse is set to zero, we observe a uniform incoherent emission of low intensity [see Fig. 3(b)], whereas if the dump pulse is switched on, a bright interference pattern is visible in Fig. 3(c) which arises from the stimulated emission in each filament. The lasing intensity can be a hundred times higher than the amplified spontaneous emission intensity measured without the dump pulse. In Fig. 3(d), we calculated the Fourier transform of the filament bundle (FTFB) corresponding to Fig. 3(a). The intensity of the brightest filament in Fig. 3(a) was saturated and thus corrected to retrieve the FT image. The agreement between the far-field interference pattern [Fig. 3(c)]

and the FTFB is close to excellent. The smallest distance between two bright interference spots (i.e., about 10 mm) in Figs. 3(c) and 3(d) is directly related to the distance between two adjacent filaments (i.e., about 50–100 μm) in Fig. 3(a). The extension of the interference pattern depends on the brightness equilibrium of filaments in the bundle. Note that, at least in the available pump-dump delay range of 0–150 ps, no difference in the observed interference patterns was noticeable. Other configurations delivered by the spatial profiles of the input pump were also observed, leading in particular to pure flowerlike patterns with perfect hexagonal symmetry. Such configurations will be discussed in a forthcoming paper.

In summary, we have investigated the multiple filamentation in dye-doped ethanol promoting strong two-photon absorption losses in ultrafast pump-dump experiments. A (3+1)-dimensional code was used to reproduce and understand the experimental patterns. Inside the bundle, sparse filaments organize in lattice, unlike their random nucleation in pure ethanol. Besides, the dump process coherently locks in phase the amplified stimulated emission in each filament and leads to the observation of interference patterns in the far field. “Lasing” filaments open promising trends in the possibility of amplifying stimulated emission in condensed media over short propagation distances.

The authors acknowledge J. Moloney and M. Kolesik for fruitful discussions.

-
- [1] S. Skupin *et al.*, Phys. Rev. E **70**, 046602 (2004), and references therein.
- [2] M. Rodriguez *et al.*, Phys. Rev. E **69**, 036607 (2004); J. Yu *et al.*, Opt. Lett. **26**, 533 (2001).
- [3] Q. Luo, W. Liu, and S. L. Chin, Appl. Phys. B **76**, 337 (2003).
- [4] J. Kasparian *et al.*, Science **301**, 61 (2003); see also www.teramobile.org.
- [5] W. Liu, S. L. Chin, O. Kosareva, I. S. Golubtsov, and V. P. Kandidov, Opt. Commun. **225**, 193 (2003).
- [6] H. Schroeder and S. L. Chin, Opt. Commun. **234**, 399 (2004); J. Liu *et al.*, Opt. Express **13**, 10248 (2005).
- [7] H. Ward and L. Bergé, Phys. Rev. Lett. **90**, 053901 (2003).
- [8] M. Kolesik, E. M. Wright, and J. V. Moloney, Phys. Rev. Lett. **92**, 253901 (2004).
- [9] A. Dubietis, E. Gaizauskas, G. Tamosauskas, and P. Di Trapani, Phys. Rev. Lett. **92**, 253903 (2004).
- [10] G. Heck, J. Sloss, and R. J. Levis, Opt. Commun. **259**, 216 (2006).
- [11] G. S. He, R. Signorini, and P. N. Prasad, Appl. Opt. **37**, 5720 (1998).
- [12] L. Bergé and S. Skupin, Phys. Rev. E **71**, 065601(R) (2005).
- [13] J. Rheims, J. Köser, and T. Wriedt, Meas. Sci. Technol. **8**, 601 (1997).
- [14] Q. H. Gong, J. L. Li, T. Q. Zhang, and H. Yang, Chin. Phys. Lett. **15**, 30 (1998).
- [15] S. Yamakawa, K. Hamashima, T. Kinoshita, and K. Sasaki, Appl. Phys. Lett. **72**, 1562 (1998); R. A. Ganeev *et al.*, J. Opt. A, Pure Appl. Opt. **6**, 282 (2004).
- [16] J. M. Jung and H. Gress, Chem. Phys. Lett. **359**, 153 (2002); J. M. Jung, Chem. Phys. Lett. **366**, 67 (2002).
- [17] L. V. Keldysh, Sov. Phys. JETP **20**, 1307 (1965).
- [18] P. Donnat *et al.*, Opt. Lett. **17**, 331 (1992).
- [19] A. Fischer, C. Cremer, and E. H. K. Stelzer, Appl. Opt. **34**, 1989 (1995); B. Kovac and I. Novak, Spectrochim. Acta, Part A **58**, 1483 (2002).
- [20] Q. Feng *et al.*, IEEE J. Quantum Electron. **33**, 127 (1997).
- [21] L. Bergé, C. Gouédard, J. Schjødt-Eriksen, and H. Ward, Phys. Scr. **176**, 181 (2003).
- [22] K. Cook *et al.*, Appl. Phys. Lett. **83**, 3861 (2003).

Atmospheric propagation of gradient-shaped and spinning femtosecond light pulses

A. Vinçotte and L. Bergé

Département de Physique Théorique et Appliquée, CEA/DAM Ile de France,

B.P. 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France.

Abstract

The multiple filamentation of high power, ultrashort laser pulses is investigated for special waveforms exhibiting either sharp intensity gradients or vortex shapes having an angular orbital momentum. First, theoretical estimates are established on the basis of a $(2 + 1)$ -dimensional model discarding temporal dependencies, in order to evaluate the number of filaments and their onset distance with respect to the peak beam power or with the topological charge of optical vortices. Numerical simulations are next performed from this model and they confirm the theoretical expectations, at least qualitatively. These are shown to hold in $(3 + 1)$ -dimensional geometry involving time variations, through direct numerical integrations of the propagation equations.

Key words: Optical Vortex - Nonlinear Schrödinger Equations - Filamentation

PACS: 42.65.Tg, 42.65.-k, 52.38.Hb, 42.68.Ay

1 Introduction

The propagation of femtosecond, high-power laser pulses in air has been studied for many years from theoretical as well as experimental points of view [1–7]. It is well-known that an ultrashort pulse, provided that its power is above a critical value (P_{cr}), undergoes self-focusing caused by the Kerr response of the medium. Consequently, the beam intensity increases sharply until it becomes high enough to ionize air molecules. This creates an electron plasma, which defocuses the pulse. The plasma response, possibly completed by nonlinear quintic saturation [8–11], counteracts the Kerr effect, leading to the formation of narrow waveguides called “filaments”, with $\sim 150 \mu\text{m}$ diameter, $\sim 1 \text{ mJ}$ energy and power about $5P_{cr}$ [12]. At strong enough power ($> 20P_{cr}$), several filaments may occur, producing an optically turbulent state in the focal spot. This state usually refers to as “multifilamentation”. Since multifilamentation alters the beam homogeneity, several techniques have been proposed to organize the fluence patterns, such as shaping the pulse by introducing astigmatism [13], strong intensity gradients [14], or by using a grid after the laser exit [15]. Although new, all these methods present the drawback to introduce severe distortions in the input shape. They can locate the filaments at deterministic places in the beam, but may not keep them robust in location and intensity over distances longer than 100 m and beyond. So, the question of controlling multifilamentation of powerful pulses on long distances still remains open. Instead of introducing sharp gradients along the optical path, we here privilege a smoother alternative, consisting of making the pulse turn around its center like a vortex.

Reported by Kruglov *et al.* in the late 80s [16,17], optical vortices are char-

acterized by an amplitude forming a hole at center and a helical phase with integer topological charge m . They appear as singular solutions to nonlinear envelope equations, conserving their shape over many diffraction lengths before they undergo a spatial break-up induced by azimuthal modulational instability (AMI). The existence and stability of these peculiar states have been studied for several years. First, considering 2D media with self-focusing (cubic) and defocusing (quintic) nonlinearity, Michinel *et al.* [18] showed the possibility for spinning beams having high enough power to preserve their radial shape when $|m| = 1$ (see also [19–27]). For larger values of m , vortices cover long distances before breaking up into small-scale cells. These fragments then possess a curvilinear motion, which prevents them from mutually fusing. The existence and stability of spatiotemporal vortex beams with $|m| = 1$ have also been proven for 3D media with cubic-quintic nonlinearity and anomalous dispersion [28] (see also [29] about vortex-shaped soliton clusters). Again, numerical simulations involving larger charge m revealed a remarkable propagation along several Rayleigh lengths, before 3D vortices decay into bright solitons. The resulting structures cannot fuse because of the conservation of the total orbital angular momentum, but they may fly off tangentially from the vortex ring as they evolve. Pioneering experiments in cw media definitively confirmed this dynamics for the charge number $m = 2$ [30,31]. More recently, Mariyenko *et al.* [32] succeeded in creating new type of singly-charged, ultra-short vortices ($m = +1$) from fs laser sources.

Here, we investigate both analytically and numerically the filamentation dynamics of femtosecond pulses with specially-designed shapes, exhibiting not only vortex geometries but also sharp gradients. Emphasis is given to the vortex configurations for further Lidar applications, which aim at control-

ling the location of narrow filaments along the optical path. On the one hand, we revisit AMI theory applied to ring-shaped structures within a mixed variational/plane-wave perturbation formalism. This analysis is performed from a reduced (2+1)-dimensional model, derived by averaging all time dependencies of the pulse. We infer the conditions for the existence of optical vortices. A plane-wave perturbation method allows us to estimate the number of modulations and the onset distance of filamentation created from the breakup of vortices. Numerical analysis is then led as follows: We simulate the fate of “special” light configurations such as waves exhibiting an intensity gradient along one edge, or SuperGaussian beams having their gradients located along four edges in the (x, y) plane. For laser processing and manufacturing, flat-topped transverse profiles are desirable with high uniformity of light, which may not, however, avoid multifilamentation at strong enough powers. Correspondence between SuperGaussian and flattened Gaussian beams was analyzed in [33]. These beams are currently produced by cutting their spatial distribution through an iris or pinholes and their filamentation patterns were recently examined in dilute solutions of ethanol from both the experimental and numerical sides [34]. For these beam shapes, theory is found to predict qualitatively well their filamentary dynamics, which is confirmed by direct 2D numerical simulations. Multiplying these special waveforms by a Gaussian temporal profile, their evolution is next discussed in (3+1)-dimensional geometry on the basis of 3D parallel computations. The influence of the pulse duration is also checked numerically. Afterwards, we follow the same methodology for vortex propagation. Under certain conditions, vortices are capable of conveying high powers quantified by their charge number m , without altering their radial distribution up to hundreds of meters along the propagation axis. Because of this, they open the way to control multifilamentation over long

ranges in a non-destructive way.

The paper is organized as follows: Section II introduces the 3D model equations for the propagation of ultrashort laser pulses in air and their dimensionless 2D reduction. Section III states theoretical arguments addressing the AMI of vortices and recalls some fundamentals for plane-wave beams. Then, Section IV verifies the former results and their extension to time-dependent pulses in (3+1)-dimensional geometry, from numerical computations of waves with sharp gradients as well as for SuperGaussians. Section V thoroughly examines the dynamics of femtosecond optical vortices along the same logics.

2 Numerical modeling

2.1 The 3D Physical Model

The equations governing the slowly-varying laser electric field envelope $\mathcal{E}(x, y, z, t)$ and the free electron density $\rho(x, y, z, t)$ excited by ionization of air molecules are used in their classical form, discarding high-order dispersion together with space-time focusing and self-steepening. The reason for omitting these terms is that most of the coming analysis employs rather long durations ($t_p = 250$ fs) for which the product $\omega_0 t_p$ is large, where ω_0 denotes the carrier wave frequency [35–37]. For pulses moving in their group-velocity frame, these equations express as

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} = \frac{i}{2k_0} \nabla_{\perp}^2 \mathcal{E} + ik_0(n_2 \mathcal{R}(t) - n_4 |\mathcal{E}|^4) \mathcal{E} - i \frac{k''}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathcal{E} - \left(\frac{ik_0}{2\rho_c} + \frac{\sigma}{2} \right) \rho \mathcal{E} - \frac{\beta^{(K)}}{2} |\mathcal{E}|^{2K-2} \mathcal{E}, \quad (1)$$

$$\mathcal{R}(t) = \frac{1}{2} (|\mathcal{E}|^2 + \tau_K^{-1} \int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-t'}{\tau_K}} |\mathcal{E}(t')|^2 dt'), \quad (2)$$

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \sigma_K \rho_{\text{nt}} |\mathcal{E}|^{2K} + (\sigma/U_i) \rho |\mathcal{E}|^2, \quad (3)$$

where $k_0 = \omega_0/c = 2\pi/\lambda_0$, z is the longitudinal distance of propagation while $\nabla_{\perp}^2 \equiv \partial_x^2 + \partial_y^2$ accounts for transverse diffraction. The critical power for self-focusing is defined by $P_{\text{cr}} = \lambda_0^2/2\pi n_2$ and in air it takes the value $P_{\text{cr}} \simeq 2.5$ GW for the laser wavelength $\lambda_0 = 800$ nm and Kerr refractive index $n_2 = 4 \times 10^{-19}$ cm²/W. The second-order temporal derivative refers to normal group-velocity dispersion (GVD) with coefficient $k'' = 0.2$ fs²/cm. The complete Kerr response of air, defined by Eq. (2), is composed of an instantaneous contribution and a delayed part in ratio 1/2, with relaxation time $\tau_K = 70$ fs. Because the pulse intensity may increase to saturation levels for which $\chi^{(5)}$ susceptibility becomes efficient [8–11], a quintic saturation with coefficient $n_4 = 2.5 \times 10^{-33}$ cm⁴/W² has been introduced, which does not arrest plasma generation. The quantity $\rho_c \simeq 1.8 \times 10^{21}$ cm⁻³ is the critical plasma density beyond which the beam no longer propagates. Power dissipation is assured by multiphoton absorption (MPA) with coefficient $\beta^{(K)} \simeq 3.1 \times 10^{-98}$ cm^{2K-3}/W^{K-1}. In Eq. (3), plasma defocusing is induced by ionization of oxygen molecules with gap potential $U_i = 12.1$ eV and neutral density $\rho_{\text{nt}} = 5.4 \times 10^{18}$ cm⁻³. $K = 8$ is the number of photons needed to extract electrons from neutral molecules with the lowest ionization potential, i.e, dioxygen molecules. The electron plasma is essentially driven by multiphoton ionization (MPI) where $\sigma_K = 2.9 \times 10^{-99}$ s⁻¹ cm^{2K}/W^K. Avalanche (cascade) ionization and plasma absorption identified by the cross section for inverse bremsstrahlung ($\sigma = 5.4 \times 10^{-20}$ cm²)

complete the model.

2.2 A dimensionless 2D model

To examine spatial distortions, we find it convenient to derive a time-independent equation by employing the procedure proposed in Refs. [36,37]. For subpicosecond durations, avalanche ionization and related absorption have a weak incidence and we thus ignore them. Eqs. (1), (2) and (3) are then expressed in a dimensionless system of units involving the rescaled variables and fields $z \rightarrow 4z_0z$, $t \rightarrow tt_p$, $(x, y) \rightarrow (x, y)w_0$, $\mathcal{E} \rightarrow \sqrt{P_{\text{cr}}/4\pi w_0^2}\mathcal{E}$ and $\rho \rightarrow (\rho_c/2z_0k_0)\rho$, where $z_0 = \pi w_0^2/\lambda_0$ denotes the Rayleigh length for Gaussian beams with waist w_0 and $1/e^2$ durations t_p . We next assume that MPI counteracts Kerr focusing at a time slice $t \simeq t_c(z)$, where a single spike with constant duration T dominates in the pulse temporal profile. As MPI can shorten pulses to durations reaching 1/10 of their initial values, T is set equal to the value $T = 0.1$ (in units t_p) [37]. Therefore, we decompose \mathcal{E} as

$$\mathcal{E}(x, y, z, t) = \psi(x, y, z) \times e^{-[t-t_c(z)]^2/T^2}, \quad (4)$$

where the temporal distribution for the highest intensity peak is supposed Gaussian. Plugging this expression into Eqs. (1-3), multiplying by $e^{-[t-t_c(z)]^2/T^2}$ and integrating over the time domain, we remove the GVD term by a simple phase shift and finally obtain the reduced 2D equation for the spatial profile ψ :

$$i\partial_z\psi + \nabla_{\perp}^2\psi + f(|\psi|^2)\psi + i\nu|\psi|^{2K-2}\psi = 0, \quad (5)$$

$$f(|\psi|^2) = \alpha|\psi|^2 - \epsilon|\psi|^4 - \gamma|\psi|^{2K}, \quad (6)$$

using the dimensionless plasma density

$$\rho \simeq \gamma |\psi|^{2K} \left\{ \operatorname{erf} \left[\frac{\sqrt{2K}(t - t_c(z))}{T} \right] + 1 \right\}, \quad (7)$$

where $\operatorname{erf}(x)$ stands for the usual error function. In these equations, the coefficients α , ϵ , γ and ν are defined by

$$\alpha = 1/\sqrt{8} + D/4\tau'_K, \quad (8)$$

$$\epsilon = n_4 P_{\text{cr}} / (4\pi n_2 \sqrt{3} w_0^2), \quad (9)$$

$$\gamma = \sqrt{\pi/(8K)} T t_p k_0^2 \sigma_K (\rho_{\text{nt}}/\rho_c) (P_{\text{cr}}/4\pi)^K \times w_0^{2(1-K)}, \quad (10)$$

$$\nu = (k_0 \beta^{(K)} / \sqrt{K}) (P_{\text{cr}}/4\pi)^{(K-1)} \times w_0^{2(2-K)}, \quad (11)$$

with $\tau'_K = \tau_K/t_p$. The coefficient α takes the delayed Kerr response into account through the integral

$$D = \int_{-\infty}^{\infty} e^{(T^2/8\tau_K'^2) - (u/\tau_K') - (2u^2/T^2)} \times \left[\operatorname{erf} \left(\frac{\sqrt{2}u}{T} - \frac{T}{\sqrt{8}\tau_K'} \right) + 1 \right] du. \quad (12)$$

It is important to notice that only α and γ vary with t_p . For, e.g., the duration $t_p = 250$ fs, we find $\alpha = 0.446$, $\epsilon = 7.3 \times 10^{-7} [\text{cm}^2]/w_0^2$, $\gamma = 8.4 \times 10^{-40} [\text{cm}^{2(K-1)}]/w_0^{2(K-1)}$ and $\nu = 1.2 \times 10^{-35} [\text{cm}^{2(K-2)}]/w_0^{2(K-2)}$, with w_0 expressed in cm.

3 Theoretical arguments

3.1 Variational method

Let us start with establishing analytical estimates. These will apply to vortex states subject to AMI and will later be extended to arbitrary waveforms. Because optical vortices are strong attractors towards which experimental pulses

are expected to converge rapidly, we shall not target them by means of numerical relaxation methods, which have often been exploited in the past [18–25]. Instead, a variational method will approach spinning beams, whose azimuthal stability will be studied in the framework of spatially-uniform, ring-shaped structures with constant intensity. From a mathematical point of view, an optical vortex is a steady ground state of the (2+1) or (3+1)-dimensional nonlinear Schrödinger equation indexed by the integer phase number m and by the soliton (frequency) parameter λ . Here, vortex solutions to the reduced (2+1)-dimensional model (5) are searched for under the form (see, e.g., [38])

$$\psi_{m,\lambda} = A_{m,\lambda} r^{|m|} \exp(-r^2/(2a_{m,\lambda}^2) + im\theta + i\lambda z), \quad (13)$$

where θ is the azimuthal angle. With no MPA contribution (ν always remains close to zero as explained below), the Hamiltonian

$$H_{m,\lambda} = 2\pi \int_0^{+\infty} \{|\partial_r \psi_{m,\lambda}|^2 + m^2 |\psi_{m,\lambda}|^2 / r^2 - \int_0^{|\psi_{m,\lambda}|^2} f(u) du\} r dr \quad (14)$$

and power integral

$$P_{m,\lambda} = 2\pi \int_0^{+\infty} |\psi_{m,\lambda}|^2 r dr \quad (15)$$

are invariants for Eqs. (5) and (6), so that vortex amplitude and width are determined for given m by solving the variational problem $\delta(H_{m,\lambda} + \lambda P_{m,\lambda}) = 0$. Differentiating the action integral $S_{m,\lambda} = H_{m,\lambda} + \lambda P_{m,\lambda}$ with respect to $A_{m,\lambda}$ and $a_{m,\lambda}$ leads us to solve the equations $\partial S_{m,\lambda} / \partial A_{m,\lambda} = \partial S_{m,\lambda} / \partial a_{m,\lambda} = 0$, expanding as

$$a_{m,\lambda}^{-2} - \alpha_m A_{m,\lambda}^2 a_{m,\lambda}^{2|m|} + \epsilon_m A_{m,\lambda}^4 a_{m,\lambda}^{4|m|} + \gamma_m A_{m,\lambda}^{2K} a_{m,\lambda}^{2|m|K} + \frac{\lambda}{|m| + 1} = 0, \quad (16)$$

$$\begin{aligned}
& a_{m,\lambda}^{-2} - \frac{(2|m|+1)\alpha_m}{2|m|} A_{m,\lambda}^2 a_{m,\lambda}^{2|m|} + \frac{(3|m|+1)\epsilon_m}{3|m|} A_{m,\lambda}^4 a_{m,\lambda}^{4|m|} \\
& + \frac{(|m|(K+1)+1)\gamma_m}{|m|(K+1)} A_{m,\lambda}^{2K} a_{m,\lambda}^{2|m|K} + \frac{\lambda}{|m|} = 0,
\end{aligned} \tag{17}$$

where

$$\alpha_m = \alpha(2|m|)!/[2^{2|m|+1}(|m|+1)!],$$

$$\epsilon_m = \epsilon(3|m|)!/[3^{3|m|+1}(|m|+1)!],$$

$$\gamma_m = \gamma(|m|(K+1)!)/[(K+1)^{|m|(K+1)+1}(|m|+1)!].$$

3.2 Existence of vortex solitons

Eqs. (16) and (17) supply rather trustworthy approximations for the vortex amplitude and radius [18]. Because the present study deals with physical beams, we must decide of waist values exploitable in experiments. Therefore, we fix w_0 as ranking between 50 μm (lowest bound for fs filaments in air) and 3 mm (imposed by numerical limitations). To maintain the early pulse time slices clamped with an almost constant power, we shall mostly consider large femtosecond durations, $t_p = 250$ fs, leading to a GVD length $\sim t_p^2/k''$ pushed away to km distances. The influence of shorter durations will, however, further be discussed in the next section. In this condition, both MPI and MPA terms are very small ($\gamma \leq 1.4 \times 10^{-7}$, $\nu \leq 5 \times 10^{-8}$) and can be omitted. It is then possible to solve Eqs. (16) and (17) analytically. In the limit of weak plasma response, the power, intensity and mean radius of the vortex are respectively given by (see also Ref. [18])

$$P_{m,\lambda} = \frac{\pi}{\alpha} \times \frac{2^{2|m|+2}(|m|!)^2}{(2|m|)!} \times \frac{(|m|+1)}{\sqrt{1 - \frac{\lambda}{\lambda_\infty}}}, \tag{18}$$

$$A_{m,\lambda}^2 = \frac{2^{2|m|+2}(|m|+1)!}{\alpha(2|m|)!\sqrt{1-\frac{\lambda}{\lambda_\infty}}} \times \frac{1}{a_{m,\lambda}^{2|m|+2}}, \quad (19)$$

$$a_{m,\lambda}^2 = \frac{(|m|+1)}{2\lambda} \times \left[1 + \left(1 - \frac{\lambda}{\lambda_\infty}\right)^{-1/2}\right], \quad (20)$$

$$\bar{r}_{m,\lambda} = a_{m,\lambda}\sqrt{|m|+1}. \quad (21)$$

The requirement that $a_{m,\lambda}^2$ is real-valued and positive leads to the condition

$$\lambda < \lambda_\infty = \frac{3^{3|m|+2}[(2|m|)!]^2}{2^{4|m|+6}|m|!(3|m|)!} \times \frac{\alpha^2}{\epsilon}, \quad (22)$$

where λ_∞ fixes the existence domain of the vortex. This bound is almost equal to $0.16 \times \alpha^2/\epsilon$ whatever the value of m may be, which is in excellent agreement with the cut-off found in precedent works [18,19,29] (e.g., $\lambda < 0.18/\epsilon$ when $\alpha = 1$). Physically this bound is linked to the beam waist w_0 , through the value of ϵ . As an example, Figure 1(a) shows the vortex power $P_{m,\lambda}$ versus λ for an input waist $w_0 = 50 \mu\text{m}$, calculated for $m = 1, 2$ and 3 . In this case, the parameters α and ϵ take the values $\alpha \simeq 0.446$ and $\epsilon \simeq 2.9 \times 10^{-2}$. Figure 1(b) shows the same quantity computed from the complete Eqs. (5) and (6) for $w_0 = 3 \text{ mm}$, yielding $\alpha \simeq 0.446$ and $\epsilon \simeq 8.1 \times 10^{-6}$. For the small waist, the cut-off near which the power diverges is $\lambda_\infty \sim 1$. For the larger one, the cut-off is rejected to infinity, so that λ can be taken equal to the unity without loss of generality.

3.3 Stability analysis

Vortices carrying an orbital momentum are generally unstable against AMI that breaks them up into filaments. Here, we develop a perturbative method to analyze the stability of spinning solitons, using the procedure originally proposed in Ref. [39]. We consider perturbations acting along a ring of mean radius $\bar{r}_{m,\lambda} = [\int r^2 |\psi_{m,\lambda}|^2 d\vec{r} / P_{m,\lambda}]^{1/2}$. Assuming constant intensity and spatial

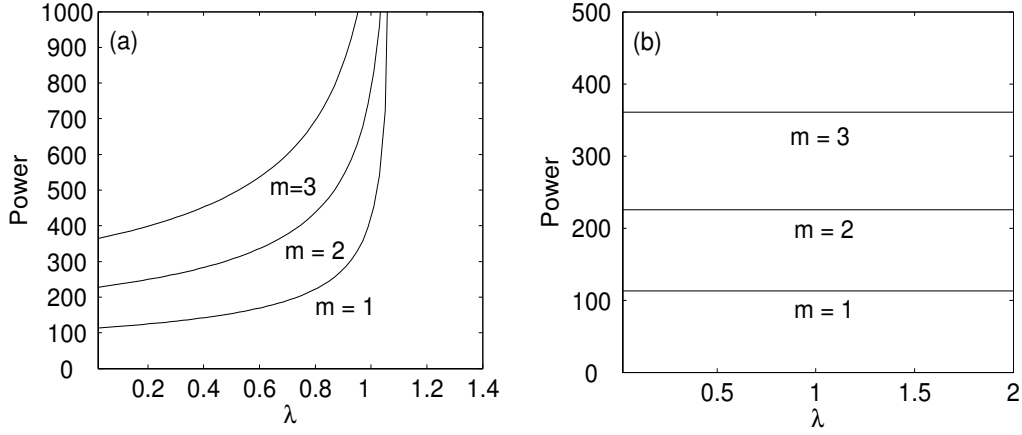


Fig. 1. Vortex power computed from Eq. (5) discarding γ and ν for $m = 1, 2$ and 3 and $t_p = 250$ fs for two different beam waists: (a) $w_0 = 50 \mu\text{m}$ and (b) $w_0 = 3 \text{ mm}$ ($\alpha = 0.446$).

uniformity for this ring, we rewrite the diffraction operator as $\nabla_{\perp}^2 = \partial_s^2$ with $s = \bar{r}_{m,\lambda}\theta$ and search for the growth rate, $\text{Im}(\mu)$, of azimuthal perturbations entering the solution $\psi = (\psi_0 + \delta\psi_1 e^{-i\mu z + iM\theta} + \delta\psi_2^* e^{i\mu^* z - iM\theta}) e^{i\lambda z + im\theta}$ with index M . Plugging this field into Eq. (5), linearizing the equations ($\delta\psi_1, \delta\psi_2 \ll \psi_0$) and identifying the terms in $e^{-i\mu z + iM\theta}$ and in $e^{i\mu^* z - iM\theta}$ provide the eigenvalue problem

$$\hat{L} \begin{pmatrix} \delta\psi_1 \\ \delta\psi_2 \end{pmatrix} = -\mu \begin{pmatrix} \delta\psi_1 \\ \delta\psi_2 \end{pmatrix}, \quad (23)$$

where

$$\hat{L} = \begin{pmatrix} -\lambda + \widehat{D}_{m+M} + g(\psi_0^2) & f'(\psi_0^2)\psi_0^2 \\ -f'(\psi_0^2)\psi_0^2 & \lambda - \widehat{D}_{m-M} - g(\psi_0^2) \end{pmatrix} \quad (24)$$

with $g(\psi_0^2) = f(\psi_0^2) + \psi_0^2 f'(\psi_0^2)$ and $\widehat{D}_m = -m^2/\bar{r}_{m,\lambda}^2$. Then, we apply the plane wave assumption to the vortex ring with amplitude $\psi_0 = \psi_{m,\lambda}(r = \bar{r}_{m,\lambda})$ [Eq. (13)], yielding the relation $\lambda = \widehat{D}_m + f(\psi_0^2)$ in the limit $\nu \rightarrow 0$. After substitution into Eq. (24) and solving the eigenvalue problem with respect to

μ , we get the expression for the growth rate,

$$\text{Im}(\mu) = \frac{M}{\bar{r}_{m,\lambda}} \times \text{Re}\left([2f'(|\psi_0|^2)|\psi_0|^2 - \frac{M^2}{\bar{r}_{m,\lambda}^2}]^{\frac{1}{2}}\right). \quad (25)$$

The integer value of M for which $\text{Im}(\mu)$ is maximal gives the approximate number of modulations that affect the ring. All required information about the charge m of the input vortex lies in the dependencies of ψ_0 . Instability takes place as soon as $f'(|\psi_0|^2) > 0$, which is directly linked with the nonlinearities, and thus with the beam waist. From straightforward computations, one easily finds $\bar{r}_{m,\lambda}^2 = a_{m,\lambda}^2(|m| + 1)$ and $f'(|\psi_0|^2) = \alpha - 2\epsilon|\psi_0|^2$, where $|\psi_0|^2 = A_{m,\lambda}^2 a_{m,\lambda}^{2|m|} (|m| + 1)^{|m|} e^{-(|m|+1)}$.

For small waist, the quintic coefficient ϵ is not negligible. Instability occurs as long as $\lambda < \lambda_{\text{crit}}$, where the critical soliton parameter λ_{cr} depends on m and turns the sign of $f'(\psi_0^2)$ from positive to negative. With $w_0 = 50 \mu\text{m}$, we obtain $\lambda_{\text{cr}} \sim 1$ for $m = 1$, so that stability follows when $\lambda > \lambda_{\text{cr}}$. For the bigger waist $w_0 = 3 \text{ mm}$, saturation coefficients are negligible and instability always develops whatever λ may be.

To predict the number of modulations that will effectively break up the ring, the maximal perturbation index M_{max} , that fixes the optimal growth rate (25), must be determined. For the two selected values of w_0 , we can consider the cubic-quintic limit where only α and ϵ are non zeros, and we merely find

$$M_{\text{max}}^2 = \frac{(|m| + 1)^{4-|m|}}{(2\lambda)^{1-|m|} (2|m|)!} \times \frac{2^{2|m|+2} |m|! e^{-|m|-1}}{\sqrt{1 - \frac{\lambda}{\lambda_\infty}}} \times \frac{(1 - \frac{2\epsilon}{\alpha} |\psi_0|^2)}{(1 + \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{\lambda}{\lambda_\infty}}})^{|m|-1}}. \quad (26)$$

Note that at leading order $\epsilon/\alpha^2 \ll 1$, M_{max} is independent of the Kerr coefficient α . As only integer values are physically relevant, plotting of Eq. (26) versus m highlights $M_{\text{max}} \simeq 2|m| + 1$ when $\epsilon/\alpha^2 \rightarrow 0$ or $M_{\text{max}} \simeq 2|m|$ otherwise.

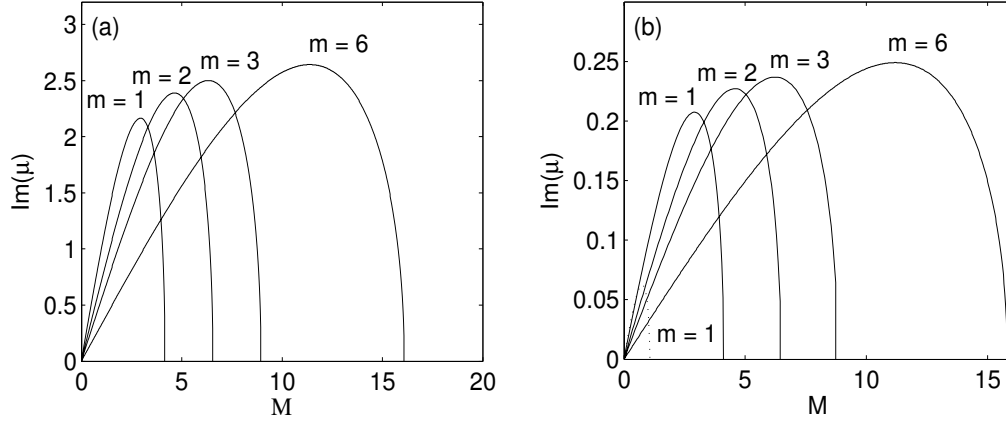


Fig. 2. AMI growth rates of 2D NLS vortices computed from Eqs. (5)-(6) with $t_p = 250$ fs and (a) $w_0 = 3$ mm leading to $\alpha = 0.446$ and $\epsilon = 8.1 \times 10^{-6}$, $\lambda = 1$; (b) $w_0 = 50$ μm , $\epsilon = 3 \times 10^{-2}$ (solid curves: $\lambda = 0.1$; dotted curve: $\lambda = 0.99$ for $m = 1$). Vortex charges m are indicated next to the curves.

Figure 2 confirms these behaviors. Figure 2(a) illustrates the perturbation growth rate as a function of M for an input waist $w_0 = 3$ mm and for various m . Since the saturable nonlinearities are almost negligible, $f(|\psi_0|^2) \sim \alpha|\psi_0|^2$ and $\lambda = 1$. Figure 2(b) represents $\text{Im}(\mu)$ for $w_0 = 50$ μm , $\lambda = 0.1$ (domain of instability) and different values of m . For $\lambda = 0.99$ and $m = 1$ (limit for instability), the growth rate is noticeably reduced. Stability follows [$\text{Im}(\mu) = 0$] as soon as λ exceeds $\lambda_{\text{cr}} \simeq 1$, from which $f'(|\psi_0|^2) < 0$. When repeating this analysis for the academic cubic-quintic problem $\alpha = \epsilon = 1$ ($\lambda \leq 0.16$), AMI takes place with maximal azimuthal index $M_{\text{max}} \simeq 2|m|$ and ceases when $\lambda > \lambda_{\text{cr}} \sim 0.147$ for $m = 1$. These results recover those deduced from numerical shooting techniques [19–25].

Let us consider beam shapes with sharp gradients, i.e, with intensity distributions localized along one or several lines. Even if these depart from genuine plane waves, it may be useful to view them as of constant intensity with finite extent along the gradient axis. For a plane wave, $\nabla_{\perp}^2 \psi_0^2 = 0$ and the instability growth rate is still given by Eq. (25) where $M/\bar{r}_{m,\lambda}$ is replaced by the wavenumber of transverse perturbations, k [41,42]. Hence,

$$\text{Im}(\mu) = k \times \text{Re}([2f'(|\psi_0|^2)|\psi_0|^2 - k^2]^{\frac{1}{2}}). \quad (27)$$

The maximal perturbation wavenumber is $k_{\text{max}} = \sqrt{f'(|\psi_0|^2)|\psi_0|^2}$, corresponding to the maximal growth rate $\text{Im}(\mu)_{\text{max}} = f'(|\psi_0|^2)|\psi_0|^2 = k_{\text{max}}^2$. If we assume that the filaments are regularly distributed in the diffraction plane, their separation distance may be evaluated by $\lambda_{\text{mod}} = 2\pi/k_{\text{max}}$. Imposing a finite extension to the field distribution, standard estimates predict a number of filaments close to the ratio $P_{\text{in}}/P_{\text{fil}}$, where P_{in} is the beam power and P_{fil} the power enclosed in one cell. When considering each filament with radial symmetry, P_{fil} is evaluated by $P_{\text{fil}} = 2\pi \int_0^{\lambda_{\text{mod}}/2} r |\psi_0|^2 dr \simeq 2.65 P_{\text{cr}}/\alpha$ [43]. These theoretical arguments give us an estimation of the number of filaments $N = P_{\text{in}}/P_{\text{fil}} \simeq p\alpha/2.65$ for an input beam with power ratio $p \equiv P_{\text{in}}/P_{\text{cr}}$. The maximal growth rate $\text{Im}(\mu)_{\text{max}}$ defines the longitudinal distance of filamentation, $z_{\text{fil}} \sim \text{Im}(\mu)_{\text{max}}^{-1}$ scaling as $\sim 1/p$ [44,45], along which small-scale filaments grow up exponentially.

4 Beam configurations with sharp gradients and SuperGaussians

4.1 Sharp gradients

We now discuss fluence patterns modeled first by Eqs. (5) and (6), next by the full 3D propagation equations (1) and (3). Results from the 2D model are re-expressed in physical units. We investigate input waves exhibiting polygonal structures entailing a strong intensity gradient (Figure 3). The initial beam is designed as a triangular prism put on its rectangular face, and turned by $\pi/4$ rad in the (x, y) plane. In $(3+1)$ -dimensional geometry the pulse shape is identical in space, but we multiply it with the Gaussian in time e^{-t^2/t_p^2} . In both dimensional cases, a 10% amplitude random noise is introduced; the average input power is $\sim 60P_{\text{cr}}$, initial waist $w_0 = 3\text{mm}$ and pulse duration $t_p = 42.5$ fs ($\alpha = 0.37$). Instability occurs at $z_{\text{fil}} \sim 40 - 60$ cm (this interval covers the full breakup distance) along the gradient direction, from which filaments grow up and become more and more randomized [Fig. 3(a)]. These behaviors are almost the same in $(2+1)$ and $(3+1)$ dimensions [Fig. 3(b)]. The main difference is that 3D filaments arise earlier ($z_{\text{fil}} \sim 21 - 42$ cm) and their number is a little bit larger, which we attribute to plasma-induced temporal splitting events producing more spikes in the intensity profiles [47,48]. The number of filaments ~ 9 , however, remains in good quantitative agreement with the estimate $N \sim p\alpha/2.65 \simeq 9$.

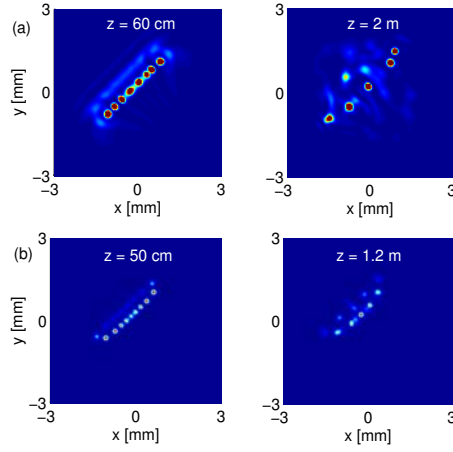


Fig. 3. Fluence patterns of gradient-shaped beams with input power $\sim 60P_{\text{cr}}$, $t_p = 42.5$ fs and waist $w_0 = 3$ mm at different propagation distances z : (a) $(2+1)D$ and (b) $(3+1)D$ results.

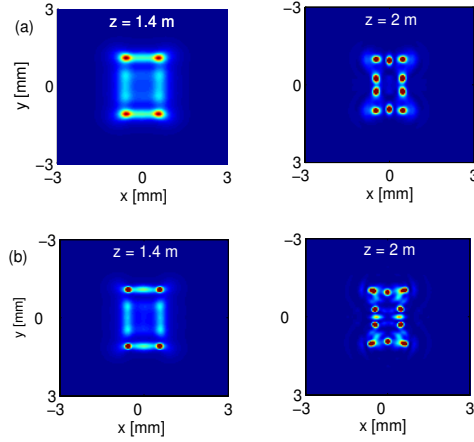


Fig. 4. $(2+1)$ -dimensional image patterns of SuperGaussian beams with input power $\sim 60P_{\text{cr}}$ and initial waist $w_0 = 3$ mm along z distances for the two pulse durations: (a) $t_p = 42.5$ fs and (b) $t_p = 250$ fs.

4.2 SuperGaussian beams

Let us now analyze beams exhibiting intensity gradients on several edges, for the purpose to maintain their location along specific directions. We address this issue from SuperGaussians having initially flat-top profiles, respectively

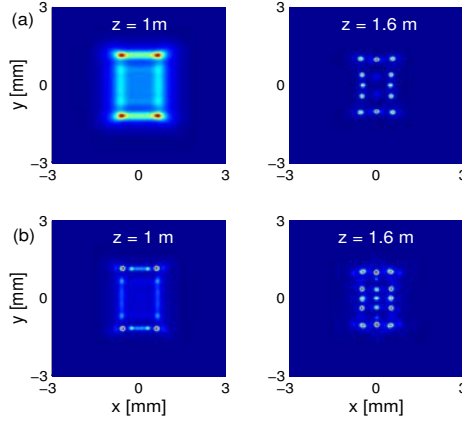


Fig. 5. $(3 + 1)$ -dimensional fluence patterns of SuperGaussian beams with input power $\sim 60P_{\text{cr}}$ and initial waist $w_0 = 3$ mm at different z for two different pulse durations: (a) $t_p = 42.5$ fs and (b) $t_p = 250$ fs.

given in 2D and 3D by

$$\mathcal{E}(x, y, z = 0) = \sqrt{I_0} e^{-\left(10 \frac{x^4}{w_0^4} + 25.6 \frac{y^8}{w_0^8}\right)} \quad (28)$$

and

$$\mathcal{E}(x, y, z = 0, t) = \sqrt{I_0} e^{-\left(10 \frac{x^4}{w_0^4} + 25.6 \frac{y^8}{w_0^8} + \frac{t^2}{t_p^2}\right)}, \quad (29)$$

which we again perturb by a 10% random noise. Emphasis is put on the influence of t_p in the filamentation patterns. First, we consider the propagation of a two-dimensional SuperGaussian profile extended in the y direction [Eq. (28)]. Physical parameters are chosen as $t_p = 42.5$ fs, $w_0 = 3$ mm and $P_{\text{in}} \sim 60P_{\text{cr}}$. Averaged in time following Eq. (5), the beam breaks up into filaments which start at $z_{\text{fil}} \sim 0.85 - 1.2$ m and then appear regularly spaced on the edges, as expected [Fig. 4(a)]. The cell number $\simeq 10$ is again in rather good agreement with the one predicted by the plane-wave theory ($N \sim 9$). To illustrate the influence of the pulse duration in the 2D model, we repeated these simulations for $t_p = 250$ fs in Fig. 4(b), keeping the same initial intensity. Filamentation happens slightly earlier, while the filament number is augmented by a factor

of about 1.2. These modifications follow from the fact that the number of filaments is proportionnal to the averaged Kerr coefficient α , which increases with t_p [see Eq. (8)]: Here it is indeed enhanced in the ratio $\alpha(t_p = 250 \text{ fs})/\alpha(t_p = 42.5 \text{ fs}) \sim 1.2$. Accounting now for temporal variations described by Eqs. (1-3), Figs. 5(a) and 5(b) show the fluence patterns of 3D SuperGaussians having the same spatial shape, supplemented by a Gaussian in time with two different t_p [Eq. (29)]. After a short propagation range, the beam still decays into several filaments located upon the edges. For large t_p , filamentation occurs earlier ($z_{\text{fil}} \sim 0.65 - 1 \text{ m}$) and promotes more cells in the ratio 1.2, for the reason given above. The final number of cells again increases to some extent (~ 15), because of sharp temporal variations induced by the plasma response, that promotes the occurrence of multiple peaks in the pulse distribution.

The former results should be compared with well-known evaluations of onset distances of filamentation. Following [44], the distance from which filaments grow up is about $z_{\text{fil}} \sim [2\pi I_0 \alpha / (k_0 P_{\text{cr}})]^{-1}$, where I_0 denotes the input intensity. For a given beam shape, this quantity can easily be related to the ratio of input power over critical and to the squared beam waist, thus to the Rayleigh length z_0 . For instance, a Gaussian beam with initial intensity equal to $2P_{\text{in}}/\pi w_0^2$ will produce filaments over z scales of around $z_0 P_{\text{cr}}/2\alpha P_{\text{in}}$. The dependence $z_{\text{fil}} \sim P_{\text{cr}}/P_{\text{in}}$ was recently confirmed in Ref. [45] for perturbed Gaussian beams conveying enough powers ($> 40P_{\text{cr}}$). The procedure followed so far enables us to generalize this property to arbitrary optical shapes, since all information drawn about modulational instability primarily depends on the level of the initial intensity. Applying numerical estimates, the mean input intensity in Fig. 3 is about 10 TW/cm^2 , leading to z_{fil} equal to about 9 cm in this case. For Figs. 4 and 5, one has $I_0 \simeq 1 \text{ TW/cm}^2$ and $z_{\text{fil}} \simeq 70 \text{ cm}$. These values support the

comparison with the numerical distances reported for SuperGaussians ($z_{\text{fl}} > 65$ cm). They become less reliable for sharp gradients ($z_{\text{fl}} > 20$ cm), whose spiky distribution departs much more from that of an ideal plane wave.

5 Femtosecond Optical Vortices

5.1 (2+1)D simulations

Vortex states are here numerically examined from the complete Eqs. (5) and (6), in order to check analytical results concerning their instability, number of modulations and related onset distance. The beam waist is fixed to 3 mm and the pulse duration is $t_p = 250$ fs. For each value of m , $\lambda = 1$, $\epsilon/\alpha^2 \rightarrow 0$ and Eqs. (18-21) provide the values of $A_{m,1}$ and $a_{m,1}$, which approximate genuine spinning modes. Vortex solitons, once expressed in physical units, are created from the initial condition

$$\mathcal{E}(z = 0) = A_{m,1}(r/w_0)^{|m|}e^{-r^2/(2\bar{r}_{m,1}^2)+im\theta} \quad (30)$$

perturbed by a 10% amplitude random noise, where $\bar{r}_{m,1} \simeq (|m|+1)w_0$ denotes their mean radius. The power and intensity of each vortex mode are quantified by the integer charge m , i.e., $P_{m,1} \simeq 2^{2|m|}P_{\text{cr}}|m|!(|m|+1)!/[\alpha(2|m|)!]$ and $A_{m,1}^2 = P_{m,1}/[\pi w_0^2|m|!(|m|+1)^{|m|+1}]$. Their physical values are summarized in Table 1. We performed 2D simulations with the input profiles (30) for different topological charges. Figure 6 illustrates the breakup of the resulting vortices. For every value of m , the vortex mode appears to be quite robust, in the sense that modulations develop after hundreds of meters. The ring radius increases with m , while the modulation onset distance $z_{\text{fl}} \simeq 4z_0 \times \text{Im}(\mu)_{\text{max}}^{-1}$

is decreasing with m , which qualitatively agrees with Fig. 2(a). The number of modulations appears in excellent agreement with the theoretical evaluations of our perturbative analysis, since it evolves as $\sim 2|m| + 1$. In contrast, although of magnitude still comparable with the numerical results, the filamentation distance, $z_{\text{fil}} \sim 70$ m, is small. Relative ratios function of m , e.g., $z_{\text{fil}}(m = 1)/z_{\text{fil}}(m = 6) \simeq 1.5$, nonetheless stay in reasonable quantitative accordance with the numerics (~ 1.3). Discrepancies follow from the basic assumptions used in our formalism (Gaussian test functions approximating spinning beams, vortex ring modeled by plane waves). Despite those, our results remain consistent with a recent analysis employing Laguerre-Gaussian modes for the zeroth-order stationary fields of the cubic Schrödinger equation. These modes were also observed to decay into $2|m| + 1$ azimuthal maxima [46].

Table 1

$A_{m,1}^2$, $\bar{r}_{m,1}$ and $P_{m,1}$ for $m = 1, 2, 3$ and 6.

	$m = 1$	$m = 2$	$m = 3$	$m = 6$
$A_{m,1}^2$ (GW/cm ²)	20	3	0.17	1×10^{-6}
$\bar{r}_{m,1}$ (mm)	6	9	12	21
$P_{m,1}$ (GW)	23	45.5	73	177

For comparison, we also simulated the nonlinear dynamics of an input profile shaped on an optical doughnut *which is not a vortex soliton*: $\mathcal{E}_0 = A_{\text{in}}(r/w_0)e^{-r^2/w_0^2+i\theta}$. Figures 7(a) and 7(b) represent intensity patterns when such a beam contains the same power as vortex modes with $m = 1$ ($P_{\text{in}} \simeq 9P_{\text{cr}}$) and with $m = 6$ ($P_{\text{in}} \simeq 70P_{\text{cr}}$), respectively. These waveforms propagate along several meters, but they cannot avoid AMI that induces $\sim 2 - 3$ modulations and amplifies two filaments when $P_{\text{in}} = 9 P_{\text{cr}}$ [Fig. 7(a)]. With an increased power of $70 P_{\text{cr}}$,

about 9 modulations occur at a shorter distance. Eventually, the beam decays into $\sim 6 - 7$ filaments which are progressively randomized in the diffraction plane [Fig. 7(b)]. The cell number lies in the same order of magnitude as the one provided by Eq. (26) for vortex solitons. The breakup stage, however, occurs at much shorter propagation distances. Ultimately, the number of mature filaments may depart from that of the early modulations: Strong nonlinearities come into play; they favor interactions between cells of high intensity and predictions from the linear stability analysis do no longer apply.

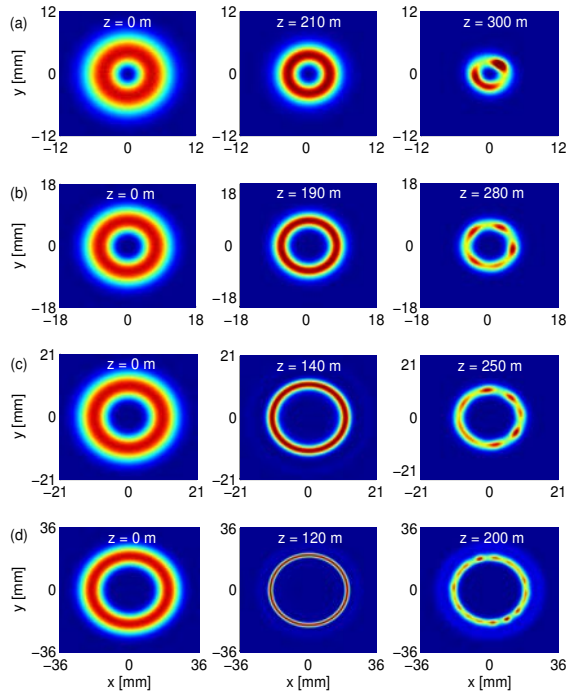


Fig. 6. Fluence of optical vortices computed from Eq. (5) for a 3 mm waist, $t_p = 250$ fs and different topological charges: (a) $m = 1$, (b) $m = 2$, (c) $m = 3$, and (d) $m = 6$.

To end this subsection, we find it instructive to comment on a couple of points, that complete the present analysis. First, we could wonder whether the choice of the temporal extent $T = 0.1(t_p)$ for the dominant peak modeled by Eq. (4) is not too restrictive in describing the breakup of vortices. Assuming weak

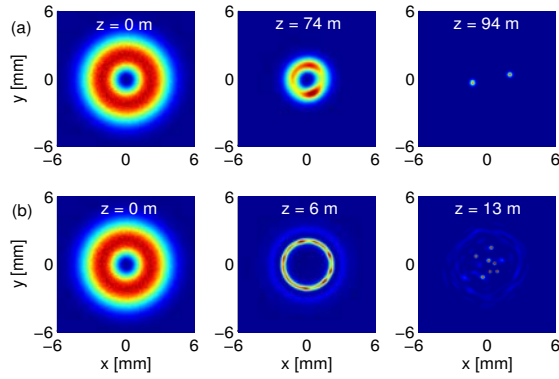


Fig. 7. Fluence of doughnut, ring-shaped pulses computed from Eq. (5) for a 3 mm waist, $t_p = 250$ fs and two different input powers: (a) $P_{\text{in}} = 9 P_{\text{cr}}$ and (b) $P_{\text{in}} = 70 P_{\text{cr}}$.

temporal distortion along the early propagation stages could indeed suggest fixing T to the input pulse duration, i.e., $T = 1$. To check this point, we performed two computations with this latter choice for $t_p = 250$ fs leading to $\alpha = 0.667$: one for the vortex $m = 1$, the other one for $m = 3$. In both cases, we observed exactly the same modulations occurring at the same distances z as in Figs. 6(a) and 6(c). This proves that the ring breakup is independent of α , which is supported by Eq. (26). Second, different beam shapes with low powers and broad spatial extents might provide similar robustness to a vortex. To clear up this point, we simulated a 2D Gaussian with $9P_{\text{cr}}$ and waist equal to ~ 8.5 mm, i.e., having power and spatial width comparable with those of the vortex mode $m = 1$. The Gaussian beam, however, was observed to relax onto a single filament over shorter distances comprised between 50 and 80 m. We also simulated a non-rotating doughnut beam with the same radial shape as that of the singly-charged vortex. Even perturbed, the low-power doughnut focused at center into one bright soliton at distances $z \leq 100 - 125$ m. Actually, compared with these last two cases, only a vortex is capable of travelling over several hundreds of meters without altering its shape, which

we attribute to its rotational dynamics.

5.2 (3+1)D simulations

Does vortex robustness hold in the presence of time dispersion? To answer this question, we analyze (3+1)-dimensional situations, where vortices exhibit a Gaussian temporal distribution. To design these structures, we use the same input as Eq. (30), which we multiply by the Gaussian in time e^{-t^2/t_p^2} and perturb by a 10% random noise. This waveform serves as an initial condition for Eqs. (1) and (3). Unlike the 2D model that ignores time dispersion, GVD typical length $\sim t_p^2/k''$ plays here a relevant role along the propagation axis. With small pulse duration, $t_p = 42.5$ fs, the GVD length is rather short (~ 90 m) and 3D simulations revealed that the pulse rapidly spread out, as dispersion broadened its temporal profile. In these conditions, the beam could not converge to a vortex state and was rapidly diffracting. The same problem occurred for any wider pulse durations up to $t_p = 250$ fs, for which the distortions in time became weak enough to preserve the beam power closely to that of a genuine spinning mode.

Figure 8 shows the propagation of such a beam for $m = 1$. This continuously converges to a radial vortex state, which propagates along more than 100 m. Afterwards, it is affected by three modulations, which finally give rise to three filaments, as expected from Fig. 2(a). The filaments rotate and do not fuse, because all of them must preserve the total orbital angular momentum of the incident beam. Note that the filamentation stage arises earlier than in 2D, because GVD, even weak, induces temporal stretching that reduces the filamentation onset distance [Fig. 8(c)]. This property applies to a low-power

($P_1 \simeq 9P_{\text{cr}}$), singly-charged vortex. It can also be refound for beams containing higher powers. Figure 9 shows the fluence patterns of a vortex pulse with $m = 6$ and $P_6 \simeq 70P_{\text{cr}}$. Again the beam converges towards a vortex state which keeps stable for one hundred of meters, before thirteen modulations break it up and finally amplify ~ 8 filaments. In Fig. 9(b) temporal distortions in the plane $(x, y = 0, t)$ remain limited, since the time extent of the pulse stays within $2t_p$. This enables the beam to converge towards its nearest vortex mode in a quasi-conservative way.

This robustness seems to only apply to vortices, since usual Gaussian beams or even arbitrary ring-shaped profiles with equivalent powers decay into filaments much more rapidly (see also [40]). To support this assessment, Fig. 10 endly illustrates the filamentation of a noisy 3D Gaussian pulse with power and waist analogous to the singly-charged vortex mode. We clearly see that no off-axis modulation emerges, as expected for low-power Gaussians [43,45]. Instead, the beam focuses over relatively short distances (< 48 m) at center, where a narrow bright soliton results from the saturation of the Kerr response by air molecule ionization. Figure 10(b) details its temporal compression induced by the defocusing action of the electron plasma.

6 Conclusion

In this paper, we studied different propagation geometries by shaping the input profiles of ultrashort laser pulses. We investigated the possibility to control their small-scale filamentation through specific transverse distributions. To elucidate the key parameters dictating the modulational instability, we simulated simple geometrical waveforms, as waves exhibiting polygonal stru-

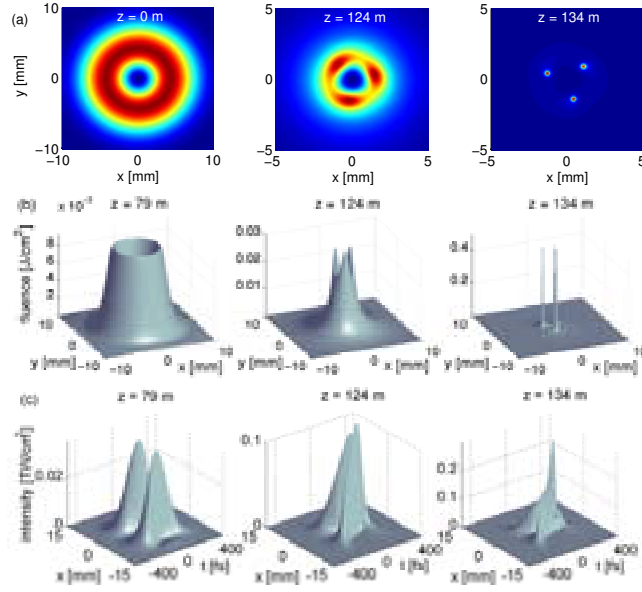


Fig. 8. (a) Images of $m = 1$ vortex fluences with 3 mm waist and 250 fs duration computed from Eqs. (1-3) for $P_1 = 9P_{\text{cr}}$, (b) surface plots at analogous distances, except the first one detailing a nonlinear vortex at $z = 79$ m. (c) Temporal profiles.

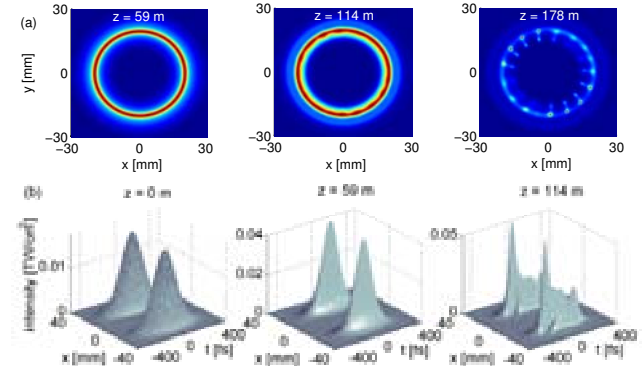


Fig. 9. (a) Images of $m = 6$ vortex fluences with 3 mm waist and 250 fs duration computed from Eqs. (1-3) for $P_6 = 69.6P_{\text{cr}}$, and (b) pulse distortions in the plane $(x, y = 0, t)$. Note the changes of scales and propagation distances.

cures entailing sharp gradients. The propagation of SuperGaussian beams was also examined. Those special optical distributions, experimentally achievable by using slits or diaphragms, were shown to create regularly-spaced filaments on their edges, after meter-range propagation distances at high power levels. They enabled us to discriminate which analytical evaluations hold, among

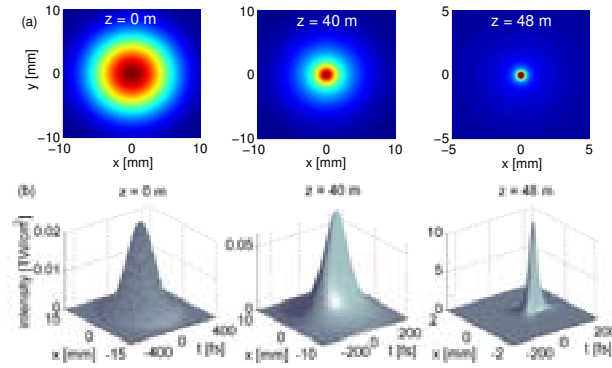


Fig. 10. (a) Fluences and (b) temporal profiles for a 8.5 mm, 250 fs Gaussian pulse with $\sim 9P_{\text{cr}}$ and 10% random noise.

those delivered by the modulational instability theory for intense plane waves. Through two-dimensional cw models as well as three-dimensional equations accounting for temporal fluctuations, the number of small-scale filaments revealed by numerical integrations was found to be in convincing quantitative agreement with the simulation results. However, the filamentation onset distance z_{fil} predicted by the theory sensitively varies with the beam shape under consideration. It fits the numerical results all the more suitably as the input beam exhibits a spatial shape resembling a plane-wave distribution, such as, e.g., SuperGaussian flat-top profiles.

Next, we investigated the long-range propagation of femtosecond optical vortices, i.e. of vortex spatial beams which contain a power quantified by their topological charge and possess femtosecond, Gaussian distributions in time. Through simple models supported by a perturbation theory, we predicted the possibility to propagate these objects over hundreds of meters, before the beam breaks up into a finite number of filaments computable analytically. Theoretical results were confirmed by numerical simulations discarding time evolu-

tion in air. Spatial vortices emerged as remarkably robust optical structures from the 2D averaged-in-time equation. This property was found to persist in (3+1)-dimensional geometry involving temporal variations, provided that time dispersion be rejected to large enough distances. These new objects begin to be produced experimentally [32]. They open promising perspectives in remote sensing techniques, employing femtosecond filaments to probe aerosol as well as solid targets upon long distances.

Acknowledgments: The authors thank Dr. Ph. Sprangle and Dr. I. Mariyenko for fruitful discussion.

References

- [1] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou, *Opt. Lett.* **20**, 73 (1995).
- [2] E.T.J. Nibbering, P.F. Curley, G. Grillon, B.S. Prade, M.A. Franco, F. Salin, and A. Mysyrowicz, *Opt. Lett.* **21**, 62 (1996).
- [3] B. Lafontaine, F. Vidal, Z. Jiang, C.Y. Chien, D. Comtois, A. Desparois, T.W. Johnston, J.-C. Kieffer, H. Pépin, and H.P. Mercure, *Phys. Plasmas* **6**, 1615 (1999).
- [4] J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf, and L. Wöste *Science* **301**, 61 (2003).
- [5] S. Tzortzakis, L. Bergé, A. Couairon, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 5470 (2001).

- [6] A. Couairon, S. Tzortzakis, L. Bergé, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, *J. Opt. Soc. Am. B* **19**, 1117 (2002).
- [7] P. Sprangle, J. R. Peñano, and B. Hafizi, *Phys. Rev. E* **66**, 046418 (2002).
- [8] A. Vinçotte and L. Bergé, *Phys. Rev. A* **70**, 061802 (2004).
- [9] N. Aközbek, C. M. Bowden, A. Talebpour, and S. L. Chin *Phys. Rev. E* **61**, 4540 (2000).
- [10] N. Aközbek, M. Scalora, C. M. Bowden, and S. L. Chin *Opt. Comm.* **191**, 353 (2001).
- [11] L. Bergé, S. Skupin, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon, and J.-P. Wolf, *Phys. Rev. E* **71**, 016602 (2005).
- [12] G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, E. Salmon, S. Frey, J.-P. Wolf, S. Skupin, A. Vinçotte, R. Nuter, S. Champeaux, and L. Bergé, *Phys. Rev. E* **72**, 026611 (2005).
- [13] G. Fibich and B. Ilan, *Phys. Rev. E* **67**, 036622 (2003).
- [14] G. Méchain, A. Couairon, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 035003 (2004).
- [15] V.P. Kandidov, N. Aközbek, O.G. Kosareva, A.V. Nyakk, Q. Luo, S.A. Hosseini, and S.L. Chin, *Appl. Phys. B* **80**, 267 (2005).
- [16] V.I. Kruglov and R.A. Vlasov, *Phys. Lett. A* **111**, 401 (1985).
- [17] V.I. Kruglov, Yu.A. Logvin, and V.M. Volkov, *J. Mod. Opt.* **39**, 2277 (1992).
- [18] M. Quiroga-Teixeiro and N. Michinel, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2004 (1997).
- [19] V.I. Berezhiani, V. Skarka, and N.B. Aleksić, *Phys. Rev. E* **64**, 057601 (2001).
- [20] H. Michinel, J.R. Salgueiro, and J. Paz-Alonso, *Phys. Rev. E* **70**, 066605 (2004).

- [21] D. Mihalache, D. Mazilu, B.A. Malomed, and F. Lederer, *Phys. Rev. E* **69**, 066614 (2004).
- [22] W.J. Firth and D.V. Skryabin, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2450 (1997).
- [23] D. Mihalache, D. Mazilu, L.-C. Crasovan, B.A. Malomed, F. Lederer, and L. Torner, *Phys. Rev. E* **68**, 046612 (2003).
- [24] I. Towers, A.V. Buryak, R.A. Sammut, B.A. Malomed, L.-C. Crasovan, and D. Mihalache, *Phys. Lett. A* **288**, 293 (2001).
- [25] A.S. Desyatnikov, Yu.S. Kivshar, and L. Torner, *Prog. in Opt.* **47**, 291 (2005).
- [26] V. Skarka, N.B. Aleksić, and V.I. Berezhiani, *Phys. Lett. A* **319**, 317 (2003).
- [27] N.N. Rosanov, S.V. Fedorov, and A.N. Shatsev, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 053903 (2005).
- [28] D. Mihalache, D. Mazilu, L.-C. Crasovan, I. Towers, A.V. Buryak, B.A. Malomed, L. Torner, J.P. Torres, and F. Lederer, *Phys. Rev. Lett* **88**, 073902 (2002).
- [29] D. Mihalache, D. Mazilu, L.-C. Crasovan, B.A. Malomed, F. Lederer, and L. Torner, *J. Opt. B* **6**, S333 (2004).
- [30] V. Tikhonenko, J. Christou, and B. Luther-Davies, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 2046 (1995).
- [31] V. Tikhonenko, J. Christou, and B. Luther-Davies, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2698 (1996).
- [32] I.G. Mariyenko, J. Strohaber, and C.J.G.J. Uiterwaal, *Opt. Express* **13**, 7599 (2005).
- [33] M. Santarsiero and R. Borghi, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, 188 (1999).

- [34] L. Guyon, F. Courvoisier, V. Boutou, R. Nuter, A. Vinçotte, S. Champeaux, L. Bergé, P. Glorieux, and J.-P. Wolf, *Phys. Rev. A* **73**, 051802(R) (2006).
- [35] M. Mlejnek, E.M. Wright, and J.V. Moloney, *Opt. Lett.* **23**, 382 (1998).
- [36] L. Bergé, S. Skupin, F. Lederer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J.P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou, and R. Sauerbrey, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 225002 (2004).
- [37] 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, and R. Sauerbrey, *Phys. Rev. E* **70**, 046602 (2004).
- [38] T.J. Alexander and L. Bergé, *Phys. rev. E* **65**, 026611 (2002).
- [39] J. Atai, Y. Chen, and J.M. Soto-Crespo, *Phys. Rev. A* **49**, R1370 (1994).
- [40] A. Vinçotte and L. Bergé, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 193901 (2005).
- [41] L. Bergé, C. Gouédard, J. Schjødt-Eriksen, and H. Ward, *Physica D* **176**, 181 (2003).
- [42] V.I. Bespalov and V.I. Talanov, *JETP Lett* **3**, 307 (1966).
- [43] L. Bergé, M.R. Schmidt, J. Juul Rasmussen, P.L. Christiansen, and K.Ø. Rasmussen, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2550 (1997).
- [44] A.J. Campillo, S.L. Shapiro, and B.R. Suydam, *Appl. Phys. Lett.* **23**, 268 (1973).
- [45] G. Fibich, S. Eisenmann, B. Ilan, Y. Erlich, M. Fraenkel, Z. Henis, A.L. Gaeta, and A. Zigler, *Opt. Express* **13**, 5897 (2005).
- [46] L. T. Vuong, T. D. Grow, A. Ishaaya, A. L. Gaeta, G. W. 't Hooft, E. R. Eliel, and G. Fibich, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 133901 (2006).
- [47] S. Champeaux and L. Bergé, *Pys. Rev. E* **71** 046604 (2005).

- [48] S.A. Hosseini, Q. Luo, B. Ferland, W. Liu, S.L. Chin, O.G. Kosareva, N.A. Panov, N. Aközbek, and V.P. Kandidov, *Phys. Rev. A* **70**, 033802 (2004).

Nous présentons différents aspects de la propagation d'impulsions laser ultra-courtes dans les milieux transparents. Tout d'abord, après avoir établi les équations de propagation à partir des équations de Maxwell, nous rappelons les principaux phénomènes physiques auxquels sont soumises les impulsions ultra-courtes et de forte puissance se propageant dans un milieu transparent. Celles-ci subissent de l'auto-focalisation causée par la réponse Kerr du milieu. Cette auto-focalisation est stoppée par la création d'un plasma produit par l'ionisation photo-nique des molécules du milieu. La propagation de l'onde laser génère aussi un supercontinuum par auto-modulation de phase. Enfin, on rappelle les principaux résultats concernant la filamentation simple ou multiple de l'onde provenant des inhomogénéités du faisceau et qui a lieu lorsque la puissance initiale du laser est supérieure au seuil d'auto-focalisation. Dans une deuxième partie, nous nous intéressons à l'influence de non-linéarités optiques d'ordre élevé sur la propagation de l'onde et sur la figure de filamentation créée. Dans une troisième partie, afin de contrôler la filamentation multiple, nous analysons la propagation de faisceaux particuliers: les impulsions optiques femtosecondes avec gradient fort et les vortex. Nous justifions les propriétés de robustesse de ces derniers type d'objets optiques. Enfin, nous examinons la filamentation multiple d'impulsions ultra-courtes à travers une chambre à brouillard, et dans les cellules d'éthanol dopées à la coumarine, pour différentes configurations du faisceau.

Nonlinear propagation of ultrashort laser pulses in transparent media

We present different aspects of the propagation of ultrashort laser pulses in transparent media. First, we derive the propagation equations starting from the Maxwell equations. We remind of the main physical phenomena undergone by ultrashort and powerful laser pulses. First self-focusing occurs, owing to the Kerr response of the medium. This self-focusing is stopped by plasma generation from the laser-induced ionization of the ambient atoms. The propagation of the wave generates a supercontinuum through self-phase modulation. We recall the main results concerning the simple and multiple filamentations of an intense wave, induced by the beam inhomogeneities and which take place as soon as the beam power is above critical. In a second part, we investigate the influence of high-order nonlinearities on the propagation of the beam and especially on its filamentation pattern. To control the multifilamentation process, we investigate in a third part the propagation of beams with special designs, namely; Gradient- and vortex-shaped beams. We justify the robustness of this latter kind of optical objects. Eventually, we investigate multifilamentation patterns of femtosecond pulses in a fog tube and in cells of ethanol doped with coumarine, for different beam configurations.

Discipline: Physique non-linéaire

Mots-Clés:

Equation de Schrödinger non-linéaire
femtoseconde
auto-focalisation
ionisation
filamentation
non-linéarité saturante
vortex optique
multifilamentation

Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) Département de Physique Théorique
et Appliquée

B.P. 12,
91680 Bruyères-le-Châtel,

FRANCE