

### Caractérisation spatio-temporelle d'une chaîne laser à 32.8 nm par plasma laser et perspectives vers une source ultrabrève et intense

F. Tissandier

### ► To cite this version:

F. Tissandier. Caractérisation spatio-temporelle d'une chaîne laser à 32.8 nm par plasma laser et perspectives vers une source ultrabrève et intense. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Ecole Polytechnique X, 2011. Français. NNT: . pastel-00604362

### HAL Id: pastel-00604362 https://pastel.hal.science/pastel-00604362

Submitted on 28 Jun 2011

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

### THÈSE DE DOCTORAT DE L'ECOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : LASERS ET MATIÈRE

Présentée par

### M. FABIEN TISSANDIER

Pour obtenir le grade de

### DOCTEUR DE L'ECOLE POLYTECHNIQUE

Sujet de thèse :

Caractérisation spatio-temporelle d'une chaîne laser à 32.8 nm par plasma laser et perspectives vers une source ultrabrève et intense



Soutenue publiquement le 21 mars 2011 devant le jury composé de:

M. Pierre Chavel M. Bertrand CARRÉ Mme Marie-Emmanuelle COUPRIE M. François AMIRANOFF M. Gilles MAYNARD M. Bedřich RUS M. Stéphane SEBBAN Président Rapporteur Rapporteur Examinateur Examinateur Examinateur Directeur de thèse

Thèse préparée au Laboratoire d'Optique Appliquée (CNRS UMR 7639)









## Remerciements

Ce travail de thèse, bien que personnel, a été rendu possible grâce à l'aide et au support de nombreuses personnes, au Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA) et en dehors. Je voudrais ici remercier toutes ces personnes qui m'ont entouré pendant ces trois dernières années.

Mes premiers remerciements vont à Gérard Mourou et Antoine Rousse, directeurs successifs du LOA, pour m'avoir accueilli pendant trois ans, et même un peu plus. Merci également aux membres du jury, en particulier les rapporteurs Marie-Emmanuelle Couprie et Bertrand Carré pour leur lecture attentive de ce long manuscrit et l'intérêt qu'ils y ont porté. Merci à François Amiranoff d'avoir en premier lieu accepté la tache de rapporter ma thèse, bien que ce ne fut finalement pas possible, et merci également à Bedřich Rus d'avoir fait un aller-retour express depuis Prague pour assister à ma soutenance. Merci encore à Gilles Maynard d'avoir fait partie de mon jury, mais aussi pour sa connaissance encyclopédique des plasmas, pour les discussions que nous avons pu avoir et pour la collaboration très fructueuse mise en place pendant ces trois dernières années. J'ai pu entre autres enrichir significativement les résultats expérimentaux obtenus grâce à son support et à la mise à disposition des codes numériques du LPGP. Merci enfin au président du jury Pierre Chavel, qui, après avoir été mon professeur à l'institut d'Optique, a pu voir appliquées les connaissances optiques d'un Supopticien aux plasmas et rayons X.

Je tiens bien entendu à exprimer ma profonde gratitude à Stéphane Sebban, mon directeur de thèse, tant sur le plan professionnel que sur le plan personnel. Il s'est toujours montré attentif, impliqué et dynamique et m'a fait découvrir avec passion tout un domaine de la physique, sans compter sa connaissance des subtilités du monde de la recherche. Merci également pour toutes les discussions que nous avons pu avoir.

Travailler au sein du groupe SCX, devenu PHARE, puis FLEX, a été très agréable et je remercie donc tous les membres de ce groupe. Constance Valentin, entre temps partie pour Lille, Davide Boschetto, Kim Ta Phuoc, font partie des personnes que j'ai eu plaisir à côtoyer au LOA. Merci aussi à Julien Gautier pour sa motivation (surtout pour le sport!), sa disponibilité et sa bonne humeur, et pour tous les trajets effectués en voiture, notamment à 2h du matin après les manips. Merci encore à Philippe Zeitoun pour ses connaissances et ses conseils.

Je voudrais également remercier tous les membres du LOA avec qui j'ai eu l'opportunité de travailler :

- les indispensables membres de la cellule, et en particulier Denis, Thierry, Greg, Marco et Cédric
- les non moins indispensables Charly et Mickaël de l'atelier de mécanique

- Fatima et Pierre du service info, ainsi qu'Alain pour l'ENSTA
- Octavie, Sandrine, Valérie et Claudine du secrétariat pour leur efficacité dans bien des domaines
- la czech connection Misha, Jarda et Tomáš, tous au moins passés par le labo à un moment ou à un autre
- et bien sûr Jean-Philippe, thésard de la cuvée précédente, entre autres pour son aide au montage de la manip la plus lourde du labo

Un grand merci également à mes amis et collègues de bureau Anna, Eduardo, Guillaume et Tatiana pour les bons moments passés au labo et en dehors, ainsi qu'à tous ceux que je n'ai pas encore cités et qui ont contribué à rendre ce séjour fort sympathique : Fabio, Mina, François, Alessandro, Romuald, Julien, Guillaume et Jean-Philippe, et ceux que j'ai fatalement oubliés.

Merci beaucoup à Barbie, Estelle, Salma, Gabriel, Stéphane, Marie-Marguerite et Jacques de s'être déplacés jusqu'à Palaiseau pour ma soutenance, et pour l'aide apportée à la préparation du pot. Merci aussi à Monique d'avoir pu se libérer pour venir de Bruxelles. Merci à ma famille, et particulièrement à ma mère, mon père et mon oncle venus assister à la soutenance.

Merci infiniment enfin à Hélène qui a réussi à me supporter pendant cette période, malgré mes retours de manip parfois très tardifs et mon emploi du temps plutôt erratique. Cette thèse est pour toi.

# Table des matières

### Introduction

1	Inti	oduct	ion aux sources XUV cohérentes	5	
	1.1	Les la	sers à électrons libres	6	
	1.2	Les sources XUV cohérentes par génération d'harmoniques d'ordres élevés d'un laser			
		visible	e/IR	9	
		1.2.1	Génération d'harmoniques dans un plasma issu d'une cible solide : miroir		
			plasma	10	
		1.2.2	Génération d'harmoniques dans un gaz monoatomique	12	
	1.3	Les so	ources laser XUV par interaction laser-plasma	21	
		1.3.1	Introduction et historique	21	
		1.3.2	Schémas de pompage de l'inversion de population	22	
		1.3.3	Évolution des lasers XUV collisionnels et état de l'art	25	
		1.3.4	Applications des lasers XUV	33	
	1.4	Concl	usion	34	
<b>2</b>	Phy	sique	des amplificateurs XUV collisionnels crées par laser femtoseconde	37	
	2.1	Milieu	amplificateur laser et cas particulier du krypton nickelloïde	38	
		2.1.1	Émissivité et coefficient de gain	38	
		2.1.2	Le milieu amplificateur	39	
		2.1.3	Transfert radiatif	42	
		2.1.4	Largeur spectrale	45	
	2.2	Intera	ction laser-gaz à haute intensité	46	
		2.2.1	Les différents types d'ionisation par le champ laser	47	
		2.2.2	Taux d'ionisation tunnel et degré d'ionisation final atteint	51	
		2.2.3	Distribution électronique des électrons OFI	53	
		2.2.4	Distribution énergétique des ions	54	
	2.3	Cinéti	ique du plasma	55	
		2.3.1	Équilibre thermodynamique du plasma	55	
		2.3.2	Évolution de la température ionique	56	
		2.3.3	Modèle de cinétique 0D	58	
		2.3.4	Cinétique des électrons	60	
		2.3.5	Évolution des populations atomiques et gain de l'amplificateur	62	
	2.4	Propa	gation et réfraction du champ laser dans le plasma	64	
		2.4.1	Équation de propagation paraxiale	64	
		2.4.2	Propagation de faisceaux gaussiens dans le vide	65	
		2.4.3	Propagation dans un plasma	66	
	2.5	Conch	usion	72	

1

3	Réalisation et caractérisation d'un amplificateur XUV OFI par injection d'har-					
	mor	nique		73		
	3.1	L'insta	allation laser infrarouge	74		
	3.2	L'expé	érience d'injection d'harmonique dans l'amplificateur laser XUV	76		
		3.2.1	Génération de l'amplificateur	76		
		3.2.2	Génération du rayonnement harmonique et couplage	79		
		3.2.3	Diagnostics	81		
	3.3	Caract	térisation de l'amplification	84		
		3.3.1	Mesure de l'amplification	84		
		3.3.2	Paramètres influant sur les qualités amplificatrices du plasma	87		
	3.4	Conclu	usion	97		
4	Car	actéris	ation spatiale du laser XUV en régime injecté	99		
	4.1	Caract	térisation spatiale du faisceau XUV : expériences et mesures caractéristiques	100		
		4.1.1	Le profil transverse en champ lointain du faisceau	100		
		4.1.2	Mesure de l'énergie des impulsions XUV	104		
		4.1.3	Stabilité de pointé - influence du pointé du faisceau harmonique sur le profil			
			spatial du faisceau iniecté	104		
		4.1.4	Front d'onde des faisceaux XUV harmonique et harmonique amplifiée	105		
		4.1.5	Influence de la longueur de la cellule sur le profil spatial et le front d'onde			
		1.1.0	du faisceau	109		
		4.1.6	Effet de la densité de l'amplificateur	111		
		4.1.7	Cohérence spatiale des différentes sources	115		
		418	Influence du gain de l'amplificateur sur le profil spatial et le front d'onde du			
		11110	laser injecté : délai d'injection	118		
		4.1.9	Influence de l'intensité de pompe sur la distribution d'énergie du laser injecté	110		
			par harmonique	121		
		4.1.10	Particularités du régime de haute intensité	124		
	4.2	Modél	isation de l'amplification du faisceau harmonique par le plasma	128		
		4.2.1	Un modèle simple de filtrage par le gain de l'amplificateur	128		
		4.2.2	Présentation d'un modèle numérique semi-3D	132		
		4.2.3	Premiers résultats de modélisation	133		
		4.2.4	Allure de la zone de gain et profil du faisceau en champ lointain	137		
	4.3	Conclu	usion	143		
<b>5</b>	Étu	de du	profil spectral et temporel du laser à 32.8 nm en régime injecté	145		
	5.1	Ampli	fication d'un champ dans le domaine XUV	146		
		5.1.1	Les équations de Maxwell-Bloch	147		
		5.1.2	Résultats 1D : allure temporelle de l'harmonique amplifiée	151		
		5.1.3	Simulations semi-3D	154		
	5.2	Princi	pe de la mesure de cohérence temporelle	156		
		5.2.1	Mesure par interférométrie à différence de marche variable	156		
		5.2.2	Interféromètre à bi-dièdres de Fresnel	157		
		5.2.3	Détermination de la cohérence temporelle	159		
	5.3	Largeu	ır spectrale du laser XUV en régime injecté et ASE	162		
		5.3.1	Cohérence temporelle, largeur spectrale et durée d'impulsion	162		
		5.3.2	Modélisation	163		
		5.3.3	Rétrécissement spectral par le gain laser	165		

		5.3.4 Etude de l'influence de différents paramètres	171								
	5.4	Conclusion	177								
6	Ver	s un laser XUV à haute intensité dans un plasma quasi-critique	181								
	6.1	Introduction et enjeux	182								
	6.2	Guide plasma créé par laser	184								
		6.2.1 Principe	184								
		6.2.2 Mise en forme du plasma par las er par le schéma dit "ignitor + heater"	186								
	6.3	Dispositif expérimental	188								
		6.3.1 L'axicon : principe et propriétés	188								
		6.3.2 Génération de l'amplificateur laser	189								
		6.3.3 Diagnostics	192								
	6.4	Résultats expérimentaux	193								
		6.4.1 Génération du canal plasma	194								
		6.4.2 Transmission du guide d'onde	196								
		6.4.3 Guidage de l'impulsion pompe et effet laser	198								
		6.4.4 Autofocalisation relativiste et effet laser	201								
	6.5	Conclusion	203								
Co	Conclusion générale et perspectives 205										
$\mathbf{A}$	From	nt d'onde d'un faisceau et aberrations	209								
в	B Cohérence optique										
$\mathbf{C}$	C Équation paraxiale et modes de propagations dans le vide										
D	) Guide plasma préformé par laser										
Bi	Bibliographie 2										

## Introduction

La découverte du rayonnement laser au début des années 1960 a révolutionné de nombreux domaines de la physique et a permis de multiples applications dans la vie quotidienne. Pour des raisons technologiques, les longueurs d'onde habituelles des lasers se situent dans le visible, l'infrarouge ou l'ultraviolet. L'intérêt de développer des sources analogues dans le domaine de l'extrême ultraviolet (XUV) n'est néanmoins plus à démontrer. Les sources de rayonnement cohérent X et XUV intense sont en effet récemment devenues des outils essentiels de la recherche fondamentale et des applications. Cette thématique est longtemps restée liée à la recherche et aux applications des lasers de haute intensité, mais l'émergence entre autres des lasers à électrons libres X va permettre de l'élargir à la communauté des synchrotrons et autres accélérateurs. Les installations déjà existantes ou en préparation permettent maintenant d'atteindre des brillances crêtes de plusieurs ordres de grandeur supérieures à celles des sources plus conventionnelles et ouvrent ainsi de nouvelles voies de recherche encore peu ou pas explorées telles que l'environnement, la chimie, l'optique non-linéaire ou la création d'états exotiques de la matière. Ces nouvelles sources souffrent néanmoins de coûts de mise en œuvre et de maintenance très élevés, et d'un accès restreint. Il est donc toujours une nécessité d'explorer des possibilités de développement de sources laser XUV fiables plus compactes et moins coûteuses, tout en gardant des performances voisines. Dans le domaine des sources cohérentes de courte longueur d'onde (1-50 nm) auquel nous nous sommes particulièrement intéressés, on distingue essentiellement trois axes de recherche : les lasers à électrons libres, les harmoniques d'ordres élevés, et les lasers XUV.

Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse s'inscrivent dans ce contexte et concernent plus particulièrement l'étude d'une géométrie de laser XUV visant à reproduire dans le domaine des rayons XUV le schéma classique "oscillateur + amplificateur" des lasers de puissance dans le domaine du proche infrarouge. L'oscillateur est dans ce cas composé d'une harmonique d'ordre élevé d'un laser de pompe infrarouge et l'amplificateur est un plasma en inversion de population créé par une impulsion ultra-intense. Ce schéma a été proposé dès 1995 par T. Ditmire avec des résultats peu concluants. Son efficacité a été démontrée expérimentalement en 2004 au Laboratoire d'Optique Appliquée avec un amplificateur plasma créé par interaction entre un laser intense et un milieu gazeux. Les propriétés spatiales du faisceau laser XUV produit à une longueur d'onde de 32.8 nm s'en sont trouvées remarquablement améliorées, et l'énergie par impulsion augmentée.

On s'intéressera notamment aux paramètres influant sur la génération de la source. Nous verrons en effet que la méthode de création du plasma permet un contrôle précis des caractéristiques de l'amplificateur laser, et par conséquent des caractéristiques du rayonnement émis. La longueur du milieu laser, son gain ou son intensité de saturation peuvent notamment être changés de manière quasi-indépendante. La dynamique temporelle du gain est de même un paramètre important qui a pu être étudié grâce à la technique d'injection d'harmonique.

Un intérêt majeur de cette technique étant l'amélioration des qualités spatiales du faisceau, une partie conséquente de ce travail y a été consacrée. Nous considèrerons le profil spatial du faisceau, ses propriétés de cohérence et son front d'onde afin de souligner l'importance de l'injection d'harmonique dans le milieu amplificateur. Nous chercherons également à faire le lien entre la production du plasma et les caractéristiques spatiales du faisceau obtenu par amplification d'harmonique.

Le développement de sources cohérentes XUV émettant des impulsions de courte durée est un axe majeur de la recherche dans cette communauté. Par l'intermédiaire de mesures expérimentales ou de codes numériques, nous chercherons donc à caractériser les impulsions produites dans le domaine temporel et dans le domaine spectral.

Enfin, on cherchera à améliorer les caractéristiques de la source par d'autres méthodes. Audelà des caractéristiques spatiales d'un faisceau, l'intensité focalisable est un paramètre important pour les applications. Nous proposons donc d'augmenter de manière significative la densité de l'amplificateur afin d'obtenir un gain et une intensité de saturation plus important. Nous verrons que ceci passera par le guidage du laser de pompe dans le plasma. Le guide d'onde sera crée également par laser, par une méthode éprouvée depuis le milieu des années 1990. Cette méthode de guidage et l'application à la création d'un amplificateur laser XUV n'ont en revanche jamais été réalisées dans le cas d'un plasma à une densité proche de la densité critique, ce que nous proposons de tester dans ce travail.

Le présent manuscrit s'articule autour de six chapitres décrits ci-dessous :

- Le chapitre 1 est consacré à une présentation générale des principales sources XUV cohérentes que sont les lasers à électrons libres, les harmoniques d'ordres élevés, et les lasers XUV. Nous détaillerons plus particulièrement les mécanismes de la génération d'harmoniques dans les gaz qui fait partie intégrante de ce travail de thèse, et nous nous attarderons sur les différents types de lasers XUV et les possibilités actuellement offertes par ces derniers. Nous pourrons ainsi cadrer plus précisément la problématique de cette thèse.
- Le chapitre 2 présente la physique de l'amplificateur XUV étudié pendant cette thèse, à savoir un plasma créé par le champ laser et siège d'une inversion de population pompée par les collisions électroniques. Nous présenterons les mécanismes d'ionisation en champ fort, de pompage collisionnel et l'évolution temporelle du plasma. Une partie des codes numériques utilisés sera également présentée dans ce chapitre.
- Le chapitre 3 donne la description du dispositif expérimental, et présente l'étude de l'influence des divers paramètres de génération sur l'intensité du laser XUV en régime injecté.
- Le chapitre 4 concerne la caractérisation spatiale du faisceau XUV. Nous expliquerons les améliorations observées sur le profil du faisceau, sa cohérence spatiale et son front d'onde qui a pu être mesuré à l'aide d'un senseur adapté au domaine XUV. Nous étudierons l'évolution de ces propriétés avec les paramètres de génération et ferons le lien entre la géométrie de l'amplificateur et le faisceau laser à 32.8 nm.
- Le chapitre 5 détaille les caractéristiques temporelles –étudiées à l'aide d'un code numérique– et spectrales des impulsions émises par cette source. La largeur spectrale et son évolution avec certains paramètres ont pu être déterminées par la mesure de la cohérence temporelle

de la source.

 Le chapitre 6 est consacré au développement de cet amplificateur laser afin d'augmenter l'intensité des impulsions XUV émises. On propose pour cela de générer un amplificateur à densité quasi-critique en guidant l'impulsion de pompe dans un canal plasma préformé par laser.

## Chapitre 1

# Introduction aux sources XUV cohérentes

### Sommaire

1.1 Les lasers à électrons libres	. 6
1.2 Les sources XUV cohérentes par génération d'harmoniques d'ordre	s
élevés d'un laser visible/IR $\dots \dots \dots$	. 9
1.2.1 Génération d'harmoniques dans un plasma issu d'une cible solide : mirc	oir
$\operatorname{plasma}$	. 10
1.2.2 Génération d'harmoniques dans un gaz monoatomique	12
1.3 Les sources laser XUV par interaction laser-plasma	. 21
1.3.1 Introduction et historique	. 21
1.3.2 Schémas de pompage de l'inversion de population	22
1.3.3 Évolution des lasers XUV collisionnels et état de l'art	. 25
1.3.4 Applications des lasers XUV	. 33
1.4 Conclusion	. 34

Le rayonnement électromagnétique dans le domaine XUV (Fig. 1.1) fait l'objet depuis plusieurs années de nombreux axes de recherche et développement. Il présente plusieurs intérêts. On peut notamment citer la bonne résolution offerte en imagerie ou holographie grâce à la courte longueur d'onde de ce rayonnement, la focalisation sur de petites dimensions pour les mêmes raisons, ou encore le défrichement de branches encore inexplorées de la physique de la matière. Ces applications nécessitent en général un flux de photons élevé, ce qui constitue un des axes majeurs de recherche sur ces sources. L'autre axe principal de recherche est l'obtention de rayonnement cohérent à des longueurs d'onde de plus en plus basses offrant d'autant plus de perspectives.



FIGURE 1.1 – Longueurs d'onde et énergies de photons du spectre électromagnétique, de l'infrarouge aux rayons X

Dans ce chapitre, nous présenterons les principales sources de rayonnement XUV cohérent afin de comprendre le contexte scientifique dans lequel s'inscrit cette thèse. Nous décrirons donc brièvement les lasers à électrons libres X ou XUV, les sources obtenues par génération d'harmoniques d'ordres élevés d'un laser visible ou infrarouge, et enfin les sources laser XUV basées sur l'interaction laser-plasma. Nous insisterons particulièrement sur les principes de génération d'harmoniques dans les gaz qui a fait partie intégrante des expériences réalisées durant cette thèse et sur les différents types de lasers XUV existants et leur évolution historique.

### 1.1 Les lasers à électrons libres

Les lasers à électrons libres (LEL, ou FEL pour *Free Electron Laser*) se basent sur le rayonnement, appelé rayonnement synchrotron, émis par un électron notamment lorsque celui-ci suit une trajectoire circulaire. Dans un synchrotron traditionnel [1], les électrons sont accélérés à des vitesses relativistes (jusqu'à quelques GeV) dans un anneau par un champ électrique, et déviés par un champ magnétique. Par le fait du fort décalage Doppler dû à la vitesse des électrons, le rayonnement émis peut atteindre les rayons X. Il n'est néanmoins pas cohérent.

Le principe du laser à électrons libres est de rendre le rayonnement synchrotron cohérent en le faisant interagir avec le faisceau d'électrons qui en est la source dans une structure magnétique périodique appelée onduleur (Fig. 1.2). Un onduleur permet de forcer les électrons à osciller transversalement et ainsi émettre un rayonnement électromagnétique. Les premiers travaux théoriques sur l'émission spontanée d'un tel système datent des années 1950 [2], de même que la première observation d'un rayonnement incohérent à des longueurs d'onde visibles et millimétriques [3]. Ce n'est que dans les années 1970 que tout l'intérêt de l'utilisation d'un onduleur est apparu lorsqu'il a été prédit un régime de gain faible dû à l'interaction entre le faisceau d'électrons et le rayonnement qu'il émet [4]. La première observation d'un effet laser dans le domaine infrarouge a suivi quelques années plus tard [5].

Les premiers LELs étaient constitués d'un unique onduleur placé dans une cavité optique. Leurs capacités d'extension aux fréquences XUV ou X sont limitées par le fait qu'il n'existe par de matériau convenable pour les miroirs de la cavité dans ces régions spectrales. En revanche, l'utilisation de courants électroniques plus élevés et de faisceaux d'électrons de faible émittance permet d'atteindre un régime dit de gain fort dans lequel la puissance du rayonnement émis augmente exponentiellement avec la distance parcourue par le faisceau d'électrons et l'onde émise. L'amplification LEL se fait alors en simple passage à travers plusieurs onduleurs. On appelle ce régime de fonctionnement SASE [6], pour *Self-Amplified Spontaneous Emission*, par analogie avec les lasers traditionnels.



FIGURE 1.2 – Principe du laser à électrons libres. Lorsque les électrons arrivent dans l'onduleur, ils ont une phase aléatoire et le rayonnement émis est incohérent. Ils interagissent alors avec ce rayonnement, ce qui cause une mise en paquets longitudinale (bunching) de la densité électronique. Les trains d'ondes émis le sont alors en phase et le rayonnement est amplifié de façon cohérente

Le gain LEL est par essence un processus de rétroaction positive (Fig. 1.2). Les électrons émettent un rayonnement qui affecte leurs positions (phase) et l'effet collectif revient à une modulation de la densité électronique dans la direction de propagation des faisceaux. Les électrons émettent alors le rayonnement en phase, qui devient plus intense et cohérent. Alors que le spectre du rayonnement synchrotron est relativement large, seules certaines longueurs d'onde interférent constructivement et peuvent être amplifiées dans un LEL. Ces longueurs d'onde  $\lambda_p$  sont données par :

$$\lambda_p = \frac{\lambda_0}{2p\gamma_0^2} \left( 1 + \frac{K^2}{2} \right)$$

où  $\lambda_0$  est la période de l'onduleur,  $\gamma_0$  l'énergie du faisceau d'électrons (normalisée par rapport à celle au repos) et K est un paramètre de l'onduleur fonction du champ magnétique appliqué et de sa période spatiale. La longueur d'onde fondamentale correspond à p = 1 et présente le plus fort gain. Pour p > 1, les longueurs d'onde sont appelée harmoniques non-linéaires et sont rayonnées à un niveau d'intensité de plusieurs ordres de grandeur inférieur à celui du fondamental.

Le rayonnement SASE fournit un faisceau de photons intense et de bonne cohérence transverse, mais ses propriétés de cohérence temporelle sont limitées. En effet, la génération du bruit de rayonnement synchrotron induit une mise en paquets qui intervient aléatoirement, à différentes positions du paquet. Les profils temporel et spectral de la lumière rayonnée sont composés de structures couramment appelées *spikes* et présentent d'importantes fluctuations statistiques.

Parmi tous les LEL X et XUV en fonctionnement actuellement, le plus emblématique et novateur est le LCLS [7] (Linac Coherent Light Source) à Stanford en Californie, mis en service en 2009. C'est le seul capable de fonctionner dans le domaine des rayons X "durs". En régime d'impulsions courtes (pour une intensité sur cible plus importante et des expériences résolues en temps), il est capable de délivrer des photons d'énergie entre 540 eV et 9 keV (soit une longueur d'onde entre 2.3 nm et 1.4 Å) dans des impulsions de 3 mJ maximum en quelques fs, le tout à une cadence de 60 Hz. D'autres projets de LEL dans le domaine X sont en cours : le European XFEL [8] en Allemagne et SCSS [9] au Japon.

Dans le domaine XUV, on peut citer FLASH [10] en Allemagne, délivrant des impulsions de plusieurs centaines de  $\mu$ J en quelques dizaines de fs à une longueur d'onde pouvant aller jusqu'à 3 nm. Pour des longueurs d'onde plus grandes (50 nm), SCSS Test Accelerator, au Japon, fournit des impulsions de quelques  $\mu$ J dans quelques centaines de fs. Dans le domaine VUV (160 nm), SPARC [11] en Italie fournit des impulsions comparables à celles de SCSS.

En contrepartie de leurs performances impressionnantes, ces installations sont nécessairement de grande taille (utilisation d'un accélérateur linéaire + des onduleurs), et encore plus particulièrement pour les LEL X. La figure 1.3 représente une vue aérienne du site où se situe LCLS à Stanford et une photographie du hall des onduleurs.



(a) Vue aérienne du site

(b) Hall des onduleurs (130 m d'onduleurs pour des photons à 9 keV)

### FIGURE 1.3 – Le LCLS à Stanford

Il est à noter que la technique d'injection d'harmonique qui fait l'objet de ce travail de thèse, proposée initialement dans le cas des lasers XUV par plasma, a été appliquée avec succès aux LEL [12]. Elle permet notamment d'utiliser une longueur d'onduleur totale plus courte pour obtenir le même nombre de photons en sortie (saturation plus vite atteinte), mais surtout de modifier radicalement la structure temporelle (non mesurée) et spectrale du rayonnement. La figure 1.4 [13], illustre ce phénomène en montrant l'effet de l'injection d'une impulsion harmonique d'énergie variable sur le spectre et l'énergie de l'impulsion finale. Il est à noter que les seuls LEL en service ayant été injectés par harmonique sont SCSS Test Accelerator et SPARC, l'injection sur FLASH étant en cours de réalisation).



FIGURE 1.4 – Comparaison des spectres du rayonnement LEL à SCSS en régime SASE ou injecté : (a) Mesure mono-tir avec deux onduleurs. La structure irrégulière (par ailleurs non totalement résolue dans le régime SASE) obtenue en régime SASE est lissée par l'injection et la largeur spectrale réduite en régime injecté (seeded). (b) Mesure mono-tir de l'énergie de l'impulsion LEL  $E_{FEL}$  avec un onduleur, en fonction de l'énergie de l'harmonique  $E_{seed}$ . Un niveau d'injection faible (90 pJ) suffit à obtenir un spectre gaussien

### 1.2 Les sources XUV cohérentes par génération d'harmoniques d'ordres élevés d'un laser visible/IR

Contrairement aux lasers à électrons libres qui sont des sources résultant de l'interaction entre un faisceau d'électrons et un rayonnement électromagnétique, la production de rayonnement harmonique est basée sur l'interaction laser-matière à haute intensité (et s'effectue donc sur des installations de taille bien plus modeste). Cette interaction hautement non-linéaire peut permettre dans certaines conditions que nous expliciterons l'émission d'un rayonnement constitué, comme son nom l'indique, de plusieurs fréquences multiples de la fréquence  $\omega$  de l'onde laser génératrice. Les processus physiques mis en jeu peuvent différer selon le milieu de génération (solide ou gaz). Pour les expériences présentées dans ce manuscrit, c'est dans un gaz rare que les harmoniques ont été générées. Nous traiterons donc d'abord brièvement le cas de la génération d'harmoniques à partir d'une cible solide, puis celui des harmoniques générées dans les gaz monoatomiques.

# 1.2.1 Génération d'harmoniques dans un plasma issu d'une cible solide : miroir plasma

La première observation de la génération d'harmoniques d'un laser par interaction avec une cible solide a eu lieu en 1977 [14]. Le laser utilisé était alors un laser CO<sub>2</sub> ns focalisé à un éclairement relativement modeste de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Suivirent rapidement l'observation d'harmoniques d'un laser Nd : verre [15]. Pour ces expériences et les suivantes jusque dans les années 1980, une théorie étendue [16] à partir de l'étude de la génération de seconde harmonique dans un plasma inhomogène [17] suffisait à l'interprétation des résultats. En 1996, des simulations numériques [18] et des expériences [19] liées à l'utilisation de lasers fs intenses ont montré la production d'harmoniques de fréquences supérieures à la fréquence plasma, phénomène non prévu par les précédentes théories. La génération de ces harmoniques en régime relativiste ( $I > 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>) a été expliquée de manière intuitive dans [20], par l'interaction du laser avec un miroir oscillant relativiste. La figure 1.5 donne le principe de la génération du point de vue expérimental [21].



FIGURE 1.5 – Schéma expérimental de génération d'harmoniques sur cible solide

Pour des éclairements relativement faibles (non relativistes), le mécanisme de génération est l'émission cohérente de sillage [22]. Son principe est schématisé sur la figure 1.6, tirée de la même référence. En focalisant un laser intense fs à 45° sur une cible, on crée avec le début de l'impulsion un plasma sur-critique qui, s'il présente un gradient de densité suffisamment court devant la longueur d'onde du laser et une surface de bonne "qualité optique", peut réfléchir le reste de l'impulsion tel un miroir. On parle alors de miroir plasma. L'impulsion arrivant sur le miroir plasma arrache alors des électrons à ce dernier (électrons de Brunel [23]). Ces électrons gagnent de l'énergie dans le champ laser puis sont renvoyés vers le plasma dans lequel ils tendent à former des pics de densité attosecondes. Du fait de l'incidence oblique, la superposition des pics formés à différents points de la surface résulte en un front de densité oblique qui se propage dans le plasma. Ce front schématisé en jaune sur le panneau (c) excite des oscillations plasmas, visibles en (d). Un accord de phase transitoire et local peut alors se produire entre ces oscillations plasma et les modes électromagnétiques du plasma, rendant possible l'émission de rayonnement XUV [22]. Une impulsion attoseconde est ainsi émise durant chaque cycle, et on observe des harmoniques (paires et impaires) du laser dans le spectre. Le rayonnement harmonique étant généré par des oscillations plasma, il ne peut par conséquent contenir aucune fréquence supérieure à la fréquence plasma. Il a en revanche récemment été montré que ce mécanisme peut être fortement efficace dans la gamme 30-40 nm [24].



FIGURE 1.6 – Différentes étapes de l'émission cohérente de sillage : (a) les électrons autour de la surface critique sont arrachés au plasma par le laser. (b) Les électrons de Brunel sont alors renvoyés vers le plasma puis (c) ils se propagent dans le plasma en formant des pics de densité de durée attoseconde. (d) Ils excitent alors des oscillations plasma qui rayonnent en émettant une impulsion attoseconde par cycle

Lorsque l'éclairement laser augmente, la vitesse des électrons oscillant dans le champ s'approche de celle de la lumière. Le champ laser est alors réfléchi par un miroir plasma dont la surface oscille à une vitesse relativiste. Sa phase subit donc des modulations ultra-rapides et des harmoniques apparaissent dans son spectre. On peut également voir cet effet comme un effet Doppler périodique causé par la vitesse d'oscillation du miroir. Ce mécanisme, appelé miroir oscillant relativiste [25], est fortement lié à l'éclairement laser causant les oscillations de la surface du plasma et permet ainsi d'atteindre des ordres harmoniques très élevés.



FIGURE 1.7 – Spectres harmoniques obtenus à partir d'un cible de plastique (en bleu et rouge) et de verre (noir)

La figure 1.7 tirée de l'article [22] permet d'illustrer la présence des deux régimes de génération d'harmoniques. Les spectres en bleu et en rouge représentent les spectres harmoniques émis par un plasma issu d'une cible de plastique pour deux intensités laser différentes. On constate que pour un éclairement de  $3 \times 10^{18} \,\mathrm{W/cm^2}$ , le plus grand ordre harmonique atteint est 15, alors que les ordres supérieurs correspondant aux harmoniques relativistes sont émis pour un éclairement de  $8 \times 10^{18} \,\mathrm{W/cm^2}$ . Le spectre en noir correspond au rayonnement émis en régime d'émission cohérente de sillage par un plasma issu d'une cible de silice. Le plus grand ordre observé est 20 car la densité électronique du plasma, et donc sa fréquence propre, est plus importante.

Ce domaine de recherche est très récent, et les sources d'harmoniques par miroir plasma sont encore au stade du développement. Il n'y a pas actuellement d'applications à proprement parler. La possibilité de travail à des taux de répétition élevés offre néanmoins des perspectives très attrayantes pour le futur. L'équipe de R. Lopez-Martens au LOA travaille notamment à la production d'une source harmonique de ce type à une cadence de 1 kHz.

### 1.2.2 Génération d'harmoniques dans un gaz monoatomique

Expérimentalement, la production de l'harmonique 3 dans un milieu gazeux a été démontrée en 1967 [26] et les ordres harmoniques maximaux sont restés inférieurs à 9 jusqu'à la fin des années 1970 [27]. Des ordres harmoniques de plusieurs dizaines ont été mis en évidence dans les années 1980/90 en utilisant des lasers de courte durée d'impulsion (centaines de ps) donc plus intenses. L'ordre 300 a été atteint en 1997 [28]. Parallèlement à la recherche d'ordres toujours plus élevés, les efficacités de conversion (de l'énergie laser en énergie harmonique) n'ont cessé d'augmenter, notamment récemment en implémentant des schémas d'accord de phase [29] [30] [31] ou de quasiaccord de phase [32] [33], en utilisant un champ laser à 2 couleurs (schéma dit " $\omega + 2\omega$ "), en accordant les raies harmoniques à des résonances ioniques [34] ou en générant des harmoniques de surface [35]. Une efficacité de conversion  $10^{-4}$  pour les harmoniques du plateau (explicité plus loin) a pu être obtenue à l'aide de ces méthodes. Les intensités nécessaires à la production d'harmoniques dans les gaz étant relativement modestes, l'utilisation de lasers de pompe à taux de répétition élevés est possible. Beaucoup d'installations de par le monde fonctionnent donc à une cadence kHz, et une équipe du CELIA à Bordeaux a récemment démontré la génération au MHz [36].



FIGURE 1.8 – Schéma expérimental de génération d'harmoniques dans un gaz monoatomique

Le rayonnement harmonique d'un laser intense est généré dans un gaz en y focalisant ce laser à des intensités de l'ordre de  $10^{13} - 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Le principe est illustré sur la figure 1.8. Afin de bien comprendre le phénomène de la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans un gaz, il faut considérer deux aspects. Du point de vue microscopique, l'émission est due à la réponse hautement non-linéaire d'un atome à un champ intense. Du point de vue macroscopique, le rayonnement émis est l'addition cohérente des champs émis par les atomes du milieu. La description globale de la génération comprend donc d'une part la réponse de l'atome à un champ intense et d'autre part l'accord de phase entre et le champ harmonique et la polarisation du milieu induite par le champ laser .

#### Réponse de l'atome unique et loi de coupure

Il existe plusieurs manières de décrire le phénomène de génération d'harmoniques dans un gaz monoatomique par un champ basse fréquence. Le modèle le plus utilisé est le modèle dit "semiclassique", proposé en 1993 [37] puis généralisé par Lewenstein *et al.* dans le cadre de la mécanique quantique [38]. Ce modèle, également dit à trois étapes, est schématisé sur la figure 1.9.



FIGURE 1.9 – Le modèle de génération d'harmonique à 3 étapes : (a) ionisation tunnel, (b) accélération de l'électron dans le champ et (c) recombinaison sur l'état fondamental avec émission d'un photon

#### 1. Introduction aux sources XUV cohérentes

La première étape (Fig. 1.9(a)) consiste en l'ionisation de l'atome par effet tunnel (cf chapitre 2), le franchissement de la barrière de potentiel vue par l'électron étant rendu possible par l'abaissement de cette barrière (qui est alors de longueur finie) par le champ électrique intense. C'est un phénomène rapide (fs) devant la fréquence du champ infrarouge. L'électron est ensuite accéléré dans le champ laser (Fig. 1.9(b)) et ne ressent pratiquement plus l'effet du potentiel attracteur du noyau (négligé dans l'approximation du champ fort). Lorsque le signe du champ électrique change, il est décéléré et selon l'instant auquel il a été arraché à l'atome, peut revenir au voisinage de x = 0 ou effectuer des oscillations longitudinales en s'éloignant de l'ion parent. Si l'électron repasse au voisinage de l'origine, il peut se recombiner avec l'ion parent et émettre un photon (Fig. 1.9(c)). L'énergie du rayonnement émis est déterminée par l'énergie cinétique  $E_c$  gagnée par l'électron dans le continuum :

$$h\nu = U_i + E_c \tag{1.1}$$

où  $U_i$  est le potentiel d'ionisation de l'atome.

Ces trois étapes se répètent à chaque demi-période laser, quand l'amplitude du champ électrique est suffisante pour permettre l'ionisation. L'émission XUV est donc périodique de période  $T_{laser}/2$ . Cette périodicité donne naissance dans le domaine spectral à des franges d'interférence et le spectre du rayonnement émis est constitué de raies harmoniques séparées de  $2\omega$ . Les électrons sortent du puits de potentiel dans des directions opposées d'une demi-période à la suivante. Cette symétrie d'inversion du processus implique que les harmoniques émises sont impaires.



FIGURE 1.10 – Spectre harmonique dans le néon, mesuré sans filtre à l'aide d'une galette de microcanaux

Ce modèle simple permet également d'expliquer l'allure des spectres harmoniques. On donne en figure 1.10 un spectre typique du rayonnement harmonique généré par un laser infrarouge fs dans du néon issu de [39]. Il se constitue d'une partie –appelée plateau– dans laquelle les harmoniques (de "bas" ordres) ont une intensité constante, puis d'une partie où leur intensité chute rapidement avec l'ordre harmonique.

L'existence de cette coupure (*cut-off*) est due au fait que l'énergie cinétique acquise par les électrons dans le champ laser est bornée. Sa valeur maximale est de  $3.17U_p$ , où  $U_p$  est le potentiel pondéromoteur du laser, relié à l'intensité I du champ par la loi d'échelle suivante pour une longueur d'onde de 800 nm :

$$U_p \,[\text{eV}] = 5.945 \times 10^{14} \, I \,[\text{W/cm}^2] \tag{1.2}$$

On peut alors en déduire l'ordre de coupure donné par :

$$N_{max} = \frac{U_i + 3.17 \, U_p}{\hbar\omega} \tag{1.3}$$

L'énergie maximale des harmoniques dépend donc linéairement de l'intensité laser et du gaz utilisé. On préfère généralement des gaz rares car ils sont simples d'utilisation et présentent des potentiels d'ionisation élevés.

### Réponse macroscopique et accord de phase

Le rôle de l'accord de phase sur l'efficacité de génération d'harmoniques a été étudié dans [40]. Le rayonnement harmonique, une fois émis par les atomes, se propage dans le milieu gazeux. Une bonne efficacité de conversion est obtenue lorsque les champs émis par les dipôles sont en phase les uns avec les autres, et peuvent ainsi interférer constructivement. Au niveau macroscopique, ceci est le cas lorsque l'accord de phase entre le champ harmonique généré et le champ générateur est atteint. Pour une harmonique d'ordre q donné, cet accord de phase s'écrit :

$$\delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_q - q\mathbf{k} - \mathbf{K} = \mathbf{0} \tag{1.4}$$

où  $\mathbf{k}$  est le vecteur d'onde du laser fondamental,  $\mathbf{k}_q$  celui de l'harmonique considérée et  $\mathbf{K}$  celui du dipôle constitué par le couple électron-ion engendré par le laser.

La focalisation du laser induit de plus un déphasage géométrique connu (phase de Gouy) qui cause une modification du vecteur d'onde **k**. La relation de dispersion  $k = n\frac{\omega}{c}$  permet d'introduire l'indice de réfraction du milieu qui dépend de la dispersion atomique et de la dispersion électronique.

Enfin, la réabsorption du rayonnement par le milieu générateur lui-même peut être un facteur limitant l'efficacité globale de génération des harmoniques. Les efficacités de conversion en énergie autour de 10 - 30 nm se situent en général vers  $10^{-6} - 10^{-8}$ .

### Propriétés du rayonnement émis

La gamme spectrale dans laquelle l'efficacité de conversion est maximale dépend du gaz utilisé (et de la longueur d'onde du laser générateur). Les harmoniques de longueurs d'onde les plus basses seront produites dans les gaz légers. La figure 1.11, tirée de la référence [41], illustre cette dépendance. Le spectre obtenu par génération dans le xénon (Z = 54) montre un plateau très marqué avec une coupure située à l'harmonique 23. Dans l'argon (Z = 18), la coupure est située vers l'ordre 27, suivie d'un deuxième plateau avec une coupure à l'ordre 49. Les spectres obtenus dans le néon (Z = 10) et l'hélium (Z = 2) sont similaires et présentent une lente décroissance (plus rapide pour le néon) de l'énergie harmonique lorsque son ordre croît plutôt qu'un plateau marqué.



FIGURE 1.11 – Spectres harmoniques expérimentaux dans les gaz rares

Un des axes importants de recherche dans le domaine des sources XUV cohérentes est d'atteindre la fenêtre de l'eau (284–543 eV), ainsi nommée car l'eau n'est pas absorbante à ces longueurs d'onde, idéale pour l'imagerie *in vivo* d'échantillons biologiques. Ceci a été réalisé par génération d'harmoniques d'ordres élevés dès 1997 [42] avec des impulsions laser de 5 fs, résultant en un spectre harmonique quasi-continu, ou à l'aide d'un système laser Ti : Sa d'impulsions plus longues [28]. Dans ces expériences, une forte intensité laser a été utilisée, causant l'ionisation du gaz par le champ laser. Ceci résulte en une défocalisation du laser et un déphasage des dipôles, limitant fortement l'efficacité de conversion. Le flux de photons autour de 300 eV est donc resté très bas (< 10<sup>3</sup> phot/tir). L'utilisation de lasers de plus grande longueur d'onde ( $\lambda = 1.55 \,\mu$ m) a permis d'obtenir en 2008 [43] un flux de photons de l'ordre de 10<sup>6</sup> phot/tir à 250 eV, et très récemment en 2010 [44] un flux de 10<sup>6</sup> phot/tir à 450 eV. La figure 1.12, tirée de cette référence, donne les spectres générés dans du néon et de l'hélium à haute pression.



FIGURE 1.12 - Spectres harmoniques jusqu'à la fenêtre de l'eau, obtenus par génération dans de l'hélium et du néon à haute pression. La figure du haut donne la transmission des filtres (aluminium et carbone) utilisés

Le **profil spatial** des harmoniques est généralement circulaire, avec une divergence dépendant de celle du laser générateur, mais usuellement de l'ordre du milliradian. Il peut néanmoins fortement dépendre de la manière dont l'accord de phase est obtenu dans le milieu générateur [45] [46]. Lorsque le laser est focalisé avant le milieu gazeux, le faisceau harmonique est fortement collimaté, alors qu'il l'est moins et présente un creux d'intensité au centre du profil lorsque le laser est focalisé après le milieu gazeux. La figure 1.13 tirée de [47] donne le profil spatial typique d'un faisceau harmonique.



FIGURE 1.13 – Profil spatial typique d'un faisceau harmonique, mesuré à 2 m de la source

La **cohérence spatiale** des sources d'harmoniques d'ordres élevés a été mesurée par de nombreux groupes à l'aide de différents diagnostics tels que des fentes d'Young [48] [49] ou par interférométrie [50]. Elle est en général excellente, bien qu'elle puisse être altérée pour de hautes intensités laser.

Le front d'onde du faisceau a été relativement peu étudié. Les quelques mesures réalisées montrent qu'il est généralement de bonne qualité [51] [52], présentant des distorsions d'écart type de l'ordre de  $\lambda_{xuv}/5$ . La troncature du faisceau laser générateur ou l'utilisation d'un miroir déformable sur le trajet de celui-ci permet de réduire fortement les distorsions du front d'onde du faisceau harmonique. La technique de génération dite à deux couleurs (fréquence fondamentale du laser et sa seconde harmonique) permet, entre autres améliorations (augmentation de flux, génération des harmoniques paires et impaires, polarisation,...), d'obtenir un faisceau harmonique limité par la diffraction [53] comme le montre la figure 1.14 tirée de la même référence.



FIGURE 1.14 – Front d'onde du faisceau harmonique dans le cas (1) de la génération classique par un faisceau tronqué, (2) de la génération classique couplée à l'utilisation d'un miroir déformable sur le laser infrarouge, (3) de la génération à deux couleurs par un faisceau plein diamètre, et (4) de la génération à deux couleurs par un faisceau tronqué; dans ce dernier cas l'écart normal quadratique (RMS) des aberrations est de  $\lambda/17$  et leur amplitude maximale (PV) de  $\lambda/3$ 

Par le modèle à trois étapes, on peut également montrer que la structure temporelle d'une impulsion harmonique se compose d'un **train d'impulsions attosecondes**, l'écart entre deux impulsions étant égal à un demi-cycle laser (soit 1.3 fs à 800 nm). La mesure de cette structure temporelle a notamment été rendue possible par la méthode RABBITT [54] (*Reconstruction of Attosecond harmonic Beating By Interference of Two-photon Transitions*) se basant sur la photo-ionisation à deux couleurs par le signal harmonique. La figure 1.15 issue de [54] montre la structure

temporelle mesurée par cette méthode.



FIGURE 1.15 – Structure temporelle d'une impulsion composée de 5 harmoniques. La courbe en pointillés représente l'amplitude du champ infrarouge générateur. Les impulsions reconstruites ont une durée de 250 as.

Lors de la reconstruction du train d'impulsions à la limite de Fourier, on peut calculer la durée des impulsions en fonction du nombre N d'harmoniques considérées et de la période laser :  $T_{laser}/2N$ . Les impulsions actuellement les plus courtes mesurées ont une durée de l'ordre de quelques dizaines d'attosecondes. Il a cependant été démontré que les impulsions attosecondes présentent une dérive de fréquence (*chirp*) quadratique qui cause un élargissement temporel important [55] [56]. Cette dérive est due au fait que les harmoniques du plateau ne sont pas toutes émises au même instant.

L'intérêt d'une telle source est de pouvoir sonder la dynamique des électrons à une échelle temporelle proche du temps atomique (rotation de l'électron de Bohr autour du noyau d'hydrogène) [57]. Il est alors souhaitable de disposer d'une impulsion attoseconde unique. Plusieurs schémas ont été proposés comme l'utilisation d'un laser de courte durée d'impulsion verrouillé en phase [58], d'une porte de polarisation [59], ou de deux lasers à des fréquences différentes [60]. La durée des impulsions peut également être réduite en compensant la dérive de fréquence intrinsèque par la sélection des harmoniques de la coupure ne présentant pas cette dérive [61], l'utilisation d'un filtre métallique [62] ou d'un miroir multicouche [63] compensant la dérive de fréquence.

Parmi toutes les applications des sources harmoniques, on peut citer l'holographie mono-coup haute résolution [64] (Fig. 1.16, page suivante), utilisant les propriétés spatiales du faisceau harmoniques, ou la tomographie d'orbitales moléculaires [65], qui se base sur la nature attoseconde des impulsions harmoniques et le lien fort existant entre la génération des harmoniques et les orbitales moléculaires (Fig. 1.17, page suivante).



FIGURE 1.16 – (a) Les harmoniques sont produites par focalisation douce d'un laser Ti : Sa dans un jet d'argon. Le laser est ensuite éliminé par réflexion sur un miroir en silice traité antireflet et par un filtre en aluminium. L'harmonique 25 autour de 32 nm est sélectionnée et focalisée sur l'échantillon par une parabole hors-axe. La figure de diffraction de Fraunhoffer est enregistrée sur une caméra CCD XUV. (b) Figure de diffraction mono-coup et reconstruction de l'échantillon. La résolution est de 120 nm en mono-coup et de 60 nm pour une accumulation de plusieurs tirs.



FIGURE 1.17 – (a) Les spectres harmoniques produit dans un gaz diatomique  $(N_2)$  sont enregistrés pour différents angles d'alignement des molécules d'azote. L'argon sert de référence. (b) Le panneau [a] donne la reconstruction de l'orbitale moléculaire de  $N_2$  à partir d'une inversion tomographique des spectres obtenus pour différents alignements des molécules. Le panneau [b] donne le calcul de l'orbitale  $2p \sigma_g$ . Les échelles de couleur sont les mêmes. Le panneau [c] donne la coupe selon l'axe moléculaire de l'orbitale mesurée (pointillés) et calculée (trait plein).

Le rayonnement harmonique se révèle finalement être ultrabref (intrinsèquement limité par la durée de l'impulsion de pompe), cohérent, et offre généralement un faisceau peu divergent de bon front d'onde. Il est également polarisé linéairement. Il présente de plus l'avantage d'être relativement aisé à produire en termes de coûts et de contraintes expérimentales, du moins comparativement à un laser XUV par interaction laser-plasma, comme nous allons le voir par la suite. Ces propriétés justifient donc le choix de ce rayonnement comme injecteur d'un amplificateur dans le domaine XUV.

### 1.3 Les sources laser XUV par interaction laser-plasma

### **1.3.1** Introduction et historique

Depuis la première démonstration expérimentale de l'effet laser dans un cristal de rubis en 1960 [66] à une longueur d'onde de 694.3 nm, un axe important de recherche dans le domaine a été de diminuer la longueur d'onde vers les rayons X. Un effet laser dans le domaine XUV a été démontré expérimentalement pour la première fois en 1985 aux longueurs d'onde de 20.9 nm, 20.6 nm [67] [68] et 18.2 nm [69]. Depuis, de nombreux schémas de pompage appliqués à plusieurs dizaines de transitions ont été étudiés expérimentalement et théoriquement.

Le principe des lasers XUV est identique à celui des lasers VIS/IR et repose sur l'inversion de population entre deux niveaux d'énergie de l'espèce lasante. Dans le cas d'un milieu amplificateur XUV, elle aura lieu entre deux niveaux excités d'un ion d'un plasma. L'émission de ce milieu sera alors due à l'amplification de son propre rayonnement par le plasma en inversion de population. Ce type de source fonctionne en amplification (par émission stimulée) de l'émission spontanée. Ce régime, couramment appelé régime d'ASE, pour Amplification of Spontaneous Emission, est le mode fonctionnement historique des lasers XUV. La mise en place d'une cavité optique se révèle en effet impossible, d'une part du fait de la courte durée de vie du gain de l'amplificateur (de ps jusqu'à qq 100 ps selon la méthode de pompage), et d'autre part du fait de la difficulté de réaliser des optiques adaptées à la réalisation d'une cavité laser dans ce domaine spectral. Les gains sont en revanche relativement élevés, ce qui permet l'obtention d'une intensité laser XUV conséquente après un (voire deux) passages dans l'amplificateur. Ce régime d'ASE (qui revient donc à l'amplification laser d'un bruit optique) est néanmoins relativement limité en termes de qualité de faisceau et de contrôle des caractéristiques du laser émis. Nous verrons alors qu'on peut considérer le plasma comme amplificateur d'un signal XUV indépendant, comme c'est le cas des lasers dans les autres domaines spectraux.

Nous présenterons d'abord les différents schémas de pompage dans les plasmas qui ont permis expérimentalement l'obtention d'effet laser dans le domaine XUV, puis nous donnerons un historique de l'évolution des lasers XUV collisionnels et leur état de l'art. Nous terminerons en donnant quelques applications de ces sources.

### 1.3.2 Schémas de pompage de l'inversion de population

### Pompage par recombinaison du plasma

Le schéma par recombinaison, proposé dès 1965 [70], a été le premier à être étudié de manière intensive [71] [72] [73]. Il concerne les plasmas lithiumoïdes [74] [75] et hydrogénoïdes [76]. Le principe général est détaillé sur la figure 1.18 et peut être présenté de la manière suivante : en créant un plasma dans des conditions favorables, on peut privilégier le mécanisme de recombinaison collisionnelle qui peuple préférentiellement les niveaux excités de l'ion d'état de charge inférieur. S'ensuit alors une désexcitation très rapide par cascade radiative collisionnelle vers les niveaux inférieurs de cet ion au cours de laquelle une inversion de population peut être obtenue. Le taux de recombinaison collisionnelle varie en  $n_e^3/T_e$  où  $n_e$  et  $T_e$  sont respectivement la densité et la température électronique du plasma. L'obtention d'un plasma de faible température électronique (qq 10 eV) et de forte densité (tout en restant sous la densité critique à la longueur d'onde considérée) est une condition nécessaire à l'obtention d'une inversion de population.



FIGURE 1.18 – Principe du schéma de recombinaison sur des espèces hydrogénoïde et lithiumoïdes

Pendant longtemps le seul mécanisme d'ionisation permettant de créer des plasmas aux densités requises  $(10^{20} \text{ cm}^{-3})$  était purement collisionnel (chauffage laser ou décharge). Il est difficile d'obtenir un plasma à la fois fortement ionisé et froid par ce mécanisme. Seul un refroidissement rapide permet d'atteindre les conditions thermodynamiques requises [77] [78] [79]. On chercha alors à l'accentuer par des techniques diverses tout en essayant de maintenir la densité du plasma aussi élevée que possible. L'effet laser qui en découle peut se produire sur les transitions hydrogénoïdes  $3d \rightarrow 2p$  et lithiumoïdes  $5f \rightarrow 3d$  ou  $4f \rightarrow 3d$  (cf Fig. 1.18). Le fait que le plasma soit ionisé par collisions entraîne un peuplement non négligeable du niveau fondamental et interdit toute transition le mettant en jeu.

Avec la mise au point de la technique d'amplification à dérive de fréquence, ou CPA pour *Chirped Pulse Amplification*, on dispose de moyens pour créer directement un plasma de fort degré d'ionisation et de faible température électronique par ionisation tunnel (plus de détails dans le chapitre suivant). On peut alors obtenir une inversion de population mettant en jeu le niveau fondamental, correspondant à une longueur d'onde beaucoup plus courte que celles accessibles par les transitions entre niveaux excités. La figure 1.19 donne les longueurs d'ondes des transitions XUV pour les ions hydrogénoïdes et lithiumoïdes.



FIGURE 1.19 – Longueurs d'ondes des transitions XUV pour les espèces hydrogénoïde et lithiumoïdes

Quelques expériences ont démontré la faisabilité de ce schéma dans le lithium hydrogénoïde à 13.5 nm [80] [81], mais l'efficacité est restée faible et la saturation jamais atteinte. Ce schéma a donc été petit-à-petit abandonné au profit du schéma de pompage collisionnel, plus simple à réaliser mais moins attrayant en terme de longueur d'onde. Toutefois, grâce aux progrès réalisés dans les techniques de guidage, et les améliorations apportées par l'injection de l'amplificateur par un rayonnement harmonique dans le cadre des lasers XUV collisionnels, il serait maintenant intéressant de reconsidérer ce type de pompage afin de réaliser les schémas prédits dans les années 1970 [82] [83].

### Pompage par collisions électroniques

Le schéma de pompage collisionnel a été proposé en 1975 [84] et a été étudié en parallèle du schéma de recombinaison. Il a néanmoins fallu attendre les travaux de Matthews *et al.* en 1985 [67], à l'aide de l'installation laser la plus puissante dans le monde, pour observer une forte amplification. La saturation de l'amplification quant à elle a été atteinte en 1992 [85]. Il est maintenant le schéma le plus employé. Il permet en effet d'obtenir des gains laser élevés dans des plasmas de nature parfois très différentes, et est utilisé dans toutes les installations produisant des lasers XUV opérationnels. La figure 1.20(a) en expose le principe. Certains niveaux excités sont peuplés par excitation collisionnelle à partir du niveau fondamental de l'ion lasant qui est ici le réservoir de population. La désexcitation du niveau supérieur de la transition vers le fondamental est interdite alors que celle du niveau inférieur vers le fondamental est très probable. Une inversion de population peut ainsi être obtenue entre ces deux niveaux excités sous certaines conditions de densité et de température. L'énergie moyenne des électrons du plasma doit être supérieure ou égale à l'énergie du niveau supérieur de la transition pour que le pompage soit possible. Plus la température et la densité électronique seront élevées, plus la probabilité de collisions électroniques sera élevée. Il existe néanmoins un optimum à ne pas dépasser pour que le pompage s'effectue vers les niveaux atomiques souhaités. Contrairement au schéma de pompage par recombinaison, le plasma doit donc être chaud et dense, ce qui est généralement plus facile à produire expérimentalement.



mique pour les ions néonoïdes et nickelloïdes

FIGURE 1.20 – Le schéma de pompage collisionnel : principe et longueurs d'ondes associées

Les ions néonoïdes et nickelloïdes sont de bons candidats à ce schéma de pompage. Leur couche ou sous-couche complète leur offre une grande stabilité vis-à-vis des processus d'ionisation sur une large gamme de densité et de température. L'inversion de population se produira entre les niveaux  $3p \rightarrow 3s$  pour les ions néonoïdes et entre les niveaux  $4d \rightarrow 4p$  pour les ions nickelloïdes. Les ions palladiumoïdes présentant une structure comparable sont également envisageables pour ce type de pompage. L'inversion de population a alors lieu entre les niveaux  $5d \rightarrow 5p$ . La gamme spectrale atteignable est très large et couvre les longueurs d'ondes de 3 nm à 60 nm comme le montre la figure 1.20(b), Les ions nickelloïdes sont les plus adaptés à l'obtention de courtes longueurs d'onde.

### Pompage par photoionisation en couche interne

Ce schéma a été proposé dès 1967 [86] repose sur le fait qu'en présence d'un rayonnement ionisant adéquat (comme une source X intense et brève), un électron interne d'un atome neutre peut être arraché et donner lieu à une inversion de population dans l'ion une fois ionisé. Cette méthode utilise le niveau fondamental de l'ion considéré comme niveau inférieur de la transition laser, les mécanismes de pompage doivent donc être plus rapides que la désexcitation radiative du niveau supérieur de la transition vers le fondamental qui est de l'ordre d'une dizaine de fs. À ceci s'ajoute le fait que le niveau supérieur de la transition est rapidement dépeuplé par effet Auger (correspondant au fait que l'énergie émise par désexcitation peut être transférée à un électron). Ce principe est schématiquement représenté sur la figure 1.21 dans le cas du néon.



FIGURE 1.21 – Principe du schéma de pompage par photoionisation en couche interne pour le néon : un électron est arraché en couche K et le trou créé est comblé par désexcitation d'un électron en couche L. La transition est associée à une longueur d'onde de  $15\text{\AA}$ 

De grands efforts de modélisation ont été concentrés sur les inversions de population à 15 Å dans le néon et à 44 Å dans le carbone. Les calculs ont montré qu'un coefficient de gain raisonnable (dizaine de cm<sup>-1</sup>) d'une durée de 50 fs peut être obtenu. La difficulté de ce schéma réside dans la nécessité d'avoir une source X de pompe suffisamment intense et ultrabrève pour assurer la création de l'inversion de population et contrebalancer les effets "parasites" que sont l'ionisation Auger du niveau supérieur et le peuplement du niveau inférieur par ionisation collisionnelle à partir du fondamental. De plus, compte tenu de la courte durée de vie du milieu amplificateur, il est primordial de synchroniser sa création et la propagation de l'émission amplifiée dans le milieu. Dans ce but, une source ionisante (rayons X) à front incliné (onde inhomogène) est absolument nécessaire si le pompage n'est pas longitudinal. Ce schéma n'a finalement pas encore été démontré expérimentalement pour de courtes longueurs d'onde, du fait des fortes contraintes imposées sur la source de pompe. Les approches les plus récentes proposent d'utiliser un laser à électrons libres X [87] [88] ou une source bétatron [89] comme pompes. Bien que les résultats ne soient pas publiés à ce jour, des expériences récentes conduites à LCLS ont été concluantes.

### 1.3.3 Évolution des lasers XUV collisionnels et état de l'art

### Le régime quasi-stationnaire

L'évolution des lasers XUV en régime collisionnel est –sauf pour le cas particulier du pompage par décharge capillaire– intimement liée à celle des lasers de puissance. Les premières expériences sur les lasers XUV ont été réalisées sur des installations laser de forte énergie (quelques centaines de joules) et de longue durée d'impulsion (nanoseconde). Ces impulsions sont focalisées selon une ligne focale (par une lentille cylindrique par exemple) sur une cible solide afin de créer un plasma de quelques centimètres de long sur quelques centaines de microns de large. Au cours du chauffage par l'impulsion laser, la fraction d'ions lasants et la température électronique atteignent des conditions favorables pour obtenir un pompage collisionnel efficace et donc une inversion de population. Un rayonnement XUV est alors émis depuis les deux extrémités de la colonne de plasma, comme illustré sur la figure 1.22). Ce schéma est dénommé quasi-stationnaire (souvent abrégé en QSS, pour *Quasi-Stationnary State*) du fait des faibles variations du gain durant le pompage. Ce gain est de l'ordre de quelques cm<sup>-1</sup> et sa durée de vie est liée à la durée de l'impulsion de pompe et se situe typiquement entre 50 et 200 ps. L'efficacité de conversion en énergie est d'environ  $10^{-5}$ .



FIGURE 1.22 – Principe du laser XUV quasi-stationnaire pompé par laser : une impulsion de forte énergie (qui peut être précédée d'une impulsion de plus faible énergie) est focalisée en ligne sur la cible en incidence normale. Le plasma créé émet un faisceau laser à ses deux extrémités.

La principale limitation de cette méthode est la réfraction du faisceau laser XUV par le plasma. Les plasmas créés par irradiation d'une cible solide présentent en effet un gradient de densité électronique dans la direction orthogonale à la cible suffisamment fort pour que la réfraction ne soit plus négligeable dans le domaine XUV. Les photons XUV amplifiés sortent par conséquent rapidement de l'étroite zone de gain  $(30 \,\mu\text{m})$ , ce qui réduit la longueur d'amplification effective et donc l'énergie des impulsions XUV émises. Des méthodes proposées pour compenser cette réfraction fut l'utilisation de cibles courbes [90], ou d'une cible mince pompée par deux impulsions contrapropagatives. Néanmoins, la méthode la plus simple et la plus efficace [91] fut l'utilisation de préimpulsions moins intenses que l'impulsion principale de plusieurs ordres de grandeur [92] [93]. Cette ou ces préimpulsions permettent en effet de créer un plasma faiblement ionisé avec lequel l'impulsion principale interagit. Cette dernière est notamment mieux absorbée, rendant le processus global plus efficace, et le plasma obtenu présente des gradients de densité beaucoup moins raides. La longueur d'amplification est ainsi considérablement augmentée, jusqu'à quelques cm.

Parmi les acteurs principaux de la recherche sur ce type de laser XUV, on trouve essentiellement des laboratoires possédant les installations laser de puissance nécessaires. On peut notamment citer le Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses (LULI) en France, grâce aux expériences conduite notamment par le LSAI, le Rutherford Appleton Laboratory (RAL) au Royaume-Uni, le Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) en Californie et l'Institute of Laser Engineering (ILE) au Japon. Ce schéma étant relativement gourmand en énergie de pompe, il ne reste actuellement plus qu'un seul laser XUV quasi-stationnaire en fonctionnement dans le monde. Il est situé au Prague Asterix Laser System (PALS) en République Tchèque. Il s'agit d'un laser à zinc néonoïde ( $\lambda = 21.2$  nm) pompé par des impulsions de 1 kJ dans 350 ps. Il fonctionne en double passage grâce à l'utilisation une demi-cavité [94]. Le schéma de ce laser, tiré de [95] est donné en figure 1.23. Il permet de délivrer des impulsions XUV à 21.2 nm de plusieurs millijoules pour une centaine de picosecondes de durée.



FIGURE 1.23 – Le laser XUV quasi-stationnaire à zinc néonoïde du PALS à Prague

Le développement de ces sources a permis une diversification des longueurs d'onde émises par les lasers XUV en utilisant notamment les ions nickelloïdes. La première démonstration d'un laser XUV à schéma nickelloïde a été réalisé en 1987 sur de l'europium nickelloïde [96] à des longueurs d'onde de 6.6 et 7 nm. En 1992, un laser XUV à or nickelloïde [97] atteignait une longueur d'onde de 3.56 nm, mais les gains obtenus restaient relativement faibles  $(2 \text{ cm}^{-1})$ . L'utilisation d'impulsions de pompe plus courtes (< 100 ps) a également permis d'augmenter les gains des lasers à ions néonoïdes [98] et nickelloïdes. La saturation de l'amplification dans un ion nickelloïde fut notamment démontrée dans l'argent [99] ( $\lambda = 13.9 \text{ nm}$ ) puis l'étain [100] ( $\lambda = 11.9 \text{ nm}$ ). Cette augmentation du gain résulte de températures plus élevées atteintes lorsque le degré d'ionisation du plasma est optimal.

Ce régime nécessite l'utilisation d'installations laser de forte énergie et présente donc les inconvénients liés à ces installations : coûts élevés, taux de répétition bas (un tir toutes les 25 min au PALS), et accès limité. Les impulsions émises sont également maintenant considérées comme longues (centaine de ps) ce qui empêche son application à l'étude de phénomènes physique ultrarapides (dynamique atomique ou moléculaire par exemple). La figure 1.24 donne enfin le profil spatial du faisceau XUV au PALS. Il est de relativement bonne qualité et collimaté (qq mrad).



FIGURE 1.24 – Profil spatial et divergence du faisceau XUV de l'installation PALS

Dans le but de réduire la taille des installations laser XUV, les recherches se sont alors orientées vers l'utilisation de lasers de pompe de plus petites dimensions, offrant la perspective d'un taux de répétition plus élevé et de moindres coûts.
#### Le régime transitoire

L'avènement des lasers de puissance capables de délivrer des impulsions brèves ultra-intenses permit d'effectuer un nouveau saut dans le développement des lasers XUV. Il a été proposé dès 1989 [101] d'utiliser de telles impulsions pour générer un gain important dans un plasma possédant le bon degré d'ionisation. La durée du pompage collisionnel sera en effet très inférieure aux temps caractéristiques d'ionisation, permettant d'atteindre une température électronique très élevée sans détruire les ions lasants. Des gains de  $10 \,\mathrm{cm}^{-1}$  à  $100 \,\mathrm{cm}^{-1}$  peuvent être obtenus alors que les populations des niveaux n'ont pas eu le temps d'atteindre leur équilibre. On parle de laser XUV à pompage collisionnel transitoire, ou laser XUV transitoire. Le pompage transitoire a été démontré expérimentalement en 1997 [102] et la saturation atteinte en 1998 en utilisant une onde inhomogènepour pomper un laser XUV à germanium néonoïde [103]. Le principe d'une onde inhomogène est de présenter un front d'énergie non orthogonal à la cible. Cette configuration permet aux photons émis au début de la colonne d'être amplifiés sur toute la longueur du milieu même pendant la faible durée de vie du gain (ps). Les acteurs de la recherche sur ce régime de pompage furent essentiellement les mêmes que pour le régime quasi-stationnaire. Plus récemment, l'équipe de J. J. Rocca de la Colorado State University (CSU) a effectué de nombreux développements et applications de ce type de laser.

Ce schéma utilise deux impulsions laser dont l'énergie est beaucoup plus faible que dans les lasers XUV quasi-stationnaires. La première impulsion (plusieurs centaines de ps, ~  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>) crée un plasma contenant les ions lasants. Cette impulsion est suivie par une impulsion d'énergie comparable mais beaucoup plus courte (ps) qui chauffe rapidement les électrons du plasma. Un pompage collisionnel très efficace est alors obtenu conduisant à des gains très élevés. Ce type de laser XUV peut être mis en œuvre sur des chaînes lasers beaucoup plus compactes avec des cadences de tir plus élevées (jusqu'à 10 Hz actuellement). Une des propriétés remarquable de ces lasers est leur faible durée d'impulsion. Des impulsions de durée 2 ps ont été mesurées en 2002 pour un laser transitoire à 13.9 nm dans l'argent nickelloïde [104] [105]. L'efficacité de conversion globale est la même qu'en régime transitoire, soit de l'ordre de  $10^{-5}$ .



FIGURE 1.25 – Principe du laser XUV transitoire en schéma GRIP : un plasma est créé par une préimpulsion longue et énergétique en incidence normale sur la cible. Le plasma lasant est créé par une impulsion courte en incidence rasante. Il s'agit d'un pompage quasi-longitudinal.

Plus récemment, ce schéma a été transposé en incidence rasante [106] : l'impulsion de pompe est focalisée en ligne dans le pré-plasma avec un angle d'incidence très élevé (rasant la surface de la cible). Cet arrangement géométrique, illustré sur la figure 1.25, permet d'utiliser la réfraction de l'impulsion courte dans des régions de densité sous-critique et d'augmenter le couplage entre la pompe et le pré-plasma. Cette technique est dénommée GRIP, pour "grazing incidence pumping" [107] [108]. Encore plus récemment, l'efficacité d'envoyer les deux impulsions en incidence rasante (DGRIP) sur la cible a été démontrée [109], notamment en ce qui concerne la stabilité du système. C'est notamment le schéma GRIP qui est utilisé sur la station LASERIX de l'Université Paris Sud visant à fournir à une cadence de 10 Hz un faisceau XUV intense à une communauté d'utilisateurs.



FIGURE 1.26 – Spectres obtenu par l'équipe de J. J. Rocca dans des ions nickelloïdes issus d'éléments allant du rubidium au tellure; la raie laser domine clairement le spectre XUV, sauf dans ce dernier cas

Actuellement, ce schéma de pompage permet de délivrer des impulsions de quelques microjoules de durée ps à des cadences suivant celles des installations laser utilisées, soit de l'ordre de quelques Hz pour la plupart. Du fait de la courte durée de l'impulsion principale du pompage (ps), ce schéma est également beaucoup plus économique en termes d'énergie laser : seuls quelques joules sont maintenant nécessaires pour atteindre la saturation du gain. Nous avons vu que les ions nickelloïdes sont les plus adaptés à l'obtention de courtes longueurs d'onde. La figure 1.26, datant de 2005 [110], illustre la démonstration d'un effet laser dans des longueurs d'onde allant jusqu'à une dizaine de nanomètres. La saturation a maintenant été démontrée jusque dans le lanthane

#### 1. Introduction aux sources XUV cohérentes

nickelloïde à 8.85 nm [111] en utilisant une énergie de pompe de quelques joules.

Il est enfin à noter que le profil spatial du faisceau XUV obtenu en régime transitoire est fortement inhomogène. Comme le montre la figure 1.27, il se compose de grains de speckle qui sont dus à une faible cohérence spatiale couplée à une forte cohérence temporelle [105]. Ceci est également le cas des faisceaux XUV produits en régime quasi-stationnaire, mais n'implique pas la présence de grains de speckle du fait d'un effet de moyennage temporel (cf chapitre 4).



FIGURE 1.27 – Profil spatial du faisceau laser à 13.9 nm (argent nickelloïde) de l'équipe de J. J. Rocca. L'ouverture circulaire est due à la présence d'un filtre. On observe clairement une structure composée de grains de speckle

Enfin, ce schéma est également applicable à l'utilisation de cible gazeuses, comme a pu le montrer une expérience réalisée en 2002 menant à l'obtention d'un effet laser dans le xénon nickelloïde à 9.98 nm [112].

#### Laser XUV ionisé par le champ laser

Ce schéma d'ionisation, dit également OFI pour *Optical Field Ionisation*, fait l'objet de cette thèse et sera décrit en détail dans les chapitres suivants. Il a été rendu possible par l'apparition des lasers intenses femtosecondes et a été initialement proposé car ces lasers d'énergie modeste présentaient à l'origine des taux de répétition plus élevés que ceux utilisés pour les schémas précédents. Contrairement aux précédents régimes où l'ionisation et le chauffage du plasma sont dus aux collisions dans le plasma, c'est ici le champ laser qui assure à la fois la création du plasma dans le bon état d'ionisation et le chauffage, nécessaire au pompage, des électrons du plasma. Une propagation du champ dans le milieu est par conséquent indispensable, ce qui limite son application aux gaz. Il a été proposé en 1994 [113] dans trois ions différents : le xénon palladiumoïde, le krypton nickelloïde et l'argon néonoïde. Les longueurs d'onde et transitions de ces différents lasers sont présentées dans le tableau 1.1. Le principe de réalisation est donné en figure 1.28.



FIGURE 1.28 – Principe du laser XUV ionisé par le champ laser : la plasma est créé à partir d'un gaz en focalisant une impulsion ultrabrève dans ce dernier. Le champ est polarisé circulairement pour optimiser le chauffage du plasma et le pompage collisionnel. Il s'agit d'un pompage longitudinal.

Ion	Transition	Longueur d'onde	Énergie de photon
$Xe^{8+}$ (palladiumoïde)	5d-5p	41.8 nm	$29.7\mathrm{eV}$
$Kr^{8+}$ (nickelloïde)	4d-4p	32.8 nm	$37.9\mathrm{eV}$
$Ar^{8+}$ (néonoïde)	3p - 3s	$46.9\mathrm{nm}$	$26.5\mathrm{eV}$

TABLE 1.1 – Énergies et longueurs d'onde associées aux transitions des différents lasers OFI

C'est le même groupe de recherche qui observa pour la première fois une émission dans le xénon palladiumoïde [114]. Malgré de nombreuses tentatives à travers le monde, cette expérience n'a pu être reproduite que cinq ans plus tard, au LOA. Le régime de saturation a été atteint pour la première fois en 2001 dans le xénon palladiumoïde [115] et un an plus tard dans le krypton nickelloïde [116].

Une grande partie des travaux qui ont suivi a été consacrée à l'étude des paramètres qui influent sur le milieu amplificateur. Il a ainsi été mis en évidence le rôle crucial de la propagation du laser de pompe pour la création d'un milieu long et performant. Le gain laser du plasma dépend essentiellement de la densité du gaz et de la polarisation du laser de pompe (qui influe sur la chauffage des électrons). Il a également été montré que les plasmas générés sont caractérisés par un très fort gain et que ce type de source peut fonctionner à une cadence de 10 Hz [117]. L'utilisation de guides d'onde par tube capillaire creux [118] ou par plasma de décharge [119] [120] ont également permis d'allonger considérablement la longueur du milieu à gain et par conséquent d'améliorer les performances de ce type de laser. Plus récemment, des expériences de guidage plasma créé par laser dans des gaz à haute densité [121] [122] ont été très concluantes.

Il est à noter que, comme dans le cas des lasers XUV collisionnels en régime transitoire, le profil spatial présente des inhomogénéités qui limitent les applications possibles de ce type de laser XUV. Ceci, couplé au fait que l'on dispose avec ce type de schéma d'un milieu laser de paramètres (gain, densité, longueur) aisément contrôlables d'un tir à l'autre, a conduit à l'idée de considérer ce milieu non plus comme un laser en soi, mais comme milieu amplificateur d'un autre rayonnement cohérent de même longueur d'onde. On espérait ainsi résoudre le problème des inhomogénéités du profil spatial et de la mauvaise cohérence des faisceaux en général. Les résultats se sont montrés extrêmement concluants sur tous les points. Dans le cas d'un amplificateur XUV OFI, l'énergie disponible par impulsion est de l'ordre du microjoule, et le faisceau présente des caractéristiques dignes d'un faisceau laser dans le domaine visible ou infrarouge. À noter que l'injection d'harmonique a également été réalisée en 2008 dans un amplificateur transitoire [123]. Des améliorations comparables sur la qualité spatiale du faisceau ont été observées, mais l'énergie disponible est restée relativement faible (centaine de nJ) du fait de l'hydrodynamique du plasma impliquant une zone de gain de petite taille [124].

Malgré la plus faible densité des plasmas considérés, les performances de ces lasers sont comparables à celles des lasers transitoires. En utilisant les techniques de guidage du faisceau pompe ou d'injection par harmonique, des impulsions d'une durée de quelques ps contenant jusqu'à quelques  $\mu$ J peuvent être produites.



#### La décharge capillaire

FIGURE 1.29 – Le laser XUV par décharge capillaire dans l'argon ( $\lambda$ =46.9 nm) développé à la CSU

Parallèlement au développement des lasers XUV créés par laser, d'autres méthodes furent envisagées pour produire des plasmas laser XUV. Dans un laser XUV à décharge capillaire, des décharges électriques de plusieurs kA sont envoyées dans un gaz confiné dans un capillaire de plusieurs dizaines de cm de long. Bien que le gain soit relativement faible, la très grande longueur du plasma permet d'atteindre la saturation du gain. Le premier laser XUV par décharge capillaire a été démontré par J. J. Rocca en 1994 [125] [126]. Ce type de laser XUV délivre des impulsions de quelques mJ à des taux de répétition élevés (4 Hz). Il est actuellement opéré dans un mélange d'argon (milieu laser XUV) et d'hydrogène (pour favoriser l'ionisation) à une longueur d'onde de 46.9 nm. Notons que les impulsions produites sont longues, de l'ordre de la ns, ce qui en fait un laser XUV moins intense que ses homologues par plasma laser. La compacité (Fig. 1.29) et la fiabilité de ces système en font néanmoins des outils efficaces pour les applications.

#### 1.3.4 Applications des lasers XUV

Les applications des lasers XUV ont été et sont toujours nombreuses, bien qu'elles soient la plupart du temps à développer par les chercheurs de la même communauté. Ces applications sont liées aux propriétés particulières des sources. Les propriétés de cohérence et la faible longueur d'onde du rayonnement permettant d'atteindre une meilleure résolution qu'avec la lumière visible sont par exemple particulièrement intéressantes pour l'imagerie cohérente et l'holographie d'échantillons biologiques, qui comptent dès 1987 [127] parmi les premières applications de ces sources. Des expériences de microscopie XUV ont également pu être réalisées grâce au développement parallèle des optiques dans ce domaine spectral [128] [129] [130]. Toujours grâce à la courte longueur d'onde du rayonnement, on peut focaliser ce dernier à de petites dimensions et étudier les mécanismes d'ablation XUV [131], qui différent de ceux en lumière infrarouge ou visible. La densité critique d'un plasma (*i.e.* au-dessus de laquelle une onde électromagnétique ne peut se propager dans le plasma) augmentant lorsque la longueur d'onde du rayonnement considéré diminue, on peut à l'aide de lasers XUV sonder des plasmas denses (jusqu'à  $10^{25} e^{-}/cm^3$  pour  $\lambda = 10$  nm), par radiographie [132] [133], par interférométrie [134] [135], ou par déflectométrie [136].

A titre d'exemple, on présente sur la figure 1.30 un microscope XUV à haute résolution réalisé à la CSU utilisant un laser XUV transitoire [137] et s'appuyant sur des optiques (lentille de Fresnel et condenseur optique) développées au CXRO en Californie, ayant permis d'imager des nanostructures avec une résolution inférieure à 38 nm.



FIGURE 1.30 – Dispositif de microscopie XUV compacte à 13.6 nm

La figure 1.31 donne les résultats d'une expérience d'étude de la dynamique de jets de plasma denses créés par irradiation de sillons triangulaires à l'aide d'un laser infrarouge [138]. La densité du plasma a été mesurée par interférométrie XUV à l'aide d'une décharge capillaire à 46.9 nm. Des expériences d'interférométrie similaires ont également été réalisées à l'aide d'un laser XUV créé par laser [139].



FIGURE 1.31 - (a) Interférométrie d'un jet de plasma dense à différents instants et (b) cartes de densité électronique déduites

Il existe de part le monde plusieurs installations laser XUV entièrement dédiées aux applications et fournissant un accès aux utilisateurs externes. On trouve parmi celles-ci les lasers transitoire et par décharge capillaire de la CSU dans le Colorado, la station LASERIX en développement à Palaiseau, ou encore l'APRC au Japon.

# 1.4 Conclusion

Nous avons donc dans ce chapitre présenté un rapide panorama des sources cohérentes dans le domaine XUV. Il est clair qu'en termes de performances de la source, les lasers à électrons libres tiennent le haut du pavé. Les impulsions délivrées au LCLS notamment (qq mJ, qq fs @60Hz), mais également par les autres installations dans le monde peuvent être focalisées à des intensités actuellement inégalables par les autres sources XUV par plasma existantes. En revanche, ces installations étant très coûteuses, très contraignantes, et relativement peu nombreuses à ce jour, le nombre d'expériences pouvant être conduites à l'aide de LEL est assez réduit. Les lasers XUV par plasma ou les harmoniques d'ordres élevés générées dans les gaz sont par opposition des sources compactes et d'accès aisé. La banalisation puis la commercialisation des systèmes laser intenses ont fait qu'on ne recense maintenant plus le nombre de sources d'harmoniques ou laser XUV de par le monde. C'est cette facilité de production, d'utilisation et d'accès qui constitue la complémentarité de ces sources avec les lasers à électrons libres XUV.

Les sources harmoniques (dans les gaz) présentent l'avantage d'être des sources peu contraignantes tout en offrant des faisceaux de bonne qualité composés, à un taux de répétition généralement élevé (couramment jusqu'au kHz), d'impulsions femtosecondes. Elles sont néanmoins la plupart du temps peu énergétiques ( $\langle \mu J \rangle$ , et le fait même qu'elle soient composées de plusieurs fréquences peut être un handicap. Les sources laser XUV peuvent être très énergétiques dans le régime quasi-stationnaire, mais nécessitent alors une énergie de pompe de plusieurs centaines de J, ce qui en fait des installations également très contraignantes fonctionnant à des taux de répétition assez bas. En régime transitoire, des taux de répétition plus élevés peuvent être atteints (jusqu'à 10 Hz), pour des impulsions de durée ps et d'énergie de quelques  $\mu$ J. Les expériences ne sont de plus pas toujours faciles à mettre en œuvre. Les qualités spatiales du faisceau produit restent mauvaises en régime d'ASE, ce qui peut être résolu en injectant ces plasmas par un rayonnement harmonique. Afin de conserver des impulsions énergétiques, il est alors nécessaire de considérer les problèmes d'ingénierie hydrodynamique du plasma, ce qui n'est pas encore fait à l'heure actuelle.

Les lasers XUV OFI en régime guidé offrent en revanche des performances similaires à celles des lasers XUV transitoires. Lorsqu'ils sont de plus injectés par harmonique, la qualité spatiale du faisceau émis est excellente. Ils peuvent également fonctionner à des taux de répétition assez élevés (10 Hz) et la géométrie de pompage longitudinal utilisé en fait des installations relativement simples. C'est dans ce contexte que s'inscrit ce travail de thèse, consistant en la compréhension, la caractérisation, et l'amélioration d'un laser XUV OFI injecté par harmonique. La physique de l'injection d'harmonique dans un plasma en inversion de population est encore récente et finalement peu connue, et de nombreuses questions restent encore sans réponse :

- Peut-on obtenir une qualité de faisceau aussi bonne que dans le domaine visible/IR?
- Quelles sont les pistes restantes pour augmenter l'énergie des impulsions émises ?
- Comment réduire la largeur temporelle de ces impulsions jusqu'à une durée sub-ps, encore jamais atteinte ?
- Est-il possible de générer un amplificateur XUV par plasma à une longueur d'onde significativement plus basse que les lasers actuels?

Autant de questions auxquelles nous tenterons de répondre dans ce manuscrit.

# Chapitre 2

# Physique des amplificateurs XUV collisionnels crées par laser femtoseconde

### Sommaire

<b>2.1</b>	Mili	eu amplificateur laser et cas particulier du krypton nickelloïde .	38
	2.1.1	Émissivité et coefficient de gain	38
	2.1.2	Le milieu amplificateur	39
	2.1.3	$Transfert \ radiatif \ . \ . \ . \ . \ . \ . \ . \ . \ . \ $	42
	2.1.4	Largeur spectrale	45
2.2	Inte	raction laser-gaz à haute intensité	<b>46</b>
	2.2.1	Les différents types d'ionisation par le champ las er $\hdots$	47
	2.2.2	Taux d'ionisation tunnel et degré d'ionisation final atteint	51
	2.2.3	Distribution électronique des électrons OFI	53
	2.2.4	Distribution énergétique des ions	54
<b>2.3</b>	Ciné	étique du plasma	55
	2.3.1	Équilibre thermodynamique du plasma	55
	2.3.2	Évolution de la température ionique	56
	2.3.3	Modèle de cinétique 0 D $\hdots$	58
	2.3.4	Cinétique des électrons	60
	2.3.5	Évolution des populations atomiques et gain de l'amplificateur $\ldots$ .	62
<b>2.4</b>	Prop	pagation et réfraction du champ laser dans le plasma	64
	2.4.1	Équation de propagation paraxiale	64
	2.4.2	Propagation de faisceaux gaussiens dans le vide	65
	2.4.3	Propagation dans un plasma	66
<b>2.5</b>	Con	clusion	72

Ce chapitre a pour but de décrire les bases physiques sous-tendant la réalisation d'un amplificateur laser dans le domaine XUV. Nous nous intéresserons ici seulement au milieu amplificateur non-injecté; l'injection d'harmoniques sera développée tout au long de ce manuscrit. Nous commencerons par donner les équations caractéristiques d'un milieu laser et détailler la structure atomique et les niveaux mis en jeu dans la transition laser dans le cas du krypton nickelloïde. Nous verrons ensuite comment créer cet ion en utilisant une impulsion laser ultrabrève pour ioniser plusieurs fois le krypton. Les phénomènes d'ionisation ayant lieu sur une échelle de temps brève par rapport à celle de l'évolution cinétique du plasma, nous verrons ensuite quels sont les phénomènes permettant d'amener l'ion krypton nickelloïde dans un état où un effet laser dans le domaine XUV est possible, et comment le plasma va évoluer dans le temps grâce à un code de cinétique plasma. Enfin, le phénomène de réfraction du laser de pompe dans le plasma, crucial en pompage longitudinal comme c'est le cas ici, sera étudié notamment grâce à un code de propagation infrarouge dans un plasma.

# 2.1 Milieu amplificateur laser et cas particulier du krypton nickelloïde

Comme il a été plusieurs fois écrit jusqu'à maintenant, notre laser XUV fonctionne en régime injecté, ce qui influe fortement sur le transfert radiatif et les propriétés optiques du rayonnement. Il est néanmoins utile de comprendre le fonctionnement de l'amplificateur en régime d'émission spontanée amplifiée (ASE) pour être à même de décrire les spécificités du régime injecté que nous verrons en grande partie dans les chapitres suivants.

#### 2.1.1 Émissivité et coefficient de gain

Un rayonnement provenant d'une transition atomique (ou ionique) peut être caractérisé par deux grandeurs spectrales. Il s'agit du gain  $g(\nu)$  et de l'émissivité  $j(\nu)$ , où  $\nu$  représente la fréquence de l'émission. Nous noterons  $n_u$  et  $n_l$  les densités de population respectives des niveaux supérieur et inférieur de la transition.

L'émissivité (spectrale) caractérise l'émission spontanée du milieu. Elle représente la densité spectrale de puissance rayonnée par unité de volume et de fréquence :

$$j(\nu) = n_u h \nu A(\nu) \qquad \left[ W.cm^{-3}.Hz^{-1} \right]$$
(2.1)

avec h la constante de Planck et  $A(\nu)$  le coefficient d'Einstein décrivant la probabilité d'émission spontanée par unité de fréquence. ce coefficient peut s'écrire :

$$A(\nu) = A\Phi(\nu) \qquad \text{avec} \qquad \int_0^\infty \Phi(\nu) \, d\nu = 1 \tag{2.2}$$

où A est le coefficient d'Einstein usuel pour l'émission spontanée et  $\Phi(\nu)$  est une fonction normalisée donnant le profil de la raie.

Si on note  $\sigma_{stim}(\nu)$  et  $\sigma_{abs}(\nu)$  les sections efficaces d'émission stimulée et d'absorption, le gain

(spectral) est défini par :

$$g(\nu) = n_u \sigma_{stim}(\nu) - n_l \sigma_{abs}(\nu) \qquad \left[ \text{cm}^{-1} \right]$$
(2.3)

C'est donc la différence entre le taux d'émission stimulée et le taux d'émission spontanée. Il peut par conséquent s'écrire :

$$g(\nu) = \sigma_{stim}(\nu) \,\Delta n \tag{2.4}$$

où  $\Delta n$  est l'inversion de population définie par :

$$\Delta n = n_u - \frac{g_u}{g_l} n_l \tag{2.5}$$

et la section efficace d'émission stimulée est donnée par :

$$\sigma_{stim}(\nu) = \frac{c^2}{8\pi\nu^2} A\Phi(\nu) \tag{2.6}$$

Afin d'obtenir une amplification sur la transition, le taux d'émission stimulée doit être supérieur à l'absorption, ce qui implique que l'on ait une inversion de population  $\Delta n > 0$  entre les deux niveaux. Cet état n'est pas stable par nature et l'atome –ou l'ion– considéré peut y être amené par des méthodes diverses selon le type de laser.

#### 2.1.2 Le milieu amplificateur

L'étude de la physique atomique de l'ion lasant est primordiale si on veut déterminer dans quelle mesure les niveaux mis en jeu dans la transition laser seront peuplés au cours du temps. En établissant un modèle atomique de l'ion comprenant un certain nombre de niveaux et en connaissant les l'ensemble des forces de collision et d'oscillateur entre ces niveaux, on peut calculer tous les taux de transitions atomiques possibles. L'utilisation postérieure d'un modèle collisionnel-radiatif incluant les données atomiques permet, moyennant l'utilisation d'une distribution en énergie des ions et des électrons et une densité de gaz donnée, de fournir des résultats sur l'évolution temporelle des populations atomiques (cf § 2.3).

#### Étude de la structure atomique

Pour déterminer la structure d'un atome ou d'un ion, on décrit les interactions entre particules à l'aide d'un hamiltonien et l'agencement des électrons avec leurs fonctions d'onde. Si on considère N électrons gravitant autour d'un noyau, l'hamiltonien du système peut s'écrire de la manière suivante (en unités atomiques) :

$$H = \sum_{i=1}^{N} \frac{p_i^2}{2} - \sum_{i=1}^{N} \frac{Z}{r_i^2} + \sum_{i < j} \frac{1}{r_{ij}}$$
(2.7)

L'opérateur  $\frac{p_i^2}{2} = -\frac{\nabla_i^2}{2}$  représente l'énergie cinétique de l'électron lié  $i, -\frac{Z}{r_i}$  l'énergie potentielle attractive du noyau de charge Z sur l'électron i et le dernier terme représente l'énergie coulombienne répulsive entre les électrons. L'évolution temporelle de ce système est donnée par l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$H\Psi = i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} \tag{2.8}$$

où  $\Psi(\mathbf{r_1}, ..., \mathbf{r_N}, t)$  est la fonction d'onde du système à N électrons. Les propriétés structurelles sont déterminées à partir de la recherche des états propres de l'hamiltonien vérifiant l'équation :

$$H\Psi = E\Psi \tag{2.9}$$

 $\Psi(\mathbf{r_1},...,\mathbf{r_1})$ , la fonction d'onde stationnaire est donc solution de cette équation et E est l'énergie du système dans l'état décrit par  $\Psi(\mathbf{r_1},...,\mathbf{r_1})$ .

La recherche des états propres de cet hamiltonien n'est pas un problème simple et on ne peut trouver de solutions numériques pour un nombre d'électrons dépassant la dizaine. Il est donc nécessaire de faire un certain nombre d'approximations. Sans entrer dans les détails, nous allons ici donner la méthode globale utilisée dans le code qui a permis de déterminer les données atomiques du krypton nickelloïde. Ce code suppose des potentiels moyens statistiques; l'hamiltonien utilisé s'écrit :

$$H_0 - \sum_{i=1}^N \frac{\nabla_i^2}{2} - \sum_{i=1}^N V_i(r_i)$$
(2.10)

où  $V_i(r_i)$  est le potentiel central vu par l'électron i, défini comme  $V_i(r_i) = \frac{Z_i(r_i)}{r_i}$  où  $Z_i(r_i)$  est la charge de l'atome vue par l'électron, comprise entre Z pour  $r_i \simeq 0$  et Z - (N-1) pour  $r_i$  grand (phénomène d'écrantage).

L'avantage de cet hamiltonien est qu'on peut le décomposer en hamiltoniens indépendants sur chaque électron :

$$H_0 = \sum_{i=1}^{N} h_i$$
 avec  $h_i = -\frac{\nabla_i^2}{2} - V_i(r_i)$  (2.11)

À  $h_i$  correspond une équation de Schrödinger monoélectronique de fonction d'onde propre  $\psi_i$  et d'énergie propre  $\epsilon_i$ . Ce problème à un électron dans un potentiel central est connu et la fonction d'onde propre peut se séparer en parties radiale, angulaire et de spin :

$$\psi_i(\mathbf{r_i}) = \frac{P_{n_i,l_i}(r_i)}{r_i} Y_{l_i}^{m_{l_i}}(\theta_i,\varphi_i) \delta_{m_s}(\sigma_i)$$
(2.12)

Les fonction  $Y_{l_i}^{m_{l_i}}(\theta_i, \varphi_i)$  décrivant la partie angulaire sont les harmoniques sphériques,  $\delta_{m_s}(\sigma_i)$  est le symbole de Kronecker  $\delta_{m_s\sigma_i}$  où  $\sigma_i = \pm \frac{1}{2}$  est la variable de spin. La fonction radiale  $P_{n_i,l_i}(r_i)$  est inconnue et est obtenue en résolvant numériquement une équation faisant intervenir l'énergie  $\epsilon_i$ . Cette fonction d'onde monoélectronique est caractérisée par le nombre quantique principal n, le moment angulaire l, orbital  $m_l$  et de spin  $m_s$ . On obtient alors la fonction d'onde propre de  $H_0$ ,  $\Psi_0$ , par antisymétrisation<sup>1</sup> des fonctions  $\varphi_i$ .

L'hamiltonien  $H_0$  ne tient néanmoins pas en compte les forces répulsives entre électrons; Pour remédier à cela, on le considère comme un hamiltonien d'ordre 0 et on introduit un complément W traité dans la théorie des perturbations indépendantes du temps :

$$H = H_0 + W \quad \text{avec} \quad W = \sum_{i < j} \frac{1}{r_{ij}} - \sum_{i=1}^N \left[ \frac{Z}{r_i} - V_i(r_i) \right]$$
(2.13)

On s'est placé jusqu'à maintenant dans l'approximation non-relativiste. Pour simplifier les calcules, des corrections relativistes (Darwin, couplages orbite-orbite, spin-spin, spin-orbite à 1 et 2

<sup>1.</sup> car les électrons sont des particules indiscernables, et des fermions qui ne peuvent donc pas être dans le même état quantique

corps, etc...) sont introduites seulement après diagonalisation de l'hamiltonien. On peut alors en déduire les différentes probabilités de transition radiatives entre termes (cas non-relativiste) et entre niveaux (cas relativiste).

#### Principaux niveaux atomiques

La configuration électronique de l'ion Kr IX (28 électrons) dans son état fondamental est  $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10}$ . On remarque que cet ion possède sa couche n = 3 complète, et sera donc remarquablement stable vis-à-vis des processus d'ionisation. Le schéma 2.1 donne les principaux niveaux atomiques de l'ion Kr IX interagissant avec les niveaux lasants. Les niveaux mis en jeu dans la transition laser sont :

- le niveau supérieur de la transition  $3d^{9}4d^{-1}S_{0}$  de dégénéres cence  $g_{u} = 1$
- le niveau inférieur de la transition  $3d^94p \ ^1P_1$  de dégénérescence  $g_l = 3$

– le niveau fondamental  $3d^{10}$  permettant la relaxation depuis le niveau inférieur en suivant la notation des termes issus du couplage LS :  ${}^{2S+1}L_J$  où  $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$  est la composition des moments angulaire et de spin. La dégénérescence de ce terme est donnée par g = (2S+1)(2L+1).



FIGURE 2.1 – Schéma des niveaux de l'ion krypton nickelloïde

Une transition dipolaire est possible entre le niveau supérieur et le niveau inférieur car accompagnée d'un changement de moment cinétique  $\Delta J = -1$  et d'un changement de parité. L'énergie de cette transition  $3d^{9}4d^{-1}S_{0} - 3d^{9}4p^{-1}P_{1}$  vaut 38 eV et correspond à un photon à une longueur d'onde de 32.8 nm.

Afin de déterminer si ces trois niveaux sont réellement envisageables pour l'obtention d'un effet laser, il reste à connaître leurs probabilités de relaxation radiative. Le tableau 2.1 donne ces

probabilités A (reliées aux forces d'oscillateur entre les niveaux et à l'énergie de la transition) et le temps de vie correspondant  $\tau_R$  pour quelques transitions du Kr IX importantes dans ce schéma.

Transition	A $(s^{-1})$	$ au_R$
$4f \rightarrow 4d$	$2.3 \times 10^{9}$	$435\mathrm{ps}$
$4d \rightarrow 4p$	$4.3 \times 10^{10}$	$23\mathrm{ps}$
$4p \rightarrow 3d$	$8.2{ imes}10^{10}$	$12\mathrm{ps}$

TABLE 2.1 – Probabilités de relaxation radiative et temps de vie radiatifs pour les niveaux mis en jeu

La probabilité de transition radiative entre les deux niveaux de la transition laser est relativement élevée, avec un temps de vie de 23 ps environ. De plus, la désexcitation radiative du niveau inférieur est très probable et celui-ci va donc se dépeupler rapidement (12 ps), ce qui est une condition importante pour l'obtention d'un effet laser. Le peuplement du niveau supérieur 4dpar la relaxation radiative depuis le niveau 4f est très lent. Comme nous allons le voir, le principal processus de peuplement de ce niveau sera le pompage à partir du niveau fondamental.

On peut également remarquer que des transitions dipolaires entre le niveau  $3d^94d \, {}^1S_0$  et les niveaux  $3d^94p \, {}^3D_1$  et  $3d^94p \, {}^3P_1$  sont permises ( $\Delta J = \pm 1$ ) et correspondent à des longueurs d'ondes proches. Ces transitions laser présentent néanmoins des gains beaucoup plus faibles que la transition usuelle.

La condition nécessaire à l'obtention d'une amplification d'un rayonnement entre les deux niveaux u et l est que le niveau u doit être plus peuplé que le niveau l. Le pompage consiste à créer cette inversion de population entre les deux niveaux. Pour des milieux laser conventionnels, l'énergie est apportée traditionnellement sous forme optique (diodes laser, lasers de pompe, lampes à flash) ou électrique. Un plasma étant un milieu actif dans lequel des échanges d'énergie internes sont possibles, le pompage de l'inversion de population s'effectuera de manière spontanée si le plasma est créé dans le bon état (densité, distribution électronique). L'énergie apportée aux ions Kr IX le sera par les collisions entre ces ions et les électrons libres du plasma. Ce pompage, appelé pompage collisionnel, sera détaillé au paragraphe 2.3. Le principe est que, les ions étant initialement dans leur état fondamental, c'est cet état qui va constituer le réservoir de population à partir duquel le pompage s'effectue. Notons néanmoins que l'énergie du niveau supérieur de la transition étant de l'ordre de 145 eV, les électrons devront posséder une énergie cinétique au moins aussi élevée pour amener l'ion sur ce niveau.

#### 2.1.3 Transfert radiatif

Cherchons maintenant à décrire l'amplification du rayonnement XUV au cours de sa propagation le long d'une colonne de plasma présentant une inversion de population. Nous allons calculer l'intensité de ce rayonnement le long de la colonne. Considérons un milieu amplificateur homogène cylindrique de longueur L et de rayon R. On suppose que R < L. La rayonnement est émis dans tout l'espace mais seuls les rayons émis à une extrémité du cylindre et ayant parcouru toute sa longueur contribueront significativement à l'intensité finale. On considère alors que le rayonnement est émis dans un angle solide  $\Omega = \frac{\pi R^2}{L^2}$  (cf Fig. 2.2), et on néglige la réfraction du rayonnement XUV. L'émissivité s'écrit alors :

$$j(\nu) = \frac{\Omega}{4\pi} n_u h \nu A \Phi(\nu) \tag{2.14}$$



FIGURE 2.2 – Géométrie simplifiée du milieu amplificateur laser : colonne cylindrique

L'intensité spectrale du rayonnement émis dépend des processus d'absorption et d'émission stimulée et suit l'équation du transfert radiatif donnée par :

$$\frac{dI}{dz}(\nu,z) = j(\nu,z) + g(\nu,z) I(\nu,z)$$
(2.15)

Nous allons d'abord supposer que le gain et l'émissivité spectrale sont constants le long de l'amplificateur. L'intégration de cette équation conduit alors à :

$$I(\nu,z) = \frac{j(\nu)}{g(\nu)} \left[ e^{g(\nu)z} - 1 \right]$$
(2.16)

Cette relation montre une croissance exponentielle de l'intensité avec la longueur du milieu. Il reste maintenant à intégrer spectralement cette équation pour en déduire l'intensité totale. En effet, la plupart des détecteurs intègrent spectralement le rayonnement et, comme nous le verrons par la suite, notre spectromètre n'est pas capable de résoudre la raie laser XUV. On peut déjà utiliser l'approximation  $\frac{j(\nu)}{g(\nu)} \simeq \frac{j_0}{g_0}$ , où  $j_0$  et  $g_0$  sont respectivement l'émissivité et le gain au centre de la raie laser. On peut alors écrire :

$$I(\nu,z) = \frac{j_0}{g_0} \left[ e^{g(\nu)z} - 1 \right]$$
(2.17)

et donc :

$$I(z) = \frac{j_0}{g_0} \int_{\nu} \left[ e^{g(\nu)z} - 1 \right] d\nu$$
(2.18)

La formule de Linford [140] permet de calculer une forme approchée de l'intensité totale émise dans le cas d'une forme de raie gaussienne :

$$I(L) = \frac{\sqrt{\pi}\Delta\nu_0}{2\sqrt{\ln 2}} \frac{j_0}{g_0} \frac{\left[e^{g_0L} - 1\right]^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{g_0L e^{g_0L}}}$$
(2.19)

où  $\Delta \nu_0$  représente la largeur à mi-hauteur de la raie avant amplification.Une formule analogue existe également pour le cas d'une forme de raie lorentzienne [141].

La croissance exponentielle de l'intensité avec la longueur ne peut durer indéfiniment. À partir d'un certain niveau d'intensité (produit gain-longueur supérieur à 15 environ), l'émission stimulée intervient de manière importante dans l'évolution des populations des niveaux. En effet, elle tend à diminuer la population du niveau supérieur de la transition et par conséquent l'inversion de population et donc le gain. L'approximation de Linford consistant à considérer le gain et l'émissivité constants avec la longueur d'amplification n'est donc plus valable. On peut montrer que dans le cas d'un régime quasi-stationnaire, c'est-à-dire lorsque les populations des niveaux atteignent très rapidement un équilibre, l'inversion de population diminue avec l'intensité (donc indirectement avec la longueur d'amplification) selon la loi suivante :

$$\Delta n = \frac{\Delta n_i}{1 + \frac{\bar{I}}{I_S}} \tag{2.20}$$

où  $\bar{I} = \int_{\nu} \Phi(\nu) I(\nu) d\nu$  est l'intensité moyennée sur le profil spectral et  $I_S$  est l'intensité de saturation. Elle correspond à l'intensité pour laquelle l'inversion de population est divisée par 2. Elle est égale à :

$$I_S = \frac{h\nu_0}{\sigma_{stim}(\nu)\,\tau} \tag{2.21}$$

 $\tau$  est le taux de recouvrement de l'inversion de population (ou du gain) et ne dépend que du taux de dépendement du niveau supérieur de la transition. Le gain en régime saturé va donc s'écrire :



plement du niveau supérieur de la transition. Le gain en régime saturé va donc s'écrire :  $g(\nu) = \frac{g_i(\nu)}{1 + \frac{\bar{I}}{I_S}} \simeq g_i(\nu) \frac{I_S}{\bar{I}}$ (2.22)

FIGURE 2.3 – Calcul numérique de l'intensité intégrée spectralement en fonction de la longueur d'amplification. Le rapport  $\frac{j_0}{I_S}$  est égal à  $10^{-6}$  et la raie est supposée avoir un profil de Voigt. La saturation du gain est prise en compte et intervient après différentes longueurs d'amplification dans chaque cas.

L'intensité va alors croître linéairement avec la longueur de l'amplificateur (Fig. 2.3). On peut calculer le produit gain-longueur pour une intensité égale à l'intensité de saturation :

$$(gL)_{sat} = \ln\left(\frac{4\pi\Delta n}{\Omega A n_u \tau}\right) \tag{2.23}$$

 $(gL)_{sat}$  dépend des propriétés atomiques du milieu et de la géométrie du plasma. Il est généralement compris entre 15 et 20.

#### 2.1.4 Largeur spectrale

La largeur spectrale du rayonnement émis est déterminée par deux types de sources d'élargissement. L'élargissement homogène concerne tous les émetteurs de la même manière. Le profil spectral normalisé correspondant prend une forme lorentzienne :

$$\Phi_H(\nu,\nu_0) = \frac{2}{\pi \Delta \nu_H} \frac{1}{1 + \frac{4\left(\nu - \nu_0\right)^2}{\Delta \nu_H^2}}$$
(2.24)

où  $\Delta \nu_H$  est la largeur homogène de la raie laser à mi-hauteur. L'élargissement homogène, appelé également élargissement naturel, est lié au temps de vie des niveaux de la transition. Ces temps de vie sont déterminés par les différentes probabilités de relaxation des niveaux : relaxation spontanée ou par collisions électroniques. L'élargissement naturel de la transition  $4d \rightarrow 4p$  à 32.8 nm de l'ion Kr<sup>8+</sup> a été calculé par le code de cinétique plasma (*cf* § 2.3) et correspond à une largeur spectrale :

$$\Delta \nu_H = 5.7 \,\mathrm{mA}$$

L'élargissement inhomogène est dû à l'existence d'émetteurs rayonnant à des fréquences centrales différentes. Une source possible d'élargissement inhomogène est l'effet Doppler : du fait de l'agitation thermique des ions, leur fréquence centrale d'émission sera modifiée dans le référentiel du laboratoire par effet Doppler. A l'équilibre thermique, la fonction de distribution des vitesses des ions est maxwellienne. On peut montrer que le profil spectral résultant de cette distribution de vitesses est de forme gaussienne :

$$\Phi_D(\nu) = \frac{1}{\Delta\nu_D} \sqrt{\frac{4\ln 2}{\pi}} \exp\left[-\frac{4\ln 2(\nu - \nu_0)^2}{\Delta\nu_D^2}\right]$$
(2.25)

où  $\Delta \nu_D$  est la largeur Doppler à mi-hauteur, donnée par :

$$\Delta \nu_D = \nu_0 \sqrt{\frac{8k_B T_i \ln 2}{m_i c^2}} \simeq 7.715 \times 10^{-5} \nu_0 \sqrt{\frac{T_i \,[\text{eV}]}{m_i \,[\text{u.m.a}]}}$$
(2.26)

où  $k_B$  est la constante de Boltzmann,  $m_i$  la masse d'un ion et  $T_i$  la température ionique. Nous verrons aux paragraphes 2.2.4 et 2.3 que la température ionique du plasma OFI est relativement faible, de l'ordre de 6 eV à des pressions de l'ordre de la dizaine de mbar. L'élargissement Doppler généré est :

$$\Delta \nu_D = 6.7 \,\mathrm{m}\mathrm{\AA}$$

Une autre source d'élargissement inhomogène est l'effet Stark. En effet les ions et les électrons vont créer un champ électrique en chaque point où se trouve un ion émetteur. Cet ion émetteur verra alors les énergies de ses niveaux modifiées par effet Stark et comme chaque ion verra un champ électrique différent, l'effet statistique va conduire à un élargissement global de la transition. Cet effet n'est néanmoins pas significatif à des densités de plasma de l'ordre de  $10^{18} - 10^{19}$  cm<sup>-3</sup>. Des simulations réalisées avec le code PPP [142] ont en effet montré que l'effet Stark ionique peut être négligé à ces densités, qui sont typiquement celles de notre plasma OFI. La figure 2.4 donne la largeur spectrale de la raie laser calculée pour une pression de krypton de 30 mbar. Notons que la composante homogène de l'élargissement a été sous-estimée car le code ne prend pas en compte la distribution d'énergie non-maxwellienne<sup>2</sup> des électrons.

<sup>2.</sup> Comme nous le verrons au paragraphe 2.2.3



FIGURE 2.4 – Spectre du rayonnement XUV calculé avec et sans effet Stark pour une pression de krypton de 30 mbar

La contribution des élargissements homogène et inhomogène peut être prise en compte en convoluant les deux types de profils spectraux. dans le cas d'un profil homogène lorentzien et d'un profil inhomogène Doppler gaussien, le résultat est par définition un profil de Voigt. L'amplification va tendre à rétrécir le spectre de la raie amplifiée. Koch *et al.*[143] ont donné une description assez complète de l'évolution de la largeur de raie au fur et à mesure de l'amplification. Le modèle utilisé est une transposition du modèle présenté précédemment et prend en compte le fait que les populations d'ions de vitesses différentes ne seront pas saturées de la même manière. L'équation de transfert radiatif s'écrit alors :

$$\frac{dI}{dz}(\nu,z) = \frac{j_0}{\Phi(0)} \left[ 1 + \frac{g_0 I(\nu,z)}{j_0} \right] \int_u \frac{\Phi_D(u) \Phi_H(\nu,u)}{1 + \frac{1}{I_S} \int_v I(v,z) \Phi_H(v,u) \, dv} du$$
(2.27)

où  $\Phi(0)$  est la valeur du profil de Voigt au centre de la raie.

Nous étudierons plus spécifiquement l'évolution de la largeur spectrale du rayonnement en régime ASE et injecté dans le chapitre 5.

# 2.2 Interaction laser-gaz à haute intensité

Cette partie a pour but de décrire les phénomènes se produisant lorsque le champ laser de pompe intense interagit avec un milieu gazeux. Nous allons particulièrement insister sur la création du plasma de krypton 8<sup>+</sup> qui constitue le milieu amplificateur laser. Les problématiques de propagation du champ laser dans le plasma, de haute importance dans le cas d'un pompage longitudinal, seront également abordées.

#### 2.2.1 Les différents types d'ionisation par le champ laser

Les sources XUV que nous avons étudiées d'une manière ou d'une autre dans ce travail de thèse résultent de l'interaction d'un faisceau laser intense avec un milieu gazeux. Pour se faire une idée de l'ordre de grandeur des intensités mises en jeu, rappelons que le champ coulombien vu par l'électron d'un atome d'hydrogène est de l'ordre de  $5 \times 10^9$  V/cm, ce qui correspond à une intensité lumineuse de  $3.5 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> d'après la relation liant le champ électrique *E* et l'intensité résultante *I*:

$$I = \frac{\epsilon_0 c}{2} E^2 \tag{2.28}$$

où  $\epsilon_0$  est la permittivité diélectrique du vide et *c* la célérité de la lumière dans le vide. Cette intensité peut être considérée comme une unité atomique d'intensité, une référence pour les processus atomiques mis en jeu, notamment l'interaction avec un champ laser. Avec le développement des lasers de haute puissance, il est maintenant possible d'exposer des atomes à des champs électromagnétiques largement supérieurs aux champs coulombiens des atomes.

La théorie de l'ionisation par un champ variable a été développée en 1965 par Keldysh [144]. Le premier processus d'ionisation par un champ électromagnétique connu est la photoionisation, depuis la découverte de l'effet photoélectrique. Il consiste en l'absorption d'un photon par un atome ayant pour conséquence l'éjection d'un électron de cet atome, et ne peut par conséquent avoir lieu que si l'énergie du photon incident est supérieure à l'énergie de liaison de l'électron dans l'atome (énergie d'ionisation). La photoionisation n'est pas possible en utilisant des lasers infrarouges, l'énergie d'un photon à 800 nm étant de 1.5 eV, bien inférieure aux énergies d'ionisation des atomes.

L'ionisation multiphotonique est la généralisation de ce processus à l'absorption de plusieurs photons. Elle n'est significative qu'à un flux de photons relativement élevée et l'absorption multiphotonique n'a été observée pour la première fois qu'en 1950 dans les radiofréquences [145], près de 20 ans après sa prédiction [146], et en 1961 dans le domaine optique [147] du fait de l'absence de source suffisamment intense. La première observation de l'ionisation multiphotonique date de 1965 [148]. Le principe est le suivant : lorsque l'énergie d'un photon incident n'est pas suffisante pour ioniser l'atome, celui-ci peut absorber plusieurs photons successifs jusqu'à ce l'énergie acquise soit supérieure à l'énergie d'ionisation de cet atome, qui relâche alors un électron.



FIGURE 2.5 – Principe de l'ionisation multiphotonique : absorption de plusieurs photons

Ce processus se produit à champ dit "faible" (devant le champ atomique liant les électrons), typiquement pour des intensités de  $10^{10}$  à  $10^{13}$ - $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Les niveaux atomiques sont donc faiblement perturbés par le champ laser. La figure 2.5 résume le principe de l'ionisation multiphotonique.

Une fois dans le continuum, l'électron peut encore acquérir de l'énergie sous forme d'énergie cinétique en absorbant des photons supplémentaires si leur flux incident est suffisamment élevé. On appelle ce phénomène l'ionisation au-dessus du seuil, ou ATI pour "above-threshold ionization", qui a typiquement lieu pour des intensités laser supérieures à  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>. En l'absence de résonance avec des niveaux réels, la distribution des électrons créés par ionisation multiphotonique est donc composée de plusieurs pics centrés sur les énergies  $E_c(k) = (n + k)h\nu - U_i$ ,  $U_i$  étant le potentiel d'ionisation de l'atome, n le nombre photons nécessaires à l'ionisation et k le nombre de photons absorbés par ATI. La largeur de ces pics est due au fait que l'énergie des électrons libérés –par l'intermédiaire du potentiel d'ionisation perturbé par la force pondéromotrice– dépend également du champ à l'instant de la libération.

L'ionisation tunnel, ou ionisation par effet tunnel, a été observée pour la première fois en 1985 [149] en utilisant un laser CO<sub>2</sub> puis en 1989 [150] dans le domaine visible. Elle se produit à champ fort, c'est-à-dire pour des intensités lumineuses supérieures à  $10^{13}$ - $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> et s'explique par l'action directe du champ sur le potentiel coulombien liant l'électron au noyau. À ces forts éclairements, on peut traiter le champ électromagnétique comme un champ classique qui entre en compétition avec les champs atomiques. Son action va en effet abaisser la barrière de potentiel et permettre à l'électron de la franchir par effet tunnel. Le schéma 2.6 illustre cet effet : le potentiel attracteur du noyau (en rouge) est déformé par le potentiel électrique (en bleu) et l'électron possède alors une probabilité non nulle de traverser la barrière. Il est à noter que pour que ce processus ait lieu, la période d'oscillation laser doit être grande devant le temps de traversée de l'électron. Ce temps est très court ( $10^{-15}$ s), mais on se rend compte que le laser doit être de basse fréquence (infrarouge par exemple).



FIGURE 2.6 – Principe de l'ionisation tunnel : abaissement de la barrière de potentiel liant l'électron au noyau

Nous donnerons des détails sur les taux d'ionisation tunnel et la distribution électronique

résultante dans le cas des plasmas XUV plus loin dans ce chapitre.

L'ionisation par suppression de barrière correspond au cas limite de l'ionisation tunnel où le champ est tellement intense que l'électron n'est plus piégé dans le potentiel du noyau. L'ionisation est donc immédiate. Le principe est donné par le schéma 2.7.



FIGURE 2.7 – Principe de l'ionisation par suppression de barrière

Le modèle BSI, pour "barrier-suppression ionization" est un modèle hydrogénoïde simple [151] qui permet de calculer les éclairements seuils à partir desquels la barrière de potentiel est supprimée. Le champ y est considéré comme quasi-statique; en effet, si la barrière est supprimée, l'échelle de temps caractéristique de l'ionisation est le temps de rotation de l'électron autour du noyau, de l'ordre de  $10^{-2}$  fs, bien inférieure à la période du champ laser infrarouge (2.7 fs à 800 nm). L'énergie potentielle effective d'un électron lié sur une orbite de rayon r en présence du champ laser E s'écrit :

$$V(r) = \frac{L^2}{2r^2} - \frac{Z}{4\pi\epsilon_0 r} - rE$$
(2.29)

où L est le moment angulaire de l'électron et Z la charge atomique effective. En fixant L = 0, on obtient le potentiel vu par l'électron et on peut calculer la position du sommet de la barrière de potentiel et donc la valeur maximale du potentiel :

$$V_{max} = -4\sqrt{\pi\epsilon_0 ZE} \tag{2.30}$$

La valeur minimale du champ électrique pour que celle-ci soit en dessous du potentiel d'ionisation  $U_i$  est donc :

$$E_{BSI} = \frac{U_i^2}{16\pi\epsilon_0 Z} \tag{2.31}$$

L'intensité correspondante peut alors s'écrire :

$$I_{BSI} = C \frac{U_i^4 \text{ [eV]}}{Z^2} \qquad \left[ \text{W/cm}^2 \right]$$
(2.32)

avec  $C \simeq 4 \times 10^9$  en polarisarion linéaire et  $C \simeq 8 \times 10^9$  en polarisation circulaire. Ce modèle très simple ne prend pas en compte l'effet Stark dû au champ laser qui modifie le potentiel d'ionisation

de l'atome de manière non négligeable en champ fort (de l'ordre de quelques eV pour une intensité laser de  $10^{14} \,\mathrm{W/cm^2}$ ). Il nous permet néanmoins d'estimer l'intensité nécessaire pour la création de l'ion Kr<sup>8+</sup>. Le tableau 2.2 donne les potentiels d'ionisation de chaque état de charge du krypton et les intensités BSI correspondantes.

Espèce ionique	$U_i$ [eV]	$I_{BSI}  [W/cm^2]$
Kr	14.00	$3.1 \times 10^{14}$
Kr II	24.36	$7.0  imes 10^{14}$
Kr III	36.95	$1.7 \times 10^{15}$
Kr IV	52.50	$3.8  imes 10^{15}$
Kr V	64.70	$5.6 imes10^{15}$
Kr VI	78.49	$8.4  imes 10^{15}$
Kr VII	111.00	$2.5 \times 10^{16}$
Kr VIII	125.80	$3.1 \times 10^{16}$
Kr IX	231.48	$2.8\times10^{17}$

TABLE 2.2 – Potentiels d'ionisation des 9 premiers états de charge du krypton et intensités BSI associées pour une polarisation du champ circulaire

On constate donc qu'une intensité de  $3.1 \times 10^{16}$ W/cm<sup>2</sup> en polarisation circulaire est nécessaire à la création de l'ion  $Kr^{8+}$ . Il est intéressant de constater que l'éclairement requis pour atteindre l'état de charge supérieur est supérieur d'un ordre de grandeur, ce qui illustre bien la stabilité des ions lasants que nous souhaitons produire.

Ce modèle BSI est très simple mais donne une probabilité d'ionisation égale à 1 pour une intensité  $I \ge I_{BSI}$  et nulle pour  $I < I_{BSI}$  et ne renseigne donc pas sur la quantité d'ions créés. Pour cela, il faut calculer les taux d'ionisation tunnel.

Enfin, il peut être utile de déterminer la limite entre le régime d'ionisation multiphotonique et d'ionisation tunnel. Les deux paramètres déterminants vont être l'intensité du champ électrique et sa fréquence  $\omega$ . Nous allons ici évaluer le temps de traversée de la barrière de potentiel par l'électron. Dans la théorie de Keldysh [144], l'épaisseur de la barrière de potentiel est donnée par :

$$\ell = \frac{U_i}{eE} \tag{2.33}$$

où e est la charge élémentaire. La vitesse moyenne de l'électron est donnée par :

$$v = \sqrt{\frac{2U_i}{m_e}} \tag{2.34}$$

où  $m_e$  est la masse de l'électron. On en déduit le temps moyen de traversée de la barrière  $\tau = \ell/v$  que l'on ramène à une fréquence  $\omega_{\ell}$ :

$$\omega_i = \frac{eE}{\sqrt{2m_e U_i}} \tag{2.35}$$

Le **paramètre de Keldysh**  $\gamma$  est donné par le rapport entre cette fréquence  $\omega_i$  et la fréquence du champ laser :

$$\gamma = \frac{\omega}{\omega_i} = \omega \frac{\sqrt{2m_e U_i}}{eE} \tag{2.36}$$

Lorsque la période d'oscillation du champ est grande devant le temps de traversée de la barrière par l'électron, donc lorsque  $\gamma \ll 1$ , c'est le régime d'ionisation tunnel qui est observé. Pour  $\gamma \gg 1$ , c'est le régime multiphotonique. On peut également donner une interprétation énergétique au paramètre de Keldysh. L'énergie cinétique moyenne d'un électron oscillant dans le champ, également appelée potentiel pondéromoteur du champ laser, est donnée par :

$$U_p = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2} \tag{2.37}$$

On a donc :

$$\gamma = \sqrt{\frac{U_i}{2U_p}} \tag{2.38}$$

Le régime d'ionisation tunnel se produit donc lorsque le potentiel pondéromoteur du laser est grand devant le potentiel d'ionisation.

#### 2.2.2 Taux d'ionisation tunnel et degré d'ionisation final atteint

La théorie de l'ionisation tunnel a été étendue aux cas plus complexes que celui de l'hydrogène par Ammosov, Delone et Krainov [152]. Le calcul est relativement complexe du fait de l'utilisation de potentiels issus de la méthode du défaut quantique adaptée au cas des atomes lourds. Nous donnons ici la valeur corrigée des taux ADK pour une polarisation linéaire qui éliminent la dépendance avec les nombres quantiques l, m et n [153] :

$$W_{\uparrow} = \sqrt{\frac{3n^*E}{\pi Z^3}} \frac{ED^2}{8\pi Z} \exp\left[-\frac{2Z^3}{3n^*E}\right]$$
(2.39)

avec :

$$n^* = \frac{Z}{\sqrt{2U_i}} \tag{2.40}$$

et:

$$D = \left(\frac{4eZ^3}{n^{*4}E}\right) \tag{2.41}$$

où Z est la charge de l'ion *produit* et  $n^*$  le nombre quantique principal effectif. Le taux d'ionisation tunnel en polarisation linéaire est relié à celui en polarisation circulaire par la relation suivante :

$$W_{\uparrow} = \sqrt{\frac{3E}{\pi E_i}} W_{\circlearrowright} \tag{2.42}$$

où  $E_i = (2U_i)^{\frac{3}{2}}$  est le champ électrique intra-atomique vu par un électron d'énergie de liaison  $U_i$ . Le facteur supplémentaire dans le taux d'ionisation en polarisation linéaire vient du fait que l'on tient compte de la nature oscillante du rayonnement laser en effectuant une moyenne sur un cycle optique.

Dans le modèle ADK, on suppose que les électrons sont éjectés l'un après l'autre, donc chaque atome passe par tous les états de charge intermédiaires jusqu'à l'état de charge final. Il peut être intéressant de représenter graphiquement les taux d'ionisation des états de charge du krypton en fonction de l'intensité laser appliquée (Fig. 2.8(a)). On peut également en déduire l'évolution des populations ioniques et donc le degré d'ionisation moyen du plasma (Fig. 2.8(b)) :

$$\begin{cases} \frac{d\rho_0}{dI} = -W_0(I)\rho_0(I) \\ \frac{d\rho_k}{dI} = -W_k(I)\rho_k(I) + W_{k-1}(I)\rho_{k-1}(I) \end{cases}$$
(2.43)



où  $W_k$  et  $\rho_k$  représentent le taux d'ionisation et la densité d'un ion k fois ionisé.

(a) Taux d'ionisation des états de charge du krypton

(b) Évolution de l'état de charge du krypton en fonction de l'intensité laser

FIGURE 2.8 – Ionisation du krypton en fonction de l'intensité laser

On remarque que les taux d'ionisation augmente de manière exponentielle avec l'intensité du champ électrique. La figure 2.8(a) nous montre notamment qu'à une intensité de  $10^{17}$ W/cm<sup>2</sup>, le taux de création de l'ion Kr<sup>8+</sup> (ou taux d'ionisation de l'ion Kr<sup>7+</sup>) est de l'ordre de  $10^{18}$  s<sup>-1</sup> alors que son taux d'ionisation est seulement de  $10^8$  s<sup>-1</sup>. Il peut être plus parlant dans notre cas de s'intéresser directement au degré d'ionisation atteint en fonction de l'intensité. On observe un plateau net montrant que pour une intensité comprise entre  $2 \times 10^{16}$ W/cm<sup>2</sup> et  $2 \times 10^{17}$ W/cm<sup>2</sup> l'ion présent est l'ion Kr<sup>8+</sup>. Comme nous l'avons vu précédemment, ceci est dû au fait que cet ion possède sa couche n = 3 complète et est donc relativement stable.

Notre cas est plus précisément l'interaction d'une impulsion d'intensité variable dans le temps avec le gaz. On peut alors représenter l'évolution temporelle des populations ioniques et du degré d'ionisation moyen du plasma comme sur la figure 2.9 pour laquelle le calcul a été réalisé pour une impulsion de 35 fs et d'intensité crête égale à  $10^{17}$ W/cm<sup>2</sup>.



FIGURE 2.9 – Ionisation du krypton par une impulsion lumineuse d'intensité crête  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> et de durée 35fs

#### 2.2.3 Distribution électronique des électrons OFI

Il existe deux types de chauffage des électrons libres du plasma. Un électron arraché par OFI peut gagner de l'énergie soit directement par le champ électrique laser (ionisation au-dessus du seuil), soit par collision avec un ion. Considérons tout d'abord le cas du **chauffage par ATI** : après ionisation, l'électron libéré est accéléré par la force du champ électrique laser jusqu'à ce que ce dernier l'ait complètement traversé. Il va donc acquérir une vitesse dans une direction aléatoire. Ce phénomène ne dépend pas de la densité du plasma puisqu'il concerne chaque électron individuellement, mais considéré sur l'ensemble des électrons, il constitue un chauffage global.

Le mouvement des électrons ionisés au-dessus du seuil a été étudié dans [154] et on peut faire quelques approximations [155]:

- les électrons sont relâchés indépendamment les uns des autres
- l'électron est relâché au repos à un instant donné et n'est soumis qu'au champ électrique laser (on néglige le champ ionique)
- les collisions secondaires de l'électron avec son ion parent sont négligées

Considérons un champ électrique las d'intensité I et de polarisation quelconque; il peut s'écrire sous la forme :

$$\mathbf{E}(t) = \sqrt{\frac{2I(t)\Phi}{\epsilon_0 c}}\cos(\omega t)\mathbf{\hat{x}} + \sqrt{\frac{2I(t)(1-\Phi)}{\epsilon_0 c}}\sin(\omega t)\mathbf{\hat{y}}$$
(2.44)

où  $\Phi$  représente la polarisation du champ :  $\Phi = 0$  pour une polarisation linéaire et  $\Phi = \frac{1}{2}$  pour une polarisation circulaire. Son amplitude s'écrit donc :

$$E(t) = E_0(t)\sqrt{\Phi\cos^2(\omega t) + (1 - \Phi)\sin^2(\omega t)}$$
(2.45)

À l'instant d'ionisation, l'électron a une vitesse  $\mathbf{v}(t=0)$  nulle. Dans le champ laser, sa vitesse est décrite par :

$$\frac{d\mathbf{v}}{dt}(t) = -\frac{e}{m_e}\mathbf{E}(t) \tag{2.46}$$

En considérant l'enveloppe du champ lentement variable  $(E_0(t) = c^{te})$ , on peut calculer la vitesse de l'électron et par conséquent son énergie cinétique :

$$E_c(t) = \begin{cases} \frac{e^2 E_0^2}{2m_e \omega^2} \cos^2(\omega t) & \text{pour } \Phi = 0 \text{ (polarisation linéaire)} \\ \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2} & \text{pour } \Phi = \frac{1}{2} \text{ (polarisation circulaire)} \end{cases}$$
(2.47)

En observant les relations 2.45 et D.6 On constate donc qu'en polarisation linéaire, l'énergie cinétique gagnée par l'électron est maximale lorsque le champ E(t) est minimal. Or, l'expression des taux d'ionisation tunnel nous montre que le taux d'ionisation est maximal lorsque le champ est maximal. En revanche, en polarisation circulaire, l'énergie cinétique acquise est constante sur un cycle optique. Les électrons accélérés dans un champ polarisé circulairement seront donc en moyenne beaucoup plus rapides, et le chauffage beaucoup plus important.

Le chauffage par bremsstrahlung inverse, ou chauffage collisionnel, est dû au fait qu'un électron oscillant dans le champ laser peut absorber un photon en entrant en collision avec un ion. En considérant l'ensemble des électrons, l'énergie du rayonnement absorbée se convertit alors en énergie thermique. Ce mécanisme de chauffage est étudié dans [156] dans le cas d'un plasma

OFI. Le changement de température électronique induit par bremsstrahlung inverse dépend de la densité ionique et de la durée d'impulsion du laser (dans le régime d'impulsion courte, typiquement  $\langle ps \rangle$ ). On peut montrer qu'aux basses densités auxquelles nous travaillons ( $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  maximum), ce type de chauffage n'est pas significatif face au chauffage par ATI. En revanche, c'est le principal mécanisme de chauffage des électrons dans les plasmas créés à partir de cibles solides, beaucoup plus denses.

La distribution énergétique des électrons est donc essentiellement due à l'énergie gagnée par ATI. La figure 2.10 donne le calcul de cette distribution énergétique par le code de cinétique plasma à l'instant suivant l'ionisation par des champs de polarisation différentes. L'intensité du champ est de  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. En polarisation circulaire, la distribution énergétique est non-maxwellienne, et on devine plusieurs pics correspondants aux différents états de charge du krypton. Rappelons que les électrons doivent posséder une énergie cinétique supérieure à 145 eV pour pouvoir pomper l'inversion de population. Il est alors clair qu'une polarisation linéaire ne génère pas d'électrons suffisamment énergétiques pour cela. On a donc tout intérêt à travailler avec une polarisation circulaire ou proche.



FIGURE 2.10 – Distribution énergétique des électrons du plasma en fonction de la polarisation du champ électrique utilisé

#### 2.2.4 Distribution énergétique des ions

Nous avons vu au paragraphe 2.1.4 que la source d'élargissement spectral inhomogène de la raie laser est dans notre cas l'effet Doppler. Ce dernier est directement lié à la vitesse des ions, donc statistiquement à la température ionique du plasma comme le montre la relation 2.26. Le chauffage des ions se base sur le même principe que le chauffage des électrons, la principale différence étant que l'ion va subir des changements d'état de charge. Ce phénomène a été étudié dans [157] dans le cas du xénon ionisé par le champ laser. Comme pour l'électron, la vitesse  $v_z$  d'un ion d'état de charge Z est décrite par :

$$\frac{d\mathbf{v}_{\mathbf{Z}}}{dt}(t) = \frac{Ze}{m_i} \mathbf{E}(t) \tag{2.48}$$

Si on note  $\mathbf{v}_{\mathbf{e}}$  la vitesse de dérive de l'électron décrite par l'équation 2.46, on peut écrire :

$$\mathbf{v}_{\mathbf{Z}} = -Z \frac{m_e}{m_i} \mathbf{v}_{\mathbf{e}} \tag{2.49}$$

Pour calculer la vitesse finale de l'ion, il faut calculer sa vitesse après chaque ionisation aux instants  $t_1, t_2, ..., t_Z$ . On suppose que sa vitesse initiale  $\mathbf{v_0}$  est de direction aléatoire et de module déterminé par la distribution de Maxwell-Boltzmann à la température du gaz ( $\simeq 300 \text{ K}$ ). On peut alors montrer qu'à un temps t postérieur à toutes les ionisations de cet ion, sa vitesse est donnée par :

$$\mathbf{v}_{\mathbf{Z}}(t) = \mathbf{v}_{\mathbf{0}} + \frac{m_e}{m_i} \sum_{i=1}^{Z} \mathbf{v}_{\mathbf{e}}(t_i)$$
(2.50)

On voit alors que la vitesse finale de l'ion sera bien plus faible que celle d'un électron :

- elle résulte d'une somme vectorielle de vitesses de directions aléatoires, sa norme sera donc
- bien inférieure à la somme des normes des  $v_e$
- le rapport  $\frac{m_e}{m_i}$  est très faible (7 × 10<sup>-6</sup> pour le krypton)

La fonction de distribution énergétique des ions reste plus ou moins maxwellienne après l'ionisation par le champ, le pic étant légèrement décalé vers les hautes énergies. Le code développé dans [157] a permis de calculer l'élévation de température due à l'OFI. Elle est comme attendue très faible, de l'ordre de 100 K (9 meV). Nous verrons au paragraphe 2.3 l'évolution de la température ionique pendant la durée du gain.

# 2.3 Cinétique du plasma

Nous allons ici étudier l'évolution du plasma après sa création par OFI. Contrairement au cas des amplificateurs XUV fonctionnant en régime stationnaire pompés par impulsion longue, l'ionisation par le champ est très rapide et on peut découpler l'étude des phénomènes ayant lieu dans le plasma (recombinaisons, collisions,...) de l'ionisation. Nous présenterons le modèle utilisé et l'évolution temporelle des grandeurs caractéristiques du plasma.

#### 2.3.1 Équilibre thermodynamique du plasma

Un plasma créé par OFI est à son état initial fortement hors-équilibre thermodynamique. Les électrons libérés ont une énergie moyenne largement supérieure à l'énergie d'ionisation des ions. La distribution électronique présentée au paragraphe 2.2.3 –calculée à partir du code que nous décrirons plus loin– montre que pour les ions  $Kr^{8+}$  d'énergie d'ionisation égale à 231.5 eV, les électrons ont une énergie moyenne d'environ 740 eV pour un champ polarisé circulairement. Les phénomènes d'excitation et d'ionisation collisionnelle vont induire un transfert d'énergie des électrons vers les ions jusqu'à atteindre un équilibre.

Pour avoir des indications sur l'état limite du plasma, on peut utiliser l'équation de Saha qui décrit l'équilibre thermodynamique entre les électrons et les différents ions sans tenir compte des états excités de ces derniers. Elle donne le rapport entre les populations de deux espèces ioniques de charge Q et Q + 1 en fonction de la température électronique  $T_e$  et de l'énergie d'ionisation de l'ion de charge Q notée  $U_Q$ :

$$n_e \frac{n_{Q+1}}{n_Q} = 2 \frac{[2m_e k_B T_e]^{\frac{3}{2}}}{h^3} \exp\left(-\frac{U_Q}{k_B T_e}\right)$$
(2.51)

On considère que la température électronique est donnée par l'énergie moyenne des électrons  $\bar{\epsilon_e}$ . Cette énergie diminue du fait d'une part que les électrons de collision transfèrent une partie de leur énergie vers les ions, et d'autre part que les électrons éjectés des ions vont s'ajouter aux électrons libres déjà présents sans apporter d'énergie cinétique, provoquant donc une diminution mécanique de  $\bar{\epsilon_e}$ . On peut évaluer la perte d'énergie lorsqu'un ion passe de l'état de charge Q à l'état Q + 1:

$$\bar{\epsilon_e}(Q+1) = \frac{Q\bar{\epsilon_e}(Q) - U_Q}{Q+1} \tag{2.52}$$

D'après le tableau 2.3 établi pour une pression de krypton de 30 mbar, on peut voir que le plasma atteint l'équilibre  $n_{Q+1} = n_Q$  pour un degré d'ionisation entre 17 et 18. On constate aussi que  $\frac{n_{Kr^{9+}}}{n_{Kr^{8+}}} \simeq 10^6$  ce qui confirme que le plasma à l'état initial est fortement hors équilibre.

Espèce ionique de charge $Q$	$n_{Q+1}/n_Q$
Kr <sup>8+</sup>	$1.2 \times 10^6$
Kr <sup>9+</sup>	$7.4 \times 10^5$
Kr <sup>10+</sup>	$4.3  imes 10^5$
Kr <sup>11+</sup>	$2.3  imes 10^6$
Kr <sup>12+</sup>	$1.2 \times 10^5$
Kr <sup>13+</sup>	$5.1 \times 10^4$
Kr <sup>14+</sup>	$1.9 \times 10^4$
Kr <sup>15+</sup>	$5.2 \times 10^3$
Kr <sup>16+</sup>	$8.7  imes 10^2$
Kr <sup>17+</sup>	$5.9  imes 10^1$
Kr <sup>18+</sup>	$1.1 \times 10^{-1}$

TABLE 2.3 – Détermination du degré d'ionisation à l'équilibre thermodynamique du plasma

#### 2.3.2 Évolution de la température ionique

L'évolution temporelle de la température ionique d'un plasma OFI a été étudiée dans [157]. Il existe plusieurs processus de chauffage des ions dans le plasma. Parmi ces processus ont trouve notamment les collisions binaires électron-ion qui peuvent –en plus d'exciter ou d'ioniser l'ion–transmettre de l'énergie cinétique aux ions. La température électronique étant très élevée et le plasma relativement peu dense, on peut traiter les électrons comme un gaz cinétique classique, et utiliser les formules usuelles :

$$\begin{cases} \frac{dT_i}{dt} = \nu_{ei} T_e \\ \nu_{ei} \ [s^{-1}] = 3.2 \times 10^{-9} \frac{Q^2}{M} \ln\Lambda n_e \ [cm^{-3}] \sqrt{T_e \ [eV]} \end{cases}$$
(2.53)

où M est le nombre de masse atomique et  $\ln \Lambda \simeq 10$ . En utilisant les valeurs données précédemment, on peut calculer que l'augmentation de la température ionique est de  $10^{-3}$  eV/ps pour une pression de krypton initiale de 30 mbar. L'expansion hydrodynamique du plasma peut causer une baisse de la température ionique, mais nous verrons plus loin qu'elle est négligeable. Un autre processus de chauffage ionique est l'effet de la force pondéromotrice du champ. Les électrons libérés vont en effet être accélérés dans la direction radiale et y effectuer un mouvement oscillatoire. Du fait du profil transverse de l'intensité laser, ces électrons verront un gradient radial d'intensité et seront moins accélérés vers l'axe lorsqu'ils en sont loin. Ceci a pour conséquence une dérive générale des électrons vers les bords du plasma et donc une charge d'espace. Par conséquent une force de rappel électrostatique va s'exercer sur eux par les ions, qui vont être chauffés par l'action réciproque. Suivant les calculs de [157], on peut estimer dans le cas du krypton  $8^+$  une énergie maximale gagnée par les ions de 0.1 eV.

Suivant ces estimations, la température ionique passe de 400 K à 1300 K environ. Il a en fait été montré que le chauffage des ions est principalement dû au couplage initial entre ces ions. La température électronique étant très élevée, la longueur de Debye<sup>3</sup> des électrons est largement supérieure à la distance moyenne entre les ions. On peut alors les considérer comme un fond neutralisant pour les ions qui interagissent entre eux *via* les forces électrostatiques. L'importance du couplage entre les ions est évaluée à partir du paramètre de couplage de Coulomb  $\Gamma$  défini comme le rapport entre l'énergie potentielle moyenne d'interaction coulombienne et l'énergie cinétique moyenne des ions :

$$\Gamma = \frac{Q^2}{\langle r \rangle T_i} \tag{2.54}$$

où  $\langle r \rangle$  est la distance moyenne entre les ions. Si  $\Gamma >> 1$ , l'énergie potentielle domine et le plasma est dit corrélé. Pour une pression de krypton de 30 mbar, la valeur initiale de  $\Gamma$  est proche de 400.



FIGURE 2.11 – Température finale atteinte par les ions du plasma en fonction de la pression initiale de gaz

Cet excès d'énergie potentielle va se dissiper car la répartition spatiale initiale des ions est la même que celle des atomes, mais ne correspond pas à la répartition la plus stable pour les ions qui vont se relaxer vers un équilibre. Les interactions ion-ion durant la relaxation vont permettre un transfert de l'énergie potentielle vers de l'énergie cinétique et donc un chauffage des ions. Il a été montré dans le cadre d'un modèle simple que la valeur asymptotique de  $\Gamma$  à l'équilibre est de 2.23,

<sup>3.</sup> La longueur de Debye est la longueur caractéristique d'écrantage du potentiel électrostatique par les électrons, égale à  $\sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{n_e e^2}}$  si  $T_e >> T_i$ 

ce qui a pour conséquence que la température finale des ions est alors donnée par :

$$T_i^F = 0.45 \frac{Q^2}{\langle r \rangle} \tag{2.55}$$

Pour une pression initiale de 30 mbar, la température ionique atteint alors 6 eV soit 70000 K. La figure 2.11, tirée de l'article [157] donne la température finale atteinte par les ions en fonction de la pression initiale de gaz.

#### 2.3.3 Modèle de cinétique 0D

Le code de cinétique plasma que nous avons utilisé, appelé OFI-OD, a été développé dans le but de caractériser un amplificateur XUV OFI en un point donné : gain, émissivité, intensité de saturation, etc... en fonction de paramètres-clés comme la pression du gaz, l'intensité et la polarisation du champ laser. C'est un code dépendant du temps uniquement, qui ne tient donc pas compte des phénomènes pouvant modifier l'état macroscopique du plasma (volume, énergie totale). Ces phénomènes sont principalement l'expansion hydrodynamique du plasma et ses pertes radiatives.

Le phénomène de l'expansion du plasma a été étudié dans [158]. Un plasma va s'expandre si sa pression est élevée par rapport à celle du milieu l'environnant. Dans notre cas, l'ionisation crée une température électronique beaucoup plus élevée qu'initialement, ce qui augmente significativement la pression du plasma, jusqu'au kbar environ. Un phénomène de diffusion ambipolaire a alors lieu : les électrons, beaucoup plus chauds, sortent les premiers de la zone du plasma, créant une charge d'espace et par conséquent un champ électrostatique. Ce champ aura tendance à accélérer les ions vers l'extérieur et à ralentir la diffusion des électrons. On peut montrer que la vitesse d'expansion des ions et des électrons est la même et qu'elle est égale à la vitesse acoustique mesurée à partir de la température électronique :

$$c_s = \sqrt{\frac{k_B T_e}{m_i}} \tag{2.56}$$

D'un point de vue acoustique, cette vitesse est plus grande que la vitesse acoustique dans le gaz neutre ou faiblement ionisé autour du plasma. L'expansion correspond donc à une onde de choc radiale. Dans notre cas, la vitesse d'expansion est de l'ordre de la dizaine de microns par ns. Comme nous le verrons plus loin, une dizaine de microns est la dimension radiale caractéristique de notre plasma. En revanche, le temps d'évolution caractéristique est de l'ordre de la dizaine de ps. On peut donc négliger l'expansion du plasma et la variation de densité induite.

Les pertes radiatives du plasma sont dues au fait que les photons émis peuvent ne pas être réabsorbés, provoquant une perte définitive de leur énergie pour le plasma. On peut évaluer ces pertes radiatives : considérons que les photons sont émis par relaxation radiative d'un niveau 2 vers un niveau 1. Ils sont émis en moyenne après un temps  $\tau_{R2}$  correspondant au temps de vie du niveau 2. Dans le cas ou le milieu est absorbant, des photons ont un libre parcours moyen  $\langle L \rangle$ avant d'être absorbés. Les ions les ayant absorbés vont alors ré-émettre un photon après un temps  $\tau_{R2}$ , et ainsi de suite. On considère que les photons émis se dirigent vers le bord du plasma en  $r = r_0$ . Pour évaluer ce libre parcours moyen, on va calculer le flux de photons émis à la fréquence en utilisant l'équation de transfert radiatif simplifiée  $\frac{dI}{dr} = g_0 I$  avec  $g_0 = \frac{c^2}{8\pi\nu_{12}^2}A_{12}\Delta n$  avec des notations évidentes (*cf* § 2.1.1). On peut montrer que le libre parcours moyen vaut :

$$\langle L \rangle = \frac{\int_0^\infty r I(r) dr}{\int_0^\infty I(r) dr} = \frac{1}{g_0}$$
(2.57)

On note  $\langle t_{r_0} \rangle$  le temps moyen mis par le photon pour arriver à  $r = r_0$ . La longueur  $\langle L \rangle$  étant parcourue en un temps égal à  $\frac{1}{A_{12}}$ , on a :

$$\langle t_{r_0} \rangle = \frac{r_0}{\langle L \rangle} \frac{1}{A_{12}} = r_0 \frac{c^2}{8\pi\nu_{12}^2} \Delta n$$
 (2.58)

Ce temps dépend donc surtout des populations des niveaux 1 et 2. On peut séparer son évaluation en deux cas : dans le cas de la désexcitation vers le fondamental, la variation de population du niveau fondamental (diminution d'un facteur 10 entre 0 et 10 ps comme nous le verrons plus loin) est telle que pour les niveaux pouvant se relaxer vers ce dernier, le temps  $\langle t_{r_0} \rangle$  est supérieur à la centaine de ps; dans le cas de la désexcitation vers un niveau excité, les temps moyens sont estimés être entre une et plusieurs centaines de ps. Un coefficient d'échappement a été introduit dans le code pour tenir compte de cet effet.

L'évolution des populations est déterminée par l'ensemble des processus atomiques ayant lieu dans le plasma. On peut distinguer les processus collisionnels (et leurs processus inverses) :

- l'excitation collisionnelle  $X_{Q,i} + e^- \to X_{Q,j>i} + e^-$  et la désexcitation collisionnelle
- l'ionisation collisionnelle  $X_{Q,i} + e^- \rightarrow X_{Q+1,j} + e^- + e^-$  et la recombinaison à 3 corps
- la recombinaison diélectronique  $X_{Q+1,i} + e^- \to X^*_{Q,j} \to X^*_{Q,j' < j} + \gamma$

Et les processus radiatifs (et leurs inverses) :

- la désexcitation spontané<br/>e $X_{Q,i} \rightarrow X_{Q,j < i} + \gamma$
- l'émission stimulée  $X_{Q,i} + \gamma \rightarrow X_{Q,j < i} + \gamma + \gamma$  et l'absorption  $X_{Q,i} + \gamma \rightarrow X_{Q,j > i}$
- la photoionisation  $X_{Q,i} + \gamma \to X_{Q+1,j < i} + e^-$  et la recombinaison radiative

Le plasma étant fortement hors-équilibre, l'excitation/désexcitation collisionnelle et l'ionisation collisionnelle vont être largement prépondérantes devant les processus de recombinaison. En ce qui concerne les processus radiatifs, l'émission spontanée joue un rôle non-négligeable dans la relaxation des ions, et l'émission stimulée et l'absorption interviennent dans les pertes radiatives du plasma comme nous venons de le voir.

Le processus fondamental du pompage de l'inversion de population étant l'excitation collisionnelle, on peut s'intéresser à la variation de population qui en découle. Pour l'excitation d'un ion d'un niveau i vers un niveau j, cette variation s'écrit :

$$\frac{dn_i}{dt} = C_{ji}n_en_j - C_{ij}n_en_i \tag{2.59}$$

où  $C_{ij}$  est le taux de transition collisionnel, produit de la section efficace collisionnelle  $\sigma_{ij}$  et de la vitesse de l'électron pour l'ensemble des électrons :

$$C_{ij} = \langle v \, \sigma_{ij}(\epsilon) \rangle = \frac{\int v \sigma_{ij}(v) f(v) dv}{\int f(v) dv} = \sqrt{\frac{2}{m_e}} \frac{\int \epsilon \sigma_{ij}(\epsilon) f(\epsilon) d\epsilon}{\int f(\epsilon) d\epsilon}$$
(2.60)

La section efficace  $\sigma_{ij}$  s'exprime en fonction de la force collision  $\Omega_{ij}$ :

$$\sigma_{ij}(\epsilon) = \frac{h^2}{8\pi m_e \epsilon g_i} \Omega_{ij}(\epsilon)$$
(2.61)

La force de collision d'une transition  $i \to j$  étant la même que celle de la transition inverse, on a  $C_{ij} = C_{ji}$ . Elle est fournie par le code de physique atomique évoqué au paragraphe 2.1.2 et peut être calculée par diverses formules [159] [160].

#### 2.3.4 Cinétique des électrons

Nous venons de voir que le taux de collision dépend de la distribution énergétique des électrons. Il est donc nécessaire de connaître son évolution temporelle afin de déterminer les variations de populations atomiques. Cette distribution est affectée par les collisions électron-ion inélastiques qui modifient l'énergie moyenne et la densité d'électrons et par les collisions électron-électron élastiques qui modifient la répartition en énergie. Pour déterminer l'évolution de la distribution électronique, on peut utiliser des méthodes particulaires ou des méthodes statistiques en résolvant l'équation de Boltzmann décrivant l'évolution des états d'un plasma collisionnel markovien (*i.e.* aléatoire à faible mémoire). Dans notre cas où la température électronique est élevée, on peut simplifier cette équation en une équation différentielle appelée équation de Fokker-Planck dont l'expression pour un plasma homogène, isotrope et sans champ appliqué est la suivante :

$$\frac{\partial f}{\partial t} = C(f, f_i) + C(f, f) \tag{2.62}$$

où  $f_i$  représente la fonction de distribution en énergie des ions et C est l'opérateur de collision traduisant l'interaction entre deux ensembles de particules (donc ici électron-électron et électronion). Il fait intervenir deux termes représentant l'effet des forces de frottement des particules cibles sur les particules incidentes (mouvement global des particules incidentes) et la diffusion des particules.

Il peut être intéressant de calculer l'évolution temporelle du degré d'ionisation moyen du plasma. La figure 2.12(a) donne cette évolution pour un temps allant jusqu'à 250 ps, alors que la figure 2.12(b) donne l'évolution de la température électronique.

Ces simulations ont été réalisées pour une intensité laser de  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, un champ polarisé circulairement et une pression de krypton de 30 mbar. L'influence de l'intensité du champ –tant qu'elle est suffisante à ioniser 8 fois le krypton– n'est pas très forte, et pour une étude de l'influence de la pression, on peut se reporter au chapitre 3. On constate que l'état de charge majoritaire augmente dans le temps, jusqu'à l'ion Kr<sup>13+</sup> après 250 ps. A partir de quelques dizaines de ps, l'ionisation augmente moins rapidement puisque l'énergie moyenne des électrons diminue et que les ions sont de plus en plus difficiles à ioniser. Rien n'indique cependant que le plasma est à l'équilibre à cet instant. De plus, on peut également voir que la durée de vie de l'ion lasant Kr<sup>8+</sup> est d'une dizaine de ps, ce qui nous donne une première estimation de la durée du gain de l'amplificateur. Parallèlement à cela, on observe une diminution de la température électronique due aux transferts d'énergie par collisions et à une augmentation du nombre d'électrons.

Dans les instants suivant l'ionisation, les collisions électron-électron vont faire tendre la distribution électronique vers une distribution maxwellienne synonyme de thermalisation des électrons.



FIGURE  $2.12 - \text{Évolution temporelle de (a) l'état de charge et (b) la température électronique du plasma après ionisation par le champ laser, pour une pression initiale de krypton de 30 mbar$ 



La figure 2.13 donne le calcul de cette distribution électronique à différents instants.

FIGURE 2.13 – Évolution temporelle de la distribution en énergie des électrons d'un plasma créé par un champ polarisé circulairement, calculée pour une pression initiale de krypton de 30 mbar

On peut voir que le temps caractéristique de la thermalisation est de l'ordre de 30 ps, supérieur à la durée de vie de l'ion  $\text{Kr}^{8+}$  et donc nécessairement supérieur à la durée du gain de l'amplificateur.



#### 2.3.5 Évolution des populations atomiques et gain de l'amplificateur

FIGURE 2.14 – Évolution des populations atomiques à différents instants suivant l'ionisation

Les résultats présentés ici sont issus des mêmes simulations qu'au paragraphe précédent. Le code prend en compte seulement le niveau d'énergie fondamental pour tous les ions, sauf bien entendu pour l'ion lasant  $Kr^{8+}$  pour lequel 93 niveaux sont modélisés et numérotés par ordre croissant d'énergie. On centrera l'étude de la dynamique des populations sur les 3 niveaux nous intéressant, à savoir :

- le niveau nº 1 qui est le fondamental  $3d^{10}$   $^{1}S_{0}$  noté g
- le niveau nº 14 qui est le niveau inférieur de la transition las  $3d^94p$   $^1P_1$  noté l
- le niveau n° 35 qui est le niveau supérieur de la transition las  $3d^{9}4d^{-1}S_{0}$  noté u

La figure 2.14 donne les populations des niveaux atomiques de l'ion  $Kr^{8+}$  en tenant compte de la dégénérescence de chaque niveau à différents instants après l'ionisation. À l'instant t = 0 suivant l'ionisation, la population du niveau fondamental est égale à la densité de neutre  $n_0$ .

Considérons tout d'abord les populations des niveaux excités dans leur ensemble. À la création du plasma à t = 0, elles sont nulles. Ces niveaux excités sont alors peuplés par excitation collisionnelle : à t = 0.25 ps, leurs populations sont comprises entre  $10^{-7}$  et  $10^{-5}$  de la population du niveau fondamental, puis entre  $10^{-6}$  et  $10^{-4}$  à t = 1 ps. Ces niveaux ne sont bien entendu pas tous peuplés de la même manière du fait de forces de collision différentes. Ensuite leurs populations diminuent lorsque la population du niveau fondamental devient trop faible pour compenser l'ionisation collisionnelle.

On s'intéresse maintenant à la population du niveau fondamental. Elle est principalement affectée par l'ionisation et l'excitation collisionnelle. En considérant que les taux de collisions sont à peu près constants sur quelques dizaines de ps, on s'attend à ce que sa décroissance soit exponentielle. C'est effectivement ce que l'on peut vérifier sur le graphique 2.15(a).

On remarque également que les niveaux l et u sont parmi les plus peuplés. Nous avons reporté sur chaque graphique la population du niveau inférieur l sans tenir compte de sa dégénérescence  $g_l = 3$ . On se rend alors compte que plus qu'une différence réelle entre les populations des deux niveaux mis en jeu dans la transition laser, c'est cette dégénérescence qui permet une inversion de population effective. On remarque par ailleurs que cette inversion de population est déjà présente à t = 0.25 ps et devient très faible à partir de t = 10 ps, et est nulle à t = 20 ps. On peut tracer l'évolution temporelle des niveaux l et u en particulier; elle est donnée sur le graphique 2.15(b), où la population du niveau l et l'inversion de population tiennent compte de  $g_l$ .



FIGURE 2.15 – Évolution temporelle des populations des niveaux mis en jeux dans la transition laser
Comme on a pu le constater précédemment, les populations des niveaux l et u vont d'abord augmenter du fait du peuplement par excitations collisionnelles, puis décroître. On constate que l'inversion de population a une durée de 7 ps environ. Maintenant que l'on connaît l'inversion de population, on peut en déduire le gain de l'amplificateur, qui est une grandeur caractéristique de ce dernier. La figure 2.16 donne l'évolution temporelle du gain et de l'émissivité :



FIGURE 2.16 – Évolution temporelle du gain et de l'émissivité de l'amplificateur, calculée pour une pression initiale de krypton de 30 mbar

Le gain étant proportionnel à l'inversion de population, il a la même allure temporelle. Notons que sa valeur maximale,  $170 \,\mathrm{cm}^{-1}$  est très élevée. En pratique, puisque les mesures sont intégrées temporellement, on doit plutôt considérer un gain effectif moyenné dans le temps. L'émissivité est proportionnelle à la population du niveau supérieur et sa durée caractéristique est donc légèrement plus longue que celle du gain.

## 2.4 Propagation et réfraction du champ laser dans le plasma

La propagation du laser de pompe dans le milieu est un point critique en pompage longitudinal. Nous allons tout d'abord introduire quelques notions indispensables à l'étude d'un plasma créé par la focalisation d'un laser. Nous étudierons comment se propage un faisceau dans le vide, puis dans un milieu gazeux avec notamment les effets de réfraction dans un plasma.

#### 2.4.1 Équation de propagation paraxiale

Dans le vide, la propagation du champ électromagnétique est régie par l'équation suivante :

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) \mathbf{E} = \mathbf{0}$$
(2.63)

ou encore pour un champ harmonique comme nous le supposerons pour toute la suite :

$$\left(\nabla^2 + k^2\right)\mathbf{E} = \mathbf{0} \tag{2.64}$$

avec  $k = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}$ . Pour une propagation selon l'axe z, on peut écrire l'onde sous la forme :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = U(\mathbf{r})e^{ikz-\omega t}\hat{\mathbf{u}}$$
(2.65)

U représente donc le profil transverse du faisceau. Les variations de U avec z sont essentiellement dues à la diffraction et sont lentes devant celles en  $e^{ikz}$  et devant les variations transverses. Ceci consiste en l'approximation paraxiale, qui s'exprime de la manière suivante :

$$\left|\frac{\partial^2 U}{\partial z^2}\right| << \left|2k\frac{\partial U}{\partial z}\right|, \left|\frac{\partial^2 U}{\partial x^2}\right|, \left|\frac{\partial^2 U}{\partial y^2}\right|$$
(2.66)

En injectant dans l'équation 2.64, on obtient alors l'équation de propagation paraxiale :

$$\nabla_{\perp}^2 U + 2ik\frac{\partial U}{\partial z} = 0 \tag{2.67}$$

où  $\nabla^2_\perp$  est le Laplacien transverse.

#### 2.4.2 Propagation de faisceaux gaussiens dans le vide

Une solution de l'équation paraxiale est l'onde gaussienne sphérique décrite par :

$$U(x,y,z) = \frac{w_0}{w(z)}e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2(z)}}e^{-ik\frac{x^2+y^2}{2R(z)}}e^{-ikz+i\zeta(z)}$$
(2.68)

w(z) est la largeur transverse du faisceau gaussien,  $w_0$  est appelé waist du faisceau (plus petite largeur), et R(z) est le rayon de courbure de l'onde sphérique. Ces grandeurs sont toutes reliées à la distance de Rayleigh  $Z_R$ , distance à laquelle la largeur du faisceau est réduite d'un facteur  $\sqrt{2}$ .

$$Z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \tag{2.69}$$

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{Z_R^2}}$$
(2.70)

$$R(z) = z \left(1 + \frac{Z_R^2}{z^2}\right) \tag{2.71}$$

 $\zeta(z)$  est un déphasage longitudinal, appelé déphasage de Gouy qui correspond au fait que la constante de propagation d'une onde dans la région du waist est plus faible que celle d'une onde plane, cas particulier de l'effet Gouy caractérisant le fait qu'une onde d'extension transverse non nulle acquiert un déphasage supplémentaire d'un demi-cycle en passant par une région focale.

$$\zeta(z) = \arctan\left(\frac{z}{Z_R}\right) \tag{2.72}$$



FIGURE 2.17 – Évolution d'un faisceau gaussien autour du foyer

Le schéma 2.17 montre la propagation dans le vide d'un faisceau gaussien autour de la zone focale.

Expérimentalement, le faisceau est focalisé par une optique de focale f et de diamètre D. Le rayon de la tache focale  $(1^{er}$  zéro de la fonction d'Airy) est donné par :

$$w_0 \simeq 1.22 \frac{\lambda f}{D} \tag{2.73}$$

Dans le cas d'un faisceau infrarouge de diamètre 50 mm focalisé par un miroir de focale 1 m, le waist vaut 20  $\mu$ m.

#### 2.4.3 Propagation dans un plasma

#### Équation de propagation

Nous allons considérer le cas d'une onde transverse de fréquence  $\omega$  se propageant dans un plasma isotrope (sans champ magnétique permanent) et homogène. L'équation de Maxwell-Gauss est alors toujours vérifiée (densité de charge nulle pour un champ transverse) et l'équation de propagation du champ **E** s'écrit

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t}$$
(2.74)

où  $\mu_0$  est la perméabilité du vide et **J** la densité de courant électronique. On néglige la densité de courant induite par les électrons liés, et la densité de courant induite par les électrons libres respecte la loi d'Ohm généralisée  $\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}$ . Dans la théorie fluide linéaire des plasmas, on peut montrer que dans le plan perpendiculaire (donc pour une onde transverse) la conductivité électrique  $\sigma$  peut s'écrire :

$$\sigma = \frac{e^2 n_e}{\nu_e - i\omega} \left( \frac{1}{m_e} - \frac{Z}{m_i} \right) \tag{2.75}$$

où  $\nu_e$  est la fréquence de collision électronique. Le temps caractéristique de collision étant de l'ordre de la ps, on a  $\nu_e \ll \omega$ . On peut également négliger le mouvement des ions  $(m_e \ll \frac{m_i}{Z})$ . On a donc :

$$\mathbf{J} = \frac{e^2 n_e}{-i\omega m_e} \mathbf{E} \qquad \text{ou} \qquad \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} = \frac{e^2 n_e}{m_e} \mathbf{E}$$
(2.76)

L'équation de propagation peut alors s'écrire :

$$\nabla^2 \mathbf{E} + \left(k^2 - \mu_0 \frac{e^2 n_e}{m_e}\right) \mathbf{E} = \mathbf{0}$$
(2.77)

En exprimant  $\mathbf{E}$  sous la forme donnée par la relation 2.65, on peut obtenir l'équation de propagation paraxiale dans le plasma :

$$\nabla_{\perp}^{2}U + 2ik\frac{\partial U}{\partial z} = k^{2}\frac{n_{e}}{n_{c}}U$$
(2.78)

 $n_c$  est la densité critique du plasma donnée à une fréquence  $\omega$  par :

$$n_c(\omega) = \frac{m_e \omega^2}{\mu_0 c^2 e^2} \tag{2.79}$$

 $n_c(\omega)$  est la densité au-dessus de laquelle les ondes de fréquences  $\omega$  ne peuvent plus exister dans le plasma. En pratique, si une onde rencontre un plasma de densité sur-critique, elle est réfléchie par ce plasma. On peut calculer la densité critique aux longueurs d'onde qui nous intéressent :

$n_c$	$\simeq$	$1.7 \times 10^{21}  \mathrm{cm}^{-3}$	à $800\mathrm{nm}$
$n_c$	$\simeq$	$1.0 \times 10^{24}  {\rm cm}^{-3}$	à $32.8\mathrm{nm}$

La densité électronique dépend de l'intensité du champ, donc du temps et des coordonnées spatiales  $n_e = n_e(\mathbf{r}, t)$ . L'équation présente alors un terme non-linéaire. Les variations spatiales et temporelles de la densité électronique sont à l'origine de plusieurs phénomènes physiques modifiant la propagation du champ et la forme temporelle de l'impulsion [161]. On s'intéressera ici seulement à l'aspect spatial.

#### Réfraction du faisceau

Dans le modèle de Drude <sup>4</sup>, l'indice de réfraction d'un plasma à la fréquence  $\omega$  est donné par :

$$n^{2}(\omega) = 1 - \xi + i \frac{\nu_{ei}}{\omega} \xi + 4\pi \chi(\omega)$$
(2.80)

où  $\nu_{ei}$  est la fréquence de collision électron-ion,  $\chi$  la susceptibilité électrique totale des ions et  $\xi$  est donné par :

$$\xi = \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{1}{1 + \frac{\nu_{ei}}{\omega}} \tag{2.81}$$

où  $\omega_p$  est la fréquence plasma (ou fréquence de Langmuir), fréquence caractéristique des ondes de plasma donnée par :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}} \tag{2.82}$$

Dans nos conditions, on a  $\nu_{ei} \ll \omega$  et  $\chi(\omega) \ll 1^5$  et on peut montrer que :

$$n \simeq \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c}} \simeq 1 - \frac{n_e}{2n_c} \tag{2.83}$$

<sup>4.</sup> Le modèle de Drude est une correction du modèle de Lorentz (électron lié par une force de rappel amortie) consistant à faire tendre la fréquence de la force de rappel vers 0 pour traduire le fait que l'électron n'est pas lié.

<sup>5.</sup> Ceci revient à considérer que la vites se de phase de l'onde est proche de c.

En effet, nous travaillons à des densités électroniques de l'ordre de  $10^{18} \,\mathrm{cm}^{-3}$ , bien inférieures à la densité critique du plasma.

Le principe de Fermat stipule que le chemin optique  $\ell = \int n ds$  suivi par un rayon lumineux entre deux points est celui qui est stationnaire. En d'autres termes, si on déforme la trajectoire suivie par un rayon entre ces deux points fixes, la différentielle  $\delta \ell$  du chemin optique doit être nulle. On peut montrer que cette condition équivaut à :

$$\frac{d(n\hat{\mathbf{u}}_{\parallel})}{ds} = \nabla n \tag{2.84}$$

 $\hat{\mathbf{u}}_{\parallel}$  étant un vecteur unitaire tangent au rayon lumineux. On voit alors qu'un gradient de densité va courber un rayon lumineux se propageant rectilignement sans ce gradient de densité. On peut également définir le vecteur unitaire  $\hat{\mathbf{u}}_{\perp}$  normal au rayon et respectant  $\frac{\hat{\mathbf{u}}_{\perp}}{R} = \frac{d\hat{\mathbf{u}}_{\perp}}{ds}$  avec R > 0 la courbure du rayon.  $\hat{\mathbf{u}}_{\perp}$  est donc dirigé vers le centre de courbure du rayon. On a alors :

$$\frac{dn}{ds}\mathbf{\hat{u}}_{\parallel} + \frac{n}{R}\mathbf{\hat{u}}_{\perp} = \nabla n \tag{2.85}$$

On a alors en multipliant par  $\mathbf{\hat{u}}_{\perp}$ :

$$\frac{1}{R} = \frac{1}{n} \nabla n \cdot \hat{\mathbf{u}}_{\perp} \tag{2.86}$$

Un gradient d'indice dans la direction perpendiculaire à un rayon lumineux va donc courber ce dernier vers les zones de fort indice, et on peut calculer la courbure grâce à cette équation moyennant la connaissance du gradient d'indice. Supposons par exemple un profil de densité électronique parabolique  $n_e(\mathbf{r}) = n_e^{max} \left(1 - \frac{\mathbf{r}^2}{r_0^2}\right)$  avec  $n_e^{max} = 10^{18} \,\mathrm{cm}^{-3}$  et  $r_0 = 20 \,\mu\mathrm{m}$ . On peut alors calculer qu'alors qu'un rayon traversant le plasma en son centre en suivant l'axe optique ne sera pas courbé alors qu'un rayon infrarouge le traversant en  $r = r_0$  aura un rayon de courbure de  $\frac{r_0}{2} \frac{n_c^n}{n_e^{max}}$  soit 18 mm environ. Ce rayon de courbure étant proportionnel au rapport  $n_c/n_e^{max}$ , on se rend bien compte que les effets de réfraction seront bien plus faibles dans le domaine XUV que dans l'infrarouge.

#### Effet de la réfraction sur la propagation

Comme nous venons de le voir, un milieu présentant un profil d'indice minimal sur l'axe optique se comporte comme une lentille divergente. On peut également le voir simplement en terme de vitesses de phase. Dans le cas ou l'indice est minimal sur l'axe, la vitesse de phase de l'onde est maximale et diminue quand la distance à l'axe augmente. La surface d'onde est alors déformée. Dans le cas de la propagation d'un faisceau focalisé dans un plasma, l'effet global est un effet de défocalisation comme le montre la figure 2.18. La longueur de Rayleigh est raccourcie et le waist du faisceau est élargi.

Afin de quantifier l'effet de la réfraction, Rankin *et al.* [162] ont proposé la condition définie ci-après. La longueur de plasma  $L_{OFI}$  au bout de laquelle la phase de l'impulsion sur l'axe est modifiée de  $\pi/2$  est :

$$L_{OFI} \simeq \frac{\lambda}{2} \frac{n_c}{n_e} \tag{2.87}$$



FIGURE 2.18 – Défocalisation du faisceau dans le plasma du fait d'un fort gradient de densité électronique

Si cette longueur est supérieure à la longueur caractéristique des effets de diffraction, soit la longueur de Rayleigh, alors la réfraction peut être négligée. La condition pour que les effets de défocalisation soient négligeables s'écrit alors :

$$\frac{n_e}{n_c} < \frac{\lambda^2}{2\pi w_0^2} \tag{2.88}$$

Le waist  $w_0$  est de l'ordre de 30  $\mu$ m. Cette condition n'est réalisée que dans le cas du laser XUV. Comme nous allons le voir, les effets de réfraction auront de fortes conséquences sur la propagation du laser infrarouge et par conséquent sur la formation du milieu amplificateur.

#### Modélisation de la propagation du faisceau infrarouge

La propagation du laser infrarouge intense dans le gaz est un problème complexe qui fait intervenir l'ionisation de ce dernier et la réfraction par les électrons libres du plasma. Le code numérique OFI-PROP développé au Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasma de l'Université Paris 11 est un code numérique 2D à symétrie cylindrique que nous avons utilisé pour modéliser la création du milieu amplificateur. Pour plus de détails, on peut se tourner vers [163].

La durée de l'impulsion infrarouge, 35 fs, est beaucoup plus courte que les temps caractéristiques du plasma (qq ps pour les plus rapides). On peut donc négliger les collisions et ne considérer que l'ionisation par le champ. Vis-à-vis de la propagation du faisceau, le plasma est vu comme un ensemble de charges ponctuelles isotrope (la polarisation du faisceau restera donc inchangée). Les pertes d'énergie du faisceau du fait de l'ionisation sont négligées. Dans nos expériences (cellule de gaz longue de quelques mm, pression de gaz de quelques dizaines de mbar, impulsion d'énergie totale de 1 J et plasma de rayon de l'ordre de 50  $\mu$ m), la fraction d'énergie perdue est de l'ordre du pourcent. Notons finalement que ce code se situe dans l'approximation paraxiale. Celle-ci est valable lorsque le rayon de la tache focale est petit devant la longueur d'onde, ce qui est notre cas.

En gardant les mêmes notations que précédemment, l'équation de propagation dans le plasma hors approximation paraxiale s'obtient à partir de l'équation 2.77 en définissant la variable réduite  $\tau = t - z/c :$ 

$$\nabla_{\perp}^{2}U + 2ik\frac{\partial U}{\partial z} + \frac{\partial^{2}U}{\partial z^{2}} - \frac{2}{c}\frac{\partial^{2}U}{\partial \tau \partial z} = k^{2}\frac{n_{e}}{n_{c}}U$$
(2.89)

Cette équation est semblable à l'équation de propagation paraxiale 2.78 à deux termes près :

- $-\frac{2}{c}\frac{\partial^2 U}{\partial \tau \partial z}$ , bien que faible puisque nous sommes dans le cas d'ondes paraxiales, est pris en compte car il est responsable de la dispersion longitudinale de l'onde; cela reste néanmoins un terme correctif
- $\frac{\partial^2 U}{\partial z^2}$  est négligeable devant le terme précédent et n'est pas pris en compte dans le code

La cellule de gaz ayant une longueur  $L_c$ , le gaz occupe le volume compris entre z = 0 et  $z = L_C$ (on suppose que le gaz ne fuit pas par les trous de la cellule). Pour z < 0 le laser se propage dans le vide, son amplitude étant fixée par les conditions expérimentales de focalisation. En pratique, le champ est considéré comme gaussien.



FIGURE 2.19 – Propagation du faisceau infrarouge pour différentes pressions de krypton : cartes d'intensité en  $W/cm^2$ 

La figure 2.19 donne le résultat de la propagation d'une impulsion focalisée dans du krypton à différentes pressions sous forme d'un carte de l'intensité lumineuse dans le plasma. Le laser se propage de la gauche vers la droite et dans le vide, le waist du faisceau est de 20  $\mu$ m et l'intensité crête de 10<sup>18</sup> W/cm<sup>2</sup>, ce qui correspond aux expériences réalisées. Le foyer dans le vide est situé au centre de la cellule à z = 3 mm.

On constate effectivement que les effets de réfraction augmentent avec la densité du gaz. Le foyer est déplacé vers l'entrée de la cellule, et le waist est élargi. L'intensité maximale diminue en conséquence. On peut donc grâce à ce code connaître l'intensité laser en chaque point du plasma. Rappelons que dans la modélisation du plasma, nous avons supposé que ses propriétés ne dépendent que de l'intensité et de la polarisation du champ laser (pas de son enveloppe ni de son amplitude) puisque l'impulsion et les phénomènes d'ionisation sont bien plus rapides que les temps caractéristiques de la cinétique du plasma. En pratique, cela signifie que puisque l'on connaît l'intensité du champ en chaque point, on peut en déduire d'une part la carte d'ionisation du plasma (degré d'ionisation moyen en chaque point) et d'autre part la carte de gain maximal de l'amplificateur. La figure 2.20 donne les cartes d'ionisation calculées pour les mêmes simulations que les précédentes. À titre d'exemple, on donne également en figure 2.21 la carte de gain maximal dans le cas d'une pression de 30 mbar.



FIGURE 2.20 – Propagation du faisceau infrarouge pour différentes pressions de krypton : cartes d'ionisation. Les ions lasants Kr<sup>8+</sup> sont représentés en blanc.



FIGURE 2.21 – Carte de gain de l'amplificateur pour une pression de 30 mbar

On peut alors voir que ces effets de réfraction sont très importants aux densités de gaz auxquelles nous travaillons. La zone de gain est raccourcie et la zone suivant celle-ci, composée de gaz faiblement ionisé, peut être absorbante pour le rayonnement XUV. Ceci sera développé au chapitre 3. La présence de surionisation (c'est-à-dire au dessus de l'état de charge 8) près de l'axe due à une forte intensité laser et ses conséquences seront étudiées aux chapitre 4.

# 2.5 Conclusion

Nous avons donc décrit dans ce chapitre les bases physiques nécessaires à la compréhension du fonctionnement de l'amplificateur laser XUV ionisé par le champ laser. Nous avons donné les équations caractéristiques d'un milieu laser et détaillé la structure atomique de l'ion lasant  $Kr^{8+}$ . Ce dernier peut être le siège d'une inversion de population permettant l'apparition d'un effet laser à une longueur d'onde de 32.8 nm et de très faible largeur spectrale. Nous avons ensuite détaillé le processus d'interaction laser-gaz en champ fort et la création du plasma de degré d'ionisation souhaité par ionisation tunnel. Le paramètre important pour la création du plasma est l'intensité du champ électrique. Sa polarisation va permettre d'obtenir des électrons suffisamment énergétiques pour pouvoir pomper l'inversion de population entre les deux niveaux de la transition laser. Le phénomène d'ionisation par le champ étant rapide devant les temps d'évolution du plasma, il est possible de le découpler de l'étude de la cinétique plasma. Nous avons vu que les processus prépondérants dans le plasma sont les collisions électroniques qui vont exciter les ions lasants dans les niveaux d'énergie souhaités. En étudiant la cinétique des ions du plasma, nous avons pu évaluer l'élargissement inhomogène de la raie laser et en étudiant la cinétique des électrons, la durée de vie du gain fournissant un ordre de grandeur de la durée de l'impulsion émise a été évalué à une dizaine de ps. Enfin, nous avons vu que la propagation du laser de pompe dans le plasma, affectée par la réfraction due au gradient radial de densité électronique dans le plasma, était un paramètre-clé qu'il faut être capable de contrôler en vue de la création d'un milieu laser de grande taille.

# Chapitre 3

# Réalisation et caractérisation d'un amplificateur XUV OFI par injection d'harmonique

#### Sommaire

3.1	L'installation laser infrarouge			
3.2	L'expérience d'injection d'harmonique dans l'amplificateur laser XUV			
	3.2.1	Génération de l'amplificateur	76	
	3.2.2	Génération du rayonnement harmonique et couplage	79	
	3.2.3	Diagnostics	81	
3.3	Cara	actérisation de l'amplification	84	
	3.3.1	Mesure de l'amplification	84	
	3.3.2	Paramètres influant sur les qualités amplificatrices du plasma	87	
<b>3.4</b>	Con	clusion	97	

Ce chapitre est consacré à la caractérisation expérimentale de l'amplificateur laser XUV dans le krypton nickelloïde. Après avoir présenté brièvement le système laser infrarouge utilisé pour sa génération, puis explicité la mise en place expérimentale de l'injection d'harmonique dans un plasma amplificateur, nous étudierons l'influence des principales variables expérimentales. On s'intéressera particulièrement à l'intensité et la polarisation du champ utilisé pour générer l'amplificateur, à la longueur et la densité de ce dernier, ainsi qu'à l'intensité du rayonnement harmonique qui y est injecté.

### 3.1 L'installation laser infrarouge

Les expériences ont été réalisées en utilisant le système laser de la Salle Jaune du LOA [164], qui est le plus puissant du laboratoire. Ce laser, dont le schéma est représenté sur la figure 3.1, est basé sur l'amplification à dérive de fréquence par des cristaux de Saphir dopés au Titane. Cette méthode d'amplification dite CPA ("chirped pulse amplification") consiste à étirer temporellement les impulsions dans un milieu dispersif comme un prisme ou un réseau de diffraction, les amplifier puis les recomprimer temporellement afin de retrouver leur durée initiale [165]. L'amplification d'impulsions longues permet d'éviter des phénomènes non-linéaires parasites dus aux fortes intensités crêtes. Il délivre à un taux de répétition de 10 Hz des impulsions de 2 J et de durée 400 ps polarisées linéairement et à une longueur d'onde de 810 nm. La transmission totale du compresseur est de l'ordre de 60%, de sorte que les impulsions disponibles en sortie contiennent une énergie supérieure au Joule dans une durée de 35 fs, soit une puissance crête de l'ordre de 30 TW.



FIGURE 3.1 – Schéma de la chaîne laser Ti: Sa 30 TW de la Salle Jaune du LOA. Elle fournit deux faisceaux composés d'impulsions comprimées indépendamment

La source du système est un oscillateur Ti : Sa à blocage de mode qui émet à une cadence de 88 MHz des trains d'impulsions d'énergie quelques nJ et de durée 15 fs dont le spectre est centré à 810 nm (largeur à mi-hauteur de l'ordre de 50 nm). Ces impulsions sont ensuite étirées temporellement jusqu'à 10 ps, puis amplifiées à une cadence de 10 Hz (bien que le cristal soit pompé à une cadence de 1 kHz pour plus de stabilité) jusqu'à 400  $\mu$ J. Elles sont alors recomprimées par un prisme jusqu'à une durée de 30 fs et passent dans un système de filtre à double XPW ("crosspolarized wave") [166] [167]. Ce système repose sur la génération non-linéaire d'une onde polarisée orthogonalement dans des cristaux de BaF<sub>2</sub> et, de par son caractère non-linéaire, permet l'obtention de contrastes temporels (rapport entre l'intensité crête de l'impulsion et le niveau d'ASE) de l'ordre de 10<sup>9</sup> avec une efficacité de conversion de 15%. Un contraste élevé est important dans le cadre de l'interaction laser-solide ultra-intense où la présence d'un piédestal dans l'impulsion principale va interagir avec la cible en modifiant son état de surface et en créant un pré-plasma non souhaité; ce n'est néanmoins pas le cas dans nos expériences (plasma sous-dense) : avant l'ajout de ce filtre le contraste était de l'ordre de 10<sup>6</sup> à l'échelle de la nanoseconde, ce qui pour une impulsion focalisée à une intensité de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> donne une intensité de pré-impulsion de l'ordre de  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>, toujours largement inférieure au seuil d'ionisation des gaz utilisés 10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup>. L'utilisation d'un filtre XPW présente l'avantage, par rapport à un dispositif à miroirs plasma [168] [169] où les pertes d'énergie sont importantes, d'être situé en amont des amplificateurs, ce qui permet de compenser les pertes induites par le filtre dans ces derniers.

Les impulsions sont ensuite étirées jusqu'à 400 ps par un système de type Öffner. Un modulateur acousto-optique permet de modifier la phase spectrale des impulsions et ainsi compenser le rétrécissement spectral dû au gain des amplificateurs et d'optimiser cette phase spectrale pour la compression [170]. Les impulsions sont alors injectées dans trois étages d'amplification successifs, tous basés sur des cristaux de Ti : Sa pompés par des lasers Nd : YAG doublés en fréquence (532 nm). Le premier amplificateur permet d'atteindre une énergie de 1 mJ en 4 passages à une cadence de 10 Hz et le second une énergie de 300 mJ en 5 passages. Le faisceau est alors filtré spatialement et injecté dans le dernier étage d'amplification. Celui-ci est pompé par un total de 6.5 J à 532 nm et permet d'atteindre une énergie finale par impulsion de plus de 2 J. Il est à noter qu'entre chaque amplificateur, le diamètre du faisceau est agrandi afin d'extraire le maximum d'énergie dans les cristaux. On reste par conséquent également sous le seuil de dommage des optiques de l'ordre de quelques  $J/cm^2$ . Le cristal du dernier étage d'amplification est refroidi par eau à une température de 15 °C pour limiter les effets de lentille thermique essentiellement dus au pompage à une cadence de 10 Hz.

Le faisceau peut alors être divisé en deux sous-faisceaux (avant le passage dans le compresseur) grâce à une lame séparatrice. Dans notre expérience, le faisceau principal -appelé faisceau pompe par la suite- utilisé pour la création du milieu amplificateur contient 90% de l'énergie, les 10% restant donnant le faisceau secondaire, ou faisceau sonde, servant à la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Les deux faisceaux sont ensuite comprimés sous vide par double passage entre deux réseaux. Il est donc possible d'effectuer des expériences avec deux lasers dont la durée d'impulsion est réglée indépendamment, la compression optimale correspondant à une durée de 35 fs. Une ligne à retard permet une synchronisation aisée des deux faisceaux. Le front d'onde du faisceau principal est corrigé en sortie de compresseur par un miroir déformable ce qui permet d'obtenir une tache focale de bonne qualité.



FIGURE 3.2 - (a) Répartition spatiale d'intensité du faisceau pompe en sortie de compresseur. Les taches sont dues à des défauts sur les optiques utilisées. (b) Profil radial intégré du faisceau pour différents tirs

Après grossissement par leur systèmes afocaux respectifs (situés avant les réseaux de compression), les diamètres des faisceaux pompe et sonde sont respectivement de 60 mm et 40 mm, avec des énergies par impulsion de 1 J et 100 mJ dans le cadre de notre expérience. Nous ajusterons néanmoins l'énergie contenue dans les impulsions du faisceau sonde, qui est en l'état trop importante pour la génération d'harmoniques dans notre configuration expérimentale (voir plus loin). La figure 3.2(a) a été obtenue en imageant le faisceau pompe à haut flux dans le plan de sortie du compresseur. Cette image permet de rendre compte de la répartition relativement homogène de l'énergie dans le faisceau. La figure 3.2(b) donne le profil radial intégré de ce même faisceau pour différents tirs. Il présente un profil de type "tophat", ou super gaussien, avec un diamètre de l'ordre de 60 mm.

# 3.2 L'expérience d'injection d'harmonique dans l'amplificateur laser XUV

La figure 3.3 présente le schéma de principe d'amplification d'une harmonique d'ordre élevé. Il comporte deux parties distinctes permettant d'une part la génération d'un rayonnement harmonique, et d'autre part la création du milieu amplificateur XUV.

#### 3.2.1 Génération de l'amplificateur

Le milieu amplificateur est créé en focalisant le faisceau pompe dans une cellule de krypton à basse densité (pression de gaz maximale de 100 mbar, soit environ  $2.5 \times 10^{18} \text{ at/cm}^3$ ) de longueur variable entre 0 et 10 mm. La figure 3.4 représente une photographie de l'intérieur de l'enceinte principale. Le faisceau pompe y est représenté en rouge. Le faisceau est d'abord conduit jusqu'au miroir de focalisation (miroir sphérique diélectrique ou recouvert d'argent, focale de 1 m) par une série de miroirs plan. Le premier et le dernier (qui est également percé en son centre pour permettre



FIGURE 3.3 – Schéma simplifié de la chaîne laser XUV



FIGURE 3.4 – Vue de l'intérieur de l'enceinte d'interaction : génération de l'amplificateur XUV

le passage du faisceau focalisé et du faisceau harmonique) de ces miroirs sont motorisés, ce qui permet d'ajuster l'alignement du faisceau pompe sur le miroir sphérique sous vide. Ce dernier, également percé et motorisé, permet d'optimiser la position du foyer du laser à l'entrée de la cellule de krypton. La cellule de gaz est fixée sur une platine motorisée dans les trois directions de l'espace et est fermée par deux plaques d'aluminium. Une fois la cellule alignée, les trous d'entrée et de sortie sont percés par le laser à bas flux. Elle est alimentée en continu en krypton grâce à un régulateur de pression ce qui permet de maintenir la densité constante à l'intérieur de la cellule. Des pertes de gaz vers le vide de l'enceinte sont néanmoins inévitables, mais ont été calculées comme étant négligeables en termes d'extension de plasma en dehors de la cellule.



FIGURE 3.5 - (a) Profil spatial du faisceau pompe dans le plan focal du miroir sphérique (b) Évolution des caractéristiques du faisceau hors plan focal

Sur le même système que celui qui supporte la cellule de gaz se trouve également une caméra CCD éclipsable permettant d'imager la tache focale du faisceau. Le rayon de la tache focale limitée par la diffraction (correspondant au 1<sup>er</sup> zéro de la tache d'Airy) de ce système (faisceau de diamètre  $\Phi = 60 \text{ mm}$ , optique de focale F=1 m) est donné par  $\rho \simeq 1.22\lambda \frac{F}{\Phi}$ , ce qui correspond à un diamètre de 33  $\mu$ m dans notre cas. La figure 3.5(a) représente l'image de la tache focale du faisceau pompe après correction par le miroir déformable obtenue avec une caméra CCD équipée d'un objectif de microscope de grandissement 10. La structure en anneaux autour de la tache centrale est caractéristique de la diffraction. Ces anneaux ne contiennent que très peu de l'énergie totale de l'impulsion. Nous avons estimé que le diamètre de la tache focale contenant 87% de l'énergie (critère  $1/e^2$ ) est de 35  $\mu$ m environ, ce qui est très proche de la limite de diffraction. Compte-tenu de pertes d'énergie sur les différentes optiques de transfert avant la focalisation et de la fraction importante d'énergie perdue au centre du faisceau du fait des miroirs percés, on estime l'intensité maximale au foyer à  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. La figure 3.5(b) montre l'effet de la défocalisation sur le diamètre de la tache et l'intensité atteignable. Elle permet d'estimer un paramètre confocal de 2.7 mm, ce qui donne une certaine tolérance sur la précision de la position longitudinale de la cellule par rapport au foyer du miroir sphérique.

La figure 3.6(a) représente la carte de phase, ou front d'onde, du faisceau focalisé par le miroir sphérique. Elle a été mesurée (à une longueur d'onde de 815 nm) par un senseur de front d'onde de Shack-Hartmann conçu pour la lumière dans le proche infrarouge. Plus de détails sur les senseurs de front d'onde de type Hartmann seront donnés dans le chapitre suivant. Notons que pour optimiser l'étalement du faisceau sur la matrice du senseur, celui-ci a été placé à 85 mm du foyer et non directement dans le plan de celui-ci, ce qui explique les dimensions mesurées et l'observation du trou au centre du faisceau dû au trou dans les miroirs. La grandeur usuellement utilisée pour caractériser la qualité du front d'onde d'un faisceau, et donc sa capacité à être focalisé proprement, est l'écart normal aberrant quadratique. Il est donné par l'écart type des déformations du plan de phase par rapport à un front d'onde de référence. La figure 3.6(b) donne les variations tir-àtir de l'écart normal aberrant. Il est globalement compris entre  $\frac{\lambda}{6}$  et  $\frac{\lambda}{8}$  à  $\lambda = 815$  nm, ce qui est très bon pour ce type de système laser. Afin d'évaluer la qualité d'un front d'onde, on considère généralement le critère de Maréchal [171] qui indique qu'un faisceau est suffisamment proche de la limite de diffraction pour un écart normal quadratique de  $\frac{\lambda}{14}$  (correspondant à un rapport de Strehl de 0.8). Cette qualité de front d'onde est en bon accord avec les dimensions de la tache focale mesurée.



FIGURE 3.6 – (a) Mesure du front d'onde du faisceau pompe par un senseur de Shack-Hartmann à une distance au foyer de 85 mm (b) Variations tir-à-tir de l'écart normal quadratique des déformations du front d'onde

#### 3.2.2 Génération du rayonnement harmonique et couplage

La source d'harmoniques est générée en utilisant le faisceau sonde (qq 10 mJ, 35 fs). Une ligne à retard située sur son trajet permet de synchroniser l'arrivée de l'impulsion harmonique dans le plasma amplificateur avec l'instant où le gain de ce dernier est le plus important. Il est focalisé par une lentille en silice fondue de focale 1.5m et est renvoyé sous vide avant d'atteindre le point focal. L'optimisation de la génération se fait au moyen d'un diaphragme à iris permettant d'ajuster l'énergie contenue dans l'impulsion et de modifier la géométrie du foyer. Un système éclipsable permet également d'imager la tache focale de ce faisceau par une caméra CCD. La génération des harmoniques s'effectue dans une cellule de longueur 7 mm remplie d'argon à basse densité (typiquement 20 mbar) et alimentée en gaz en continu. La position du foyer dans la cellule est optimisée autour du centre de celle-ci. L'argon présente l'avantage d'offrir une bonne efficacité de conversion en énergie dans la gamme de longueurs d'onde nous concernant (de l'ordre de  $10^{-5}$  pour l'harmonique 25).

Le faisceau harmonique doit ensuite être transporté vers l'amplificateur. Pour plus de détails sur la propagation des ondes dans le domaine XUV, on peut se reporter au livre d'Attwood [172]. On peut montrer que l'indice de réfraction dans un milieu usuel s'écrit  $n = 1 - \delta \pm i\beta$  selon la convention utilisée, où  $0 < \delta \ll 1$  et  $\beta$  représente l'absorption du rayonnement. Cette absorption est en général très élevée dans le domaine XUV, et interdit par conséquent, en plus de la propagation à l'air, l'utilisation de lentilles ou de miroirs en incidence normale ou proche. En revanche, le fait que la partie réelle de l'indice soit inférieure à 1 dans le milieu autorise un phénomène de réflexion totale de l'onde à l'interface vide/milieu. Celle-ci a lieu pour des angles de rasance (complémentaire de l'angle d'incidence) inférieurs à l'angle critique  $\theta_c = \sqrt{2\delta}$  de l'ordre de quelques degrés dans notre cas. L'utilisation d'optique en incidence rasante est la première option pour la transport et la focalisation de faisceaux XUV. Pour une utilisation en incidence normale ou simplement non-rasante, on peut utiliser des miroirs interférentiels multicouches [173] [174]. Le principe de ces miroirs est d'additionner en phase les réflexions successives obtenues dans un milieu stratifié périodique, à la manière des réflexions de Bragg dans les cristaux naturels. Ces miroirs sont généralement composés d'un empilement périodique de deux matériaux en couches minces ayant un fort contraste d'indice à la longueur d'onde d'utilisation. Le matériau le plus absorbant dit "de fort indice" joue le rôle des plans atomiques dans les cristaux et le matériau le moins absorbant dit "de bas indice" celui du vide entre les plans atomiques. Ces miroirs sont en général efficaces sur une certaine bande spectrale, et les réflectivités maximales atteintes sont de l'ordre de plusieurs dizaines de pourcents.

L'optique utilisée pour coupler le faisceau harmonique dans le plasma est un miroir torique recouvert d'une couche de platine et utilisé en incidence rasante. Il est stigmatique pour seulement deux couples de points, et nous l'utilisons en géométrie 1 m - 1.5 m, c'est-à-dire que la source harmonique se situe à 1 m du miroir, et est imagée à 1.5 m de ce dernier avec un grandissement 1.5. Cette géométrie permet un bon recouvrement de la zone de gain dont la dimension transverse est inférieure à  $100 \,\mu\text{m}$ . L'angle de rasance est de 5°, ce qui nous assure une réflectivité théorique de 86%. A cause de l'importance cruciale de l'alignement de l'axe du miroir torique sur la tache focale, le système supportant celui-ci permet un alignement manuel des 6 degrés de libertés possibles. On verra par la suite que cela n'aura pas suffi à obtenir un faisceau harmonique imagé sans aberrations.

Afin d'obtenir une amplification satisfaisante à 32.8 nm, il est nécessaire que le couplage entre les harmoniques et l'amplificateur soit optimal. Ce couplage comporte trois étapes. Le *couplage spatial* est réalisé en superposant spatialement le faisceau harmonique et l'entrée de l'amplificateur. Les deux faisceaux pompe et sonde étant colinéaires – et le faisceau harmonique se propageant colinéairement au faisceau sonde – il suffit de superposer ces deux faisceaux au niveau de la cellule de krypton. La caméra permettant l'imagerie de la tache focale du faisceau pompe va également permettre de réaliser cette superposition dans le plan focal du faisceau pompe. Le faisceau sonde a néanmoins une taille importante dans ce plan (jusqu'à 400  $\mu$ m de diamètre) et la superposition fine sera réalisée directement sur l'optimisation de l'amplification de la raie 4d - 4p du krypton nickelloïde à 32.8 nm.

Le *couplage temporel*, ou synchronisation temporelle, utilise le même diagnostic et se base sur l'interférométrie des deux faisceaux. Il convient d'abord d'ajuster les énergies de chaque faisceau afin qu'elles soient comparables tout en s'assurant que chaque faisceau parcoure le même chemin optique que pendant l'expérience proprement dite. Ceci est généralement obtenu en coupant le dernier étage d'amplification du laser et en atténuant l'intensité du faisceau laser avant sa séparation en deux. Un diaphragme à iris situé sur le trajet du faisceau pompe permet d'affiner suffisamment son énergie pour qu'elle soit comparable à celle du faisceau sonde. On cherche alors la synchronisation temporelle en ajustant la position de la ligne à retard. Notons que les deux impulsions ont chacune une durée de 35 fs, ce qui correspond dans le domaine spatial à 10  $\mu$ m environ. Une synchronisation grossière est donc nécessaire avant de translater finement la platine. On l'effectue au moyen d'une photodiode rapide reliée à un oscilloscope avec une bande passante de 2.5 GHz. La synchronisation est alors généralement obtenue avec une précision de 20 mm. La synchronisation fine est obtenue en ajustant la platine de fs. Cette précision est largement suffisante puisque très inférieure au temps caractéristique d'évolution du gain à 32.8 nm, qui est de l'ordre de la ps. Lorsque les deux impulsions sont parfaitement synchronisées, elles interfèrent et on observe des franges sur la caméra.

Enfin, le *couplage spectral* consiste à accorder la longueur d'onde d'une harmonique, en général l'harmonique 25 du laser de pompe, à celle – fixe – de la transition 4d-4p du plasma amplificateur, soit 32.8 nm. Ceci est fait en ajustant la phase spectrale du laser générateur. En effet, en modifiant la valeur de la dérive de fréquence ("chirp") de l'impulsion laser, la fréquence instantanée au moment de l'émission d'une harmonique sur le front montant de l'impulsion est également modifiée, ce qui a pour résultat global un décalage du spectre harmonique [175]. En suivant cette méthode, on peut décaler la longueur d'onde de l'harmonique 25 (32.6 nm pour une longueur d'onde IR centrée à 815 nm) de manière à émettre une quantité acceptable de photons à la longueur d'onde de l'amplificateur.

#### 3.2.3 Diagnostics

Le diagnostic principal est un spectromètre XUV à réseau par transmission. Il permet notamment d'accorder spectralement l'harmonique 25 à amplifier et l'amplificateur, et est également utilisé pour quantifier l'amplification de cette harmonique. Un schéma de principe est donné en figure 3.7.



FIGURE 3.7 – Principe du spectromètre à réseau par transmission

Le premier élément essentiel de ce spectromètre est un miroir sphérique recouvert d'une couche d'or (focale de 1 m, diamètre de 100 mm) utilisé en incidence rasante (rasance de 10°) et permet d'imager la source sur une caméra CCD XUV (taille des pixels  $20 \times 20 \,\mu\text{m}$ ) dans le plan horizontal. Entre ce miroir et la caméra se trouve le réseau par transmission en or, possédant 2000 traits/mm et de dimensions  $5 \times 5$  mm. Il est supporté par une grille de pas 17  $\mu$ m. Cette grille présente l'avantage de faciliter la calibration du spectromètre. Son pas est typiquement adapté à de la spectrométrie visible et en mesurant le spectre obtenu avec un simple laser He-Ne d'alignement à 632.8 nm, on peut calculer précisément la distance entre le réseau et la caméra et en déduire la calibration du spectromètre. En effet, si on considère que le faisceau arrive perpendiculairement sur le réseau, la relation de dispersion est donnée par  $b\sin\theta = p\lambda$ , où b et p sont respectivement le pas du réseau et l'ordre de diffraction considéré. On mesure sur la caméra la distance  $\Delta x = L \tan \theta$  entre l'ordre 0 et l'ordre 1 par exemple, et on peut en déduire la distance L entre le réseau et la caméra. La calibration de ce spectromètre est d'environ  $0.035 \,\mathrm{nm/pixel}$  sur la CCD dans notre cas. Ceci ne permettra pas de résoudre spectralement la raie laser XUV, qui présente une largeur de l'ordre du mÅ. Une méthode différente par l'interférométrie sera donc proposée au chapitre 5. Notons finalement que la géométrie de ce spectromètre en fait un système simple mais performant puisqu'on peut lire sur chaque spectrographe le spectre du laser dans la dimension horizontale (direction dans laquelle le faisceau XUV est focalisé par le miroir sphérique) et la divergence du faisceau dans la dimension verticale (pas de focalisation).

L'autre diagnostic utilisé pour ces expériences est la mesure du profil spatial du faisceau. Elle se fait à l'aide d'une caméra CCD XUV 16 bits possédant un capteur de grande taille composé de  $2048 \times 2048$  pixels de  $13\mu$ m. Cette caméra est placée soit directement sur le trajet du faisceau en fin de ligne, soit après un miroir de renvoi XUV à 45° d'incidence en milieu de ligne. Ce type de miroir est un miroir multicouches B<sub>4</sub>C/Mo/Si optimisé à 32.8 nm qui offre une réflectivité maximale d'environ 30%.

La figure 3.8 représente le schéma de l'expérience et la disposition des diagnostics. On peut se rendre compte de son encombrement non négligeable. Des expériences de focalisation du faisceau XUV étaient prévues dans l'enceinte en bout de ligne mais n'ont pu avoir lieu faute de temps. Le nombre de filtres utilisés semble important sur ce schéma mais la plupart du temps, seul un filtre était utilisé (épaisseur typique 200 nm). Néanmoins, du fait de leur faible épaisseur, ils sont facilement endommagés par le laser et il est pratique de pouvoir utiliser un filtre le plus loin possible du foyer laser ou d'avoir en amont d'autres filtres de moins bonne qualité pour protéger les suivants.

La présentation de l'expérience et l'identification de contraintes pratiques étant maintenant effectuée, nous allons pouvoir nous intéresser à l'amplification de l'harmonique 25 du laser infrarouge par le plasma et à son comportement en fonction de certains paramètres importants.



FIGURE 3.8 – Schéma global de l'expérience en Salle Jaune

## 3.3 Caractérisation de l'amplification

Nous présentons ici la caractérisation de l'amplification de l'harmonique 25 par le plasma. En régime d'ASE ou en régime injecté, nous avons également étudié l'influence de certains paramètres expérimentaux, qu'ils soient dits "plasma" (densité de gaz, polarisation du laser, ...) ou "géométriques" (longueur de la cellule, position par rapport au foyer).

#### 3.3.1 Mesure de l'amplification

Une fois le couplage entre les harmoniques et le plasma amplificateur optimisé, on observe une amplification de l'harmonique 25 du laser infrarouge. La figure 3.9 donne trois spectres typiques, obtenus dans les conditions suivantes :

- -Longueur de la cellule de Kr $:6\,\mathrm{mm}$
- Position du foyer dans la cellule optimisée autour du centre la cellule
- Pression de Kr :  $30\,\rm{mbar}$
- Polarisation du laser circulaire
- Moment d'injection de l'impulsion harmonique dans l'amplificateur : 3 ps après la création du plasma



FIGURE 3.9 - Spectres expérimentaux (a) du rayonnement harmonique, (b) de l'ASE, et (c) du laser XUV injecté; les plus grandes longueurs d'ondes se trouvent à gauche des spectres

On observe l'émission des harmoniques d'ordres 21 jusqu'à 31 et une très forte amplification de l'harmonique 25. Notons que les pics secondaires autour de la raie laser injecté sont dus à la diffraction sur la grille supportant le réseau. Les spectres harmoniques et d'ASE ont été obtenus en accumulant 10 tirs, alors que le spectre de l'harmonique amplifiée a été obtenu sur un seul tir.

L'intensité du signal harmonique est très variable d'un jour sur l'autre. Elle dépend en effet fortement des paramètres du laser infrarouge, qui peuvent varier. Il est également nécessaire d'optimiser chaque jour le couplage spectral entre les deux sources, ce qui se traduit parfois par une dégradation globale de la génération. On se doit de trouver un critère le plus objectif possible pour caractériser l'amplification obtenue. Le *facteur d'amplification* tient compte de l'intensité de l'harmonique et de l'ASE et se définit de la manière suivante :

$$F = \frac{\mathcal{E}_{inj} - \mathcal{E}_{HHG} - \mathcal{E}_{ASE}}{\mathcal{E}_{HHG}}$$

où  $\mathcal{E}_{inj}$ ,  $\mathcal{E}_{HHG}$  et  $\mathcal{E}_{ASE}$  sont respectivement les énergies de l'harmonique amplifiée, de l'harmonique 25, et de l'ASE. Il convient néanmoins de prendre quelques précautions lors de la mesure de ces énergies, qui sont définies dans une certaine bande spectrale et dans une certaine extension spatiale. l'extension spatiale (dimension verticale sur les spectres) est donnée par l'ouverture de l'harmonique amplifiée (de l'ordre du mrad) et est nettement inférieure à celle de l'ASE (de l'ordre de la dizaine de mrad). L'intégration spectrale doit se faire sur la bande spectrale de la raie laser XUV qui est bien plus fine que l'harmonique. Nous avons choisi d'intégrer sur une bande qui correspond à la largeur totale  $(1/e^2)$  de la raie laser. Du fait de la faible résolution de notre spectromètre, cette zone de quelques pixels correspond à environ 0.15 nm.



FIGURE 3.10 – Comparaison des spectres harmoniques, ASE, et harmonique amplifiée. Les pics secondaires visibles sur le spectre du rayonnement injecté sont dus à la diffraction sur la grille supportant le réseau.

Sur la figure 3.10 sont reportés trois spectres : le rayonnement d'ASE du plasma, les harmoniques d'ordres élevés et l'harmonique amplifiée, mesurés dans les conditions décrites plus haut. Le facteur d'amplification de l'harmonique peut varier entre 50 et plus de 2000 dans les cas extrêmes que nous verrons plus loin. En routine, c'est-à-dire dans des conditions où le signal harmonique est optimisé autour de 32.8 nm, ce qui correspond finalement à l'optimisation du signal harmonique amplifiée, les facteurs d'amplification tournent autour de la centaine. La stabilité tir-à-tir de l'énergie du laser XUV injecté n'est pas très bonne. Ceci est essentiellement du à la stabilité de la source harmonique. Stabilité tir-à-tir en énergie bien sûr – nous verrons plus loin que dans le cas d'harmoniques peu énergétiques comme c'est parfois le cas, l'énergie de l'harmonique amplifiée est fortement dépendante de l'énergie injectée –, mais également stabilité de pointé. En effet, le couplage spatial influe beaucoup sur l'amplification, et il arrive parfois qu'une harmonique ne soit pas amplifiée du fait d'une absence de couplage spatial avec l'amplificateur.

Nous avons évoqué au chapitre 2 la possibilité d'obtenir une inversion de population et donc un effet laser entre les niveaux  $4d \ ^1S_0$  et  $4p \ ^3D_1$ , correspondant à une transition à la longueur d'onde de 33.4 nm. La figure 3.11 montre l'amplification laser d'une harmonique à cette longueur d'onde. Nous avons en effet centré l'harmonique 25 sur cette raie laser plutôt que sur la raie usuelle  $4d \ ^1S_0 - 4p \ ^1P_1$ . Il est à noter que, bien que le spectre harmonique semble suggérer l'absence de photons harmoniques à une longueur d'onde de 32.8 nm, ils sont en nombre suffisamment important pour observer une forte amplification, voire même plus forte que l'amplification à 33.4 nm injectée par une intensité bien plus élevée. Ceci nous indique que le gain de la transition  $4d \ ^1S_0 - 4p \ ^3D_1$  est largement inférieur à celui de la transition  $4d \ ^1S_0 - 4p \ ^1P_1$ . On peut également y voir un intérêt de la technique d'injection, qui permet de détecter les transitions laser à faible gain qu'on ne peut pas observer en régime ASE.



FIGURE 3.11 – Mise en évidence de l'amplification de la raie laser XUV à 33.4 nm par un décalage spectral du rayonnement harmonique

#### 3.3.2 Paramètres influant sur les qualités amplificatrices du plasma

Les mesures suivantes présentent une caractérisation de l'amplificateur XUV effectuée en étudiant la dépendance du signal XUV en régime ASE ou injecté à différents paramètres. Ces paramètres sont pour la plupart directement en lien avec l'état du plasma (état d'ionisation, extension spatiale, évolution temporelle, ...). Toutes ces mesures sont basées sur l'évaluation de l'intensité XUV en utilisant le spectromètre d'analyse. Le signal émis en régime ASE étant relativement faible, chaque spectre est obtenu en effectuant une accumulation de 10 tirs. En régime injecté, le nombre de tirs accumulés varie de 1 à 10. Chaque point expérimental prend en compte plusieurs spectres (de 3 à 5 la plupart du temps) et les barres d'erreurs proviennent de la moyenne de ces spectres.

#### La longueur d'amplification

Ces mesures ont été réalisées en laissant constants tous les paramètres (notamment la pression de krypton, 30 mbar) dans le cas du régime injecté ainsi que dans le cas du régime ASE pour lequel la courbe présentée en figure 3.12(a) a été obtenue sur deux journées différentes. Dans ce dernier cas, les intensités XUV mesurées étant très proches pour les longueurs de cellule redondantes, nous en avons déduit être dans des conditions expérimentales suffisamment proches pour pouvoir représenter les deux séries de mesures sur la même courbe. Notons enfin que la longueur d'amplification est modifiée en faisant varier la longueur de la cellule de gaz, ce qui n'est pas rigoureusement la même chose, comme nous le verrons par la suite.



FIGURE 3.12 – Dépendance du signal XUV à la longueur de cellule

La figure 3.12 présente l'ensemble de ces mesures. On y distingue trois phases distinctes. Dans un premier temps, on n'observe pas de signal XUV pour les courtes longueurs de cellule (jusqu'à 2 mm en régime injecté, un peu plus en régime ASE dû au faible niveau de signal globalement obtenu en ASE). L'amplification croît ensuite régulièrement pour atteindre un optimum vers 6 mm, puis décroît pour des longueurs plus élevées.

Cette décroissance s'explique assez facilement par le fait que pour des longueurs de cellule plus longues, tout le krypton n'est pas ionisé jusqu'à l'état de charge 8<sup>+</sup>. Cette partie de plasma faiblement ionisé, située après le plasma amplificateur, peut absorber de manière significative le rayonnement XUV produit. La figure 3.13 représente la carte d'ionisation du plasma après le passage de l'impulsion laser, calculée à l'aide du code de propagation 2D pour une pression de 30 mbar et une intensité laser focalisée  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> dans une cellule de 10 mm. Nous avons donné à cette impulsion un profil gaussien, et un waist de 20  $\mu$ m, valeur comparable à celle mesurée expérimentalement. La forme du plasma sera discutée plus en détail dans le chapitre 4 .On remarque néanmoins que le plasma d'ions Kr<sup>8+</sup> n'est effectivement pas aussi long que la cellule. Sa longueur est de l'ordre de 4 mm, ce qui semble faible mais il est possible que les zones de plasma moins ionisées (6<sup>+</sup> et 7<sup>+</sup>) située derrière la zone de Kr<sup>8+</sup> finissent par participer à l'amplification lorsqu'elles auront atteint le bon état de charge du fait de l'ionisation collisionnelle postérieure à la création du plasma.



FIGURE 3.13 – Carte d'ionisation du plasma après le passage de l'impulsion las calculée pour une pression de krypton de 30 mbar et une intensité de pompe dans le vide de  $10^{18} \text{ W/cm}^2$ 

Nous avons souhaité comparer cette décroissance du signal XUV à la transmission théorique [176] du plasma de krypton faiblement ionisé. Pour les ions  $Kr^+$  et  $Kr^{2+}$ , cette transmission est similaire à celle du krypton neutre que nous avons calculée pour une pression de 30 mbar. En revanche, les ions d'état de charge supérieur à 2 sont transparents pour un rayonnement à 32.8 nm. La figure 3.14 représente les cartes de gain (ou d'absorption) du plasma pour une cellule de 10 mm de krypton. Les zones noires et blanches représentent respectivement les zones absorbantes et transparentes à 32.8 nm. On constate donc que, pour une même position du foyer du faisceau laser, considérer une longueur de cellule supérieure à 6-7 mm revient à ajouter autant de longueur de plasma absorbant. On s'attend donc à ce que à chaque longueur de cellule corresponde un optimum sur la position du foyer du laser dans le vide.



FIGURE 3.14 – Cartes de gain et d'absorption du plasma pour une longueur de cellule de 10 mm  $(P_{Kr} = 30 \text{ mbar et } I_{pompe} = 10^{18} \text{ W/cm}^2)$ 

La figure 3.15 représente le résultat du calcul de la transmission théorique du Kr I, II et III, où sont également reportés les points expérimentaux de la figure 3.12(a) pour une longueur de cellule supérieure à 6 mm. La prise en compte de la partie absorbante du plasma permet d'obtenir un bon accord avec la mesure de la diminution du signal pour les grandes longueurs de cellule.



FIGURE 3.15 – Transmission du rayonnement XUV après passage dans du krypton à 30 mbar

Revenons maintenant à la zone où débute l'amplification. La résolution de l'équation 2.27 permet de calculer l'intensité XUV produite le long d'une colonne de plasma de longueur donnée. Nous avons considéré une longueur de plasma de 6 mm, une des longueurs optimales en terme de signal XUV généré expérimentalement et donc la longueur de notre cellule de gaz utilisée par défaut. Pour le calcul de l'amplification de l'harmonique, nous avons estimé d'après les spectres expérimentaux que la largeur spectrale de l'harmonique était ce jour-là inférieure à 0.1 nm, soit  $\Delta\lambda/\lambda \simeq 2 \times 10^{-3}$ . Le calcul réalisé en prenant en compte un gain de 60 cm<sup>-1</sup> a été confronté aux résultats expérimentaux dans le cas du régime injecté sur la figure 3.16



FIGURE 3.16 – Intensité intégrée spectralement en fonction de la longueur de plasma, en régime injecté

On note un bon accord entre les mesures et les résultats donnés par ce code. De part sa nature, ce dernier ne peut prendre en compte l'idée d'un plasma plus ou moins ionisé et donc absorbant, ce qui explique que le signal XUV augmente indéfiniment avec la longueur de l'amplificateur. La partie intéressante de la courbe se situe au début de l'amplification, vers les premiers millimètres. On remarque en effet que sur cette distance d'amplification (1 mm), on n'observe aucune augmentation significative du signal XUV. L'énergie émise reste à son niveau de départ, ou niveau d'injection, c'est-à-dire l'énergie de l'harmonique. Ceci a déjà été observé [123] [177] et est dû au fait que, comme pour les mesures expérimentales, l'intensité XUV produite par ce code est calculée par intégration sur une certaine bande spectrale, plus large que la largeur de la raie du laser XUV (qui rappelons-le, est très fine, de l'ordre du mÅ). Cette zone où l'on n'observe pas d'amplification correspond en fait au rétrécissement spectral de l'harmonique par le gain de l'amplificateur. Cet effet sera décrit plus en détail au chapitre 5.

#### L'intensité du laser de pompe

Ces mesures ont été réalisées en laissant constante la durée de l'impulsion. Il a en effet été démontré dans le cadre de l'amplificateur XUV dans le xénon palladiumoïde à 41.8 nm que l'intensité XUV produite dépend essentiellement de l'intensité de pompe, quelle que soit la combinaison énergie/durée d'impulsion de pompe choisie. Le résultat de ces mesures est présenté en figure 3.17 pour le régime ASE et le régime injecté. La longueur de cellule a été fixée à 6 mm et la pression de krypton à 30 mbar. Dans le cas du régime ASE, on détecte une raie amplifiée de manière certaine à partir d'une intensité de pompe de  $6.5 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ . Il est néanmoins probable que la raie soit présente mais noyée dans le bruit pour des intensités inférieures puisque dans le cas du régime injecté, une intensité de pompe autour de  $5 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  est suffisante à l'observation d'une raie. Dans les deux cas, l'intensité augmente rapidement pour les intensités de pompe les plus faibles, et a tendance à saturer par la suite.



FIGURE 3.17 – Influence de l'intensité de pompe infrarouge sur le signal XUV. Les courbes en pointillés sont un guide pour l'œil

Il est à noter que l'intensité de pompe influe sur le gain de l'amplificateur via l'ionisation du krypton. On a donc à considérer deux effets : l'état d'ionisation atteint par le plasma, et l'extension spatiale du plasma, plus spécifiquement celle de la zone de gain et éventuellement de l'éventuelle zone de réabsorption suivant la zone de gain. Dans la gamme d'intensités dans laquelle nous nous situons  $(10^{17}-10^{18} \text{ W/cm}^2)$ , l'augmentation de cette intensité ne va pas créer de surionisation (ionisation au delà de l'état  $8^+$ ) trop importante. A partir du moment où l'intensité de pompe est suffisante pour créer les ions lasants, son influence sur le gain de l'amplificateur est faible. À ce stade, il s'agit en effet d'un problème de propagation du laser de pompe. L'effet de défocalisation du laser de pompe dû à la réfraction par le plasma va limiter l'intensité maximale du champ et

donc la taille d'une éventuelle zone surionisée. L'effet principal de l'augmentation de l'intensité de pompe sera finalement d'allonger la longueur de la zone de gain du fait d'une plus grande zone (située après le point de focalisation) où l'intensité est suffisante pour créer les ions  $Kr^{8+}$ , comme le montre la figure 3.18.



FIGURE 3.18 – Cartes d'ionisation du plasma calculées pour des intensités de pompe allant de  $4 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$  à  $10^{18} \text{ W/cm}^2$ . La pression de krypton est de 30 mbar.

Ces cartes d'ionisation ont été calculées pour une pression de krypton de 30 mbar et un point de focalisation du laser (dans le vide) situé au milieu de la cellule, 3 mm après la face d'entrée. On y voit clairement qu'augmenter l'intensité de pompe a pour effet d'une part de créer une ou plusieurs zones surionisées sur l'axe de propagation et d'autre part d'allonger de manière significative la longueur de la zone d'ions d'état de charge  $8^+$  ou plus. Au niveau de l'axe, la longueur globale de plasma de Kr<sup>+</sup> n'est pas significativement allongée en augmentant l'intensité de pompe (de l'ordre de 2 mm), mais en s'en éloignant légèrement, vers un rayon de l'ordre de 20  $\mu$ m, on trouve des ions Kr<sup>+</sup> sur une longueur plus importante. Ceci, et le fait que la zone de plasma faiblement ionisé absorbante soit –à longueur de cellule fixe– plus courte, explique l'augmentation de signal XUV émis avec l'augmentation de l'intensité de pompe. Rigoureusement, pour chaque intensité laser on peut trouver une longueur de cellule optimale. L'influence de la forme de la zone de gain sur le profil spatial du faisceau XUV sera discutée au chapitre 4.

#### La polarisation du laser

Comme nous l'avons vu au chapitre 2, la température électronique du plasma contrôle le taux de pompage de la transition lasante. La température du plasma dépend de la longueur d'onde du champ laser, qui est ici fixe, et de sa polarisation. Nous pouvons agir sur cette dernière expérimentalement en jouant sur l'angle entre la polarisation (linéaire) du laser après compression et les axes de la lame quart d'onde servant à la rendre circulaire. La figure 3.19(a) donne l'intensité du signal émis en régime ASE en fonction de l'ellipticité  $\Phi$  (telle que définie dans le chapitre 2) du champ laser de pompe, mesuré pour une longueur de cellule de 6 mm et une pression de krypton de 30 mbar. Les résultats d'une simulation numérique prenant en compte les valeurs du gain et de l'intensité de saturation calculés par le code OFI-OD sont donnés en figure 3.19(b). Le cas  $\Phi = 0$  ou 1 correspond donc à une polarisation linéaire et le cas  $\Phi = 0.5$  à une polarisation circulaire.



FIGURE 3.19 – Influence de la polarisation du laser de pompe sur le signal XUV

On constate que d'après le code de simulation, l'intensité émise n'est pas maximale pour une polarisation circulaire, mais pour une polarisation proche. Ceci peut néanmoins être un artefact numérique. Expérimentalement, le signal émis est maximum pour une polarisation circulaire, et chute lorsque qu'on s'en éloigne. Il semble néanmoins que cette chute est moins brutale que la théorie ne le prédit, et surtout que, même dans le cas d'une polarisation linéaire, on observe une raie laser d'intensité non négligeable. Il est possible que l'énergie des électrons de pompe issus de l'ionisation par une polarisation linéaire soit sous-estimée, et soit expérimentalement suffisante pour autoriser le pompage de la transition laser.

#### La densité de krypton - dynamique du gain

La densité du plasma joue un rôle essentiel dans la production des lasers XUV. Travailler à haute densité permet en effet d'accroître le nombre d'émetteurs et donc d'augmenter l'intensité de saturation du plasma. Néanmoins, en géométrie de pompage longitudinal comme c'est le cas pour notre laser XUV OFI, cela pose un réel problème pour la propagation du laser de pompe. La figure 3.20 présente la mesure de la dépendance du signal XUV en régime ASE en fonction de la pression de krypton dans la cellule. On n'attend pas de différence en régime injecté. Ces mesures ont été réalisées pour une longueur de cellule de 6 mm. Le signal croît rapidement jusqu'à un optimum situé autour de 30 mbar (soit une densité neutre de  $7.4 \times 10^{17} \,\mathrm{cm}^{-3}$ ) puis décroît ensuite lentement.

Pour comprendre ces variations, il peut être intéressant de considérer séparément les effets liés d'une part à la propagation du laser de pompe, et d'autre part à la physique atomique du plasma. Du point de vue de la propagation tout d'abord, on s'attend en effet à des conditions beaucoup plus favorables pour de basses pressions. La figure 3.21 donne les cartes d'ionisation calculées pour une intensité de pompe de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> et différentes pressions de krypton. Il apparaît clairement que la zone d'ions Kr8<sup>+</sup> est beaucoup plus longue à basse pression où les effets de réfraction du laser sont moins importants. Ceci a donc pour effet d'augmenter la taille de la zone de gain mais aussi de réduire la taille de la zone de réabsorption. La zone surionisée sur l'axe est également



FIGURE 3.20 – Influence de la densité de krypton en régime ASE

plus importante, mais sa taille augmente beaucoup moins comparativement à celle de la zone de gain. Cet effet de propagation va globalement entrer en compétition avec l'augmentation de l'intensité de saturation induite par l'augmentation de la pression. La simulation présentée sur la même figure 3.20 tient compte de cet effet et décrit bien les résultats expérimentaux.



FIGURE 3.21 – Cartes d'ionisation du plasma calculées pour des pressions de krypton allant de 5 à 60 mbar, et une intensité de pompe dans le vide de  $10^{18} \text{ W/cm}^2$ 

Intéressons nous maintenant à la dépendance de la dynamique temporelle du gain de l'amplificateur à la densité du plasma. Le pompage de l'amplificateur étant longitudinal, l'impulsion harmonique verra le même gain le long de sa propagation dans l'amplificateur. Ceci n'est cependant vrai que si on néglige les effets d'un champ harmonique intense qui va saturer l'inversion de population et donc le gain, voire faire devenir le milieu absorbant à la longueur d'onde du champ(cfchapitre 5). En faisant varier le moment d'injection de l'impulsion harmonique dans le plasma, on peut donc évaluer la dynamique temporelle du gain *statique* (sans champ intense appliqué).



FIGURE 3.22 – Influence de la densité de krypton sur la dynamique du gain de l'amplificateur

La figure 3.22 présente l'ensemble des résultats de cette étude. Nous avons mesuré l'intensité de la raie 4d - 4p du krypton nickelloïde à 32.8 nm en fonction du délai d'injection, ceci pour des pressions de krypton de 15, 20, 30, et 40 mbar. Les intensités ont été normalisées par rapport à l'intensité maximale obtenue pour la pression optimale de 30 mbar. Sur les mêmes graphes, nous avons reporté les courbes donnant l'allure temporelle du gain calculées par le code de physique atomique pour chaque pression. Nous avons supposé une intensité de pompe de  $5 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ . On peut tout d'abord constater que, pour une densité donnée, on a un bon accord entre les résultats donnés par cette méthode de mesure et le calcul de l'évolution temporelle du gain. Cet accord n'est néanmoins pas parfait et ceci est aisément explicable. En effet, l'intensité de sortie est liée au gain par l'équation de transfert radiatif, qui montre qu'elle n'est proportionnelle au gain que lorsque la saturation est atteinte. La saturation étant justement très rapidement atteinte dans notre cas <sup>1</sup>,

<sup>1.</sup> la longueur à laquelle la saturation est atteinte dépend du gain vu par l'harmonique ; elle est de l'ordre du mm

Pression de krypton	Durée mesurée (FWHM)	Durée calculée (FWHM)
15 mbar	$8.0\pm1.5\mathrm{ps}$	$11.5\mathrm{ps}$
20 mbar	$6.0{\pm}1.0\mathrm{ps}$	$6.1\mathrm{ps}$
30 mbar	$4.5{\pm}1.0\mathrm{ps}$	$5.6\mathrm{ps}$
40 mbar	$3.0{\pm}1.0\mathrm{ps}$	$4.2\mathrm{ps}$

on a par cette méthode une bonne approximation de la mesure de la durée du gain (Tab. 3.1).

TABLE 3.1 – Mesure et calcul de la durée du gain de l'amplificateur XUV

On constate également que les valeurs de gain maximales augmentent effectivement avec la densité de krypton (de  $148 \text{ cm}^{-1}$  pour 15 mbar à  $180 \text{ cm}^{-1}$  pour 40 mbar), ce qui n'est pas nécessairement le cas de l'intensité de l'harmonique amplifiée comme nous avons pu le voir plus haut dans le cas du régime ASE. Deux autres observations notables sont que le temps auquel le gain atteint son maximum est d'autant plus court que la densité est élevée (de 4.3 ps pour 15 mbar à 1.7 ps pour 40 mbar), et que la durée de ce gain est d'autant plus courte que la densité est élevée (FWHM de 11.5 ps pour 15 mbar à 4.2 ps pour 40 mbar). Ceci est directement à relier aux phénomènes collisionnels proportionnels à la densité électronique. En augmentant la densité, l'excitation collisionnelle plus importante permet d'obtenir un gain plus élevé et plus rapidement, et l'ionisation collisionnelle plus importante contribue en revanche à détruire le milieu à gain en surionisant les ions lasants plus rapidement (cf Fig. 3.23(a)). La température électronique chute en effet plus rapidement pour des densités plus élevées (cf Fig. 3.23(b)). Nous verrons dans le dernier chapitre de ce manuscrit que l'augmentation de la densité de l'amplificateur de plusieurs ordres de grandeur peut être un moyen efficace de réduire la durée des impulsions XUV émises tout en conservant voire augmentant leur énergie.



FIGURE 3.23 – Évolution temporelle du plasma de krypton en fonction de la densité atomique de gaz : (a) état de charge moyen et (b) température électronique, calculés pour une ionisation par un champ de pompe polarisé circulairement et focalisé à une intensité de  $5 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ 

pour des délais d'injection usuels, entre 2 et 6 ps par exemple

#### Le niveau d'injection harmonique

Puisque nous nous situons dans le cas d'un amplificateur optique, il est pertinent de s'intéresser à l'influence de l'intensité du signal injecté sur l'intensité des impulsions amplifiées. Cette mesure est plus délicate que les précédentes. Le signal d'entrée étant un rayonnement harmonique, il dépend fortement de l'impulsion laser génératrice et de sa focalisation. Nous ne pouvons pas nous permettre de changer les conditions de focalisation (pupille du laser, focale) car nous risquons de modifier le couplage spatial ou spectral. Baisser l'intensité de l'impulsion laser peut permettre de modifier l'énergie obtenue dans le rayonnement harmonique mais change également la géométrie de la source et le spectre du rayonnement. Une méthode simple efficace permettant de diminuer l'efficacité du processus de génération d'harmoniques tout en gardant les autres contions expérimentales constantes est de modifier la polarisation du laser générateur. En effet, la génération d'harmoniques nécessite un champ laser polarisé linéairement (cf chapitre 2). Le fait de faire varier la polarisation de linéaire à circulaire permet de réduire fortement l'efficacité de conversion et donc l'intensité du rayonnement harmonique. Nous avons donc pour cela placé une lame quart d'onde sur le trajet du faisceau laser sonde. Les résultats de cette mesure sont présentés sur la figure 3.24.



FIGURE 3.24 – Influence du niveau d'injection harmonique sur le signal amplifié

La courbe obtenue est assez typique d'un amplificateur optique. Elle se caractérise par une première phase où le signal de sortie augmente rapidement en fonction du signal d'entrée. On se situe alors dans le cas où l'amplificateur n'est pas saturé. Lorsque la saturation est atteinte, ici pour une fluence d'entrée supérieure à environ  $2 \,\mu J/cm^2$ , l'intensité de sortie augmente beaucoup plus lentement. Il peut également être intéressant de modifier cette courbe de manière à étudier le facteur d'amplification de l'harmonique, grandeur plus pertinente pour caractériser l'amplification. Ces points ont été reportés sur la figure 3.25.

Comme annoncé dans le début de ce chapitre, pour de faibles intensités harmoniques on atteint de très forts facteurs d'amplification, jusqu'à 3000. Ceci peut être très intéressant dans le cas de l'amplification d'une harmonique issue du rayonnement produit par un laser de pompe d'énergie modeste. Néanmoins, la configuration la plus effective en terme d'énergie de sortie reste celle ou l'harmonique injectée est très intense. Notons également qu'on peut obtenir une première



FIGURE 3.25 – Influence du niveau d'injection sur le facteur d'amplification. On suppose que la durée de l'impulsion harmonique est de 30 fs pour l'estimation de son intensité.

approximation de l'énergie contenue dans l'harmonique amplifiée. Considérons que pour une intensité harmonique de  $10^8 \text{ W/cm}^2$ , *i.e.* une fluence de  $3 \mu \text{J/cm}^2$ , on a un facteur d'amplification de 100. En négligeant l'ASE, on trouve une fluence du laser injecté de  $300 \,\mu \text{J/cm}^2$  dans le plan de la source. En considérant une source d'extension radiale de  $40 \,\mu\text{m}$ , on trouve une énergie contenue dans l'impulsion de  $1.5 \,\mu\text{J}$ . Cette estimation reste néanmoins un ordre de grandeur que nous affinerons.

### 3.4 Conclusion

Nous avons dans ce chapitre détaillé l'expérience d'amplification d'un rayonnement harmonique par un plasma créé par laser. Une forte amplification de l'harmonique 25 du laser infrarouge de génération (facteur de plusieurs centaines dans les conditions optimales) a pu être obtenue et nous avons identifié les paramètres importants du processus. Ces paramètres affectent de diverses manières, parfois couplées les caractéristiques de l'amplificateur, et dans l'ensemble, leur influence est bien comprise.

L'importance de la propagation du laser de pompe dans le plasma a été mise en évidence au travers d'études en fonction de la densité et de la longueur de ce dernier. Un optimum de densité a été obtenu pour une pression de 30 mbar (densité électronique de  $6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ). Nous avons également pu constater que le plasma créé par le champ laser peut présenter, en plus de la zone amplificatrice de Kr<sup>8+</sup>, une zone transparente et surtout une zone absorbante constituée des trois premiers états de charge du krypton. Ceci limite d'autant plus l'intensité des impulsions XUV émises, et un optimum a été trouvé pour une longueur de cellule de 6 mm (à une pression de 30 mbar). Enfin, une étude en fonction de l'intensité du laser de pompe a montré que, bien que la forme de la zone amplificatrice change avec celle-ci, il est souhaitable d'utiliser une intensité laser

assez forte pour générer un plasma le plus long possible. Pour toutes ces paramètres, nous avons constaté un bon accord entre nos mesures et les prédictions issues de différentes modélisations.

La polarisation du laser de pompe permet de contrôler le taux de chauffage des électrons du plasma et ainsi le gain de l'amplificateur, ce que nous avons pu constater expérimentalement. Nous avons toutefois mesuré un gain non négligeable dans le plasma créé par un champ polarisé linéairement, ce qui n'est pas conforme aux résultats du code numérique utilisé. Le chauffage du plasma créé par un champ polarisé linéairement reste à prendre en compte de manière plus précise dans la modélisation.

Nous avons également mesuré une très forte amplification (plusieurs milliers) d'une harmonique de faible intensité, confirmant ainsi l'efficacité de cet amplificateur. De même, une injection à un niveau élevé permet de mettre en évidence l'amplification par des gains beaucoup plus faibles. C'est d'ailleurs dans ce régime d'injection forte que cette source est optimale et permet d'obtenir un plus grand nombre de photons par impulsion émise.

Enfin, l'injection d'harmonique dans l'amplificateur nous a permis de sonder la dynamique temporelle du gain laser. Nous retiendrons que la durée de vie du gain diminue notablement lorsque la densité du plasma augmente (de 8 ps pour une pression de 15 mbar à 3 ps pour 40 mbar). Ce phénomène, compris comme étant une conséquence de la surionisation collisionnelle de l'espèce lasante peut être une piste prometteuse pour la production d'impulsions XUV de courte durée (<ps), comme nous le verrons dans le dernier chapitre de ce manuscrit.

# Chapitre 4

# Caractérisation spatiale du laser XUV en régime injecté

#### Sommaire

4.1	.1 Caractérisation spatiale du faisceau XUV : expériences et mesures				
	$\operatorname{caract\acute{e}ristiques}$				
	4.1.1	Le profil transverse en champ lo intain du faisceau $\hfill \ldots \ldots \ldots \ldots$	100		
	4.1.2	Mesure de l'énergie des impulsions XUV	104		
	4.1.3	Stabilité de pointé - influence du pointé du faisceau harmonique sur le profil			
		spatial du faisceau injecté	104		
	4.1.4	Front d'onde des faisceaux XUV harmonique et harmonique amplifiée $\ . \ .$	105		
	4.1.5	Influence de la longueur de la cellule sur le profil spatial et le front d'onde			
		du faisceau	109		
	4.1.6	Effet de la densité de l'amplificateur	111		
	4.1.7	Cohérence spatiale des différentes sources	115		
	4.1.8	Influence du gain de l'amplificateur sur le profil spatial et le front d'onde			
		du laser injecté : délai d'injection	118		
	4.1.9	Influence de l'intensité de pompe sur la distribution d'énergie du laser			
		injecté par harmonique	121		
	4.1.10	Particularités du régime de haute intensité	124		
4.2	$\operatorname{Mod}$	élisation de l'amplification du faisceau harmonique par le plasma	<b>128</b>		
	4.2.1	Un modèle simple de filtrage par le gain de l'amplificateur	128		
	4.2.2	Présentation d'un modèle numérique semi-3D	132		
	4.2.3	Premiers résultats de modélisation	133		
	4.2.4	Allure de la zone de gain et profil du faisceau en champ lointain $\ \ . \ . \ .$	137		
4.3	Cond	clusion	143		
Nous allons dans ce chapitre nous intéresser au laser XUV injecté en tant que faisceau laser, c'est-à-dire que nous allons étudier les caractéristiques spatiales de ce laser. La qualité spatiale d'un faisceau est un élément très important pour un grand nombre d'applications, et nous verrons que l'amplification d'une harmonique permet d'obtenir des faisceaux de très bonne qualité. Par très bonne qualité, on entend que le faisceau a un profil transverse régulier, une forte cohérence spatiale, mais aussi un front d'onde plan (ou plutôt sphérique dans notre cas) assurant une focalisation proche de la limite de diffraction. Nous présentons la mesure de ces caractéristiques dans le cas d'une harmonique amplifiée par un plasma OFI. Un modèle simple permettant de comprendre l'amélioration du profil spatial par l'amplification d'harmonique sera présenté, et des calculs numériques plus complets viendrons faire le lien entre le profil spatial mesuré et la forme du plasma amplificateur directement liée à la propagation du laser de pompe.

# 4.1 Caractérisation spatiale du faisceau XUV : expériences et mesures caractéristiques

Nous allons préciser dans cette partie quels sont les caractéristiques dites du faisceau que nous avons mesurées et étudiées. Ces caractéristiques sont dites "spatiales" car elles sont liées au fait que la source XUV possède une étendue spatiale non nulle, et donc que le faisceau produit résulte de l'addition des ondes créées par chaque émetteur de la source. Ce faisceau possède notamment un certaine divergence qui est à relier à la géométrie de la source dans le cas de l'ASE et du rayonnement harmonique. Dans le cas de l'amplification de l'harmonique, il faut également tenir compte de l'interaction du faisceau harmonique avec l'amplificateur. La répartition spatiale d'intensité dans le faisceau et les propriétés de cohérence et de phase spatiale, ou front d'onde, sont de plus également liées à la nature de la source. Nous donnons ici le principe des expériences réalisées pour mesurer ces caractéristiques et les résultats obtenus dans le cas général. Le long de cette section, on cherchera également quelle peuvent être les sources de variation de ces caractéristiques, et plus particulièrement de l'allure du profil spatial du faisceau injecté par harmonique.

## 4.1.1 Le profil transverse en champ lointain du faisceau

Le profil transverse du faisceau, mesuré en champ lointain, est sa caractéristique spatiale la plus simple à mesurer et peut néanmoins fournir des informations sur la source elle-même. Rappelons que dans la théorie de la diffraction régissant la propagation des ondes, le champ lointain concerne les distances  $z \gg a^2/\lambda$ , où a est l'extension caractéristique de la source. On est alors dans le cadre de l'approximation de la diffraction de Fraunhoffer et la distribution angulaire d'intensité dans le faisceau ne dépend pas de la distance parcourue par l'onde. À l'inverse, le champ proche concerne les distances  $z < a^2/\lambda$  et situe l'étude dans le cas de la diffraction de Fresnel. Sa mesure dans notre cas nécessiterait l'utilisation d'une optique XUV imageant par exemple le plan de sortie du plasma. Nous verrons plus loin une autre méthode permettant de reconstruire le profil en champ proche. Pour mesurer le profil en champ lointain du faisceau, nous avons donc simplement utilisé une caméra CCD XUV placée dans l'axe du faisceau, à une distance de 4 m de l'amplificateur XUV (Fig. 4.1). Cette caméra possède une ouverture de 3.5 mrad environ, mais nous verrons que c'est en réalité le filtre aluminium qui limite l'ouverture du système. La distance de 4 m permet de nous assurer que l'on se trouve effectivement en champ lointain. Les mesures sont bien entendu mono-coup, le pointé du faisceau n'étant pas suffisamment stable pour enregister proprement plusieurs tirs sur la caméra.



FIGURE 4.1 – Principe de la mesure du profil spatial du faisceau XUV

La figure 4.2 donne la mesure des profils en champ lointain des différentes sources. Les paramètres de génération sont ceux "de routine" : une pression de krypton de 30 mbar et une longueur de cellule de 6 mm. La pression d'argon pour la génération d'harmoniques est de 25 mbar et la longueur de cellule 7 mm. Rappelons que dans le cas de la source harmonique, on caractérise le faisceau injecté dans l'amplificateur –donc relayé par le miroir torique– et non le véritable faisceau émis par la source.



FIGURE 4.2 – Profil en champ lointain des différentes sources

Commençons par le profil spatial de l'ASE. La divergence du faisceau est entièrement déterminée par la géométrie du plasma et pour une colonne de plasma est donnée par le rapport de son rayon et de sa longueur. Pour un plasma de rayon d'environ 30  $\mu$ m et de longueur 6 mm, elle est de 5 mrad. On ne peut donc pas collecter toute l'émission sur la caméra. L'information intéressante se trouve dans la répartition d'intensité du faisceau. Elle est en effet fortement inhomogène et marquée par la présence de surintensités assimilables à des grains de speckle. Rappelons que le phénomène de speckle se produit par exemple lorsqu'un faisceau spatialement cohérent est diffusé par une surface rugueuse ou plus généralement par une surface de phase aléatoire. Les rayons diffusés par chaque point vont interférer et le profil obtenu en champ lointain sera composé de zones sombres et lumineuse réparties aléatoirement et appelées grains de speckle. Dans notre cas, ces grains de speckle sont dus au fait que la source se comporte comme un ensemble de sources micrométriques mutuellement cohérentes temporellement mais pas spatialement [105] [178]. Il ne s'agit donc pas de speckle au sens traditionnel du terme. Le modèle développé a également montré que, à temps de cohérence constant, ce phénomène a tendance à disparaître par effet de moyennage si la durée d'impulsion augmente, expliquant de fait pourquoi on n'observe ces structures que dans le cas des lasers XUV OFI ou transitoires qui se caractérisent par une durée d'émission ps. La taille caractéristique de ces micro-sources est la longueur de cohérence spatiale à la source, soit quelques microns. Les problèmes de cohérence seront discutés plus en détails dans le paragraphe suivant.

Le profil spatial du faisceau harmonique montre la présence d'astigmatisme. Cet astigmatisme est dû à un léger désalignement du miroir torique imageant la source dans le plan d'entrée du plasma. Ceci mis à part, et n'étant de toutes façons pas très gênant comme nous allons le voir, le profil est de relativement bonne qualité, avec une répartition d'intensité homogène et une faible divergence de  $0.6 \times 0.3$  mrad.

Le profil spatial du faisceau injecté est quant à lui remarquablement régulier [179] [180]. Il présente une répartition d'intensité quasi-gaussienne et une divergence très faible de  $0.7 \,\mathrm{mrad}$  (correspondant au 1<sup>er</sup> zéro de la fonction d'Airy).



FIGURE 4.3 – Profil radial intégré du faisceau injecté par harmonique

#### 4. Caractérisation spatiale du laser XUV en régime injecté

Pour être plus précis, la présence d'un faible anneau autour du spot central rappelle le motif d'Airy obtenu dans le cas de la diffraction de Fraunhoffer par une ouverture circulaire. Dans les conditions de Fraunhoffer, le profil de l'amplitude diffractée à la distance z est donné par la transformée de Fourier de l'ouverture; dans le cas d'une ouverture circulaire de diamètre  $\Phi$ , l'intensité diffractée est donnée par la fonction d'Airy :

$$I_{diff}(r) = I_0 \left[ \frac{2J_1\left(\frac{\pi \Phi r}{\lambda z}\right)}{\frac{\pi \Phi r}{\lambda z}} \right]^2$$
(4.1)

où  $J_1$  est la fonction de Bessel de première espèce d'ordre 1. Comme le montre la figure 4.3, le profil de l'harmonique amplifiée est bien modélisé par une fonction d'Airy avec un paramètre  $\Phi = 50 \,\mu$ m. Il semblerait donc que –toute autre phénomène mis à part– le faisceau harmonique soit diffracté par un élément circulaire de diamètre  $50 \,\mu$ m. Ces dimensions correspondent bien au diamètre attendu du plasma amplificateur. Tout laisse donc à croire que le faisceau harmonique est diffracté par la zone active du plasma. Afin de s'en assurer, il convient tout de même de vérifier que les dimensions transverses de ce faisceau sont bien supérieures à celles de la zone de gain du plasma dans le plan d'entrée de ce dernier. Nous avons pour cela utilisé une caméra CCD pour la lumière visible mais dont la matrice de pixels a été recouverte d'une fine couche de phosphore, élément luminescent dans le visible lorsqu'éclairé par un rayonnement UV ou XUV. La caméra étant placée dans le plan d'entrée du plasma, la résolution est donnée par la taille des pixels, soit  $3.5 \,\mu$ m. La figure 4.4 donne trois images correspondant à trois tirs réalisés dans les mêmes conditions, ce qui permet de se rendre compte des fluctuations que l'on peut obtenir avec une source harmonique.



FIGURE 4.4 – Distribution d'énergie du faisceau harmonique dans le plan d'entrée du plasma amplificateur

Le faisceau est donc marqué par la présence d'astigmatisme et a un diamètre de l'ordre de  $180 \times 90 \,\mu\text{m}$ , ce qui est effectivement supérieur au diamètre du plasma. Nous reviendrons sur ces hypothèses de diffraction par le plasma un peu plus loin dans ce chapitre.

#### 4.1.2 Mesure de l'énergie des impulsions XUV

La mesure du profil spatial du faisceau peut également nous permettre de calibrer l'énergie des impulsions XUV émises par cette source. Le nombre de photons à 32.8 nm mesurés par la caméra est donné par :

$$N_{\gamma} = \frac{3.65 N_c}{\eta T E_{\gamma}} \tag{4.2}$$

où  $N_c$  est le nombre de coups donnés par la caméra,  $E_{\gamma}$  l'énergie d'un photon (38 eV),  $\eta$  l'efficacité quantique du détecteur à cette énergie (de l'ordre 40%, elle est due au fait que tous les photons ne sont pas absorbés par le détecteur en silicium) et T la transmission du filtre en aluminium (de l'ordre du %). Le facteur 3.65 est l'énergie en eV nécessaire à la création d'une paire électrontrou; un photon à 38 eV crée donc plus de 10 paires électron-trou. À partir de cette formule, on peut estimer une énergie par impulsion entre 200 nJ et 1  $\mu$ J en intégrant le nombre de coups sur tout le profil spatial du faisceau. Ceci correspond à un nombre de photons XUV par impulsion compris entre  $3 \times 10^{10}$  et  $2 \times 10^{11}$ . La brillance spectrale de cette source, qui est un paramètreclé pour les expériences d'interaction laser XUV-matière à haute intensité, est donc de l'ordre de  $10^{23} - 10^{24}$  phot/s/mrad<sup>2</sup>/0.1%BW. Précisons tout de même que cette unité (ou plutôt cette bande spectrale) n'est pas adaptée à cette source. Nous verrons en effet dans le chapitre suivant que la largeur spectrale de l'impulsion laser XUV est 100 fois plus étroite que 0.1%.

# 4.1.3 Stabilité de pointé - influence du pointé du faisceau harmonique sur le profil spatial du faisceau injecté

En utilisant la caméra recouverte de phosphore évoquée plus haut, nous avons pu étudier la stabilité de pointé du faisceau harmonique et son influence sur le profil spatial du faisceau XUV injecté. La figure 4.5 donne le pointé du faisceau sur une soixantaine de tirs.



FIGURE 4.5 – Pointé du faisceau harmonique

Nous avons également représenté le plasma en considérant un rayon de 50  $\mu$ m. Ces fluctuations de pointé ne sont pas négligeables et expliquent les fluctuations obtenues sur le pointé du laser injecté, mais aussi sur son intensité (de l'ordre de 50% tir-à-tir). Nous n'avons en revanche observé aucune variation tir-à-tir notable de l'allure du profil spatial. Nous avons également délibérément

dégradé le couplage spatial entre le faisceau harmonique et l'amplificateur, ce qui n'a eu comme conséquence que de réduire l'énergie des impulsions XUV.

# 4.1.4 Front d'onde des faisceaux XUV harmonique et harmonique amplifiée

Rappelons que le front d'onde est l'ensemble des points du faisceau de phase identique. On peut se reporter à l'annexe A pour plus de détails. En toute rigueur, on ne devrait parler du front d'onde des faisceaux que si ceux-ci sont cohérents transversalement. Nous verrons plus loin que c'est le cas du faisceau harmonique et du faisceau harmonique amplifié, mais pas du faisceau issu de l'ASE (pour lequel nous ne parlerons donc pas de front d'onde). La mesure du front d'onde d'un faisceau a longtemps été cantonnée à l'étude des faisceaux dans la gamme spectrale allant du proche l'infrarouge au VUV. Néanmoins, la capacité d'un faisceau à être focalisé à des tailles proches de la limite de diffraction étant liée entre autres à la qualité de son front d'onde, la maîtrise de ce front d'onde dans le domaine XUV devient indispensable. On peut noter que pour un faisceau à 32.8 nm de diamètre 5 mm focalisé à F/20, la limite de diffraction est de 800 nm. Du fait de la complexité des méthodes mises en œuvre afin de le mesurer dans le domaine XUV, relativement peu de travaux ont été entrepris dans cette gamme spectrale. La transposition il y a quelques années dans le domaine XUV du senseur de type Hartmann fortement répandu dans d'autres gammes spectrales [181] a véritablement permis de caractériser le front d'onde des sources laser XUV [182] [183] ou harmoniques [51] [53], bien que d'autres techniques aient été employées en parallèle [52].

#### Senseur de front d'onde XUV de type Hartmann et montage expérimental

Le senseur que nous avons utilisé a été développé en collaboration avec la société Imagine Optic, et son principe est illustré sur le schéma 4.6 suivant :



FIGURE 4.6 – Principe du senseur de Hartmann

Le faisceau incident est échantillonné par une matrice de trous  $(51 \times 51)$  en un ensemble de sous-faisceaux. Selon le principe d'Huygens-Fresnel, le vecteur d'onde de chaque sous-faisceau est le vecteur d'onde local (normal à la courbure du front d'onde) du faisceau incident au niveau du trou. On peut assimiler un sous-faisceau à un rayon se propageant dans une direction donné par son

vecteur d'onde initial. Notons que les trous sont carrés, et inclinés les uns par rapport aux autres d'un angle de 25° afin de minimiser la contribution des trous adjacents. Chaque rayon est alors détecté par une caméra CCD placé à une distance donnée, ici L = 20 cm, de la grille. Une mesure de la position de la tache issue de chaque rayon par rapport à des positions dites de référence permet de construire une cartographie des pentes locales du front d'onde, donc des dérivées locales de la phase, au niveau de la grille. On peut alors en déduire le front par intégration de proche en proche dans des zones locales de la pupille. Cette méthode est dite de reconstruction zonale. Dans le domaine visible, ce senseur est le plus souvent dit de Shack-Hartmann, la matrice de trous étant alors une matrice de micro-lentilles.

L'onde de référence n'est en réalité pas plane mais parfaitement sphérique. La calibration du senseur a été réalisée en laissant diffracter un faisceau harmonique par un trou de  $10 \,\mu\text{m}$  de diamètre situé à 50 cm de la source [49]. Compte-tenu de cette calibration, la précision des mesures présentées ici est de  $0.04 \,\lambda$  RMS, ou  $\lambda/25$ , à 32.8 nm.

L'élément limitant l'ouverture du senseur est la grille carrée de côté 19.7 mm. Afin d'obtenir un bon échantillonnage du faisceau, il est important d'exploiter au mieux cette ouverture. Nous avons donc placé le senseur en bout de chaîne, soit à une distance de  $z_H = 4$  m de l'amplificateur, à la place de la caméra utilisée pour mesurer le profil en champ lointain du faisceau. L'ouverture numérique est alors de 2.5 mrad. Si l'on se reporte aux empreintes de faisceaux données en début de chapitre, l'ouverture du faisceau injecté par harmonique est de l'ordre du mrad. Le recouvrement de la grille n'est donc pas vraiment optimal, mais la faible divergence du faisceau empêche toute amélioration notable de ce recouvrement en gardant les dimensions du montage expérimental complet dans des valeurs raisonnables. Précisons enfin que les images obtenues sont mono-coup pour le faisceau injecté par harmonique, et résultent la plupart du temps de l'accumulation de quelques tirs (entre 1 et 10) pour le faisceau harmonique.

Ce que nous appellerons front d'onde par la suite est l'écart  $\delta$  entre le front d'onde réel mesuré et le front d'onde de référence, supposé idéal, en chaque point de la surface de phase. La phase de l'onde en un point donné dans le plan du senseur peut s'écrire

$$\varphi(x,y) = \frac{\pi}{\lambda} \left[ \frac{x^2 + y^2}{z_H^2} + 2\delta(x,y) \right]$$
(4.3)

Il s'exprime donc en microns, ou plus communément en fonction de la longueur d'onde  $\lambda = 32.8 \text{ nm}$  du laser XUV. La grandeur caractérisant ses distorsions que nous utiliserons est l'écart normal aberrant quadratique $\Delta \lambda_{RMS}$  (pour *root-mean-square*) exprimé en  $\lambda$ . Les images données par la suite représentent les déformations du front d'onde par rapport au front d'onde de référence, auxquelles on a soustrait les composantes liées à l'angle d'incidence sur la grille (tilt) où à la distance de la source (focus), ainsi que le piston.

Lorsque nous avons mis en place ce senseur, nous avons été contraints de déplacer la caméra utilisée pour enregistrer les empreintes de faisceau. Un miroir (éclipsable) de renvoi XUV a alors été mis en place afin de pouvoir continuer ces mesures. Ce miroir est un miroir multicouche B4C/Mo/Si [184] optimisé autour de 32 nm. Sa réflectivité à 32.8 nm mesurée après fabrication est de l'ordre de 33%. Les défauts présents sur la surface de ce miroir expliquent les craquelures que l'on observe parfois sur les empreintes de faisceaux.

#### Mesure des fronts d'onde des faisceaux XUV

La figure 4.7 représente la mesure du front d'onde du faisceau harmonique par le senseur. Il s'agit d'une accumulation de 5 tirs. L'échelle de couleur de l'image des déformations du front d'onde est en  $\lambda$ , pour  $\lambda = 32.8 nm$ .



FIGURE 4.7 – Mesure du front d'onde du faisceau harmonique

On constate encore une fois que le faisceau est fortement teinté d'astigmatisme (amplitude maximale de 80 nm). Les distorsions mesurées ont un écart normal aberrant de  $\lambda/2.5$  RMS, donc sont plus élevées que celles usuellement mesurées sur un faisceau harmonique non focalisé et généré par une source classique, sans amélioration particulière [51] [53].

La figure 4.8 donne le résultat de la mesure du front d'onde du faisceau injecté par harmonique, dans les conditions habituelles : pression de krypton de 30 mbar, longueur de cellule de 6 mm et délai d'injection de 3 ps.



FIGURE 4.8 – Mesure du front d'onde du faisceau laser injecté par harmonique

Nous avons ici choisi d'appliquer une pupille circulaire pour le calcul de la statistique des distorsions du front d'onde et sa représentation. Cette pupille est centrée sur le faisceau et a ici un rayon de 7 mm, soit une ouverture de 1.75 mrad, et permet de sélectionner l'essentiel du faisceau en éliminant le rayonnement parasite sur les bords. On peut en effet se poser la question de la pertinence de calculer les distorsions en prenant en compte tout le rayonnement arrivant sur le détecteur. Le rayonnement sur les bords du faisceaux, en plus d'être moins cohérent et donc de ne pas vraiment faire partie du front d'onde du faisceau, contient peu d'énergie et aura une contribution négligeable à l'intensité du faisceau dans le cas d'une éventuelle focalisation. La pupille appliquée ici est encore relativement large, compte-tenu du peu d'intensité contenu dans l'anneau entourant le spot central, mais permet d'avoir une vue globale des tendances du front d'onde du faisceau. Le choix d'une pupille circulaire n'est peut être en revanche pas le plus pertinent si on cherche à estimer la capacité de focalisation de ce faisceau. Il faudrait dans ce cas sélectionner uniquement la partie du faisceau contenant une fraction significative de l'énergie totale (seuillage en intensité, revenant la plupart du temps à considérer seulement le spot central). La valeur quadratique de l'écart normal est alors légèrement plus flatteuse, les distorsions les plus importantes étant rarement au centre du faisceau.

Comme nous l'avons déjà constaté, le profil du faisceau est régulier et on devine un anneau peu intense. En revanche, ce que la mesure de l'empreinte du faisceau seule ne suffisait pas à montrer, c'est que les distorsions du front d'onde sont fortement réduites par l'amplification. L'écart normal quadratique de ces distorsion est mesuré dans le cas de l'harmonique amplifiée :

$$\Delta \lambda_{RMS}^{(inject\acute{e})} = \frac{\lambda}{11}$$

Le critère de Maréchal [171] stipule qu'un faisceau est limité par la diffraction si cet écart normal aberrant est inférieur à  $\lambda/14$  (correspondant à un rapport de Strehl de 0.8). Ce faisceau se situe donc relativement proche de la limite de diffraction et devrait donc être aisément focalisable à des tailles de l'ordre du micron voire en deçà.

Finalement, on observe que ce front d'onde comporte deux zones globalement symétriques par rapport au centre du faisceau, l'une en avance de phase et l'autre en retard. Cette allure de front d'onde est assez proche de celui déformé par l'aberration de coma introduite par un système optique. Elle est due au fait que les rayons parallèles provenant d'un objet présentant un champ non nul, donc arrivant avec un certain angle sur le système, ne sont pas focalisés dans le même plan perpendiculaire à l'axe optique. Un rayon arrivant sur le système à une forte ouverture présentera dans le plan focal une avance (rayon du même côté de l'axe que le champ) ou un retard (rayon du côté opposé au champ) de phase par rapport au rayon traversant le système en son centre (et définissant le plan focal). On n'a pas ici à proprement parler de système focalisant le faisceau harmonique. À ce stade, on peut avancer deux hypothèses : soit le front d'onde harmonique présenter déjà cette forme caractéristique du fait de l'imagerie par le miroir torique, mais elle est noyé dans l'astigmatisme qui est l'aberration prédominante, soit elle est introduite par le plasma amplificateur lui-même. Dans ce dernier cas, le plasma possédant *a priori* une symétrie cylindrique, elle serait due à l'asymétrie du faisceau harmonique (répartition d'intensité inhomogène, angle d'attaque, centrage). Afin de caractériser facilement les aberrations présentes sur le faisceau, on peut décomposer le front d'onde sur une base de polynômes de Zernike. On donne en figure 4.9 les coefficients résultant de cette décomposition sur les polynômes représentant les aberrations du 3<sup>e</sup> et 5<sup>e</sup> ordre (astigmatisme, coma, aberration de sphéricité et trefoil, voire l'annexe A).



FIGURE 4.9 – Décomposition du front d'onde sur la base des polynômes de Zernike

Le faisceau harmonique est donc fortement teinté d'astigmatisme de composante principale à  $0^{\circ}$  due à un problème d'angle d'incidence sur le miroir torique. La composante à 45° est due à un désalignement de l'angle de "yaw" (rotation selon z) de ce miroir. Dans le cas du faisceau laser injecté, on voit très clairement que l'aberration dominante est la coma, orientée vers un angle proche de 90° dans ce cas. Les autres aberrations de champ (astigmatisme et trefoil) sont quasinulles, et l'aberration de sphéricité est également très faible. Bien qu'elle prédomine fortement, l'amplitude de la coma reste extrêmement faible (inférieure à 30 nm).

# 4.1.5 Influence de la longueur de la cellule sur le profil spatial et le front d'onde du faisceau

La zone de gain dans le plasma n'ayant pas un diamètre constant avec la longueur du plasma, on peut s'attendre à des changements des caractéristiques spatiales du faisceau amplifié avec la longueur de la cellule utilisée. Nous avons néanmoins pu constater au chapitre 3 que la longueur du plasma amplificateur (optimisée) à une pression de 30 mbar et une intensité dans le vide de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> est de l'ordre de 5 mm quelle que soit la longueur de cellule supérieure à cette valeur. Pour des longueurs de cellule supérieures à 5 mm, on n'aura donc pas de changement de la zone de gain, mais éventuellement plus de plasma absorbant le rayonnement.

Les figures 4.10 et 4.11 en page suivante donnent respectivement les empreintes de faisceaux et les fronts d'onde correspondants mesurés pour différentes longueurs de cellule. Il est à noter que la position du plan focal du laser de pompe dans la cellule n'a pas été changée afin de conserver un plasma amplificateur identique (tronqué pour de courtes longueurs de cellule).



FIGURE 4.10 – Mesure du profil spatial du faisceau injecté pour différentes longueurs de cellule



FIGURE 4.11 – Mesure du front d'onde du faisceau injecté pour différentes longueurs de cellule

On n'observe donc pas de variations particulières avec la longueur de le cellule de gaz : pour une longueur de plasma supérieure à 1 mm, la divergence et la répartition d'intensité du faisceau restent constantes, ainsi que l'allure du front d'onde. Pour un plasma de 1 mm de long, il est difficile de conclure sur le filtrage du faisceau en observant simplement son empreinte. La divergence semble plus faible que pour des longueurs de plasma plus importantes, mais semblable à celle du faisceau harmonique seul. En revanche, le front d'onde est sensiblement différent : celui du faisceau harmonique est marqué d'astigmatisme, alors que celui de l'harmonique amplifiée par un plasma de 1 mm de long présente l'allure caractéristique obtenue après amplification. Les distorsions sont également comparables, avec un écart normal de l'ordre de  $\lambda/5$ . Il semble donc qu'un filtrage commence à s'effectuer même pour une si faible longueur de plasma ; ceci est dû à la forte valeur du gain de l'amplificateur. On peut également examiner l'évolution des distorsions du front d'onde avec la longueur de cellule, comme il est montré en figure 4.12.



FIGURE 4.12 – Distorsions de front d'onde en fonction de la longueur de cellule

Les points correspondants à une longueur nulle sont mesurés sur le front d'onde du faisceau harmonique non amplifié. Il est probable que l'écart normal aberrant soit plus élevé que celui mesuré ici, les images correspondantes ayant été données par un seul tir et manquent donc de signal. Il n'y a pas ici de tendance à proprement parler, mais on peut remarquer que le front d'onde semble meilleur pour des longueurs de cellule supérieures à 6 mm. La traversée de plasma absorbant a peut-être également pour effet d'aplanir légèrement le front d'onde, mais rien de concluant ici. Afin de pouvoir développer un modèle simple de filtrage du faisceau harmonique par le gain de l'amplificateur, nous considèrerons que la longueur du plasma n'a pas d'influence notable.

## 4.1.6 Effet de la densité de l'amplificateur

La densité du plasma a un effet fort sur la propagation du laser de pompe et donc sur la forme de la zone de gain du plasma. On peut donc raisonnablement s'attendre à ce que le profil spatial du faisceau, et éventuellement son front d'onde, voire sa cohérence en dépendent. Nous avons mesuré le profil du faisceau en champ lointain pour des pressions de krypton allant de 10 à 50 mbar. Ces empreintes de faisceaux sont présentées en figure 4.13 page suivante, ainsi que le profil mesuré pour une pression nulle. Ce dernier correspond donc au profil du faisceau harmonique non amplifié par le plasma.



FIGURE 4.13 – Mesure du profil en champ lointain du faisceau injecté pour différentes pressions de krypton

On peut donc faire plusieurs remarques sur cette série de mesures. La première concerne l'amplification de l'harmonique. Comme il a déjà été évoqué dans ce chapitre, le faisceau harmonique n'est pas nécessairement parfaitement colinéaire avec le plasma, ce qui permet d'observer un léger angle entre l'axe de propagation du faisceau harmonique et de celui de l'harmonique amplifiée. Ceci va nous permettre d'observer les prémices de l'amplification pour de faibles pression. On constate en effet qu'il n'y a pas d'amplification pour une pression de gaz inférieure à 11 mbar, et que celle-ci apparait très nettement pour une pression de 12 mbar. À cette pression, l'intensité de la partie amplifiée de l'harmonique est comparable à celle de la partie non amplifiée. À une pression de 14 mbar, il ne subsiste plus aucune trace de l'harmonique. L'amplification est donc un phénomène qui apparaît sur une plage relativement étroite de densités, on observe des variations importantes de profil d'intensité pour des variations de pression de l'ordre de quelques pourcents.

On observe également que lorsque l'amplification est totale, la divergence du faisceau augmente globalement avec la pression, et l'anneau d'Airy suit la même tendance diminuant en intensité. La figure 4.14 donne le profil radial intégré pour quelques pressions de krypton, ainsi que l'évolution globale de la divergence du faisceau et du facteur d'amplification avec la pression.



FIGURE 4.14 – Évolution du profil spatial avec la pression

On a donc la confirmation que la divergence du faisceau (définie au 1<sup>er</sup> zéro) évolue avec la pression. La divergence de l'harmonique est fortement réduite dès l'obtention d'une amplification, et augmente ensuite régulièrement avec la pression de krypton. On peut essayer de relier cette évolution à celle du facteur d'amplification de l'harmonique. Ce dernier évolue de manière attendue avec la pression, comme nous avons pu le voir au chapitre 3. Il augmente jusqu'à un maximum puisque l'intensité de saturation augmente avec la densité de l'amplificateur, et diminue ensuite du fait d'une longueur d'amplificateur plus courte avec une éventuelle réabsorption par le gaz neutre et les ions  $Kr^+$  et  $Kr^{2+}$ . On constate alors que la plage de pression sur laquelle la divergence diminue du fait de l'amplification correspond à peu près à celle sur laquelle le facteur d'amplification augmente, ce qui n'est pas surprenant, mais également que la diminution de l'amplification s'effectue en parallèle avec l'augmentation de la divergence. On serait tenter de croire que la divergence du faisceau amplifiée est directement liée à la valeur de l'amplification de l'harmonique, mais ceci ne tiendrait pas compte des variations de la forme du plasma avec la pression de gaz dans la cellule.

Afin de lier cet effet de filtrage au plasma, nous présentons en figure 4.15 des simulations réalisées à l'aide du code de propagation donnant la carte de gain du plasma. L'intensité du laser de pompe est de  $4 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> et la pression variable.



FIGURE 4.15 – Cartes de gain du plasma pour différentes pression

On constate donc que le principal effet de l'augmentation de la pression de krypton est le rétrécissement longitudinal de la zone de gain. Ce n'est *a priori* pas la cause des variations observées sur le profil spatial du faisceau, qui sont donc essentiellement l'augmentation de la divergence du faisceau et l'atténuation de l'intensité de l'anneau d'Airy. L'explication est plus vraisemblablement à chercher dans les variations transverses de la zone de gain. Les effets de réfraction du faisceau, croissants avec la pression de gaz, font que cette zone présente une dimension transverse variable le long du plasma; si on considère le gain intégré longitudinalement, ce dernier possède donc des bords moins francs. Ceci permet d'expliquer l'atténuation de l'anneau d'Airy puisqu'on s'écarte du modèle de filtrage par une ouverture circulaire parfaite. On peut également remarquer que la dimension transverse moyenne de la zone de gain diminue lorsque la pression augmente (30  $\mu$ m FWHM pour une pression de 50 mbar contre 40  $\mu$ m pour 20 mbar). En gardant l'idée d'un filtrage par le gain, ceci explique l'augmentation de divergence observée.



La figure 4.16 présente les fronts d'onde mesurés pour différentes pression de krypton.

FIGURE 4.16 – Mesure du front d'onde du faisceau en fonction de la pression de krypton

Sur l'allure du front d'onde, on n'observe aucune évolution entre 10 et 50 mbar de krypton. Le front d'onde présente toujours cette forme caractéristique de la coma, mais seule son amplitude varie avec la pression. En effet, on peut tracer l'évolution des distorsions du front d'onde avec la pression (Fig. 4.17) et se rendre compte que ces distorsions, donc principalement l'amplitude du défaut de phase assimilable à de la coma, ont tendance à augmenter avec la pression. Pour être plus précis, jusqu'à une pression de 20 mbar, l'écart normal aberrant augmente avec la pression, puis se stabilise ensuite à un niveau légèrement meilleur que celui du faisceau harmonique.



FIGURE 4.17 – Distorsions de front d'onde en fonction de la pression de krypton

Il y a donc une amélioration franche du front d'onde harmonique *via* l'amplification pour des basses densités, mais qui a tendance à s'atténuer lorsque la densité augmente. On n'observe pas à proprement parler de dégradation de la qualité du front d'onde à partir d'une pression de 20 mbar. On peut considérer que le filtrage de l'harmonique par le plasma est plus important à basse pression, bien qu'on ne puisse pas relier aisément ceci aux cartes de gain du plasma présentées plus haut.

# 4.1.7 Cohérence spatiale des différentes sources

Pour plus de détails sur la notion de cohérence spatiale et le principe de la mesure par un dispositif à fentes d'Young, on peut se reporter à l'annexe B. La figure 4.18 donne le schéma de principe de la mesure. Nous disposons d'un système de 10 paires de fentes d'espacement variable et de largeur de  $22 \,\mu$ m. Ce système est placé à une distance D=1.5 m de la source et on observe les franges sur une caméra CCD possédant une matrice de  $2048 \times 2048$  pixels de  $13 \,\mu$ m de côté située à  $L = 2.5 \,\mathrm{m}$  du plan des fentes. Un exemple d'image enregistrée sur la caméra est donné en Fig. 4.18(b) dans le cas du faisceau injecté par harmonique. Une coupe transverse des franges est reportée sur cette image. On remarque que les franges sont effectivement enveloppées par une fonction sinus cardinal dont la largeur ( $\simeq 4 \,\mathrm{mm}$ ) est donnée par la largeur des fentes à la distance L. Afin d'obtenir un bon rapport signal-à-bruit, chaque image résulte de l'accumulation de 10 tirs.



FIGURE 4.18 – Mesure de la cohérence spatiale par un système de fentes d'Young

#### 4. Caractérisation spatiale du laser XUV en régime injecté

La figure 4.19 présente la mesure de la cohérence spatiale des différentes sources. Dans le cas du faisceau harmonique et harmonique amplifiée, nous avons modélisé l'évolution du contraste des franges avec l'espacement entre les fentes par une fonction  $2J_1^2(X)/X^2$  avec  $X = 2\pi\Delta x R_0/\lambda D$ . Cette fonction est donnée par le théorème de Zernike-van Cittert appliqué au cas d'une source circulaire de rayon  $R_0$  et de luminance uniforme. Cette fonction ne convenait pas au cas de l'ASE, pour lequel le fit est composé de deux fonctions exponentielles décroissantes.



FIGURE 4.19 – Mesure la cohérence spatiale des différentes sources

La longueur de cohérence de la source est la distance caractéristique sur laquelle les ondes émises par la source restent en phase. Elle est mesurée ici dans le plan des fentes, soit à une distance de 1.5 m de la source. Nous choisirons comme définition de cette longueur de cohérence la longueur correspondant à une chute de contraste de 1/e. Le tableau 4.1 résume la longueur de cohérence de chaque source et le pourcentage correspondant du faisceau cohérent. Les différents faisceaux ont en effet des sections de tailles différentes au niveau des fentes.

	Longueur de cohérence	% FWHM cohérent
ASE	$150\pm20\mu m$	quelques %
Harmoniques	$400\pm20\mu m$	50%
Laser injecté	$420\pm30\mu\mathrm{m}$	60%

TABLE 4.1 – Longueurs de cohérences des différentes sources

La longueur de cohérence de la source ASE au niveau des fentes est donc très faible comparativement à la taille du faisceau dans ce plan. On voit là le signe que l'ASE est effectivement une source incohérente. On devrait par conséquent pouvoir reconstruire l'allure de la répartition d'intensité de la source, mais le manque de points pour les grands espacements de fentes empêche une reconstruction propre. Le faisceau harmonique présente quant à lui une bonne cohérence, de l'ordre de 50% du faisceau. Il intéressant de constater que, bien que la longueur de cohérence de la source laser XUV injectée soit quasiment égale à celle de la source harmonique, le faisceau est plus petit ce qui fait qu'une plus grande proportion de ce faisceau est cohérente. On peut voir cette bonne cohérence du faisceau laser XUV de deux manières : soit comme une amélioration drastique de la cohérence de la source ASE, soit comme une très légère amélioration de la cohérence de la source harmonique. Il eut pu être intéressant d'effectuer cette mesure en utilisant un faisceau harmonique très fortement cohérent afin d'observer une éventuelle dégradation de cette cohérence par l'amplification. Cet effet n'est néanmoins pas attendu : les résultats de [179] montrent que dans le cas d'un faisceau harmonique peu cohérent, l'amplification améliore grandement cette cohérence, et nos résultats montrent que pour un faisceau harmonique de bonne cohérence, cette dernière n'est pas dégradée par le plasma.

Nous avons également pu mesurer la cohérence du faisceau injecté par harmonique en fonction de la densité de l'amplificateur. On donne le résultat de ces mesures en figure 4.20.



FIGURE 4.20 – Mesure de la cohérence spatiale pour différentes pressions de krypton

Le point correspondant à un espacement des fentes nul, c'est-à-dire à des interférences formées par le même champ, devrait normalement présenter un contraste de 1. Nous considérons que le faible contraste mesuré résulte du mauvais rapport signal-à-bruit sur la caméra, particulièrement gênant pour des pressions de 30 et 40 mbar. Ce n'est néanmoins pas la valeur absolue du contraste qui nous intéresse ici, mais ses variations. Nous considérons que toutes les mesures du contraste sont impactées de la même manière, et donc que les variations sont correctes. Nous avons résumé dans le tableau 4.2 les longueurs de cohérence mesurées pour chaque pression ainsi que le pourcentage de faisceau correspondant.

Pression	Longueur de cohérence	% FWHM cohérent
15 mbar	$500\pm40\mu\mathrm{m}$	70%
30 mbar	$420\pm30\mu m$	60%
40 mbar	$420\pm30\mu m$	55%
50 mbar	$490\pm30\mu m$	50%

TABLE 4.2 – Longueurs de cohérences des différentes sources

On remarque donc que la longueur de cohérence n'évolue pas significativement avec la pression de krypton. En revanche, du fait de la taille croissante du faisceau avec la pression, le pourcentage de faisceau cohérent diminue. Ceci semble nous indiquer que le filtrage de l'harmonique et l'amélioration de ses propriétés de cohérence diminuent lorsque la densité de l'amplificateur augmente, et rejoint donc les observations faites dans le cadre de l'étude du front d'onde en fonction de la densité de l'amplificateur.

# 4.1.8 Influence du gain de l'amplificateur sur le profil spatial et le front d'onde du laser injecté : délai d'injection

On peut supposer que le profil spatial du faisceau injecté par harmonique et son front d'onde dépendent de la géométrie du plasma. Il semble *a priori* beaucoup moins sûr qu'ils dépendent également de l'état "microscopique" du plasma lié à son évolution temporelle. Nous avons donc mesuré le front d'onde du faisceau harmonique amplifiée en fonction de l'instant d'injection de l'harmonique dans l'amplificateur. À ces échelles de temps (ps), la seule grandeur caractéristique (du point de vue amplificateur laser) qui va évoluer est le gain. On rappelle qu'une mesure du gain de l'amplificateur a été effectué et présentée au chapitre 3. La figure 4.21 présente le profil spatial du faisceau injecté à différents instants, mesuré avec le senseur de front d'onde, et la figure 4.22 son front d'onde.

Il est intéressant de noter qu'on observe une très faible amplification pour un délai proche de 0. Cela se traduit par un profil spatial dans lequel on distingue encore le profil du faisceau harmonique à une intensité non négligeable. On peut également se rendre compte du fait que le faisceau harmonique et le faisceau amplifié n'ont pas exactement la même direction. Ceci est dû au fait que le faisceau harmonique n'est pas exactement colinéaire au plasma qui va imposer la direction du faisceau amplifié. Le couplage n'est donc pas optimal, mais les conséquences ici sont relativement négligeables. Le profil spatial mesuré à un délai d'injection de 10 ps présente également une tendance aux mêmes caractéristiques que pour un délai de 0.3 ps. La très faible valeur du gain 10 ps après la création du plasma en est la raison. En dehors de cela, le profil spatial du faisceau est remarquablement constant.



FIGURE 4.21 – Mesure du profil spatial du faisceau injecté pour différents délais d'injection



FIGURE 4.22 – Mesure du front d'onde du faisceau injecté pour différents délais d'injection

Le front d'onde du faisceau suit la même tendance que son profil spatial : front d'ondes quasiidentiques lorsque le gain est élevé (soit pour un délai d'injection compris entre 1 et 6 ps), et légèrement différents de ceux résultant de l'amplification par un faible gain. On peut observer ce que cela donne en termes de décomposition en aberration, dont les résultats sont donnés en figure 4.23 pour quatre délais d'injection différents.



FIGURE 4.23 – Décomposition du front d'onde en polynômes de Zernike pour différents délais d'injection de l'harmonique

On vérifie que la coma est effectivement l'aberration dominante à fort gain (délai entre 1 et 6 ps). Lorsque le gain est faible (délai de 0.3 et 10 ps), cette aberration, bien que toujours présente, perd sa prédominance au profit d'une aberration de type sphéricité. Celle-ci n'est pas présente sur le front d'onde harmonique et est donc introduite par l'interaction entre le faible gain et le faisceau injecté. On donne enfin en figure 4.24 l'évolution de l'écart normal quadratique du front d'onde.



FIGURE 4.24 – Distorsions de front d'onde en fonction du délai d'injection

Là encore, les variations de l'écart normal aberrant restent dans le domaine des fluctuations. On peut noter que ces valeurs ne témoignent pas d'une grande qualité de front d'onde, comme il a été montré plus haut. La cause est probablement à chercher dans la qualité du front d'onde du faisceau harmonique, dans la fourchette basse ce jour-là  $(\frac{\lambda}{2})$ .

# 4.1.9 Influence de l'intensité de pompe sur la distribution d'énergie du laser injecté par harmonique

Nous nous sommes aperçu pendant la campagne d'expérience que le profil spatial du faisceau injecté pouvait varier significativement d'un jour sur l'autre, tous paramètres *a priori* identiques. Le profil obtenu pouvait être comme celui présenté en début de chapitre (Fig. 4.2(c)), c'est-à-dire composé d'un spot central large de type gaussien, avec la présence plus ou moins marquée d'un très faible anneau de type Airy, et parfois d'un spot central similaire mais plus étroit entouré de plusieurs anneaux bien définis (*cf* Fig. 4.25(a)). Ce profil correspond plus à une fonction de Bessel d'ordre 0  $J_0$ .

À l'aide d'un système composé d'un cube polarisant et d'une lame demi-onde située en amont du compresseur du laser infrarouge (faisceau pompe), nous avons fait varier l'intensité utilisée pour générer le plasma amplificateur. La figure 4.25 en page suivante donne le résultat de la mesure du profil du faisceau laser injecté pour une intensité de pompe dans le vide variant entre  $2.5 \times 10^{17} \,\mathrm{W/cm^2}$  et  $10^{18} \,\mathrm{W/cm^2}$ . Pour une intensité plus faible que  $2.5 \times 10^{17} \,\mathrm{W/cm^2}$ , nous n'avons pas observé d'amplification de l'harmonique.



FIGURE 4.25 – Mesure du profil en champ lointain du faisceau injecté pour différentes intensités de pompe

Il est clair que l'intensité de pompe a une forte influence sur le profil du faisceau. Pour une intensité maximale, estimée à  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>, ce profil présente plusieurs anneaux fortement marqués et un spot central étroit. lorsque l'intensité de pompe diminue, ce spot central a tendance à s'élargir alors que les anneaux vont s'écarter du centre et s'atténuer. Sans chercher pour l'instant à comprendre les raisons physiques expliquant ceci, on peut faire une analogie avec le passage par un élément diffractant comme nous l'avons fait un peu plus haut. Si on garde l'hypothèse que cet élément est une ouverture circulaire située à la source plasma, les variations de profil observées avec l'intensité font penser à celles que l'on pourrait obtenir dans la diffraction de Fresnel lorsque le plan d'observation s'éloigne de l'élément diffractant (du moins sur une certaine zone). Nous ne sommes pas vraiment dans les conditions de la diffraction de Fresnel, donc on s'imagine plutôt que la différence provient de l'élément diffractant lui-même. Pour une intensité donnée, par exemple pour l'intensité maximale  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>, on constate que le profil est relativement bien décrit comme résultant d'une ouverture annulaire (cf Fig. 4.26). Dans ce cas là, l'intensité mesurée résulte de l'"interférence" des fonctions données par la relation 4.1, et le résultat est une fonction présentant des anneaux plus marqués, de type  $J_0^2$ .



FIGURE 4.26 – Profil radial intégré du faisceau injecté pour une intensité de pompe maximale

Pour l'intensité de pompe maximale, le profil est donc assimilable à celui diffracté par une ouverture circulaire de diamètre extérieur de 50  $\mu$ m et de diamètre intérieur 25  $\mu$ m. Ces dimensions changent –en particulier le diamètre intérieur qui diminue– lorsqu'on modélise les profils obtenus pour de faibles intensités de pompe. Nous ne donnerons pas plus de détails pour l'instant, cette hypothèse sera également discutée plus loin.

Nous avons également mesuré le front d'onde du faisceau pour quelques intensités de pompe pertinentes. La figure 4.27 montre le résultat de ces mesures.



FIGURE 4.27 – Mesure du front d'onde du faisceau injecté pour différentes intensités de pompe

On voit confirmé le fait que l'intensité permet de faire varier le profil du faisceau mais on n'observe aucun effet sur le front d'onde. L'allure du front d'onde reste remarquablement constante, toujours composée de deux zones de phase relative opposées. En termes de coefficients de Zernike, l'aberration dominante reste la coma orientée à un angle proche de 90° n'évoluant pas significativement. Nous avons également tracé l'évolution de la qualité du front d'onde avec l'intensité de pompe, donnée en figure 4.28, et constaté l'absence d'une tendance particulière.



FIGURE 4.28 – Distorsions de front d'onde en fonction de l'intensité de pompe

#### 4.1.10 Particularités du régime de haute intensité

Nous venons de voir que pour une forte intensité du laser de pompe, le profil spatial du faisceau XUV obtenu par amplification d'harmonique était sensiblement différent de celui produit pour une intensité de pompe plus modérée. On peut se demander si la différence entre ces deux régimes s'arrête ici, où si certains paramètres vont influer différemment sur les caractéristiques du faisceau XUV injecté.

Nous avons pu mesurer ces caractéristiques en faisant varier le gain de l'amplificateur (par le moment d'injection de l'harmonique dans celui-ci) et n'avons noté aucune différence particulière. En revanche, les effets observés en changeant la densité de l'amplificateur sont inattendus. On donne par exemple en figure 4.29 les empreintes de faisceaux obtenus pour des pressions de krypton entre 10 et 50 mbar en régime de forte intensité de pompe.

Il est assez surprenant de constater que, dans ce cas, la pression de gaz n'a quasiment pas d'effet sur le profil spatial du faisceau. Il est toujours composé d'un spot central étroit et de plusieurs anneaux dont la position et l'intensité ne dépend pas de la pression. On note encore une fois le début de l'amplification pour une pression de 10 mbar. Même à cette faible amplification, la divergence du spot central est la même que pour des amplifications beaucoup plus fortes comme pour une pression de 30 mbar. Afin d'étudier plus finement ces profils spatiaux, nous avons reporté sur la figure 4.30 les profils radiaux intégrés pour une pression de 15, 20, 30 et 40 mbar.



FIGURE 4.29 – Mesure du profil en champ lointain du faisceau injecté pour différentes pressions de krypton



FIGURE 4.30 – Profil radial intégré pour différentes pressions de krypton

On confirme donc qu'il n'y a presque aucune évolution de ce profil avec la pression. Il existe néanmoins une très faible tendance, qui est l'inverse que celle dans le cas de faisceaux présentant un profil d'Airy, à savoir que la divergence du spot central et le diamètre de l'anneau semblent diminuer lorsqu'on augmente la pression. Compte-tenu des faibles variations que cela représente, cette tendance est à prendre avec précautions. Nous n'avons malheureusement pas pu mesurer la cohérence spatiale de ce type de faisceau, mais la connaissance de son front d'onde pourra nous fournir plus d'informations. On donne donc en figure 4.31 les fronts d'onde du faisceau amplifié pour différentes pression de gaz. Il est similaire à celui obtenu en régime de faible intensité de pompe.



FIGURE 4.31 – Mesure du front d'onde du faisceau en fonction de la pression de krypton

Encore une fois, le front d'onde est relativement insensible à la pression de gaz utilisée pour générer l'amplificateur, du moins en ce qui concerne son allure. En revanche, l'amplitude de ses défauts varie clairement, comme le montre la figure 4.32 : on a ici la tendance inverse de celle obtenue dans le cas d'un faisceau présentant un profil d'Airy. Les distorsions du front d'onde sont plus importantes lorsque la densité de l'amplificateur est faible, et diminuent de manière monotone lorsque cette densité augmente. On arrive par ailleurs à des fronts d'onde de qualité exceptionnelle pour des pressions élevées comme 50 mbar ( $\Delta \lambda_{RMS} = \lambda/13$ ). Il semblerait donc dans ce cas que le filtrage est nettement plus important pour de fortes pressions.



FIGURE 4.32 – Distorsions de front d'onde en fonction de la pression de krypton

On peut essayer de lier l'absence de variation du profil spatial à l'allure de la zone de gain du plasma. On donne ici (Fig. 4.33) les cartes de gain calculées pour différentes pressions de krypton. Les conditions sont identiques à celles du paragraphe 4.1.6, à l'exception de l'intensité de pompe qui est cette fois de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. On donne également les profils de gain intégrés sur la longueur de la cellule.



FIGURE 4.33 – Cartes de gain du plasma pour différentes pression à forte intensité de pompe

On constate tout d'abord que l'ionisation du plasma est différente de celle obtenue dans le cas d'une intensité de pompe plus faible de  $4 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. On observe une zone proche de l'axe dans laquelle le gain est nul, zone de krypton ionisé à des états de charge supérieurs à 8<sup>+</sup>. Cela se répercute dans le profil du gain intégré qui présente un creux en son centre. C'est probablement ce creux qui est à l'origine de la présence de plusieurs anneaux dans la répartition d'intensité en champ lointain, mais nous y reviendrons dans la section suivante. Ceci mis à part, on ne peut pas vraiment conclure quant à l'absence de variation de profil spatial observée avec la pression de krypton dans ce cas-là. Les bords de la zone de gain semblent relativement également réguliers avec la pression, ce qui va dans le sens d'un filtrage similaire, mais la taille moyenne de cette zone en revanche est variable.



FIGURE 4.34 – Profils du gain intégré sur 1.5 mm pour différentes intensités de pompe

Une explication que l'on peut avancer est que le filtrage s'effectue essentiellement sur les premiers mm (jusqu'à 1.5 mm environ) du fait que la saturation est ensuite atteinte et que l'amplification –donc le filtrage– moins prépondérante. Alors on se rend compte que le profil intégré du gain sur une longueur de 1.5 mm ne dépend quasiment pas de la pression. Il présente une extension transverse constante, la seule différence étant l'importance du creux qui diminue avec la pression, comme le montre la figure 4.34 donnant donc les profils de gain intégrés sur 1.5 mm dans le cas de la génération du plasma par deux intensités de pompe différentes :  $10^{18}$  et  $4 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. Il est également intéressant de constater que ce profil varie plus avec la pression dans le cas d'une intensité de pompe de  $4 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, confirmant les variations décrites au paragraphe précédent dans le cas d'un faisceau d'Airy.

# 4.2 Modélisation de l'amplification du faisceau harmonique par le plasma

Nous allons ici chercher à modéliser le comportement du gain de l'amplificateur en tant que filtre spatial pour le faisceau harmonique, et à comprendre le lien entre le profil du laser XUV en champ lointain et la forme du plasma amplificateur. Nous avons en effet vu que l'intensité de pompe influait fortement sur ce profil. Le phénomène de réfraction du laser de pompe étant très fort, et les intensités utilisées souvent en excès de celles nécessaires, en s'attend à ce que la forme du plasma (bords de la zone de gain, surionisation,...) dépende de l'intensité de pompe. Nous commencerons donc par donner un modèle simple qui nous permettra de vérifier que c'est bien le filtrage du faisceau harmonique par le gain de l'amplificateur qui explique les différences entre les différents faisceaux considérés, puis nous considèrerons une modélisation complète de la source obtenue par amplification d'harmonique afin notamment de déterminer l'origine des profils spatiaux observés en régime dit de haute intensité du laser de pompe.

# 4.2.1 Un modèle simple de filtrage par le gain de l'amplificateur

Le filtrage spatial d'un faisceau par le gain d'un amplificateur laser est un phénomène relativement bien connu dans le domaine visible/infrarouge. Un modèle simple a été développé afin de comprendre l'effet du plasma amplificateur sur le faisceau harmonique [183]. Dans ce modèle, l'amplificateur est modélisé par une simple ouverture circulaire située dans le plan de sortie du plasma. Cela revient à considérer un plasma plan aux bords francs et de gain constant. Nous verrons plus loin les limites de ce modèle.

Ce modèle se base sur l'utilisation des données mesurées par le senseur de front d'onde. Ces données sont, en un plan donné, la répartition d'intensité du champ XUV (harmonique ou harmonique amplifiée), et son front d'onde donc sa phase. C'est tout ce qui est nécessaire à la connaissance complète du champ dans le plan du senseur. Et puisque ce champ est connu dans un plan donné, il est possible de le connaître dans n'importe-quel autre plan, en utilisant l'intégrale de Fresnel par exemple. Il est entendu ici que le plan nous intéressant est le plan de sortie du plasma : dans le cas du champ harmonique, c'est dans ce plan que nous allons appliquer un filtre au faisceau. Il ne restera ensuite plus qu'à recalculer le champ résultant dans le plan du senseur et à le comparer



avec le champ harmonique amplifiée mesuré. On donne le principe en figure 4.35.

FIGURE 4.35 – Modèle de filtrage du faisceau harmonique par une ouverture circulaire

Une méthode simple et efficace de propagation numérique d'un champ électrique est la projection sur un ensemble de modes bien choisis. Les modes choisis ici sont les modes gaussiens d'ordres supérieurs, ou modes de Hermite-Gauss (voire l'annexe C). En pratique, l'amplitude complexe du champ sur le senseur situé à une distance  $z_H$  de la source peut s'écrire :

$$A(x, y, z_H) = \sqrt{I(x, y, z_H)} e^{\frac{i\pi}{\lambda} \left(\frac{x^2 + y^2}{z_H^2} + 2\delta(x, y)\right)}$$
(4.4)

où  $I(x, y, z_H)$  est l'intensité mesurée sur le senseur et  $\delta(x, y)$  représente l'écart du front d'onde à une onde sans aberration. En utilisant une méthode numérique de décomposition en valeurs singulières, cette amplitude est projetée sur la base des modes de Hermite-Gauss sous la forme :

$$A(x, y, z_H) = \sum_{n,m} \alpha_{nm} \, u_n(x, z_H) \, u_m(y, z_H)$$
(4.5)

 $u_l$  représentant donc la projection orthogonale d'un mode de Hermite-Gauss. Si l'on connaît la valeur du waist du faisceau (numériquement, on a seulement besoin d'une bonne estimation de ce waist) et la valeur des coefficients  $\alpha_{lm}$ , on peut reconstruire l'amplitude complexe du champ à n'importe quel distance z sur l'axe de propagation. Notons finalement que dans le cas de la rétropropagation du faisceau harmonique, on suppose le champ monochromatique à une longueur d'onde de 32.8 nm.

Afin de modéliser le filtrage du faisceau harmonique par le gain de l'amplificateur, nous supposons donc que ce dernier est un amplificateur de gain constant, de forme circulaire et de longueur nulle. En pratique, on applique un masque circulaire au champ harmonique dans le plan de sortie du plasma, et on rétropropage le champ obtenu jusque dans le plan du senseur afin de le comparer aux résultats expérimentaux. Il a été montré montré dans [183] que ce modèle permet de rendre compte assez fidèlement de la réduction des distorsions du front d'onde de l'harmonique. Nous allons ici nous intéresser plus particulièrement au profil spatial en champ lointain du faisceau. La figure 4.36 donne les profils en champ lointain résultant du filtrage du faisceau harmonique par un amplificateur modélisé par une ouverture de diamètre variable.



FIGURE 4.36 – Filtrage du faisceau harmonique par une ouverture circulaire



FIGURE 4.37 – Filtrage par une ouverture circulaire : divergence du faisceau obtenu

Ce modèle très simple permet de bien rendre compte du profil d'Airy obtenu expérimentalement dans le cas de la génération du plasma par une faible intensité de pompe. En comparant la divergence du faisceau donné par ce modèle (Fig. 4.37) à celle des profils expérimentaux, on peut en déduire que le plasma généré par une impulsion de pompe focalisée à  $2.5 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> dans 30 mbar de krypton possède un diamètre d'environ 50  $\mu$ m. Il ne permet néanmoins pas d'expliquer la présence d'anneaux intenses autour du spot central. On atteint ici les limites de ce modèle, à savoir que l'amplificateur est en réalité loin de présenter un gain homogène. La carte de gain présentée en fin de chapitre 2 montre clairement que le gain est parfois nul au centre du plasma. ceci sera plus amplement développé dans la dernière section de ce chapitre. Afin de tenir compte de ceci en gardant toute la simplicité de ce modèle, on va supposer que le plasma n'est pas une ouverture circulaire, donc de gain constant partout, mais simplement une ouverture annulaire (cf Fig. 4.38), avec un gain nul proche de l'axe optique.



FIGURE 4.38 – Filtrage du faisceau harmonique par une ouverture circulaire ou annulaire

La figure 4.39 donne le résultat du filtrage par un amplificateur annulaire de diamètre extérieur égal à  $50 \,\mu$ m, et de diamètre intérieur variable. Comme on peut le constater, la prise en compte d'un masque obscur au centre de l'ouverture a pour effet l'apparition d'anneaux plus intenses autour du spot central.



FIGURE 4.39 – Filtrage du faisceau harmonique par une ouverture annulaire de diamètre extérieur  $\mathcal{O}^{(\text{ext})}=50\,\mu\text{m}$  et de diamètre intérieur variable

En se basant une fois encore sur les profils en champ lointain présentés plus haut, on peut supposer que le plasma généré par une intensité de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> se comporte comme un filtre annulaire de diamètres 50 et 30  $\mu$ m. Lorsque l'intensité de pompe diminue, le diamètre intérieur de cet anneau, donc la dimension de la zone de gain nul, diminue également. Nous verrons plus loin à quel phénomène correspond l'existence de cette zone.

On peut se demander si un modèle aussi simple permet de retrouver l'allure du front d'onde du faisceau harmonique amplifié. On donne donc en figure 4.40 le front d'onde du faisceau harmonique filtré par une ouverture circulaire de diamètre  $50 \,\mu\text{m}$  et par une ouverture annulaire de même diamètre présentant une obturation de diamètre  $30 \,\mu\text{m}$  en son centre, valeurs typiques donnant des profils mesurés précédemment.



FIGURE 4.40 – Front d'onde du faisceau harmonique filtré par une ouverture circulaire ou annulaire

L'écart normal aberrant calculé à partir de ces fronts d'onde est de  $\lambda/7$ , ce qui reflète plutôt bien la qualité des fronts d'onde expérimentaux. On a bien la confirmation que la réduction des distorsions de front d'onde est la conséquence d'un filtrage du faisceau harmonique par le gain de l'amplificateur. En revanche, on atteint les limites de ce modèle lorsqu'on observe l'allure du front d'onde calculé. On ne retrouve pas ici la présence d'une aberration de coma typique des fronts d'onde expérimentaux.

## 4.2.2 Présentation d'un modèle numérique semi-3D

Le code que nous avons utilisé pour cette modélisation est tout d'abord basé sur le code de propagation OFI-PROP que nous avons décrit au chapitre 2. Rappelons ici que ce code décrit la propagation de l'impulsion de pompe dans le krypton et la création du plasma. C'est un code 2D dans lequel on suppose pour le champ incident, et donc pour le plasma, une symétrie cylindrique (r, z) et qui permet de déterminer l'intensité maximale du champ en chaque point. La principale approximation faite est l'évolution temporelle des propriétés du plasma en un point dépend uniquement de l'intensité maximale du champ utilisé pour le générer en ce point. Il n'est ainsi plus nécessaire de calculer en chaque point du plasma la cinétique atomique qui est facilement paramétrisable pour chaque pression et intensité maximale du champ. Cette approximation est motivée par le fait que d'une part, la durée de l'impulsion infrarouge (35 fs), et celle du phénomène d'ionisation par le champ (fs) sont très inférieures à tous les temps caractéristiques d'évolution du plasma (ps) dans la plage de pressions considérée (5-100 mbar), et d'autre part que le transport des particules et photons est négligé dans la résolution des équation collisionnelles-radiatives, ce qui fait qu'on peut les résoudre localement.

Le deuxième code sur lequel cette modélisation s'appuie est le code COFIXE\_MB qui calcule l'amplification d'un champ électrique résonant dans un milieu présentant une inversion de population dans le formalisme de Maxwell-Bloch à deux niveaux. Ce formalisme sera détaillé au chapitre suivant. Très succinctement, il s'agit de résoudre trois équations couplées faisant intervenir l'inversion de population entre les deux niveaux de la transition lasante, la polarisation du milieu, et le champ électrique résonant. Il permet de calculer l'amplification de l'harmonique à condition que l'on connaisse son évolution temporelle. Nous supposerons simplement que celle-ci est gaussienne et présente une durée de 35 fs, comme l'impulsion infrarouge utilisée pour la générer.

On s'intéresse ici aux caractéristiques spatiales du faisceau XUV injecté par harmonique, et on dispose d'une carte cylindrique du plasma afin de calculer l'amplification de l'harmonique. Plutôt que de supposer que le faisceau harmonique présente un profil spatial régulier et à symétrie radiale, on va directement utiliser le profil mesuré expérimentalement. Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, en utilisant la répartition d'intensité et le front d'onde du faisceau mesurés avec le senseur de front d'onde, on peut reconstruire le champ (phase et amplitude) au niveau de l'entrée du plasma. C'est donc ce champ, déterminé par l'expérience, que nous allons injecter en entrée de plasma afin de l'amplifier numériquement par le code COFIXE\_MB.

En pratique, le champ harmonique au niveau du senseur de front d'onde est projeté sur un ensemble de modes de Hermite-Gauss. À partir de cette décomposition et de la rétropropagation du champ vers le plan d'entrée du plasma, on déduit l'amplitude complexe du champ harmonique dans ce plan. On la projette alors sur un ensemble de modes azimutaux de la forme :

$$A(r,\theta) = \sum_{l=-N}^{l=+N} f_l(r) e^{il\theta}$$
(4.6)

Dans les simulations présentées par la suite, nous avons choisi un nombre de modes N = 10. Prendre plus de modes en compte rallonge fortement les temps de calcul pour un résultat identique. Chacun de ces modes est ensuite amplifié séparément par le code COFIXE\_MB. On néglige en effet le couplage entre ces modes azimutaux introduit par le caractère non-linéaire de l'amplification. Des simulations réalisées dans chaque cas ont montré que ce couplage n'avait finalement que peu d'influence : aucune influence sur la phase de l'onde, et négligeable sur son intensité. L'effet du couplage est que la répartition d'intensité sera légèrement plus symétrique par rapport au centre du faisceau (les amplitudes de fluctuations sont réduites à forte saturation).

Une fois le champ harmonique amplifié, on projette son l'amplitude complexe sur un ensemble de modes de Laguerre-Gauss, ce qui va permettre sa propagation numérique du plan initial (plan de sortie du plasma) jusqu'en champ lointain (plan du senseur de front d'onde/caméra CCD XUV) afin de le comparer aux données mesurées expérimentalement.

# 4.2.3 Premiers résultats de modélisation

Sauf précision contraire, l'intensité utilisée pour générer le plasma est de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> dans le vide, dans une tache focale gaussienne de rayon 20  $\mu$ m. Le faisceau est focalisé au centre de la cellule de 6 mm de long. La figure 4.41 donne la carte d'ionisation du plasma créé dans ces conditions et la carte du gain en résultant.



FIGURE 4.41 – Ionisation du krypton dans les conditions habituelles. Le laser de pompe se propage de la gauche vers la droite.

Le laser se propage de gauche vers la droite. Sur la carte de gain, les zones absorbantes à la longueur d'onde de la transition sont représentées en noir et les zones transparentes en blanc. Comme on a déjà pu le constater, la forte intensité infrarouge près de l'axe optique provoque l'ionisation du krypton jusqu'à un état supérieur à  $8^+$  (Fig. 4.41(a), couleurs chaudes). Ceci se traduit par un gain nul dans cette zone qui n'est néanmoins pas absorbante, les seules espèces ioniques absorbantes à 32.8 nm étant les ions Kr I, II et III. On s'intéresse maintenant à l'amplification du faisceau harmonique par ce plasma. On donne en figure 4.42 le profil d'intensité du faisceau l'harmonique avant amplification par le plasma, puis après amplification dans divers plans le long de sa propagation.



FIGURE 4.42 – Répartition d'intensité du faisceau simulé

Le modèle rend donc bien compte du filtrage de l'harmonique par le plasma. Le faisceau harmonique injecté, fortement marqué d'astigmatisme, présente un profil radicalement différent après amplification. Ce dernier est globalement symétrique du fait du filtrage par un plasma symétrique, et présente également une extension transverse plus faible. On remarque par ailleurs que le maximum d'énergie ne se trouve pas au centre du faisceau. Ceci est dû comme on pourrait s'y attendre à l'importance de la zone surionisée proche de l'axe optique qui limite l'amplification au centre du faisceau. Il s'agit néanmoins du profil en champ proche du faisceau, qui va donc évoluer durant la propagation. À partir d'une distance de 50 mm environ, le profil du faisceau n'évolue plus, il s'agit du profil en champ lointain. Il présente une répartition d'intensité de type Airy et une divergence de 0.6 mrad qui correspond bien aux mesures expérimentales (cf Fig. 4.2(c) par exemple).

Toujours dans l'optique de comparer les données de base du champ calculé numériquement avec les mesures présentées précédemment, on peut s'intéresser au front d'onde du faisceau. La figure 4.43 donne l'intensité du faisceau en champ lointain, dans le plan du senseur de front d'onde, ainsi que son front d'onde. Il a été calculé avec moins de modes azimutaux, ce qui explique la forte symétrie du faisceau.



FIGURE 4.43 – Calcul de la phase du champ harmonique amplifiée

On distingue plusieurs zones (radiales) dans le front d'onde du faisceau. Une première zone correspond globalement au spot central du faisceau, et présente une allure très similaire à celle mesurée expérimentalement; on note en effet la présence de deux régions symétriques de phases opposées caractéristiques de l'aberration de coma. La deuxième zone présente une phase homogène, en retard par rapport au centre du faisceau, et correspond à l'anneau entourant le spot central. La dernière zone correspond à une divergence au-delà de cet anneau et est également homogène, mais cette fois en avance de phase par rapport au centre. Compte-tenu de la symétrie du plasma et du fait que l'on ne retrouve pas cette structure radiale expérimentalement (cf Fig. 4.8(b) par exemple), on peut estimer que la présence de ces zones radiales alternativement en retard et en avance de phase provienne de la modélisation, en particulier de la symétrie cylindrique du plasma.

Il est en revanche très intéressant de voir que le centre du faisceau est très semblable à celui mesuré expérimentalement. Pour poursuivre dans ce formalisme des aberrations, on peut le décomposer sur la base de polynômes de Zernike. Le résultat de cette décomposition est donné en figure 4.44 page suivante.
On constate donc la présence de coma du  $3^{e}$  et  $5^{e}$  ordre, comme pour les fronts d'onde expérimentaux. Nous avons ici supposé un faisceau harmonique parfaitement aligné avec l'axe du plasma et centré sur ce dernier, ce qui confirme donc que ce défaut de front d'onde ne provient pas d'un désalignement (en angle ou en translation) entre le faisceau harmonique et le plasma. Le plasma étant à symétrie cylindrique, il ne peut pas introduire seul ce défaut au champ amplifié. On peut en déduire qu'il provient du faisceau harmonique qui ne possède pas cette symétrie cylindrique. Rappelons néanmoins que l'interaction de ce faisceau avec un plasma *long* est nécessaire pour expliquer ce défaut, puisqu'on ne le retrouve pas dans la modélisation du gain de l'amplificateur par une ouverture plane.



FIGURE 4.44 – Décomposition du centre du front d'onde en polynômes de Zernike

Afin de confirmer l'effet de filtrage spatial sur le front d'onde du faisceau dans cette modélisation, on peut calculer l'écart type de ses déformations :

$$\Delta \lambda_{RMS}^{(calcul)} = \frac{\lambda}{8.5}$$

On est donc remarquablement proche des valeurs mesurées (jusqu'à  $\lambda/11$ ).

Nous avons donc un code numérique nous permettant de simuler l'amplification du faisceau harmonique caractérisé expérimentalement par un plasma à symétrie cylindrique. Les caractéristiques principales du faisceau de sortie, à savoir le profil spatial et sa divergence, ainsi que son front d'onde sont relativement bien conformes aux mesures expérimentales. Dans la prochaine partie, nous allons nous intéresser aux variations plus fines de ces caractéristiques que nous avons pu observer et décrire dans les sections précédentes.

#### 4.2.4 Allure de la zone de gain et profil du faisceau en champ lointain

Nous avons vu dans ce chapitre que les principales variations que nous avons observées sur le profil spatial du faisceaux sont dues à l'intensité de pompe utilisée pour générer le plasma, et à la pression de gaz. Ces deux paramètres influent essentiellement sur l'allure du plasma : la pression de gaz est directement liée à la réfraction du faisceau pompe, et l'intensité de pompe au degré d'ionisation final après le passage de l'impulsion en chaque point du plasma.

La figure 4.45 donne le résultat de l'amplification du faisceau harmonique par un plasma généré dans les conditions standard : la pression de krypton est de 30 mbar et le faisceau pompe est focalisé à une intensité variable au milieu de la cellule de 6 mm.



FIGURE 4.45 – Profil spatial du faisceau amplifiée en champ lointain pour différentes intensités de pompe

On constate donc que cette modélisation ne reflète pas parfaitement les profils mesurés expérimentalement. La tendance est néanmoins la bonne : lorsque l'on augmente l'intensité de pompe, la divergence du faisceau diminue et un anneau apparaît autour du spot central. Les valeurs de la divergence du faisceau sont également en bon accord avec l'expérience. Néanmoins, pour une intensité de pompe de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>, l'intensité de l'anneau ne dépasse pas le pourcent de l'intensité maximale du spot central, contre une dizaine de pourcents expérimentalement. On note également un désaccord pour une intensité de pompe de  $2.5 \times 10^{17}$ W/cm<sup>2</sup> : le faisceau est beaucoup moins divergent que celui mesuré expérimentalement et que ceux simulés pour des intensités de pompe légèrement supérieures, et ne suit donc plus la tendance générale d'augmentation de la divergence avec la diminution de l'intensité de pompe. Ceci est directement lié au plasma généré par cette intensité de pompe. En effet, on constate à l'aide de la figure 4.46 donnant la carte de gain du plasma généré par différentes intensités de pompe, que la zone de gain générée dans ce cas est extrêmement courte, inférieure à 1 mm, donc probablement trop courte pour achever la saturation. Le filtrage du faisceau harmonique n'a donc pas complètement lieu. On note par ailleurs que le profil en champ lointain du faisceau amplifiée est légèrement moins symétrique que les autres, ce qui va dans le sens d'un filtrage moins efficace.



FIGURE 4.46 – Cartes de gain du plasma calculées pour différentes intensités de pompe

On constate également sans surprise que plus l'intensité de pompe est importante, plus la zone de gain nul près de l'axe due à une surionisation du krypton est importante. Dans ces conditions, elle ne semble néanmoins pas suffisamment importante pour observer les anneaux multiples présents sur les profils spatiaux expérimentaux.

Nous nous sommes également intéressés aux variations de ce profil spatial avec la densité de l'amplificateur. Pour un plasma généré par une intensité de pompe de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>, on donne le profil radial intégré du faisceau de sortie pour différentes pressions de krypton en figure 4.47.



FIGURE 4.47 – Dépendance à la pression de gaz des profils radiaux des faisceaux amplifiés

Les variations de ce profil spatial avec la pression sont donc très faibles. La tendance est la même que celle obtenue expérimentalement dans le cas d'une faible intensité de pompe (Fig. 4.14(a)) : augmentation de la divergence du faisceau et disparition de l'anneau lorsque la pression augmente.

Nous avons également réalisé les mêmes simulations pour une intensité de pompe plus faible  $(4 \times 10^{17} \text{W/cm}^2)$  pour suivre le développement de la section précédente, et n'avons observé quasiment aucune différence entre les profils spatiaux obtenus.

En ce qui concerne les variations du front d'onde du faisceau, nous n'avons pas observé de variations avec l'intensité de pompe générant le plasma, ni avec la pression de l'amplificateur. Il possède invariablement la même allure que celui présenté en figure 4.44, et l'écart normal de ses défauts se situe toujours entre  $\lambda/8$  et  $\lambda/9$ .

Ce code numérique permet donc d'obtenir des valeurs des caractéristiques spatiales du faisceau globalement conformes aux mesures expérimentales, mais ne permet pas de rendre proprement compte des variations relativement fines que l'on observe expérimentalement. Les variations de l'amplitude des défauts du front d'onde notamment ne sont absolument pas retrouvées en utilisant cette modélisation. Il faut tout de même rappeler que ces variations sont très faibles, inférieures à la longueur d'onde du laser XUV. En revanche, ce code peut être très utile pour la compréhension qualitative de l'allure du profil spatial. Nous avons jusqu'à maintenant suggéré que la zone de krypton ionisé au-delà de l'état de charge 8<sup>+</sup> était à l'origine de l'apparition d'anneaux autour du faisceau amplifié, mais sans réellement retrouver ce résultat numériquement. Nous allons maintenant donner des résultats de simulations prenant en compte des paramètres pas nécessairement réalistes afin de constater que ce profil spatial de type Bessel peut effectivement être retrouvé numériquement : la taille de la zone surionisée étant directement liée à la propagation du laser de pompe et à son intensité, nous allons nous situer dans les conditions les plus favorables à la focalisation du faisceau de pompe : une pression de gaz faible, 5 mbar, et une forte intensité focalisée,  $1.5 \times 10^{18} \,\mathrm{W/cm^2}$ . Ces valeurs, bien qu'extrêmes, restent dans les ordres de grandeurs des paramètres expérimentaux. La figure 4.48 donne le résultat de cette simulation.



FIGURE 4.48 – Principaux résultats de la simulation pour  $I = 1.5 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$  et une pression de 5 mbar

La zone de gain nul est par conséquent beaucoup plus importante et occupe dans ce cas près de la moitié de la longueur de la cellule (contre environ un quart pour une pression de 30 mbar et une intensité de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>). Il en découle qu'on observe une nette absence de signal au niveau du centre du faisceau en sortie de plasma, et l'apparition d'un 2<sup>e</sup> anneau sur le profil en champ lointain, ainsi qu'une augmentation de l'intensité (de l'ordre de 8% de l'intensité maximale) du premier anneau. Précisons qu'un résultat très similaire est obtenu pour la même pression de krypton et une intensité de pompe de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. Les effets de surionisation étant plus poussés à  $1.5 \times 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>, nous avons choisi de continuer l'analyse avec cette intensité excessive. Nous ne cherchons en effet plus ici à retrouver exactement les résultats de mesures expérimentales, mais à comprendre l'influence de la zone de gain nul sur le profil spatial en champ lointain du faisceau amplifié.

Il reste encore une variable influant sur l'allure du plasma que nous n'avons pas encore évoquée : il s'agit du point de focalisation du faisceau pompe dans la cellule de gaz. Ce point est bien entendu défini pour une propagation dans le vide. Jusqu'à présent, toutes les simulations (et *a priori* les expériences, bien que nous ne possédons pas de moyen certain de vérification) ont été réalisées pour une focalisation du faisceau au milieu de la cellule, donc à 3 mm de la face d'entrée de cette cellule. Nous allons maintenant examiner ce qu'il advient de la zone de gain lorsqu'on change le plan de focalisation du faisceau, tous autres paramètres restant constants. La figure 4.50 donne les cartes de gain et les profils des faisceaux amplifiés pour différentes position  $z_p$  du plan focal du faisceau de pompe.

On remarque alors que cette zone de gain nul influe sur le profil spatial d'une part par sa longueur par rapport à la longueur totale de plasma, et d'autre part par sa dimension transverse, toujours par rapport à celle du plasma de  $Kr^{8+}$ . Le fait d'avoir choisi une basse pression nous permet d'obtenir des ions  $Kr^{8+}$  jusqu'à la face de sortie de la cellule, facilitant ainsi la comparaison de la longueur de la zone surionisée. Afin d'avoir tous les éléments nécessaires à la compréhension de l'importance de cette zone sur le profil spatial, on a reporté sur la figure 4.49 le profil radial du faisceau dans chaque cas.



FIGURE 4.49 – Profil radial du faisceau en fonction de la position du plan focal du faisceau pompe pour une pression de 5 mbar et une intensité de pompe de  $1.5 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ 

Examinons tout d'abord la longueur de la zone de gain nul. Pour une longueur totale de 6 mm,



FIGURE 4.50 – Carte de gain du plasma et profil spatial du faisceau pour différentes positions du plan focal du faisceau pompe pour une pression de 5 mbar et une intensité de pompe de  $1.5 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ 

elle est la plus longue (3.2 mm) pour un plan focal situé à 3 mm de la face d'entrée. Il est à noter que c'est pour cette position que l'intensité relative du 1<sup>er</sup> anneau sur le profil spatial est la plus importante. Elle est la plus courte (1.7 mm) pour un plan focal à 0.5 mm de la face d'entrée, et c'est par ailleurs pour cette position que l'intensité relative du même 1<sup>er</sup> anneau est la faible. De même, pour une position du plan focal à 1.5 mm de la face d'entrée, la longueur de cette zone est de 2.4 mm, et l'intensité relative du 1<sup>er</sup> anneau se situe entre celle des deux cas précédents. On serait alors tenté de penser que le rapport entre la longueur de cette zone et celle de la zone de gain donne directement l'intensité des anneaux présents sur le profil spatial. Néanmoins, cette tendance n'est pas totalement vérifiée pour le cas d'une focalisation à 4.5 mm de la face d'entrée. La zone surionisée est relativement longue (2.8 mm) mais l'anneau du profil spatial n'est que modérément intense. C'est là qu'il convient alors de considérer la largeur de cette zone par rapport à celle de la zone de gain.

On s'intéresse donc à la largeur de la zone de gain nul, mais en tentant tout de même de faire le lien avec sa longueur. Les bords de cette zone ainsi que de la zone de gain sont relativement réguliers (*i.e.* des zones de rayon à peu près constants sur la longueur du plasma), ce qui facilite encore la comparaison. Considérons le cas d'une focalisation à 0.5 mm de la face d'entrée. Le long de la zone surionisé, celle-ci occulte la quasi-totalité du gain, présent alors seulement selon un fin tube. Sur le profil spatial, on constate la présence de deux voire trois anneaux, mais le premier est relativement peu intense probablement du fait que la longueur de la zone surionisée est très courte et que la zone de gain s'élargit ensuite. On aurait donc un fort filtrage en début de plasma, mais dont les effets seraient atténués par la suite par la présence de gain dans une zone longue et plus large que celle de gain nul. On peut voir une confirmation de ceci dans le cas d'une focalisation à 1.5 mm de la face d'entrée. On a le même rapport entre les largeurs de ces zones, la différence se situant dans la longueur de la zone de gain disponible au-delà de la zone surionisée, et dans sa largeur qui reste quasiment constante. Par conséquent, on observe toujours deux voire trois anneaux, mais plus intenses et également plus resserrés, ce qui va dans le sens d'un filtrage de type ouverture annulaire plus efficace. Pour un plan focal du faisceau pompe situé à 3 mm, les intensités et divergences des anneaux sont relativement similaires au cas précédent, mais la largeur de la zone surionisée est -relativement à celle de la zone de gain- plus faible. C'est cette fois sa grande longueur qui explique l'efficacité du filtrage. Le dernier cas, pour un faisceau focalisé à 4.5 mm, montre un profil spatial présentant un seul anneau, moins intense que celui obtenu dans le cas précédent. Ceci est du au fait que la zone surionisée est encore moins large que dans le cas précédent, et également plus courte. Le filtrage est par conséquent moins efficace.

En conclusion, on peut dire que l'apparition d'anneaux dans le profil spatial est liée au volume que la zone surionisée occupe par rapport à celui du gain. Nous avons également effectué une mesure du profil spatial du faisceau XUV en fonction de la position du plan focal du faisceau dans la cellule (cf Fig. 4.51) en translatant longitudinalement cette dernière. La position notée  $z_0$ correspond au cas optimal, donc pour un plan de focalisation proche du milieu de la cellule (donc à 3 mm de la face d'entrée). Bien que les profils mesurés soient beaucoup moins "propres" que ceux obtenus en simulation, et que les intensités et pression de gaz mises en jeu ne soient pas les mêmes, on retrouve le même type de variations.

Pour conclure sur cette modélisation, nous dirons simplement qu'elle est performante en ce qui concerne l'allure générale du faisceau de sortie, sa divergence, et son front d'onde. En revanche les variations de ces caractéristiques mesurées expérimentalement sont probablement dues à de très faibles variations au niveau du plasma qui sont difficiles à mettre en œuvre numériquement. Il s'agit néanmoins d'un excellent outil en vue de la compréhension des phénomènes physiques pouvant influer sur les caractéristiques du faisceau injecté par harmonique. Les développements futurs de ce code incluent la prise en compte du faisceau infrarouge de pompe déterminé expérimentalement (par un senseur de front d'onde de Shack-Hartmann par exemple, grâce auquel nous avons pu



FIGURE 4.51 – Profil radial expérimental du faisceau en fonction de la position du plan focal du faisceau pompe pour une pression de krypton de 30 mbar et une intensité de pompe de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>

réaliser la mesure présentée au chapitre 3) pour la génération du plasma. Ceci inclut par conséquent le passage du code en 3D, et on s'attendrait entre autres à plus de variations sur les fronts d'ondes calculés.

# 4.3 Conclusion

Nous avons dans ce chapitre caractérisé le faisceau XUV produit par l'amplification d'un faisceau harmonique par un plasma OFI. Nous avons observé un changement radical des propriétés du faisceau amplifié. Nous avons notamment mesuré par un dispositif de fentes d'Young d'espacement variable la cohérence spatiale des différentes sources, et constaté une légère amélioration de la cohérence du faisceau harmonique bien qu'il présentait une bonne cohérence (50% du faisceau) avant son amplification.

Alors que le faisceau harmonique présente un profil asymétrique conséquence de l'astigmatisme introduit par le miroir torique le couplant au plasma, le faisceau amplifié présente un profil remarquablement symétrique. Ce profil peut varier entre un profil gaussien et un profil de type Bessel, présentant un spot central plus étroit entouré de plusieurs anneaux. Expérimentalement, nous avons montré que l'intensité du faisceau générant le plasma permet de contrôler ces variations. Le profil du faisceau a été relié à un effet de filtrage par le plasma, tout d'abord par un modèle relativement simple consistant à laisser traverser le faisceau harmonique par une ouverture circulaire ou annulaire située dans le plan de sortie du plasma réel, puis par une modélisation numérique complète utilisant un faisceau harmonique caractérisé expérimentalement. Cette modélisation considère un plasma 2D à symétrie cylindrique et amplifie le faisceau harmonique décomposé sur une base de modes azimutaux. Nous n'avons pas exploité toutes les potentialités du traitement de Maxwell-Bloch utilisé pour calculer l'amplification du champ harmonique, qui sera détaillé au chapitre suivant. Cette modélisation, que l'on peut qualifier de semi-3D (amplification d'un champ 3D par un plasma 2D), nous permet notamment de calculer le profil spatial du faisceau en champ lointain et de constater que les profils calculés sont dans certains cas en bon accord avec ceux mesurés expérimentalement. Les valeurs de la divergence du faisceau calculé sont conformes avec celles du faisceau réel. Le code ne rend néanmoins pas compte des profils de type Bessel obtenus expérimentalement pour une forte intensité de pompe du plasma à la pression de krypton usuellement utilisée de 30 mbar. En revanche, en considérant une pression beaucoup plus faible de 5 mbar, nous avons pu relier la présence des anneaux sur le profil spatial du faisceau amplifié à l'intensité du faisceau générant le plasma par la présence d'une zone du plasma ionisé à des états de charge supérieurs à celui de l'ion lasant et présentant donc un gain laser nul. Le volume qu'occupe cette zone par rapport à celui de la zone de gain permet d'expliquer la présence d'un ou plusieurs anneaux d'intensités variables dans le profil spatial du faisceau amplifié.

L'amplification numérique d'un faisceau harmonique issu d'une mesure expérimentale a été rendue possible grâce à l'utilisation d'un senseur de front d'onde de type Hartmann dans le domaine XUV. Ce senseur nous a donc permis de mesurer le front d'onde du faisceau XUV et de caractériser ses défauts. Alors que le faisceau harmonique est fortement marqué d'astigmatisme, et présente un écart normal aberrant variant entre  $\frac{\lambda}{4}$  et  $\frac{\lambda}{2.5}$  à 32.8 nm, son amplification par le plasma permet de créer un faisceau dépourvu d'astigmatisme dont l'écart normal aberrant peut être aussi faible que  $\frac{\lambda}{11}$ , ce qui est très proche de la limite de diffraction. Son principal défaut est de type coma, et nous avons pu constater par les modélisations diverses que ce défaut est la conséquence de l'asymétrie du faisceau harmonique et de la longueur du plasma, mais ne provient pas d'une asymétrie du plasma puisque nous le retrouvons même dans une modélisation utilisant un plasma symétrique. Rappelons enfin que la modélisation rend également compte de l'effet de filtrage du front d'onde du faisceau en donnant une amplitude de coma comparable à celle mesurée expérimentalement.

Nous avons également mesuré les variations du profil spatial et du front d'onde du faisceau injecté en fonction de divers paramètres comme la valeur du gain (*via* le délai d'injection de l'harmonique dans le plasma) ou la longueur de la cellule. Aucune variation n'a été observée, ni sur le profil spatial, ni sur le front d'onde. Nous avons mis en évidence en effectuant les mêmes mesures en fonction de la densité de krypton l'existence de deux "régimes" de filtrage par le plasma. Pour un faisceau présentant un profil de type Bessel, le profil spatial ne varie pas avec la densité de krypton mais le filtrage des défauts du front d'onde augmente avec la pression, alors que pour un faisceau présentant un profil de type gaussien ou Airy, on observe une augmentation de la divergence et une augmentation de l'amplitude de la coma du faisceau avec la densité de gaz. La mesure de la cohérence spatiale du faisceau dans ces conditions abondait dans ce sens, en montrant une légère perte progressive de cohérence parallèle à l'augmentation de la densité de krypton. La modélisation ne permet pas à ce stade de rendre compte de ces variations, qui restent fines.

On peut retenir en vue de l'utilisation de cette source pour des applications que la technique d'injection par harmonique d'ordre élevé permet non seulement d'augmenter l'énergie des impulsions XUV mais aussi d'améliorer de manière spectaculaire les propriétés du faisceau XUV. Elle permet la production de faisceaux de qualité comparable à ceux produits dans le domaine visible ou infrarouge et ouvre le champ à des applications d'optique XUV au moyen de faisceaux laser fortement collimatés, possédant une très bonne cohérence transverse et dont le front d'onde est proche de la limite de diffraction.

Il convient finalement de rappeler que cette technique de filtrage spatial du faisceau harmonique reste à ce jour la seule méthode permettant la production de faisceaux se rapprochant de faisceaux de Bessel.

# Chapitre 5

# Étude du profil spectral et temporel du laser à 32.8 nm en régime injecté

## Sommaire

5.1	Amp	blification d'un champ dans le domaine XUV	146
	5.1.1	Les équations de Maxwell-Bloch	147
	5.1.2	Résultats 1D : allure temporelle de l'harmonique amplifiée	151
	5.1.3	Simulations semi-3D	154
5.2	Prin	cipe de la mesure de cohérence temporelle	156
	5.2.1	Mesure par interférométrie à différence de marche variable	156
	5.2.2	Interféromètre à bi-dièdres de Fresnel	157
	5.2.3	Détermination de la cohérence temporelle	159
5.3	Larg	eur spectrale du laser XUV en régime injecté et ASE	<b>162</b>
	5.3.1	Cohérence temporelle, largeur spectrale et durée d'impulsion	162
	5.3.2	Modélisation	163
	5.3.3	Rétrécissement spectral par le gain laser	165
	5.3.4	Etude de l'influence de différents paramètres	171
<b>5.4</b>	Cone	clusion	177

Nous avons pu déterminer au chapitre précédent que la source obtenue en injectant le plasma amplificateur par un rayonnement harmonique offrait des faisceaux de qualité spatiale exceptionnelle. Nous allons dans ce chapitre nous intéresser aux profils temporel et spectral des impulsions émises en régime injecté. Cette étude s'inscrit entre autres dans la démarche visant à produire des impulsions lumineuses XUV de plus en plus courtes. La détermination directe de la durée de l'impulsion dernière nécessitant la mise en place de diagnostics contraignants (spectromètre à électrons par exemple), nous chercherons une méthode alternative pour l'estimer. La méthode choisie est la mesure par interférométrie la cohérence temporelle de la source, que nous couplerons aux mesures de la durée du gain de l'amplificateur présentées au chapitre 3. Nous nous appuierons également sur les résultats numériques fournis par le code COFIXE\_MB.

La mesure de la cohérence temporelle de l'impulsion permet également de déterminer sa largeur spectrale. Bien que l'impulsion harmonique soit initialement large, la faible largeur spectrale du gain (mÅ) interdit en effet toute mesure directe par un spectromètre conventionnel compact. Nous étudierons donc l'évolution de la largeur spectrale de l'impulsion avec certains des paramètresclés de l'amplificateur. La largeur spectrale d'une impulsion donnant par transformée sa largeur temporelle minimale, il peut être intéressant d'examiner la possibilité de produire des impulsions de grande largeur spectrale. Nous comparerons également ces mesures aux résultats fournis par un code numérique.

Après avoir explicité la modélisation de l'amplification d'une impulsion XUV injectée dans notre amplificateur, nous donnerons quelques résultats sur l'allure temporelle de l'impulsion. Nous présenterons ensuite des séries de mesures de la cohérence temporelle de l'impulsion XUV par interférométrie. Ces expériences ont été réalisées en collaboration avec O. Guilbaud et A. Klisnick du LIXAM. Après avoir décrit le principe et le montage expérimental de la mesure, nous présenterons une étude de la largeur spectrale de l'impulsion en fonction des différents paramètres de génération, et chercherons en permanence à faire le lien avec le domaine temporel.

# 5.1 Amplification d'un champ dans le domaine XUV

On souhaite ici décrire l'amplification du rayonnement harmonique par le plasma. Ce rayonnement harmonique présente un champ électrique résonant avec la transition laser. On se bornera ici à décrire l'évolution du profil temporel de l'impulsion, le profil spatial ayant été traité dans le chapitre précédent. La modélisation pose des problèmes spécifiques dus au fait que l'impulsion harmonique incidente a une durée (quelques dizaines de fs) bien plus faible que les temps caractéristiques du plasma (ps). Le formalisme choisi est celui des équations de Maxwell-Bloch, déjà fortement répandu [185] [186] [187] [188] pour la modélisation des laser XUV. Dans le cadre de ce modèle, on négligera les phénomènes de transport autres que l'amplification XUV. De même, on négligera l'ASE dont l'intensité est inférieure de plusieurs ordres de grandeur à celle de l'harmonique incidente. On néglige également dans ce code l'élargissement Doppler du milieu qui complique fortement les calculs puisqu'il faut alors décrire la modification de la fonction de distribution des vitesses induite par l'amplification. Comme nous le verrons plus loin, cette source d'élargissement n'est prédominante que pour de basses pressions.

#### 5.1.1 Les équations de Maxwell-Bloch

Lorsque le champ électrique résonant  $\mathbf{E}$  de l'harmonique à la fréquence  $\omega$  se propage dans le milieu, il crée des déplacements des électrons, notamment les électrons liés des ions et provoque ainsi l'apparition de dipôles et donc une polarisation du milieu. Au niveau atomique, cela correspond à un moment dipolaire entre les deux niveaux de la transition laser. Suivant la phase initiale de ce dipôle, on a un transfert d'énergie entre le champ  $\mathbf{E}$  et l'ion correspondant soit à de l'émission stimulée, soit à de l'absorption. Ceci modifie donc la répartition de la population de ces deux niveaux et est donc à relier au gain de l'amplificateur. Les grandeurs physiques pertinentes pour décrire l'amplification du champ incident sont donc :

- le champ électrique incident  ${\bf E}$  et sa propagation
- la polarisation  ${\bf P}$  induite par ce champ
- l'inversion de population W entre les deux niveaux de la transition laser

La description de l'amplification se fera donc par l'intermédiaire de 3 équations couplées appelées équations de Maxwell-Bloch.

#### Propagation d'un champ dans le plasma

L'équation de propagation du champ  $\mathbf{E}$  en présence d'une densité de courant  $\mathbf{j}$  due aux déplacements des électrons libres et liés du plasma s'écrit :

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) \mathbf{E} = \mu_0 \frac{\partial \mathbf{j}}{\partial t}$$
(5.1)

La densité de courant électronique est définie par  $\mathbf{j} = -n_e e \mathbf{v}$  où  $\mathbf{v}$  est la vitesse des électrons. Elle a une contribution due aux électrons libres notée  $\mathbf{j}^{(f)}$  et une contribution due aux électrons liés notée  $\mathbf{j}^{(b)}$ . En considérant que les électrons libres ne sont soumis qu'à la force électrique du champ incident<sup>1</sup>, on peut montrer que  $\frac{\partial \mathbf{j}^{(f)}}{\partial t} = \frac{1}{\mu_0} \frac{\omega_p^2}{c^2} \mathbf{E}$ . On peut également écrire la densité de courant des électrons liés comme  $\mathbf{j}^{(b)} = \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t}$  où  $\mathbf{P}$  est la polarisation du milieu, définie comme le moment dipolaire volumique et qui peut donc s'écrire dans le cas où tous les dipôles oscillent en phase et dans la même direction :

$$\mathbf{P} = -n_D e \mathbf{r} \tag{5.2}$$

où  $n_D$  est la densité de dipôles oscillants et donc d'électrons liés et **r** la position de l'électron lié par rapport au noyau. On peut donc finalement mettre l'équation de propagation du champ **E** sous la forme :

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2} - \frac{\omega_p^2}{c^2}\right)\mathbf{E} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2}$$
(5.3)

<sup>1.</sup> On néglige alors les collisions électron-ion qui freinent les électrons libres (effet Joule); en tenir compte revient à considérer une force de frottement réduisant la densité de courant

#### Polarisation du milieu induite par un champ résonant

On souhaite ici déterminer l'évolution temporelle de la polarisation du milieu induite par le champ résonant. On se situe dans le modèle de l'électron lié de Lorentz. L'électron est considéré comme lié au noyau par une force de rappel harmonique de fréquence propre  $\omega_e$  amortie. L'équation du mouvement de l'électron dans ce modèle s'écrit :

$$\ddot{\mathbf{r}} + \gamma \ddot{\mathbf{r}} + \omega_e \mathbf{r} = -\frac{e}{m_e} \mathbf{E}$$
(5.4)

où  $\gamma$  est le coefficient d'amortissement des oscillations correspondant au taux de relaxation en énergie du système. Les pertes d'énergie peuvent être radiatives ou dues aux collisions inélastiques avec les ions. Le moment dipolaire  $\mathbf{p} = -e\mathbf{r}$  créé par le déplacement de l'électron obéit donc à la même équation au signe près. Dans le cas où tous les dipôles sont alignés et en phase la polarisation peut s'écrire de la manière donnée par la relation 5.2 et son évolution est donc régie par une équation identique à la densité de dipôles près. En réalité, les électrons subissent des collisions, élastiques ou inélastiques, qui vont changer le dipôle d'orientation et de phase. On prend donc en compte un temps de relaxation en phase  $T_2$  qui est de l'ordre du temps caractéristique de collision électron-ion, soit la ps dans notre cas. L'équation décrivant l'évolution de la polarisation peut alors s'écrire :

$$\ddot{\mathbf{P}} + \left(\gamma - \frac{1}{T_2}\right)\ddot{\mathbf{P}} + \omega_e \mathbf{P} = \frac{n_D e}{m_e}\mathbf{E}$$
(5.5)

Dans le cas où l'on considère un dipôle correspondant à une transition réelle entre deux niveaux l et u non dégénérés, on peut montrer que cette équation devient :

$$\ddot{\mathbf{P}} + \left(\gamma - \frac{1}{T_2}\right)\ddot{\mathbf{P}} + \omega_e \mathbf{P} = \frac{e^2 c}{m_e}(n_u - n_l)\mathbf{E}$$
(5.6)

Dans cette approche classique, nous n'avons pas pris en compte le fait que le moment dipolaire est associé à la transition laser et dépend donc des données atomiques qui la décrivent. Ceci nécessite une approche quantique que nous ne détaillerons pas ici. Considérons néanmoins un système atomique très simple à deux états  $|u\rangle$  et  $|l\rangle$  séparés par une énergie  $\mathcal{E}_u - \mathcal{E}_l = \hbar \omega_{ul}$ . La résolution de l'équation de von Neumann sur l'opérateur densité  $\rho$  de ce système permet de déterminer l'évolution du moment dipolaire  $\mathbf{p}$ :

$$\frac{d\mathbf{p}^{+}}{dt} = -i\omega_{ul}\mathbf{p}^{+} - \frac{1}{i\hbar}|\mathbf{M}|^{2}\mathbf{E}^{+}\left(\langle u|\boldsymbol{\rho}|u\rangle - \langle l|\boldsymbol{\rho}|l\rangle\right)$$
(5.7)

où  $|\mathbf{M}|$  est le module des éléments de matrice diagonaux du moment dipolaire et où on définit :

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2} \left( \mathbf{E}^+ + \mathbf{E}^- \right) \qquad \text{et} \qquad \mathbf{p} = \frac{1}{2} \left( \mathbf{p}^+ + \mathbf{p}^- \right) \tag{5.8}$$

Le champ <sup>+</sup> est le complexe conjugué du champ <sup>-</sup>.

Ce cas très simple ne prend pas en compte la dégénérescence du niveau inférieur de la transition. Lors d'une transition dipolaire électrique on observe un changement du moment angulaire total  $\Delta J = 0, \pm 1$  (sauf pour la transition  $J=0 \rightarrow J=0$  interdite) et un changement de sa projection sur l'axe de propagation  $M_J$ . La figure 5.1 résume le schéma atomique de la raie laser et les transitions dipolaires associées pour un champ en polarisation circulaire droite  $\sigma^+$  et en polarisation circulaire gauche  $\sigma^-$ .



FIGURE 5.1 – Schéma atomique de la raie laser et transitions dipolaires associées

Un champ  $\sigma^+$  permet une transition entre les niveaux  $|u\rangle$  et  $|l_-\rangle$  et un champ  $\sigma^-$  entre les niveaux  $|u\rangle$  et  $|l_+\rangle$ . La transition entre les niveaux  $|u\rangle$  et  $|l_0\rangle$ , non représentée ici, est réalisée par un champ de polarisation  $\pi$  (linéaire) et ne nous concerne donc pas. On détermine alors l'équation d'évolution de la polarisation du milieu (ou du moment dipolaire) en tenant compte des effets des collisions :

$$\frac{d\mathbf{P}^{+}}{dt} = -\left(i\omega_{ul} + \frac{\gamma}{2} + \frac{1}{T_2}\right)\mathbf{P}^{+} - \frac{1}{2i\hbar}|\mathbf{M}|^2\left[\mathbf{E}^{+}_{\sigma^{+}}(n_u - n_{l_-}) + \mathbf{E}^{+}_{\sigma^{-}}(n_u - n_{l_+})\right]$$
(5.9)

avec des notations évidentes. Bien que cette équation semble différente de celle obtenue dans le modèle classique, elle donne des résultats équivalents –à la prise en compte des sous-niveaux atomiques près.

#### Populations atomiques en présence d'un champ résonant

On se situe dans un modèle à deux niveaux. L'inversion de population  $W = \frac{n_u}{g_u} - \frac{n_l}{g_l}$  présente alors deux contributions séparables : l'une liée aux processus collisionnels et l'autre liée au champ résonant. L'évolution de l'inversion de population sans champ appliqué s'écrit :

$$\frac{dW}{dt} = -\frac{W(t) - W_0(t)}{T_1} \tag{5.10}$$

où  $T_1$  est le temps de relaxation de l'inversion de population, dû aux pertes de population des niveaux (ionisation et excitation collisionnelle), et correspond au temps de recouvrement du gain.  $W_0$  est l'inversion de population d'équilibre liée au pompage vers laquelle tend W en un temps  $T_1$ .

En présence d'un champ résonant, il y a un transfert d'énergie entre le champ et le dipôle. La puissance transmise au milieu par le champ  $\mathbf{E}$  est égale à  $\mathbf{E} \cdot \dot{\mathbf{P}}$  ou  $\frac{i\omega_{ul}}{4} (\mathbf{E}^{-}\mathbf{P}^{+} - \mathbf{E}^{+}\mathbf{P}^{-})$ .

Si l'on considère uniquement le champ de polarisation  $\sigma^+$  provoquant une transition entre les niveaux u et  $l_{-}$ , on peut écrire la variation d'énergie des ions due à ce champ :

$$\left(\frac{dU}{dt}\right)_{\sigma^{+}} = \mathcal{E}_{u} \left(\frac{dn_{u}}{dt}\right)_{\sigma^{+}} + \mathcal{E}_{l} \left(\frac{dn_{l_{-}}}{dt}\right)_{\sigma^{+}}$$
(5.11)

De plus, comme les transitions induites par le champ s'effectuent entre les deux niveaux lasants uniquement, la somme des populations de ces niveaux se conservent et on peut en déduire la variation de l'inversion de population  $W_{-} = n_u - n_{l_{-}}$ :

$$\frac{dW_{-}}{dt} = -\frac{1}{2i\hbar} \left( \mathbf{E}_{\sigma^{+}}^{-} \mathbf{P}_{\sigma^{+}}^{+} - \mathbf{E}_{\sigma^{+}}^{+} \mathbf{P}_{\sigma^{+}}^{-} \right)$$
(5.12)

On en déduit l'équation d'évolution totale de l'inversion de population  $W_{-}$ :

$$\frac{dW_{-}}{dt} = -\frac{W_{-}(t) - W_{0}(t)}{T_{1}} - \frac{1}{2i\hbar} \left( \mathbf{E}_{\sigma^{+}}^{-} \mathbf{P}_{\sigma^{+}}^{+} - \mathbf{E}_{\sigma^{+}}^{+} \mathbf{P}_{\sigma^{+}}^{-} \right)$$
(5.13)

et une expression analogue pour  $W_{+} = n_u - n_{l_{+}}$  pour un champ polarisé  $\sigma^{-}$ .

#### Équations finales et approximations

Les équations 5.3, 5.9, 5.13, et l'analogue de cette dernière pour  $W_+$  sont appelées équations de Maxwell-Bloch et peuvent encore être simplifiées dans notre cas. L'harmonique injectée a en effet une polarisation linéaire  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_{\sigma^+} + \mathbf{E}_{\sigma^-}$  avec  $|\mathbf{E}_{\sigma^+}| = |\mathbf{E}_{\sigma^-}|$ . On aura alors notamment  $n_{l_-} = n_{l_+}$  et donc  $W = W_- = W_+ = n_u - \frac{n_{l_-} + n_{l_+}}{2}$ . Il ne reste par conséquent plus que 3 équations de Maxwell-Bloch :

$$\begin{cases}
\left(\nabla^2 - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2} - \frac{\omega_p^2}{c^2}\right)\mathbf{E}^+ = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}^+}{\partial t^2} \\
\frac{\partial \mathbf{P}^+}{\partial t} = -\left(i\omega_{ul} + \frac{1}{T_2}\right)\mathbf{P}^+ - \frac{1}{2i\hbar}|\mathbf{M}|^2\mathbf{E}^+W \\
\frac{\partial W}{\partial t} = -\frac{W - W_0(z,t)}{T_1} - \frac{3}{8i\hbar}\left(\mathbf{E}^-\mathbf{P}^+ - \mathbf{E}^+\mathbf{P}^-\right)
\end{cases}$$
(5.14)

Le facteur  $\frac{3}{4}$  supplémentaire dans l'équation de l'inversion de population permet de rendre compte de l'évolution plus lente des sous-niveaux  $l_{-}$  et  $l_{+}$  qui se partagent le dépeuplement du niveau uet de l'absence du niveau  $l_{0}$  dans l'interaction laser-dipôle.

On suppose ensuite un champ purement résonant  $\omega = \omega_{ul}$  d'enveloppe lentement variable notée A(z,t). On pose alors  $D(z,t) = \frac{i\omega}{2}P(z,t)$  où P(z,t) est l'enveloppe également lentement variable de la polarisation du milieu. Les équations se simplifient alors en :

$$\begin{cases} \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}\right)A = D\\ \\ \frac{\partial D}{\partial t} = -\frac{D}{T_2} + \frac{\omega |\mathbf{M}|^2}{4\hbar}AW\\ \\ \frac{\partial W}{\partial t} = -\frac{W - W_0}{T_1} - \frac{3}{2\hbar\omega}AD \end{cases}$$
(5.15)

Si on considère que A(z,t) est réel et donc D(z,t) l'est également. Ce sont ces équations qui sont résolues par le code COFIXE\_MB.

Le temps  $T_2$  de relaxation en phase des dipôles permet de caractériser l'allure temporelle de l'impulsion amplifiée. D'après l'équation sur D, le niveau d'émission du plasma (représenté par D) n'est pas nécessairement proportionnel au champ incident. Si la durée de l'impulsion incidente est courte devant  $T_2$ , ce qui est le cas ( $\Delta t_{HHG} \simeq$ qq  $10^{aines}$  fs et  $T_2 \simeq$ ps), alors le niveau d'émission D va augmenter pendant le passage de l'impulsion puis chuter avec un temps caractéristique  $T_2$ . Le rayonnement produit par émission stimulée se retrouve alors presque entièrement derrière l'impulsion harmonique. En revanche, si le temps  $T_2$  est court devant la durée de l'impulsion harmonique, le signal se déforme peu au cours de son amplification, les dipôles restant alignés et en phase. On se trouve alors dans le cadre de l'approximation adiabatique où le système peut suivre les variations du champ en restant en phase avec celui-ci, et on retrouve alors [189] l'équation classique du transfert radiatif  $\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}\right) I(z,t) = g(z,t)I(z,t)$ .

#### 5.1.2 Résultats 1D : allure temporelle de l'harmonique amplifiée

Les résultats numériques que nous allons présenter visent à la compréhension du phénomène d'amplification du signal harmonique dont la durée, que l'on supposera égale à celle de l'impulsion infrarouge le générant (35 fs), est bien plus courte que celle de l'inversion de population et donc du gain (ps). Afin de simplifier l'étude, on se placera dans le cadre d'une approximation 1D : l'amplificateur, de longueur donnée, est considéré comme homogène et on s'intéresse donc à l'allure temporelle du signal au cours de sa propagation. On fera également le lien avec les autres grandeurs importantes que sont la polarisation du milieu et l'inversion de population.

On suppose que l'intensité du champ harmonique est de  $5 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ , proches des valeurs expérimentales. Cette harmonique est injectée à l'instant t = 0 (correspondant à un délai de 3 ps avec la création du plasma) dans l'amplificateur à une pression de krypton initiale de 30 mbar. Les autres paramètres affectant l'amplification sont les deux temps caractéristiques de relaxation  $T_1$  (recouvrement du gain) et  $T_2$  (phase des dipôles). Ces temps ont été fixés (proches des valeurs expérimentales attendues) à 2 ps. On s'attend donc à ce que la structure de l'impulsion amplifiée soit composée d'une longue traînée à la suite de l'impulsion harmonique.

### Évolution en régime non-saturé : premiers instants de l'amplification

La figure 5.2 donne l'évolution temporelle de l'inversion de population et de la polarisation du milieu, et de l'intensité du champ XUV résonant pour différentes longueurs d'amplification. Pour les cas de longueurs très courtes, 100 et  $200 \,\mu$ m, l'inversion de population suit la même dynamique qu'en l'absence de champ résonant. En revanche, pour une longueur de 1 mm, on voit apparaître sur l'évolution de l'inversion les premiers signes de la saturation. Le niveau supérieur se dépeuple suffisamment sous l'effet du champ intense pour que le pompage ne puisse plus totalement compenser ce dépeuplement. On n'observe en revanche pas d'effet sur la polarisation du milieu ou sur l'intensité du champ.

Considérons maintenant la polarisation du milieu. Après une distance très courte de 500  $\mu$ m, l'intensité du champ amplifié étant très faible, les dipôles créés ne le sont que par l'impulsion harmonique donc pendant un temps très court. Ils continuent ensuite à émettre pendant un temps



FIGURE 5.2 – Évolution des caractéristiques du milieu et du champ en régime non-saturé

 $T_2$  en suivant une exponentielle décroissante. On peut retrouver ce résultat analytiquement en négligeant l'amplitude du champ après le passage de l'harmonique dans la 2<sup>e</sup> équation (sur le dipôle) du système 5.15. On peut vérifier que cette amplitude est bien négligeable sur la figure 5.2(c). Lorsque l'amplitude du champ amplifié augmente, pour des longueurs d'amplification de 500  $\mu$ m et 1 mm, le rayonnement émis par les dipôles situés à des distances inférieures affectent le rayonnement et les variations de la polarisation suivent celles de l'amplitude avec une certaine inertie.

On retrouve sur les variations de l'intensité du champ l'allure attendue, où le rayonnement généré par les dipôles s'accumule à l'arrière du pic harmonique. On va maintenant s'intéresser aux distances supérieures à 1 mm et au régime de saturation.

#### Régime saturé et oscillations de Rabi

On donne maintenant les évolutions de l'inversion de population, de la polarisation et de l'amplitude du champ pour des longueurs de propagation z supérieures à 1 mm. On constate donc que l'effet de dépeuplement du niveau supérieur de la transition augmente. À partir d'une longueur  $z = 2 \,\mathrm{mm}$ , l'inversion de population devient même négative avant de re-croître sous l'effet du pompage. Pour une longueur de 3 mm, l'intensité du champ est telle que l'inversion de population va osciller temporellement autour de la valeur nulle du fait de la compétition entre le dépeuplement par le champ et le repeuplement par pompage, permis puisque suite au dépeuplement, l'intensité du champ est momentanément plus faible. On s'attend à voir ce phénomène prendre de plus en plus d'importance au fur et à mesure de l'amplification, le champ devenant de plus en plus intense. Ceci semble confirmé par les oscillations de l'inversion de population observées à une longueur de 4 mm, de fréquence et d'amplitude plus élevée. On observe des variations similaires pour la polarisation du milieu. À partir d'une distance de 2 mm, celle-ci est affectée par les oscillations de l'inversion de population et son amplitude diminue jusqu'à devenir nulle voire négative pour  $z = 4 \,\mathrm{mm}$ , ce qui correspond à un milieu absorbant. Ceci signifie que la puissance que le milieu peut transmettre au rayonnement dans une zone donnée est limitée. L'amplitude du champ n'est en revanche que peu affectée par ce phénomène, bien qu'on commence à noter des déformations du profil pour une longueur de 4 mm.

On peut observer plus finement ce phénomène en se plaçant à une longueur d'amplification plus importante correspondant à un milieu fortement saturé. La figure 5.4 donne les évolutions des mêmes grandeurs après une amplification sur 6 mm, ce qui correspond à la longueur nominale de



FIGURE 5.3 – Évolution des caractéristiques du milieu et du champ en régime saturé

notre cellule de gaz. Les variations de l'inversion de population confirment définitivement le fait que les oscillations observées dépendent de la longueur d'amplification *via* l'intensité du champ. Les variations de la polarisation suivent celles de l'inversion de population avec un certain retard dû à l'intégration du rayonnement sur toute la longueur parcourue. On constate maintenant l'apparition de modulations de l'amplitude du champ. Les maxima du champ correspondent aux minima (valeurs négatives) de l'inversion de population (et inversement). On n'observe donc pas de retard entre ces grandeurs, ce qui montrent leur forte interdépendance.



FIGURE 5.4 – Évolution des caractéristiques du milieu et du champ à une longueur z = 6 mm

On peut interpréter ces oscillations en simplifiant le système 5.15. Commençons par négliger les temps de relaxation du dipôle et de l'inversion de population, ceux-ci étant plus longs que la période (< ps) des oscillations observées. Les équations sur W et D deviennent alors, à une distance z donnée :

$$\dot{D} = \frac{\omega |\mathbf{M}|^2}{4\hbar} AW$$
 et  $\dot{W} = -\frac{3}{2\hbar} AD$  (5.16)

Dans la 1<sup>re</sup> équation on constate que A est relié à D par une intégration selon z. Son taux de variation temporel est donc plus faible, et on va négliger les termes en  $\partial A/\partial t$  devant ceux en  $\partial D/\partial t$  et  $\partial W/\partial t$ . Les deux équations précédentes se simplifient alors en :

$$\ddot{D} = \frac{3|\mathbf{M}|^2}{4\hbar^2} ID \qquad \text{et} \qquad \ddot{W} = \frac{3|\mathbf{M}|^2}{4\hbar^2} IW \tag{5.17}$$

où I est l'intensité du champ. Ceci correspond à un mouvement oscillatoire à la fréquence  $\Omega_R$  dite

fréquence de Rabi, donnée par :

$$\Omega_R = \sqrt{\frac{3|\mathbf{M}|^2}{4\hbar^2}I} = \sqrt{\frac{1}{T_1 T_2} \frac{I}{I_{sat}}}$$
(5.18)

Les oscillations sont les oscillations des populations atomiques d'un système à deux niveaux sous l'effet d'un champ externe. On vérifie grâce à cette équation que la fréquence des oscillations augmentent avec l'intensité du champ résonant. Les oscillations observées sont donc anharmoniques, leur fréquence dépendant de l'amplitude du champ. Celle-ci ayant globalement tendance à diminuer après une rapide augmentation, la période des oscillations est plus longue à des temps plus élevés. On peut le constater sur la figure 5.4. On peut par contre supposer que pour une amplification très fortement saturée, les variations de l'amplitude seront beaucoup plus importantes et de période variable. Les oscillations observées sont également amorties du fait des temps de relaxation  $T_1$  et  $T_2$ . Pour plus de détails sur les oscillations de Rabi dans un amplificateur XUV, on peut se reporter à [163].

#### 5.1.3 Simulations semi-3D

Maintenant que nous avons vu les principaux phénomènes attendus dans le cas de l'amplification de l'harmonique par un milieu à gain idéal, nous allons pouvoir nous intéresser à des cas plus concrets, auxquels nous pourrions avoir accès expérimentalement. Nous allons nous baser sur la méthode décrite au chapitre précédent. Brièvement, on rappelle qu'il s'agit de considérer un milieu à gain présentant une symétrie cylindrique calculé par le code propagation OFI-PROP injecté par un rayonnement harmonique dont le champ (amplitude et phase) a été déduit des mesures expérimentales faites à l'aide du senseur de front d'onde. Le champ résultant est calculé à partir d'une décomposition sur des modes azimutaux, et, puisque nous avons pu constater au chapitre précédent que ce dernier présentait une très forte symétrie radiale, on ne déduira l'allure temporelle du rayonnement amplifié que du mode 0 (symétrie radiale). Le gain de l'amplificateur dépendant notamment de la coordonnée radiale, de même que l'intensité de l'harmonique injectée, les variations temporelles du champ amplifié ne seront pas les mêmes en chaque point du faisceau. Afin de tenir compte des contraintes expérimentales, elles seront intégrées sur l'ensemble du profil spatial.

On donne en figure 5.5 l'allure temporelle de l'impulsion calculée dans les conditions usuelles, une pression de krypton de 30 mbar, une longueur de cellule de 6 mm, et une harmonique injectée dans l'amplificateur après un délai de 3 ps à une intensité de  $5 \times 10^8 \,\mathrm{W/cm^2}$ .

On constate donc que ce profil temporel ne correspond pas réellement à celui obtenu dans le cas d'un amplificateur idéal homogène sur la longueur (Fig. 5.4(b)). Une cause de cela est l'intégration spatiale, qui fait que d'éventuelles modulations de l'intensité du champ obtenues au centre du faisceau, plus saturé car injecté par une harmonique plus intense, risqueraient d'être atténuées. Ceci n'est néanmoins pas suffisant pour expliquer l'absence de ces modulations. La raison la plus valable est que le milieu amplificateur n'est pas homogène sur la longueur de la cellule. Nous avons vu au chapitre précédent que d'une part, le milieu à gain présente une zone non amplificatrice proche de l'axe, ce qui raccourcit d'autant sa longueur, et d'autre part qu'il subsiste à l'arrière de la cellule une zone sous-ionisée ne présentant donc aucun gain à 32.8 nm. Pour toutes les simulations semi-3D présentées dans ce chapitre, l'intensité du champ infrarouge générant le plasma a été fixée à  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. Dans ces conditions, la longueur effective de la zone de gain pour cette simulation



FIGURE 5.5 – Calcul semi-3D de l'évolution temporelle de l'intensité du champ XUV amplifié dans les conditions usuelles (30 mbar de krypton, cellule de 6 mm et injection de l'harmonique 3 ps après la création de l'amplificateur)

est de l'ordre de 3.5 mm (sur l'axe de propagation). Si on se réfère à la figure 5.3(c) plus haut, on constate que le profil en amplitude donné pour une longueur de 3 mm est proche de celui présenté pour cette simulation semi-3D. Si on se réfère à l'étude effectuée plus haut, on peut noter les signes de la saturation sur ce profil : la présence, vers 1-2 ps, d'une chute d'intensité plus rapide que celle attendue dans le cas non saturé, suivi d'une diminution beaucoup plus douce. On ne s'attend donc pas à observer des oscillations de Rabi sur le profil temporel d'intensité dans nos conditions expérimentales.

Nous avons donc finalement une impulsion de durée à  $1/e^2$  de 4.3 ps (FWHM 1.3 ps) présentant un profil relativement régulier. Cette durée est proche de la durée du gain de l'amplificateur dans ces conditions (5-6 ps).

Nous ne présenterons pas d'autres résultats de simulations semi-3D pour l'instant, ceux-ci seront donnés au fur et à mesure dans ce chapitre afin de pouvoir les comparer plus aisément aux mesures du temps de cohérence temporelle. Bien que celui-ci ne reflète pas rigoureusement la durée réelle de l'impulsion, la comparaison est toujours intéressante. Nous verrons de plus que dans certains cas nous pourrons assimiler temps de cohérence et durée de l'impulsion. Nous disposons donc maintenant d'une estimation de la durée de l'impulsion émise dans nos conditions standard, que nous chercherons à la confirmer par la suite.

# 5.2 Principe de la mesure de cohérence temporelle

Puisque nous ne disposons pas d'un diagnostic expérimental de mesure de la durée de l'impulsion XUV, nous avons choisi une méthode basée sur la mesure de la cohérence temporelle de cette impulsion, qui nous fournira donc une borne inférieure à la valeur de la largeur temporelle de l'impulsion. L'autre intérêt de la connaissance de la cohérence temporelle de l'impulsion est qu'elle permet comme nous le verrons de déterminer sa largeur spectrale.

#### 5.2.1 Mesure par interférométrie à différence de marche variable

La cohérence temporelle de l'impulsion décrivant la relation de phase entre deux points de l'impulsion séparés dans le temps, ou encore la capacité des rayons issus de ces points à interférer, elle peut être étudiée par interférométrie [190] [191] [192]. Plus précisément, la capacité de l'impulsion à interférer avec une version d'elle même décalée dans le temps nous donnera son degré de cohérence temporelle. Sa mesure peut donc passer par une expérience d'interférométrie longitudinale à différence de marche variable. Il faut donc d'une part disposer d'interféromètres adaptés au domaine XUV (notamment en ce qui concerne l'efficacité), mais également que la visibilité mesurée des franges soit effectivement proportionnelle au degré de cohérence temporelle. L'introduction de la différence de marche, ou encore délai entre les impulsions, ne doit pas modifier la géométrie du système afin que la perte de visibilité attendue pour des délais croissants ne soit pas également due à une perte de cohérence spatiale. Il est possible d'envisager l'utilisation d'interféromètres à division d'amplitude (avec lames séparatrices XUV) ou à division de front d'onde (avec miroirs en incidence rasante).

Les interféromètres à division d'amplitude reprennent le principe d'interféromètres classiques, comme celui de Michelson ou de Mach-Zehnder, dans le domaine XUV. Les interférences sont générées par la recombinaison de deux faisceaux secondaires issus de la division d'amplitude du faisceau principal. La division d'amplitude s'effectue typiquement par une lame séparatrice, ou par un dispositif équivalent comme la séparation dans deux ordres différents d'un réseau de diffraction. L'avantage de ces dispositifs est que le contraste des franges dépend peu de la cohérence spatiale du rayonnement, et l'introduction d'une différence de marche ne modifie *a priori* pas la superposition des faisceaux secondaires. L'inconvénient principal reste la faible efficacité des lames semi-réfléchissantes qui conduit à des pertes d'énergie importantes.

Les interféromètres à division de front d'onde produisent des interférences issues de la superposition de deux faisceaux composés de deux parties spatialement distinctes du faisceau principal. Le dispositif des trous d'Young reste l'exemple le plus marquant de cette catégorie d'interféromètres. Dans le domaine XUV, les interféromètres à division de front d'onde se basent sur l'utilisation de miroirs en incidence rasante, qui possèdent les avantages d'avoir une réflectivité élevée, une bonne qualité de surface et une faible monochromaticité. L'exemple le plus connu de ce type d'interféromètre est l'interféromètre à bi-miroirs de Fresnel dont le principe est donné en figure 5.6).

Il comporte deux miroirs en incidence rasante disposés en "livre ouvert". Après réflexion sur ce dispositif, le faisceau incident est séparé en deux faisceaux convergents qui vont créer un champ d'interférence s'ils sont mutuellement cohérents. Pour cela, la longueur de cohérence spatiale du



FIGURE 5.6 – Principe de l'interféromètre à bi-miroir de Fresnel, (a) sans et (b) avec basculement de l'un des deux miroirs

faisceau doit être plus grande que la distance séparant les deux portions qui se recouvrent. Comme il a été vu au chapitre précédent, le faisceau XUV obtenu par amplification possède une excellente cohérence spatiale. Dans le cas du faisceau XUV provenant de l'ASE, une cohérence spatiale suffisante pour permettre la création d'un champ d'interférences sera obtenue en se situant loin de la source.

#### 5.2.2 Interféromètre à bi-dièdres de Fresnel

L'interféromètre que nous avons utilisé pour mesurer la cohérence du faisceau à 32.8 nm est une variante de celui décrit précédemment [193]. La paire de miroirs y est remplacée par une paire de dièdres comme le montre la figure 5.7. Afin de permettre l'introduction d'une différence de marche entre les deux sous-faisceaux, l'un des deux dièdres est mobile par rapport à l'autre. L'entrée de l'interféromètre est située à 4 m de la source afin d'avoir une longueur de cohérence spatiale suffisante pour permettre l'observation de franges dans le cas de l'ASE.

Les caractéristiques principales de l'interféromètre sont résumées dans le tableau 5.1. L'angle de rasance sur les dièdres est de  $\alpha = 6^{\circ}$ , ce qui assure une bonne réflectivité du rayonnement à 32.8 nm. L'angle formé par les deux dioptres d'un dièdre est de  $\pi - 2\alpha$ , de sorte que l'angle de rasance sur le deuxième dioptre des dièdres est de 6° également. L'angle de sortie est alors de  $4\alpha$ , et un miroir de renvoi en silice en incidence rasante de 6° permet de ramener la direction du faisceau de sortie plus proche de l'axe du faisceau incident afin de faciliter la mise en place du détecteur. Ce détecteur est une caméra CCD possédant une matrice de  $1024 \times 1024$  pixels de  $13 \,\mu$ m de côté.

Notons  $\theta$  l'angle introduit entre les deux dièdres. La figure 5.8 permet d'avoir une vue globale de l'interféromètre. Les deux faisceaux réfléchis auront alors entre eux un angle  $\epsilon \simeq 4\alpha\theta$ . L'interfrange vu par une caméra dont le capteur est orthogonal à la direction des faisceaux est alors  $i = \lambda/\epsilon$ . Pour un angle  $\alpha = 2$  mrad tel que nous l'avons choisi pour optimiser le recouvrement des deux faisceaux, l'interfrange est de 35  $\mu$ m, ce qui est trop faible par rapport à la taille des pixels (13  $\mu$ m). Afin de remédier à cela, la caméra est inclinée d'un angle de 20°, ce qui permet d'augmenter l'interfrange



FIGURE 5.7 – (a) Principe de l'interféromètre à bi-dièdres utilisé pour la mesure de la cohérence temporelle et (b) une photographie du système

L	Longueur d'un dièdre	80 mm
L	Largeur d'un dièdre	$15\mathrm{mm}$
$\theta$	Angle entre les deux dièdres	2 mrad
$\alpha$	Angle de rasance du faisceau incident	$6^{\circ}$
$\epsilon$	Angle entre les deux sous-faisceaux	$\epsilon \simeq 4\alpha\theta \simeq 1mrad$
β	Angle d'inclinaison de la caméra	$20^{\circ}$
i	Interfrange vu par la caméra	$i \simeq \lambda/\epsilon \sin\beta \simeq 120 \mu\mathrm{m}$
δ	Différence de marche entre les deux faisceaux	$\delta = 2z\sin(2\alpha)$

TABLE 5.1 – Paramètres principaux de l'interféromètre

à 120 µm par anamorphose. Enfin, la différence de marche entre les deux faisceaux est donnée par  $\delta = 2z \sin(2\alpha)$  où z représente la translation du dièdre mobile.



FIGURE 5.8 – Vue de profil de l'interféromètre

Pour terminer la description de cet interféromètre, il convient de préciser la raison de l'utilisation de dièdres à la place de simples miroirs plans. Dans un système à deux miroirs de Fresnel, la translation verticale de l'un par rapport à l'autre va induire une translation verticale du sousfaisceau réfléchi. Les deux sous-faisceaux n'auront ainsi pas la même cohérence spatiale, et cet écart de cohérence spatiale va augmenter avec la translation introduite. L'utilisation de dièdres permet de s'affranchir de cela et d'effectuer des mesures à cohérence spatiale constante.

#### 5.2.3 Détermination de la cohérence temporelle

Pour toutes ces mesures, nous avons effectué plusieurs acquisitions pour chaque valeur de la différence de marche (de 3 à 15), et la mesure de la visibilité des franges à une différence de marche donnée reportée sur les graphiques représente la moyenne des valeurs obtenues grâce à chaque image (et la barre d'erreur l'écart type). La figure 5.9 représente un interférogramme typique obtenu en régime injecté, pour une différence de marche nulle.



FIGURE 5.9 – (a) Interférogramme classique obtenu en régime injecté et (b) une coupe transverse avec moyennage

La figure 5.9(b) représente une coupe dans la direction perpendiculaire aux franges. Notons que l'interfrange mesuré sur la caméra est de  $105 \,\mu$ m. La détermination des maxima et des minima peut être une méthode pour déterminer le contraste des franges de cette image. Rappelons la définition de la visibilité (ou contraste) :

$$V = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \tag{5.19}$$

où  $I_{min}$  et  $I_{max}$  sont respectivement les intensités minimale et maximale des franges de l'interférogramme.

Néanmoins, cette méthode ne tient pas compte de toutes les franges présentes. Nous avons plutôt choisi d'utiliser une méthode basée sur la transformée de Fourier des franges. En effet rappelons que pour une image composée de franges on peut écrire l'intensité comme :

$$I(x) = I_0 + I_1 \cos(2\pi\nu_1) \tag{5.20}$$

La visibilité des franges est alors donnée par :

$$V = \frac{I_1}{I_0} \tag{5.21}$$

Dans le domaine spectral, on a :

$$\left|\tilde{I}(\nu)\right|^{2} = I_{0}^{2} \,\delta(\nu) + \frac{I_{1}^{2}}{4} \left[\delta(\nu - \nu_{1}) + \delta(\nu + \nu_{1})\right]$$
(5.22)

où  $\delta$  représente la distribution de Dirac. L'image dans le domaine spectral est donc composée de trois pics, un associé à la composante continue et les deux autres aux franges. La détermination numérique de l'amplitude des composantes spectrales permet alors de remonter jusqu'à la visibilité des franges. On s'aperçoit également que la soustraction du fond est une étape essentielle et que son omission conduit à une sous-estimation de la visibilité. Il est déterminé en mesurant le signal moyen dans les zones de l'interférogramme hors-superposition.Voici le détail de la méthode que nous avons utilisée :

- 1. On définit une région d'intérêt composée uniquement de franges (et comportant le plus de franges possibles) à partir de l'image brute issue de la caméra
- 2. Dans cette région, on sélectionne une petite fenêtre comportant quelques franges (typiquement 20 pixels de côté)
- 3. Après soustraction du fond, on calcule la transformée de Fourier de l'image sur cette fenêtre
- 4. On peut alors calculer la visibilité des franges sur cette fenêtre
- 5. On translate alors la fenêtre d'un pixel et on recommence les étapes précédentes jusqu'à avoir couvert toute la région d'intérêt

Cette méthode permet de construire une carte de la visibilité des franges et permet ainsi quelques statistiques sur cette grandeur. La figure 5.10 donne la carte de la visibilité des franges calculée par cette méthode, et l'histogramme de cette dernière. La carte ne semble pas présenter de structure particulière récurrente pour différentes images, et on peut constater que la visibilité peut varier sensiblement d'un point à l'autre du faisceau. Nous considérons que ces variations sont dues à des variations d'intensité entre les deux points des sous-faisceaux qui interfèrent. En effet, en un point donné, le contraste des franges dépend du degré de cohérence mais également du rapport entre les intensités locales :  $V \propto \frac{2\sqrt{\eta}}{1+\eta}$ , où  $\eta$  est le rapport en question. Dans ce cas, la valeur de contraste pertinente est le contraste maximal mesuré sur la carte.



FIGURE 5.10 – Visibilité des franges déterminée par transformée de Fourier

La caractérisation complète de la cohérence temporelle de l'impulsion est obtenue en mesurant la variation de la visibilité des franges avec le retard entre les deux sous-faisceaux. La figure 5.11 donne le résultat de cette mesure dans les conditions optimales, c'est-à-dire une longueur de cellule de 6 mm et une pression de krypton de 30 mbar dans le cas du régime ASE (Fig. 5.11(a)) et dans le cas du régime injecté (Fig. 5.11(b)). Dans le cas de l'ASE, l'imprécision sur la mesure est assez élevée du fait du faible rapport signal-à-bruit obtenu. La soustraction du fond est également une étape encore plus critique.



FIGURE 5.11 – Évolution de la visibilité des franges avec la différence de marche entre les deux sous-faisceaux

Comme attendu, la visibilité des franges décroît lentement avec le retard entre les deux impulsions. On peut à ce stade faire deux remarques ; tout d'abord, la visibilité à différence de marche nulle n'est pas de 1, mais plutôt de 0.8. La cohérence spatiale du faisceau étant relativement bonne, ceci est plus probablement dû à des artefacts expérimentaux comme un mauvais rapport signal-àbruit, ou une soustraction de fond non optimale. Cela n'a en revanche aucun impact sur le résultat des études présentées ci-après, dans lesquelles nous nous intéressons aux variations du contraste, et non à sa valeur absolue. Ensuite, l'alignement du faisceau dans le spectromètre et les réglages de ce dernier ont eu pour conséquence l'impossibilité d'observer tout le champ d'interférences pour une différence de marche supérieure à 6-6.5 ps. Cela ne posera pas de réel problème par la suite, la partie intéressante des courbes se situant plutôt avant cette valeur.

La courbe en trait plein représente le résultat d'un fit numérique par la fonction composée du produit d'une exponentielle décroissante et d'une gaussienne :

fit = 
$$V_0 \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_L}\right) \exp\left(-\frac{\tau^2}{\tau_G^2}\right)$$
 (5.23)

où  $\tau$  représente la différence de marche temporelle, ou retard, entre les deux sous-faisceaux. Cette fonction présente l'avantage de pouvoir décrire de manière très générale la décroissance du contraste, à l'inverse des fonctions gaussienne ou exponentielle seules qui ont une allure très typée. Nous verrons plus loin que dans le domaine spectral, cette fonction correspond à un profil de Voigt. Ce fit va également nous permettre de définir le temps de cohérence de l'impulsion  $\tau_c$ . On le choisit comme étant la différence de marche à laquelle le contraste chute à 1/e de sa valeur maximale.

Dans ce cas précis, l'impulsion en régime ASE possède un temps de cohérence de :

$$\tau_c^{A\!S\!E} = 5.9 \pm 0.6\,\mathrm{ps}$$

et en régime injecté :

$$\tau_c^{inject\acute{e}} = 5.1 \pm 0.2 \,\mathrm{ps}$$

La précision sur la mesure est donnée par la précision sur le fit.

# 5.3 Largeur spectrale du laser XUV en régime injecté et ASE

Nous allons présenter ici l'ensemble des mesures de cohérence temporelle réalisées, et relier ces données à la mesure de la largeur spectrale de l'impulsion XUV. Notons qu'une mesure de la cohérence temporelle des harmoniques n'aurait que peu d'intérêt. En effet, en plus de l'effet de brouillage des franges dû à la polychromaticité de l'impulsion harmonique, la durée de l'impulsion attendue est de l'ordre de la dizaine de fs, ce qui est inférieur à la précision dont nous disposons sur la translation du dièdre mobile.

#### 5.3.1 Cohérence temporelle, largeur spectrale et durée d'impulsion

Dans notre cas particulier, rappelons que le théorème de Wiener-Khinchin stipule que la densité spectrale de rayonnement  $\rho(\nu)$  est donnée par la transformée de Fourier de sa fonction d'autocorrélation, à savoir de la fonction  $\mathcal{V}(\tau)$  décrivant l'évolution de la visibilité des franges avec la différence de marche :

$$\rho\left(\nu\right) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{V}\left(\tau\right) e^{-2i\pi\nu\tau} d\tau \tag{5.24}$$

Précisons que la fonction  $\mathcal{V}$  est effectivement définie pour des délais négatifs, et est paire. Nous allons donc pouvoir déduire de la mesure de  $\mathcal{V}(\tau)$  le spectre de l'impulsion en calculant la transformée de Fourier de notre fit. Le profil spectral résultant sera alors donné par le produit de convolution d'une fonction lorentzienne et d'une gaussienne, c'est-à-dire un profil de Voigt, très largement répandu pour modéliser les raies spectrales en spectroscopie.

La figure 5.12 donne les profils spectraux de l'impulsion en régime ASE et en régime injecté. On peut en déduire la largeur de la raie dans chaque cas. On a pour le régime ASE :

$$\Delta \nu_{ASE} = 74 \pm 8 \,\text{Ghz}$$
 soit  $\Delta \lambda_{ASE} = 2.6 \pm 0.4 \,\text{m}\text{\AA}$ 

et pour le régime injecté :

$$\Delta \nu_{inject\acute{e}} = 88 \pm 6 \,\mathrm{Ghz}$$
 soit  $\Delta \lambda_{inject\acute{e}} = 3.1 \pm 0.3 \,\mathrm{m}$ Å

Ces valeurs représentent les valeurs de la largeur à mi-hauteur de la raie. On remarque une légère différence entre les largeurs de raie pour chaque régime. Amplifier une harmonique revient à avoir un spectre avant amplification beaucoup plus large (typiquement de l'ordre de 1 Å), ce qui, bien que nous verrons plus loin que le rétrécissement spectral par le gain est extrêmement fort, est la cause la plus probable à cette différence. Néanmoins, cette différence de largeur de raie reste dans l'imprécision de la mesure.

Il peut être intéressant de regarder de plus près ces valeurs mesurées. Le temps de cohérence de l'impulsion en régime injecté est de l'ordre de 5 ps. Ceci nous donne une borne inférieure de la durée de cette impulsion. Rappelons maintenant que nous avons mesuré et calculé la durée du gain de l'amplificateur (*cf* chapitre 3). Si l'on considère la figure 3.22 donnant le calcul de l'évolution temporelle du gain et la mesure de l'amplification en fonction du délai d'injection à une pression de krypton de 30 mbar, on s'aperçoit que 5-6 ps après le moment d'injection de l'harmonique dans le plasma, il ne reste que très peu de gain dans le milieu. On peut considérer que la durée maximale



FIGURE 5.12 – Profil spectral de la raie laser en régime ASE et injecté

de l'impulsion est limitée par la durée du gain de l'amplificateur, soit 5-6 ps. Cette valeur étant quasi-identique à la valeur de la cohérence temporelle de l'impulsion, on considère alors qu'elle a une cohérence longitudinale totale, et donc que sa durée est limitée par transformée de Fourier. On a donc :

$$\Delta t_{pulse} \simeq 5 \, ps$$

Notons que cette valeur est très proche de celle calculée par le code COFIXE\_MB dans le cas de la simulation semi-3D présentée en début de chapitre.

#### 5.3.2 Modélisation

Nous avons vu dans le chapitre 2 qu'il existe dans le milieu amplificateur deux sources d'élargissement :

- L'élargissement homogène, déterminé par la durée de vie des différents niveaux intervenant dans la transition; il conduit à un profil lorentzien de largeur  $\Delta \lambda_L = 5.7 \text{ mÅ}$
- L'élargissement inhomogène, dans notre cas essentiellement élargissement Doppler lié à l'agitation ionique du milieu; il conduit à un profil gaussien de largeur  $\Delta \lambda_D = 6.7 \text{ m}\text{\AA}$

Nous avons également vu que l'effet de l'amplification sur la largeur spectrale peut être évalué en résolvant l'équation 2.27. Le modèle développé par Koch *et al.* a été adapté afin de calculer la largeur spectrale du rayonnement émis en régime ASE ou injecté. Dans le cas de l'ASE, les calculs sont simplifiés en supposant que le plasma ne rayonne pas dans tout son volume, mais plutôt en injectant en entrée un signal très faible de profil spectral donné par la convolution des profils homogène et Doppler et d'intensité donnée par l'émissivité du plasma. L'évolution de la largeur de la raie en fonction de la longueur d'amplification est représentée sur la figure 5.13 pour un fonctionnement en régime ASE. Dans le domaine où l'amplification est exponentielle, la largeur de raie avant amplification est divisée par un facteur de l'ordre de  $\sqrt{gL}$ où gL est le produit gain-longueur effectif. Cette évolution prend fin lorsque la saturation devient importante. La largeur de raie peut ensuite ré-augmenter si la température ionique qui détermine l'élargissement Doppler est élevée. Le calcul a été réalisé pour un gain de  $60 \text{ cm}^{-1}$ , une largeur homogène de 5.7 mÅ et différentes températures ioniques. On n'observe aucun ré-élargissement de la raie à une température ionique de 6 eV (pression de krypton de 30 mbar) ou de 9 eV (pression de 100 mbar) en raison de l'importante contribution de l'élargissement homogène face à l'élargissement Doppler. En revanche, pour une température ionique de 50 eV (donnant un élargissement Doppler de 20 mÅ), le ré-élargissement de la raie devient significatif. Finalement, pour un plasma de Kr<sup>8+</sup> créé à partir d'une pression de gaz de 30 mbar, la largeur spectrale finale de la raie ASE est de 2.5 mÅ.



FIGURE 5.13 – Évolution de la largeur spectrale en régime ASE avec la longueur d'amplification, calculée pour différentes températures ioniques

On présente également le résultat du calcul en régime injecté sur la figure 5.14. Nous avons pris en compte un gain de  $60 \text{ cm}^{-1}$  et une intensité harmonique telle que le facteur d'amplification soit de 200, valeur mesurée expérimentalement pour une longueur de cellule de 6 mm. Nous avons également supposé une largeur spectrale de l'harmonique égale à 0.1 nm. Dans les deux cas, la simulation montre que la largeur spectrale diminue tout d'abord très rapidement durant l'amplification jusqu'à ce que le régime de saturation soit atteint (après 2-3 mm de propagation) puis beaucoup plus lentement. Nous donnerons plus de détails sur ce phénomène plus loin. Aucun réélargissement par la saturation n'est observé du fait de l'importante contribution de l'élargissement homogène. La largeur spectrale de l'impulsion à la sortie du plasma est de 3.15 mÅ en régime injecté et de 2.5 mÅ en régime ASE, ce qui correspond bien aux valeurs mesurées expérimentalement.



FIGURE 5.14 – Calcul de la largeur spectrale du laser XUV en régime ASE et injecté en fonction de la longueur d'amplification

D'après ce modèle, la faible valeur de la largeur spectrale résulte des effets relativement faibles de l'élargissement homogène et inhomogène, ce dernier étant lié à la faible température ionique du plasma. Ce modèle montre également que la saturation est dominée par l'élargissement homogène. Celui-ci étant directement relié à la durée de vie des niveaux, ce pourrait être l'explication au fait que l'impulsion est limitée par transformée de Fourier. On pourrait s'attendre à des résultats différents dans le cas des lasers XUV par plasma issu d'une cible solide qui présentent des températures ioniques beaucoup plus élevées et donc un élargissement inhomogène plus important.

Remarquons enfin que le modèle confirme la valeur inférieure de largeur spectrale du laser XUV en régime ASE. L'injection d'harmonique exploite l'ensemble de la population des ions lasants, extrayant plus d'énergie et permettant d'atteindre une largeur spectrale plus importante.

#### 5.3.3 Rétrécissement spectral par le gain laser

Comme nous avons pu le voir précédemment, la largeur spectrale de l'impulsion diminue fortement au fur et à mesure de sa propagation dans le milieu amplificateur. Nous avons mesuré la cohérence temporelle de l'impulsion XUV en régime injecté pour différentes longueurs de cellule afin de vérifier ces prédictions. La figure 5.15 présente l'ensemble de ces mesures pour des longueurs de cellule de 1, 2, 4 et 6 mm et une pression de krypton de 30 mbar. Nous n'avons pas pu effectuer de mesure en utilisant une cellule plus courte à cause du faible signal obtenu. Précisons que nous avons gardé constante la position du point focal dans la cellule (pas de ré-optimisation) pour chaque longueur, afin de pouvoir réellement décrire l'amplification selon la distance parcourue dans le même milieu à gain.



FIGURE 5.15 – Évolution de la visibilité des franges avec la différence de marche pour différentes longueurs de cellule

Nous pouvons constater que pour une longueur de cellule de 1 mm, la mesure est beaucoup moins précise, comme dans le cas de l'ASE. Un manque de signal est l'origine de ce problème, et on lui attribue également la plus faible visibilité à différence de marche nulle. Les courbes en trait plein sont le résultat d'un fit par la fonction 5.23. Le tableau 5.2 résume l'évaluation du temps de cohérence de l'impulsion pour chaque longueur de cellule. S'il ne varie que très peu entre 2 et 6 mm de propagation, il est tout de même clairement inférieur ( $\simeq$ ps) après seulement 1 mm de propagation. Le spectre de l'impulsion a été calculé à partir de la relation 5.24 dans chaque cas et les résultats sont représentés sur la figure 5.16.

Le spectre harmonique n'est pas représenté sur cette figure mais rappelons qu'il a une largeur de l'ordre de l'angström, donc beaucoup plus large que le spectre après seulement 1 mm de propagation. Du fait de la très faible largeur spectrale de la transition laser, l'harmonique est sujette à un très fort rétrécissement spectral qui –à cause du très fort coefficient de gain du milieu– prend place sur les premiers microns de propagation. En effet, bien que plus large après 1 mm d'amplification, la bande spectrale de l'impulsion est du même ordre de grandeur que lorsque la saturation est atteinte, vers 2 mm environ. Le tableau 5.2 résume également les mesures de largeur spectrale pour chaque longueur de cellule. Notons enfin que la forme du spectre évolue clairement durant l'amplification, passant d'un spectre quasi-gaussien à 1 mm à un spectre quasi-lorentzien à partir



FIGURE 5.16 – Spectre de l'impulsion en fonction de la longueur de la cellule

de 4 mm d'amplification (ceci est plus visible sur les courbes d'évolution du contraste). Ceci est à relier aux contributions des différentes sources d'élargissement, et suggère qu'au début de l'amplification, l'élargissement Doppler (profil spectral gaussien) prédomine et qu'à la saturation, donc pour des longueurs d'amplification plus importantes, la source d'élargissement prédominante est l'élargissement homogène (profil spectral lorentzien) du milieu. On s'attend à retrouver dans une certaine mesure la forme du profil spectral de l'élargissement dans le profil spectral de l'impulsion, ce que l'on constate alors ici. La prédominance de l'élargissement naturel à la saturation est également cohérente avec le fait que l'on n'y observe pas de réélargissement spectral.

Longueur de cellule	Temps de cohérence	Largeur spectrale
0 (harmonique non amplifiée)	qq $10^{\text{aines}}$ de fs	$1.5\pm0.3\text{\AA}$
$1\mathrm{mm}$	$3.9\pm0.6ps$	$4.7\pm0.6m {\rm \AA}$
$2\mathrm{mm}$	$4.8\pm0.3~\mathrm{ps}$	$3.9\pm0.4m {\AA}$
$4\mathrm{mm}$	$5.1\pm0.2~\mathrm{ps}$	$3.3\pm0.3m{\rm \AA}$
$6\mathrm{mm}$	$5.1\pm0.2\mathrm{ps}$	$3.1\pm0.3\mathrm{m}\mathrm{\AA}$

TABLE 5.2 – Temps de cohérence et largeur spectrale de l'impulsion en fonction de la longueur de plasma

Note sur la définition du temps de cohérence et de la largeur spectrale : Le choix de définir le temps de cohérence comme la différence de marche à laquelle on observe une chute de contraste donnée (1/e ici), ou la largeur spectrale à mi-hauteur du profil, fait que ces grandeurs vont dépendre du profil utilisé pour modéliser l'évolution de contraste des franges. On constate ici que ce profil peut varier entre une fonction quasi-exponentielle et une gaussienne. Il peut alors se révéler judicieux de choisir une définition plus objective pour ces grandeurs. On peut par exemple considérer la largeur quadratique [171], qui est donnée pour le temps de cohérence par exemple :

$$\tau_c^{RMS} = \sqrt{\frac{\int_0^\infty \tau^2 V^2(\tau) d\tau}{\int_0^\infty V^2(\tau) d\tau}}$$
(5.25)

La figure 5.17 donne la comparaison des temps de cohérence et largeur spectrale quadratiques avec ceux définis comme précédemment. On constate que seules les valeurs changent, les tendances restant les mêmes. On gardera donc par la suite la définition à 1/e pour le temps de cohérence et la largeur à mi-hauteur pour la largeur spectrale.



FIGURE 5.17 – Temps de cohérence et largeur spectrale quadratiques : rétrécissement spectral par le gain

Nous avons modélisé ce rétrécissement spectral en utilisant le même code que précédemment  $(cf \S 5.3.2)$  en régime injecté. Nous rappelons ici les différents paramètres pris en compte :

- un gain de  $60 \,\mathrm{cm}^{-1}$
- une largeur spectrale de l'harmonique de  $0.15\,\mathrm{nm}$
- une intensité harmonique telle que le facteur d'amplification soit de 200, valeur expérimentale
- une largeur Doppler de 7 mÅ et homogène de 5 mÅ, comme vu au chapitre 2

La figure 5.18 présente le résultat de la simulation avec le report des points expérimentaux. Sur cette même figure ont été également reportés (axe y de droite) la mesure et la simulation des variations de l'intensité XUV en sortie avec la longueur du plasma (cf chapitre 3). Le long du premier millimètre de propagation, on n'observe aucune amplification. Ceci est dû au fait que seule une très fine tranche spectrale de l'harmonique est amplifiée. On n'observe pas d'amplification car tant les mesures expérimentales que le code numérique résultent d'une intégration sur une certaine bande spectrale plus large que la largeur de la raie laser. Cette zone peut être définie comme la longueur de gain matching, ou longueur d'accord de gain, le long de laquelle l'effet du gain est d'accorder la bande spectrale de l'impulsion qui se propage (donc initialement l'harmonique) à celle du gain. Ceci est confirmé par l'évolution de la largeur spectrale le long de la propagation, qui diminue très fortement sur le premier millimètre (voire moins) puis très lentement lorsque la saturation est atteinte, soit vers 2 mm. On note par ailleurs un très bon accord entre les mesures et le résultat de cette simulation.



FIGURE 5.18 – Évolution de l'intensité XUV et de la largeur spectrale de l'impulsion durant l'amplification

Il peut enfin être intéressant de s'intéresser aux variations de l'impulsion XUV amplifiée dans le domaine temporel. La durée du gain étant propre à la cinétique du plasma, elle ne dépend pas de la dimension de celui-ci. La mesure de temps de cohérence plus faible que cette durée pour des longueurs d'amplification de 1 et 2 mm semble indiquer qu'à ces instants (ou longueurs) d'amplification, l'impulsion n'est pas limitée par transformée de Fourier. On ne peut donc pas déduire de ces mesures du temps de cohérence des mesures de durée, et on ne peut donc pas affirmer que le rétrécissement spectral s'accompagne d'un élargissement temporel. On peut en revanche considérer le problème numériquement. Nous avons donc calculé l'amplification semi-3D de l'harmonique par la méthode décrite au paragraphe 5.1.3 à différents instants dans le plasma. On considère un faisceau infrarouge de pompe focalisé à 3 mm de la face d'entrée de la cellule à une intensité de  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. L'harmonique est injectée 3 ps plus tard à une intensité de  $5 \times 10^8$  W/cm<sup>2</sup>. La figure 5.19 en page suivante donne le résultat de ces simulations.



(a) Allure temporelle de l'impulsion amplifiée (normalisée) à différentes distance de propagation dans le plasma



FIGURE 5.19 – Simulation de l'amplification de l'harmonique en fonction de la longueur parcourue

On peut donc faire plusieurs remarques. Tout d'abord, le profil temporel de l'impulsion ne change pas entre 4 et 6 mm de propagation. Ceci est attendu si on se réfère par exemple à la carte de gain utilisée pour ce calcul (donnée en Fig. 5.19(b)). On constate en effet qu'il n'y a quasiment pas de volume de gain présent après 4 mm. On remarque qu'à des longueurs de 1 et 2 mm, l'effet de la saturation (atteinte au moins pour 2 mm) ne se fait pas ressentir sur le profil de l'impulsion. Il peut sembler étrange de constater que le maximum de l'impulsion amplifiée après 2 mm arrive plus tard dans l'impulsion que lorsque celle-ci a été amplifiée sur 4 ou 6 mm, mais ceci est dû au fait que la saturation creuse légèrement ce profil pour ces dernières longueurs et décale artificiellement le maximum de l'impulsion. Que ce maximum arrive plus tôt pour une longueur de 1 mm que pour une longueur de 2 mm correspond à ce que l'on a observé dans les simulations 1D pour de courtes distances d'amplification présentées au début de ce chapitre (Fig. 5.2, cas  $z = 500 \,\mu\text{m}$  et 1 mm). Les dipôles ne sont que peu affectés par le champ rayonné à des distances inférieures et on observe la formation d'une traîne au pic harmonique, qui s'amplifie avec la distance sans réellement s'allonger temporellement.

On constate ici que la durée de l'impulsion, elle, ne varie pas fortement le long de l'amplification. Si l'on considère la durée FWHM, elle est même plus importante pour des courtes distances. On a ici la confirmation du fait que le rétrécissement spectral ne s'accompagne pas d'un élargissement temporel. Ceci est la conséquence du régime d'interaction entre le champ et le milieu, loin de la condition d'adiabaticité  $\Delta t_{HHG} >> T_2$ , qui fait que le rayonnement émis par les dipôles s'accumule derrière le pic harmonique [187]. On en déduit au passage que l'impulsion n'est effectivement totalement cohérente que lorsque la saturation est atteinte, vers 2 mm.

#### 5.3.4 Etude de l'influence de différents paramètres

Nous allons présenter ici plusieurs séries de mesures visant à étudier l'évolution de la largeur spectrale –et par là éventuellement la durée de l'impulsion– en fonction de différents paramètres.

#### La densité du plasma

Les simulations et les mesures présentées au chapitre 3 montrent que la densité du plasma a un effet net sur l'évolution temporelle du gain et sur l'intensité de saturation. À des densités plus élevées, le gain est plus court et on peut donc s'attendre à obtenir une impulsion plus courte après amplification. Dans le domaine spectral, on peut supposer que l'impulsion sera plus large à forte densité, du fait d'un effet Doppler plus important. Nous avons effectué la mesure de la courbe de visibilité de l'impulsion pour une longueur de cellule de 6 mm et des pressions de krypton de 20, 30 et 40 mbar, et calculé l'allure de la densité spectrale de puissance de l'impulsion pour chaque cas. Les résultats sont présentés sur la figure 5.20.



FIGURE 5.20 – Visibilité des franges et spectre de l'impulsion pour différentes pression de krypton

On ne note pas de différence marquante pour chaque cas. Le tableau 5.3 résume les caractéristiques de l'impulsion pour chaque cas. Les résultats sont quasi-identiques entre une pression de krypton de 20 mbar et 30 mbar; on peut en revanche commencer à voir un début de variation pour
Pression de krypton	Temps de cohérence	$\Delta\lambda$ mesuré	$\Delta\lambda$ calculé	
20 mbar	$5.6\pm0.3\mathrm{ps}$	$3.1\pm0.3m {\AA}$	$3.0\mathrm{m}\mathrm{\AA}$	
30 mbar	$5.5\pm0.3\mathrm{ps}$	$3.0\pm0.3m {\AA}$	$3.3\mathrm{m}\mathrm{\AA}$	
40 mbar	$4.9\pm0.3ps$	$3.3\pm0.3m {\rm \AA}$	$3.6\mathrm{m}\mathrm{\AA}$	

TABLE 5.3 – Temps de cohérence et largeur spectrale de l'impulsion en fonction de la pression

une pression de 40 mbar. Le temps de cohérence est indubitablement légèrement plus court, mais l'effet est faible sur la largeur spectrale de l'impulsion. Elle semble néanmoins également légèrement plus large pour cette pression plus élevée. Considérons l'effet attendu de la densité de gaz sur la largeur spectrale de l'amplificateur; une densité plus élevée aura pour effet de :

- augmenter le nombre de collisions électroniques, et donc augmenter l'élargissement naturel de la raie
- augmenter la température ionique, et donc augmenter l'élargissement Doppler

Rappelons que dans ces ordres de grandeur de densité, l'élargissement Stark reste négligeable. La température ionique à l'équilibre ne varie que très peu pour les densités de gaz considérées : de 5.2 eV à 6.5 eV environ pour des pressions de krypton entre 20 et 40 mbar. L'effet sur la largeur Doppler est par conséquent très faible, et puisque la saturation est essentiellement dominée par l'élargissement homogène, on ne s'attend pas à un élargissement spectral de l'impulsion dû à l'élargissement inhomogène notable. En revanche, dans la même gamme de pressions, la largeur naturelle de la raie varie entre 4 et 8 mÅ environ. La figure 5.21 donne le calcul de la largeur spectrale de l'impulsion en régime injecté pour une pression de krypton entre 5 et 55 mbar. On suppose évidemment que l'harmonique injectée reste inchangée d'une pression à l'autre. Seuls le gain et les valeurs d'élargissement de l'amplificateur varient.



FIGURE 5.21 – Calcul de la largeur spectrale du laser XUV injecté

Ces simulations confirment le fait que la largeur spectrale varie finalement assez peu avec la densité de l'amplificateur. Nous avons par conséquent un accord correct entre nos mesures et les simulations. Il peut être intéressant de noter que la largeur spectrale finale augmente néanmoins d'autant plus que la densité augmente. Ceci est dû à la forte influence de l'élargissement naturel sur cette largeur finale. En effet la température ionique du plasma, et par conséquent l'élargissement Doppler du milieu, ne varie que très peu avec la densité de gaz, contrairement à l'élargissement naturel essentiellement dû aux collisions électroniques dont le taux est proportionnel à la densité du

plasma. À très faibles densités (pression de krypton inférieure à 5 mbar), un léger réélargissement à la saturation est prédit. En effet, l'élargissement naturel est alors significativement plus faible que l'élargissement Doppler qui va alors dominer la saturation.

Dans le domaine temporel, on constate donc que la durée du gain n'a pas une influence très forte sur le temps de cohérence de l'impulsion, qui reste de l'ordre de 5 ps alors que la durée du gain varie entre 3 et 6 ps. L'impulsion ne pouvant être plus longue que cette durée, il est possible qu'elle ne soit plus totalement cohérente pour des basses pressions de gaz (faibles gains et intensité de saturation). Autant les temps de cohérence mesurés pour des pressions de 30 et 40 mbar sont en accord avec les durées de gain pour ces pressions, autant pour une pression de 20 mbar le temps de cohérence est indéniablement inférieur à la durée du gain. On peut en conclure que soit l'impulsion peut être notablement plus courte que la durée du gain, soit elle n'est effectivement plus totalement cohérente. Afin de trancher, nous avons effectué des simulations semi-3D de l'allure temporelle de l'impulsion en régime injecté en utilisant le code COFIXE\_MB (§ 5.1.3). Les résultats sont présentés sur la figure 5.22.



FIGURE 5.22 – Calcul de l'allure temporelle de l'impulsion en fonction de la pression initiale de krypton

L'intensité de saturation étant plus basse pour des basses pressions, le gain est plus fortement saturé à 15 et 20 mbar et on observe les effets de cette saturation par l'apparition d'une modulation sur le profil temporel de l'impulsion amplifiée correspondante. Nous n'avons probablement pas la précision suffisante sur la mesure pour observer ces effets à une pression de 20 mbar, qui sont peut-être de plus atténués par l'élargissement Doppler non pris en compte dans ces simulations. Il faut néanmoins noter que l'impulsion générée dans un plasma de pression initiale de 20 mbar semble plus longue que pour des pressions plus élevées, malgré la mesure d'un temps de cohérence similaire. Cette différence n'est pas très importante (1.5 ps), contrairement à la différence entre les durées du gain, et on ne peut donc pas réellement conclure sur le caractère totalement cohérent de l'impulsion aux basses pressions. Une mesure à une pression encore plus basse aurait été nécessaire.

#### L'intensité de l'harmonique injectée dans l'amplificateur

Nous avons également étudié l'influence de l'intensité de l'harmonique sur la largeur spectrale, le but étant d'injecter une harmonique suffisamment peu intense pour que le gain ne soit pas saturé, et ainsi que la largeur spectrale soit plus grande. Nous avons pu réaliser une série de mesures à une fluence harmonique que nous avons estimée 30 fois plus faible que la fluence nominale. Le manque de signal et l'impossibilité d'accumuler les tirs ont rendu impossible toute mesure de visibilité pour des fluences plus faibles. Les résultats sont présentés sur la figure 5.23 et les mesures résumées dans le tableau 5.4.



(a) Visibilité des franges pour une (b) Visibilité des franges pour une (c) Spectre de l'impulsion pour fluence de  $6 \,\mu J/cm^2$  fluence de  $0.2 \,\mu J/cm^2$  chaque fluence harmonique

FIGURE 5.23 – Évolution de la visibilité des franges avec la différence de marche pour différentes fluences d'injection

Fluence de l'harmonique	Temps de cohérence	$\Delta\lambda$ mesuré	$\Delta\lambda$ calculé
$0.2\mu\mathrm{J/cm^2}$	$5.4\pm0.3\mathrm{ps}$	$3.3\pm0.3m {\rm \AA}$	$3.3\mathrm{m}\mathrm{\AA}$
$6\mu\mathrm{J/cm^2}$	$5.1\pm0.2ps$	$3.1\pm0.3m {\AA}$	$3.0\mathrm{m}\mathrm{\AA}$

TABLE 5.4 – Temps de cohérence et largeur spectrale de l'impulsion en fonction de la fluence de l'harmonique

On ne distingue pas de différence entre les deux cas. La largeur spectrale mesurée pour une faible fluence d'injection semble légèrement plus importante, mais pas suffisamment pour conclure, surtout au vu de la précision sur ces mesures. Nous avons donc approfondi cette étude en calculant la dépendance de la largeur spectrale en régime injecté en fonction du niveau d'injection. Pour les mêmes paramètres d'amplificateur et une même largeur spectrale de l'harmonique en entrée, les résultats sont présentés sur la figure 5.24.



FIGURE 5.24 – Calcul de la largeur spectrale en fonction de la fluence d'injection

La figure 5.24(a) donne les variations de largeur spectrale finale en fonction de la fluence injectée. Notons tout d'abord que ces variations sont très faibles. De plus, il est clair que la largeur spectrale finale augmente avec la fluence d'entrée, et qu'il n'y a pas ici d'effet de saturation du gain. En effet, que le gain soit saturé (fortes fluences) ou pas (notamment pour  $10 \text{ nJ/cm}^2$ , cfFig. 3.24), le rétrécissement spectral s'effectue toujours sur une longueur d'amplification bien inférieure à 6 mm, comme le montre la figure 5.24(b). C'est principalement cet effet de rétrécissement spectral qui va donc déterminer la largeur spectrale finale, et il est suffisamment fort pour que l'on n'observe que peu de différence sur la largeur spectrale même lorsque le gain n'est pas saturé.



FIGURE 5.25 – Calcul de l'allure temporelle de l'impulsion en fonction de l'intensité de l'impulsion harmonique

On peut également s'intéresser à l'allure de l'impulsion dans le domaine temporel. La figure 5.25 donne le calcul des profils temporels des impulsions résultant de l'amplification d'une harmonique d'intensité  $5 \times 10^8 \,\mathrm{W/cm^2}$  et  $1.7 \times 10^8 \,\mathrm{W/cm^2}$  (30 fois plus faible). On peut remarquer que les valeurs de fluence mesurées correspondent (pour une durée de l'impulsion harmonique de 35 fs) à des intensités environ deux fois plus faibles que celles prises en compte dans le calcul. Néanmoins,

il est fort probable que la durée de l'impulsion harmonique réelle soit inférieure à 35 fs, donnant donc une intensité plus forte. Rappelons de plus que la grandeur importante dans le processus d'amplification est l'intensité de l'harmonique et non sa fluence.

Dans le cas de l'injection par une harmonique d'intensité  $1.7 \times 10^8 \,\mathrm{W/cm^2}$ , on constate donc que la saturation de l'inversion de population (clairement atteinte si l'on compare l'intensité du pic harmonique à celle de la traîne) n'est pas suffisamment forte pour affecter l'allure temporelle de l'impulsion. On constate également que sa durée est légèrement plus longue que celle dans le cas d'une injection par une forte intensité, ce qui va finalement dans le même sens que la mesure des temps de cohérence de l'impulsion. On peut donc supposer qu'à ce niveau d'injection, l'impulsion amplifiée est toujours totalement cohérente, et que ceci est dû au fait que la saturation est atteinte.

#### Le moment d'injection de l'harmonique

Un moyen d'amplifier l'harmonique par un gain relativement faible tout en gardant la même géométrie pour ce dernier est de retarder le moment auquel celle-ci est injectée dans l'amplificateur. Nous avons donc réalisé une mesure de la cohérence temporelle de l'impulsion amplifiée pour une harmonique injectée 9 ps après la création du plasma et comparé cette mesure au cas usuel (injection après un délai de 3 ps). Les résultats sont présentés sur la figure 5.26.



FIGURE 5.26 – Cohérence temporelle et largeur spectrale de l'impulsion à deux délais d'injection de l'harmonique différents

Le temps de cohérence déduit des courbes de visibilité est donc le même dans les deux cas. La différence notable entre ces deux courbes de visibilité est dans la forme de celles-ci. Cette forme est plutôt intermédiaire entre une gaussienne et une exponentielle dans le cas d'une injection après un délai de 3 ps, alors qu'elle est franchement gaussienne dans le cas de l'injection après 9 ps. Comme dans le cas de la mesure de la cohérence temporelle en fonction de la distance parcourue dans l'amplificateur, on peut y voir un lien avec la saturation de l'amplification. Le gain très faible vu par l'impulsion harmonique, puis amplifiée, après un délai de 9 ps ne suffit pas à saturer l'amplification, même après une distance de 6 mm. Loin de la saturation, c'est l'élargissement Doppler qui prédomine et celui-ci présente un profil spectral gaussien. On s'attend donc à retrouver cette forme sur le profil spectral de l'impulsion amplifiée, et donc sur la courbe de visibilité. À la saturation (injection après un délai de 3 ps), c'est l'élargissement naturel présentant un profil lorentzien qui prédomine.

La largeur spectrale mesurée est donc également la même, comme on peut le constater sur les spectres déduits de ces courbes de visibilité. Bien que la saturation ne soit pas encore atteinte, ou très légère, le rétrécissement spectral par le gain a pu s'effectuer du fait de la grande distance d'amplification. L'effet de rétrécissement spectral par le gain est bien entendu lié à l'amplification, mais la largeur spectrale finale semble être atteinte avant la saturation du gain. On donne également en figure 5.27(a) le résultat du calcul du profil temporel de l'impulsion par le code COFIXE\_MB dans les deux cas en question.



FIGURE 5.27 – Cohérence temporelle et largeur spectrale de l'impulsion à deux délais d'injection de l'harmonique différents

On vérifie donc que les durées des impulsion obtenues dans chaque cas sont très proches. L'impulsion obtenue par l'injection de l'harmonique après un délai de 9 ps semble légèrement plus longue, indiquant que l'impulsion n'est pas complètement cohérente. Ceci est en accord avec les remarques déjà effectuées plus haut sur le lien entre saturation et caractère totalement cohérent de l'impulsion amplifiée. On peut constater en observant l'allure de la polarisation du milieu (Fig. 5.27(b)) que la saturation n'est effectivement pas tout-à-fait atteinte dans le cas de l'injection après un délai de 9 ps, contrairement au cas de l'injection après 3 ps où la présence d'une chute de polarisation est signe d'un dépeuplement du niveau supérieur de la transition par le champ. On peut néanmoins supposer au vu des résultats précédents (largeur spectrale, allure du dipôle à comparer avec celles obtenues dans la section 5.1) qu'elle est relativement proche d'être atteinte.

# 5.4 Conclusion

Nous avons étudié dans ce chapitre les caractéristiques spectrales et temporelles de l'impulsion obtenue par amplification d'une harmonique. Les caractéristiques spectrales ont été déterminées expérimentalement grâce à une méthode interférométrique de grande précision rendue nécessaire par la très faible largeur spectrale de l'impulsion. Les caractéristiques temporelles ont fait l'objet d'une brève étude numérique de principe, puis ont pu être déterminées par l'utilisation conjointe d'un code d'amplification semi-3D basé sur le formalisme de Maxwell-Bloch et des mesures expérimentales de cohérence temporelle de l'impulsion.

Dans le domaine temporel nous avons vu que, la durée de l'impulsion harmonique étant nettement inférieure aux temps caractéristiques de relaxation du milieu (ps), l'allure temporelle attendue pour le champ amplifié se compose d'une traîne à la suite du pic harmonique. Nous avons également mis en évidence le phénomène des oscillations de Rabi de l'inversion de population attendues lorsque celle-ci est fortement saturée par le champ. Nous ne nous attendons néanmoins pas à observer ces oscillations dans nos conditions de travail, bien que les premiers signes devraient pouvoir être mesurés dans certaines conditions (pression plus basse, milieu à gain plus long) et avec une meilleure précision de mesure.

Nous avons expérimentalement mesuré que la largeur spectrale de l'impulsion amplifiée est très faible, de l'ordre de quelques mÅ (finesse de raie  $\lambda/\Delta\lambda \simeq 10^5$ ), malgré le fait que celle de l'impulsion harmonique soit bien plus large ( $\lambda/\Delta\lambda \simeq 10^2 - 10^3$ ). Ceci est dû à un effet de filtrage spectral par le gain de l'amplificateur nettement plus étroit (mÅ). Le rétrécissement spectral de l'impulsion durant sa propagation dans l'amplificateur a été mis en évidence en mesurant sa largeur spectrale à différentes longueurs d'amplification. Ces résultats ont été confirmés par un modèle numérique simple résolvant l'équation de transfert radiatif et prenant en compte les valeurs d'élargissement spectral homogène et inhomogène déterminées au chapitre 2. Nous avons également mesuré la largeur spectrale du rayonnement ASE ; elle est légèrement inférieure à celle du rayonnement harmonique amplifié, ce qui a également été confirmé numériquement. Nous avons enfin étudié l'influence de divers paramètres tels que la densité du gaz, l'intensité harmonique injectée et le délai auquel cette harmonique est injectée sur la largeur spectrale du rayonnement. Dans la plage étudiée, les variations de la largeur spectrale sont très faibles mais ont été confirmées numériquement, particulièrement dans le cas de la densité du gaz.

Afin de faire le lien avec le domaine temporel, nous avons constaté que le temps de cohérence mesuré dans les conditions usuelles correspond au temps de vie du gain du milieu. Ceci indique que l'impulsion XUV est limitée par transformée de Fourier, et possède une durée de 5 ps environ. Cette valeur est relativement proche de celle calculée par notre modélisation semi-3D mais devra être définitivement confirmée par une mesure directe, à l'aide d'une caméra à balayage de fente par exemple. La comparaison des temps de cohérence mesurés avec les durées d'impulsions obtenues dans différents cas laisse néanmoins penser que les propriétés de cohérence totale sont liées à la saturation du gain. Les mesures effectuées dans le cas d'une faible longueur de propagation ou encore d'un très faible gain (long délai d'injection) ont montré que le temps de cohérence de l'impulsion obtenue était inférieur à la durée de l'impulsion attendue. Ceci est à relier au fait que le rétrécissement spectral par le gain ne s'accompagne pas d'un élargissement temporel, mais de l'amplification d'une traîne de durée peu variable à la suite du pic harmonique.

Il pourrait être intéressant de confirmer expérimentalement l'apparition des oscillations de Rabi sur le profil temporel de l'impulsion. Pour ceci, il faut se placer dans des conditions de forte saturation (long milieu à gain) et disposer d'une méthode de mesure fine de la structure temporelle de l'impulsion. Une méthode à envisager peut être la spectrométrie des électrons produits par la photoionisation à deux couleurs (XUV+IR) d'un gaz, à l'aide d'un spectromètre de type bouteille magnétique par exemple. L'énergie des photons à 32.8 nm est suffisante pour que le gaz (argon par exemple) soit ionisé une fois par absorption d'un photon. Le spectre en énergie des photoélectrons se compose alors d'un pic centré sur  $h\nu_{xuv} - U_i$ , où  $U_i$  est le potentiel d'ionisation du gaz. Lorsqu'un photon IR est présent, on peut avoir de l'absorption de deux photons (XUV+IR) et on voit apparaître sur le spectre de photoélectrons des pics secondaires centrés sur  $h\nu_{xuv} \pm h\nu_{ir} - U_i$ . La mesure de l'intensité de ces pics en fonction du délai entre l'impulsion XUV et l'impulsion IR permet de remonter à l'allure de l'impulsion XUV avec une résolution égale à la durée du faisceau infrarouge (35 fs). Ceci devrait permettre de résoudre les modulations attendues sur le profil d'intensité de l'impulsion XUV.

Enfin, pour diminuer la durée des impulsions obtenue par ce schéma de pompage OFI, des plasmas présentant de fortes températures ioniques et donc de forts élargissement inhomogènes seraient souhaitables. C'est d'ailleurs typiquement le cas des lasers XUV obtenus à partir de cibles solides. Nous avons calculé que pour une température ionique de 50 eV, la limite de Fourier est attendue autour de 1.5 ps. On peut donc envisager de générer l'amplificateur dans un plasma d'ions chauds, par exemple à l'aide d'une impulsion laser longue (centaine de ps). Cette méthode présente néanmoins l'inconvénient de réduire fortement le gain de l'amplificateur et se révèle donc assez limitée pour l'obtention d'impulsions intenses.

Nous avons constaté que l'augmentation de la densité de l'amplificateur favorisait les phénomènes collisionnels dans le plasma, notamment l'ionisation, et réduisait ainsi la durée de vie du gain. Le chapitre suivant est consacré à la production d'un effet laser dans un amplificateur de densité de plusieurs ordres de grandeur plus importante. Nous y verrons notamment que cet effet est exploitable pour la génération d'impulsions laser XUV ultrabrèves.

# Chapitre 6

# Vers un laser XUV à haute intensité dans un plasma quasi-critique

#### Sommaire

6.1	Intro	oduction et enjeux	182
6.2	6.2 Guide plasma créé par laser		
	6.2.1	Principe	184
	6.2.2	Mise en forme du plasma par las er par le schéma dit "ignitor $+  {\rm heater}"$ .	186
6.3	$\mathbf{Disp}$	oositif expérimental	188
	6.3.1	L'axicon : principe et propriétés	188
	6.3.2	Génération de l'amplificateur laser	189
	6.3.3	Diagnostics	192
6.4	Rési	ıltats expérimentaux	193
	6.4.1	Génération du canal plasma	194
	6.4.2	Transmission du guide d'onde	196
	6.4.3	Guidage de l'impulsion pompe et effet laser	198
	6.4.4	Autofocalisation relativiste et effet laser	201
6.5	Con	clusion	203

## 6.1 Introduction et enjeux

Nous avons pu constater en mesurant l'énergie contenue dans les impulsions générées par le plasma OFI injecté par harmonique que les intensités atteignables peuvent raisonnablement atteindre  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>. On est donc loin des éclairements pouvant être atteints par les lasers à électrons libres XUV ou même les lasers XUV quasi-stationnaires. Pour chercher à augmenter cette intensité, on peut chercher à augmenter l'énergie par impulsion, et/ou à réduire la durée des impulsions à énergie constante.

En générant un amplificateur plus long, bien que la saturation du gain soit atteinte dès les premiers millimètres d'amplification, on devrait pouvoir obtenir des impulsions plus énergétiques. Afin d'augmenter l'intensité de saturation, on peut également envisager d'augmenter la densité atomique. Dans le cas des lasers XUV OFI, le laser de pompe étant fortement défocalisé par la réfraction due au plasma, ceci passe nécessairement par le guidage du faisceau de pompe. Nous avons vu au chapitre 1 que plusieurs expériences ont déjà été réalisées au LOA dans cette optique. La première réalisation impliquait la création d'un guide d'onde plasma (développé plus loin dans ce chapitre) par l'application d'une forte décharge électrique (20-30 kV) [119] [120] dans un tube capillaire de 200  $\mu$ m de diamètre rempli d'un mélange à 120 mbar (rapport 1:3) de xénon et d'hydrogène. En couplant le faisceau pompe (focalisé par un miroir de focale 1 m) au mode fondamentale du guide plasma obtenu, un guidage de ce dernier à une intensité d'environ  $10^{17} \,\mathrm{W/cm^2}$ a pu être obtenu sur  $3 \,\mathrm{cm}$ . L'effet laser à 41.8 nm dans le plasma de  $\mathrm{Xe}^{8+}$  ainsi obtenu est apparu corrélé aux bonnes conditions de guidage du faisceau pompe et une augmentation de l'énergie d'un facteur 4 a été mesurée par rapport au cas d'une cellule de gaz de 4 mm de long. Cette amélioration relativement modeste s'explique par le fait que la présence d'hydrogène, gaz léger indispensable à la création du guide plasma par décharge, contribue à une baisse sensible de la température électronique du plasma et donc des taux de pompage du niveau supérieur de la transition laser.

La deuxième réalisation visait donc à n'utiliser que le gaz cible afin de conserver une température électronique élevée. Elle consista en un guidage du faisceau pompe dans des tubes capillaires diélectriques remplis de xénon [118] [194] à des pressions entre 5 et 100 mbar. Le couplage du faisceau au mode fondamental du guide (diamètre interne inférieur à 100  $\mu$ m) se révélant trop hasardeux –les fluctuations de pointé du faisceau impliquant une destruction systématique du capillaire– le guidage réalisé fut multimode dans des tubes de diamètre interne de 300  $\mu$ m. L'optique de focalisation était un miroir de focale 2 m, l'utilisation d'une focale de 1 m n'ayant pas permis le guidage du faisceau. Une amélioration d'un facteur 35 par rapport à l'utilisation d'une cellule de 4 mm de long a été obtenue avec des capillaires en verre de quelques cm de long, pour une énergie finale estimée à 1  $\mu$ J. Une réduction de la divergence du faisceau et de la taille des grains de speckle présents sur le profil spatial ont également été observées.

Des expériences récentes [121] [122] ont été conduites par l'équipe de J. Y. Lin (National Chung Cheng University, Taïwan) à des densités atomiques plus élevées (jusqu'à  $10^{19}$  cm<sup>-3</sup> en guidant le faisceau de pompe dans un guide d'onde plasma créé par laser. Une amélioration sensible de l'énergie de l'impulsion XUV générée dans le krypton nickeloïde a notamment été mesurée par rapport au cas où le faisceau n'est pas guidé [195] (et la densité plus faible).

On peut également chercher à réduire la durée des impulsions XUV. Nous avons déjà eu l'oc-

casion de constater que le temps de vie du gain est lié au phénomène d'ionisation collisionnelle qui détruit les ions lasants, et par là à la densité électronique du plasma. Les mesures présentées au chapitre 3 (§ 3.3.2) ont montré que la durée du gain variait entre 8 ps pour une pression de krypton de 15 mbar et 3 ps pour une pression de 40 mbar. Ces variations sur une fourchette de densité relativement étroite ne sont pas négligeables. Nous avons donc cherché à évaluer la durée du gain pour des densités atomiques nettement plus importantes, allant jusqu'à un plasma quasi-critique. La figure 6.1 présente le résultat du calcul par le code OFI-OD de l'évolution temporelle du gain de l'amplificateur généré à des densités atomiques élevées.



FIGURE 6.1 – Allure temporelle du gain de l'amplificateur pour de fortes densités de krypton. À titre de comparaison, une pression de 30 mbar correspond à une densité atomique de  $7.4 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ 

Lorsque la densité du plasma augmente, l'ionisation collisionnelle devient plus importante et cause ainsi une destruction plus rapide de l'espèce ionique lasante. C'est ce phénomène qui limite la durée du gain de l'amplificateur. La tendance que l'on observe ici est donc bien celle attendue, à savoir que la durée du gain diminue avec la densité. En revanche, la valeur de cette durée est particulièrement remarquable à partir d'une densité d'environ  $10^{19}$  cm<sup>-3</sup> puisqu'elle passe sous la barre de la picoseconde, laissant présager sans peu de doutes la génération d'impulsions XUV sub-ps. C'est à cette densité que l'équipe de J. Y. Lin a travaillé. On peut même envisager la production d'impulsions sub-100fs en générant l'amplificateur dans du krypton à  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup>. Les processus d'excitation et d'ionisation collisionnelle (proportionnels à la densité électronique) sont tellement rapides que le gain atteint son maximum quelques femtosecondes après l'ionisation et les ions lasants Kr<sup>8+</sup> ionisés quelques dizaines de fs plus tard. Il faut tout de même noter que l'approximation faite dans ce code consistant à découpler l'ionisation par le champ et les processus collisionnels n'est dans ce cas plus valable. Ceci ne devrait néanmoins pas vraiment influer sur la durée du gain, mais plutôt sur sa valeur maximale.

La faisabilité d'un amplificateur laser XUV ayant été démontrée à une densité atomique de  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ , on peut sérieusement envisager de réaliser un amplificateur de densité quasi-critique. On rappelle que la densité critique à 800 nm est d'environ  $1.7 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . Dans le cas idéal, il serait alors possible de générer un amplificateur de Kr<sup>8+</sup> à partir d'une densité atomique de  $2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ . Il convient également de rappeler que la réduction de la durée des impulsions produites par les sources XUV cohérentes s'est faite dans la plupart des cas (harmoniques, ou laser XUV du régime quasi-stationnaire vers le transitoire) au détriment de l'énergie des impulsions XUV. Or on s'attend ici à obtenir des valeurs de gain et d'intensité de saturation supérieures à celles d'un amplificateur à basse densité (comme celui étudié jusqu'à présent), comme le montre la figure 6.2.



FIGURE 6.2 – Gain et intensité de saturation du milieu amplificateur OFI dans le krypton nickelloïde en fonction de la densité atomique. Le gain n'augmente que d'un facteur  $\simeq 2$  entre les cas  $n_{at} = 10^{18}$  et  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup> car les niveaux préférentiellement peuplés ne sont pas nécessairement ceux de la transition laser. L'intensité de saturation est en revanche plus grande de plus de 3 ordres de grandeur

L'intérêt de générer un amplificateur à haute densité est donc double : il permettait de réduire la durée des impulsions laser XUV émises, et d'augmenter leur énergie. Le dispositif expérimental est en revanche assez lourd à mettre en œuvre comme nous allons pouvoir le constater. Nous détaillerons tout d'abord le principe de la création d'un guide plasma préformé par laser, puis nous décrirons l'expérience réalisée et les diagnostics utilisés, et nous terminerons par les résultats expérimentaux obtenus.

# 6.2 Guide plasma créé par laser

Nous allons dans cette section décrire le principe et la création d'un guide plasma par un champ laser. Le principe du guidage plasma est bien entendu le même lorsque le plasma est créé par un autre moyen, comme une décharge électrique par exemple, mais son application au guidage à haute densité  $(> 10^{19} \text{ cm}^{-3})$  et à des températures électroniques suffisamment élevées pour permettre le pompage efficace d'une inversion de population dans un ion nécessite une méthode de création particulière. C'est ce que nous allons voir ici.

#### 6.2.1 Principe

Afin de permettre le guidage d'une impulsion lumineuse, un plasma doit présenter un profil de densité électronique ne causant pas de défocalisation de l'impulsion et compensant de plus les effets de la diffraction. Nous avons vu au chapitre 2 qu'un profil de densité naturellement créé par focalisation d'une impulsion laser présentait un gradient radial causant une forte défocalisation du faisceau. On cherche donc à créer le profil radial de densité opposé, c'est-à-dire présentant une densité électronique plus faible le long de l'axe de propagation qu'à la périphérie du plasma, comme le montre la figure 6.3.



FIGURE 6.3 – Principe du guidage plasma : un creux de densité électronique le long de l'axe de propagation induit un indice optique compensant les effets de diffraction du faisceau

On peut facilement estimer quelle sera la valeur minimale du gradient de densité électronique permettant le guidage d'un faisceau laser. Considérons un faisceau gaussien de waist  $w_0$  traversant un milieu présentant un gradient radial d'indice de réfraction  $\Delta n = n(0) - n(w_0)$ . La variation du rayon de courbure de l'onde due à la diffraction après propagation le long d'un élément  $\delta z$  de ce milieu s'écrit :

$$R_{diff} = \delta z \left( 1 + \frac{Z_R^2}{\delta z^2} \right) \tag{6.1}$$

 $Z_R$  étant la distance de Rayleigh du faisceau. La diffraction cause une augmentation du rayon de courbure de l'onde et donc une défocalisation du faisceau. De même, la variation de ce rayon de courbure due au gradient d'indice s'écrit :

$$R_n \simeq -\frac{w_0^2}{2\Delta n\delta z} \tag{6.2}$$

On peut en déduire la condition de guidage suivante, obtenue pour  $R_n + R_{diff} = 0$  et correspondant à une courbure nulle induite sur l'onde, et donc à une extension transverse de faisceau constante :

$$\Delta n = \frac{1}{kZ_R} \tag{6.3}$$

où  $k = \frac{2\pi n(0)}{\lambda}$ . Il est à noter que ce gradient d'indice est faible devant n(0), même pour le guidage d'un faisceau de waist étroit : pour un faisceau à 800 nm et un waist de 10  $\mu$ m, on a  $\Delta n = 3 \times 10^{-4}$ . En utilisant la formule usuelle (*cf* chapitre 2) donnant l'indice de réfraction d'un plasma en fonction de sa densité électronique, on en déduit la condition de guidage sur le gradient de densité électronique :

$$\Delta n_e \geqslant \frac{1}{r_e \pi w_0^2} \tag{6.4}$$

où  $r_e = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 m_e c^2} \simeq 2.8 \,\text{fm}$  est le rayon classique de l'électron. Cette condition est exacte dans le cas d'un profil de densité parabolique, et offre une bonne précision dans le cas d'autres profils. On peut calculer que pour  $w_0 = 10 \,\mu\text{m}$ , le gradient minimal de densité électronique requis pour le guidage de ce faisceau est de l'ordre de  $10^{18} \,\text{cm}^{-3}$ .

#### 6.2.2 Mise en forme du plasma par laser par le schéma dit "ignitor + heater"

L'idée sous-jacente à la création d'un guide d'onde plasma est de profiter de l'expansion hydrodynamique d'un plasma préalablement créé qui aura tendance à éjecter les électrons de l'axe de propagation (c'est-à-dire là où ils sont initialement les plus nombreux) et ainsi réduire la densité électronique autour de l'axe. Le principe minimal est donc le suivant : on focalise une impulsion à une intensité relativement modérée dans un gaz donné, et on laisse le plasma se détendre. Après un temps caractéristique de l'expansion du plasma (ns), le gradient radial de densité électronique est tel qu'un faisceau laser peut être guidé. C'est ce schéma qui était majoritairement utilisé dans les années 1990 [196] [197]. L'impulsion de mise en forme du plasma était alors une impulsion longue (centaine de ps) focalisée à une intensité de l'ordre de  $10^{13} - 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.

Historiquement, les premières expériences de guidage plasma créé par laser ont eu lieu en focalisant le faisceau par une lentille [198] [196] dans un gaz à basse densité (jusqu'à quelques dizaines de mbar). On s'est néanmoins très rapidement aperçu de l'intérêt d'utiliser une optique permettant de focaliser le faisceau selon une ligne focale plutôt que selon un point focal afin d'obtenir un guide de longueur importante. Une lentille conique, ou axicon [199], permet la réalisation d'une ligne focale (dans le sens longitudinal). Nous détaillerons les propriétés d'une telle optique dans la section suivante.

Afin de comprendre pourquoi l'utilisation de plusieurs impulsions a été proposée, il est nécessaire de détailler les mécanismes de création du plasma. Une impulsion de mise en forme telle que celles utilisées pour ces expériences (< ns,  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>) n'est pas assez intense pour générer seule un plasma suffisamment ionisé. L'ionisation est donc essentiellement collisionnelle. Les premiers électrons sont arrachés par ionisation multiphotonique et sont ensuite chauffés par bremsstrahlung inverse dans le champ. Il s'en suit une ionisation collisionnelle en cascade d'autant plus efficace que la densité électronique initiale est élevée. Il est à noter que c'est le même processus qui est mis en jeu dans les guides d'onde par décharge capillaire. L'addition d'un gaz à faible potentiel d'ionisation a ainsi pour effet d'augmenter cette densité électronique.

Le raisonnement menant à l'utilisation de plusieurs impulsions est le même que celui ayant conduit au schéma de pompage transitoire pour les lasers XUV collisionnels : il s'agit de découpler la création des premiers électrons du chauffage de ceux-ci. Le schéma proposé date de 1999 [200] et fait appel à deux impulsions (Fig. 6.4) :

- Une première impulsion appelée *ignitor* a pour fonction d'initier la création du plasma souhaité en générant un pré-plasma de densité électronique conséquente sans se préoccuper de sa température. On utilise traditionnellement une impulsion courte (dizaines de fs) et intense. L'ionisation a donc lieu directement par le champ laser et est par conséquent peu coûteuse en termes d'énergie laser (dizaines de mJ).
- Une deuxième impulsion appelée heater est l'impulsion longue et modérément intense décrite



FIGURE 6.4 – Principe du schéma "ignitor+heater"

précédemment et n'a plus pour seul rôle que celui de chauffer les électrons du plasma OFI pour permettre l'ionisation collisionnelle en cascade. Le chauffage étant indépendant de la durée de l'impulsion (à condition que celle-ci soit suffisamment longue, on peut se reporter à l'annexe D pour plus de détails), seule l'énergie contenue dans l'impulsion aura une réelle influence sur le plasma.

L'impulsion à guider est alors injectée dans le plasma après un délai correspondant à un temps caractéristique d'évolution hydrodynamique de ce dernier. Le plasma va en effet s'expandre : les électrons, chauds, diffusent rapidement hors de la zone de plasma et créent ainsi une charge d'espace qui s'oppose à cette diffusion et accélère les ions vers l'extérieur. Les ions et les électrons se déplacent alors à la même vitesse moyenne, donnée par la vitesse acoustique ionique du milieu  $c_s$ . Elle s'exprime pour une température électronique  $T_e$  comme :

$$c_s = \sqrt{\frac{k_B T_e}{m_i}} \tag{6.5}$$

 $m_i$  étant la masse des ions. On peut assimiler cette expansion à la propagation d'une onde de choc radiale ( $c_s >$  vitesse acoustique dans le gaz neutre) à une célérité de l'ordre de la dizaine de microns par ns. Le temps caractéristique de cette expansion est donc la nanoseconde.

C'est ce schéma qui a été appliqué avec succès par l'équipe de J. Y. Lin [121] [122] pour générer un amplificateur XUV OFI dans un jet de gaz à une densité atomique de  $10^{19}$  cm<sup>3</sup> grâce au guidage sur 1 cm d'impulsions fs de plusieurs centaines de mJ.

## 6.3 Dispositif expérimental

Nous allons dans cette section décrire l'expérience réalisée. On commencera par la description des propriétés de l'axicon, lentille conique d'importance cruciale en vue de la création d'un plasma long (plusieurs mm) et relativement uniforme. On détaillera ensuite la génération de l'amplificateur à haute densité, puis les diagnostics mis en place.

#### 6.3.1 L'axicon : principe et propriétés

La mise en forme du plasma par laser est réalisée à l'aide d'un axicon qui permet la focalisation d'un faisceau de manière relativement uniforme sur une longue distance (ligne focale). Un axicon est une lentille conique telle que décrite sur le schéma 6.5. Pour un faisceau en incidence normale sur l'axicon, tous les rayons lumineux situés à distance r de l'axe seront focalisés au même point à la distance z de l'axicon. On suppose que le faisceau incident a un rayon  $R_0$  inférieur à celui de l'axicon. Le paramètre fondamental de l'axicon est son angle  $\alpha$ . On note  $\beta$  l'ouverture du faisceau focalisé. Si n est l'indice de réfraction de l'axicon, on a donc  $\beta = \arcsin(n \sin \alpha) - 1 \simeq (n - 1)\alpha$ dans l'approximation paraxiale.



FIGURE 6.5 – Principe de l'axicon

Une telle optique permet la focalisation du faisceau selon une ligne de longueur  $Z_F$  donnée par :

$$Z_F = R_0 \left[ \frac{1}{\tan \beta} - \tan \alpha \right] \simeq \frac{R_0}{(n-1)\alpha}$$
(6.6)

On peut voir sur le schéma 6.5 que le début de cette ligne focale se situe directement à la pointe de l'axicon. À noter que la longueur de cette ligne peut aller de plusieurs mètres ( $\alpha$  proche de 0) à quelques *mm*. Le rayon caractéristique de la ligne focale est proche de la limite de diffraction :

$$\rho_F = \frac{\lambda_0}{2\pi \tan \beta} \tag{6.7}$$

La distribution longitudinale de l'énergie dépend du profil spatial du faisceau. Supposons un faisceau de répartition d'intensité super-gaussienne donnée par  $I(r) = I_0 \exp\left[-2\left(\frac{r}{R_0}\right)^{2m}\right]$  où m est l'ordre de la super-gaussienne. On peut alors montrer que la répartition d'intensité dans la ligne focale est donnée par [201] :

$$I(r,z) = I_0 z \frac{\pi R_0}{2\rho_F Z_F} e^{-2\frac{z^{2m}}{Z_F^{2m}}} J_0^2 \left(\frac{r}{\rho_F}\right)$$
(6.8)

On constate donc que le choix d'un angle  $\alpha$  grand va permettre d'obtenir une ligne focale relativement courte, et donc une intensité plus importante. Néanmoins, le phénomène de réflexion totale sur la face conique de l'axicon fait qu'il existe un angle  $\alpha$  maximal au delà duquel le faisceau n'est plus transmis par l'axicon. Ceci implique par conséquent que l'on ne peut pas focaliser le faisceau selon une ligne de dimension transverse indéfiniment petite comme semble le suggérer la relation 6.7. Cet angle limite est donné par :

$$\alpha_{max} = \arcsin\frac{1}{n} \quad \text{et} \quad \beta_{max} = \frac{\pi}{2} - \arcsin\frac{1}{n}$$
(6.9)

Dans le cas d'un axicon en silice fondue, on trouve  $\alpha_{max} = 43^{\circ}$ ,  $\beta_{max} = 47^{\circ}$ , et donc  $\rho_{min} \simeq 1 \,\mu$ m. Nous n'avons néanmoins pas intérêt à travailler avec un axicon présentant un tel angle, car les pertes seront très importantes. Il s'agit donc de trouver un compromis entre la longueur de la ligne focale et les pertes par réflexion sur la face conique. Nous avons choisi un angle  $\alpha$  de 35°, qui permet d'obtenir une ligne focale relativement courte (< 3 cm) et introduit des pertes négligeables en polarisation p et de l'ordre de 13% en polarisation s. Il est percé en son centre d'un trou de diamètre 5 mm pour laisser passer l'impulsion principale.

#### 6.3.2 Génération de l'amplificateur laser

Expérimentalement, la première étape nécessaire à la réalisation du guide plasma est la production –à partir du laser de la Salle Jaune décrit au chapitre 3– de plusieurs impulsions de caractéristiques décrites au paragraphe précédent. Rappelons que nous disposons avec cette installation laser de deux faisceaux nommés pompe (forte énergie) et sonde (faible énergie) polarisés linéairement et dont les énergies relatives peuvent être ajustées. Nous avons besoin d'une impulsion principale (impulsion pompe) de forte intensité afin de créer le plasma d'ions  $Kr^{8+}$  nécessaire à l'obtention de l'effet laser. Le faisceau dit pompe de l'installation laser sera donc le faisceau pompe du plasma. Nous avons néanmoins besoin de suffisamment d'énergie dans les impulsions *ignitor* et *heater* pour ioniser le krypton puis chauffer les électrons libres ainsi créés, donc on ne peut se permettre d'envoyer la quasi-totalité de l'énergie laser disponible dans le faisceau pompe. Nous avons testé différentes configurations, selon les cas à l'étude, permettant de prélever jusqu'à 40% des 2.5 J disponibles avant compression pour le faisceau sonde.

Les deux faisceaux composés des impulsions *ignitor* et *heater* ont été définis en plaçant une lame séparatrice sur le trajet du faisceau sonde avant la compression temporelle. Cette lame permet la création d'un deuxième faisceau, possédant environ 75% de l'énergie du faisceau sonde, qui ne subira pas de compression temporelle. La durée des impulsions (*heater*) le composant est de 400 ps, largement suffisante pour que le chauffage des électrons par bremsstrahlung inverse se situe en régime d'impulsion longue. La durée des impulsions *ignitor* composant la partie du faisceau sonde ayant suivi son trajet habituel, est de 35 fs. Le délai entre ces impulsions a été fixé à 350 ps, et les deux faisceaux sont recombinés en un faisceau de 3 cm de diamètre en sortie de compresseur à l'aide d'un cube séparateur de polarisation. Compte-tenu des pertes introduites par les divers éléments optiques, l'énergie maximale dont nous disposons (dans la configuration où 40% de l'énergie totale du laser est prélevée pour le faisceau sonde) est de l'ordre de 400 mJ pour les impulsions *heater* (polarisation p) et 150 mJ pour les impulsions *ignitor* (polarisation s).

Le schéma 6.6 donne le principe de l'expérience. Le faisceau sonde (représenté en jaune) se propage initialement à une hauteur différente de celle des autres faisceaux afin d'éviter les problèmes



FIGURE 6.6 – Schéma de l'expérience

d'encombrement. Le réajustement à la hauteur nominale (par deux miroirs en "ascenseur") induit une rotation de sa polarisation de 90°. Ce faisceau est focalisé dans le jet de gaz par l'axicon. On peut ainsi espérer focaliser les impulsions *heater* à une intensité maximale de l'ordre de quelques  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>.

Le faisceau pompe (représenté en orange) créant le plasma d'ions  $Kr^{8+}$  dans le guide est focalisé dans ce dernier à l'aide d'un miroir sphérique de focale 500 mm. L'utilisation d'une focale plus longue impliquant des fluctuations de pointé et une focalisation moins forte, nous n'avons pas pu observer de guidage. Le délai entre l'impulsion de pompe et l'impulsion *heater* a été fixé à 3.5 ns. À noter la présence du miroir percé traité pour réfléchir les faisceaux sur ses deux faces. La figure 6.7 donne enfin une vue de l'enceinte d'interaction.



FIGURE 6.7 – Vue de l'intérieur de l'enceinte d'interaction

Le jet de gaz est un prototype permettant de délivrer une densité de krypton neutre allant jusqu'à quelques  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup> avec la buse utilisée (rectangulaire  $0.5 \times 5$  mm). La figure 6.8 donne la mesure du profil transverse de densité atomique à différentes distances de la buse. La densité est encore élevée relativement loin de la buse car sa faible largeur fait que le jet de gaz diverge fortement. Aux distances données ici qui représentent nos distances de travail (bien que ces dernières soient parfois plus importantes), la densité atomique se situe entre 1 et  $2 \times 10^{20}$  cm<sup>-3</sup>. Même en extrapolant pour des distances plus importantes (typiquement 3 mm), la densité atomique attendue est de l'ordre de  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup>.



FIGURE 6.8 – Profil de densité atomique transverse mesuré à différentes distances de la buse rectangulaire utilisée

Nous n'avons pas pu effectuer la calibration dans la direction longitudinale de la buse avec du krypton, mais des mesures effectuées avec de l'argon ont montré que le profil de densité est homogène le long des 5 mm de la buse.

#### 6.3.3 Diagnostics

La création du guide plasma doit être caractérisée afin d'être optimisée. Nous avons pour cela installé divers diagnostics. Le premier de ces diagnostics est l'**interférométrie du plasma**. Son intérêt est double : d'une part caractériser le guide d'onde produit, auquel cas on ne cherche pas encore à y coupler l'impulsion de pompe, et d'autre part caractériser le guidage de l'impulsion de pompe. Puisque la zone située au centre du faisceau pompe est irrémédiablement perdue du fait de l'utilisation d'un miroir percé pour le renvoi vers le miroir de focalisation, nous l'avons prélevée en amont de l'enceinte d'interaction à l'aide d'un autre miroir percé. Le faisceau ainsi constitué est alors doublé en fréquence par un cristal de béta-borate de baryum (BBO) afin de pouvoir sonder des plasmas plus denses (la densité critique d'un plasma est de  $1.7 \times 10^{21}$  cm<sup>-3</sup> à 400 nm).

L'interféromètre utilisé est de type Mach-Zehnder. Le trajet des faisceaux dans l'enceinte d'interaction est représenté sur les figures 6.6 et 6.7 (faisceau bleu). Le faisceau est divisé en deux par une lame séparatrice. Un des sous-faisceaux traverse le plasma alors que l'autre servira de référence. Un très léger angle est introduit entre les deux faisceaux afin de permettre l'observation de franges rectilignes perpendiculaires à l'axe de propagation dans le plan du plasma, et lorsque ce dernier est présent, on observe un décalage des franges en fonction de l'indice de réfraction de ce dernier. Pour une frange donnée (correspondant à un plan z fixe), ce décalage s'écrit :

$$\Delta Z(x) = \frac{1}{\lambda} \int_{y_1}^{y_2} [n(x,y) - 1] dx$$
(6.10)

où n est l'indice de réfraction et  $y_2 - y_1$  l'épaisseur de plasma réfractant traversée par le sousfaisceau de sonde de longueur d'onde  $\lambda$ . À partir de la mesure de  $\Delta Z$ , on peut retrouver le profil d'indice de réfraction en effectuant une inversion d'Abel de la relation 6.10. Celle-ci s'effectue en supposant que l'indice de réfraction du plasma, et donc sa densité électronique, possède une symétrie cylindrique.

La synchronisation des deux bras de l'interféromètre est assurée par la présence d'une ligne à retard sur la voie sondant le plasma. la deuxième ligne à retard (manuelle) sur la voie de référence a simplement facilité la conception initiale de l'interféromètre. Une ligne à retard est également située en amont de l'enceinte afin de choisir l'instant de la propagation du faisceau pompe) auquel l'interférométrie est réalisée. L'imagerie du plasma sur une caméra CCD est réalisée à l'aide d'une lentille. Le diamètre du faisceau, de l'ordre du cm, permet de sonder l'intégralité de la longueur du jet de gaz.

Notons enfin que la valeur de la densité électronique maximale mesurable par ce dispositif est liée à la durée de l'impulsion utilisée. Lorsque le retard induit par le plasma sur l'impulsion le traversant est supérieur à la durée de l'impulsion, il n'y a plus de recouvrement des deux impulsions provenant de chaque bras de l'interféromètre et donc disparition des franges. On peut évaluer la variation de densité maximale mesurable :

$$\Delta n \frac{\ell}{c} < \tau_p \tag{6.11}$$

où  $\Delta n$  est la variation d'indice de réfraction,  $\tau_p$  la durée de l'impulsion et  $\ell$  l'épaisseur traversée par l'impulsion. Dans nos conditions expérimentales, pour une épaisseur de plasma de 100  $\mu$ m, on calcule une densité maximale mesurable de  $2 \times 10^{21}$  cm<sup>-3</sup>, ce qui est proche de la densité critique à 400 nm. En réalité la densité n'étant pas homogène le long de l'épaisseur du plasma, on devrait pouvoir mesurer des variations plus importantes. En pratique, nous serons limités par la densité critique à 400 nm et par la résolution spatiale de l'interféromètre (25  $\mu$ m dans la direction de propagation).

Nous avons également installé un dispositif d'**imagerie longitudinale** du plasma (dit *top view*), essentiellement utile pour l'alignement des différents faisceaux. Il permet de visualiser la ligne de plasma *via* son émission propre comme le montre la figure 6.9.



FIGURE 6.9 – Vue de dessus de la buse et du plasma créé dans le jet de krypton

La caractérisation d'un guide d'onde ne saurait être complète sans une mesure de la transmission de ce guide. Un dispositif d'**imagerie du faisceau à haut flux**, en partie représenté sur le schéma 6.6 a été mis en place. Une lame prismatique, percée en son centre afin de laisser passer le faisceau XUV, est située sur l'axe de propagation du faisceau pompe après le plasma. Rappelons que le principe de cette lame est la réflexion d'un faisceau sur de la silice non traitée. Le coefficient de réflexion est de l'ordre de 4% (en polarisation linéaire), le reste de l'énergie étant absorbée dans la masse. Un doublet de focale 300 mm translatable, couplé à une lentille imageant le faisceau obtenu sur une caméra CCD, permet l'imagerie des plans d'entrée et de sortie du plasma.

Enfin, nous avons utilisé le même spectromètre XUV que pour l'expérience d'amplification d'harmonique afin de caractériser le rayonnement XUV produit (spectre, énergie et divergence du faisceau).

## 6.4 Résultats expérimentaux

Cette expérience visait avant tout à montrer la faisabilité d'un amplificateur laser XUV à une densité électronique proche de la densité critique. Les nombreux problèmes d'alignement des faisceaux rencontrés durant l'expérience n'ont malheureusement pas permis d'optimisation ni d'étude poussée de l'effet laser dans le plasma dense. La qualité inégale des interférogrammes a également rendue difficile la détermination de la densité électronique des plasmas créés. Le résultats présentés par la suite tiennent donc lieu de résultats préliminaires aux prochaines expériences, qui verrons notamment le plasma amplificateur sondé par un rayonnement harmonique. Nous commencerons par donner quelques résultats sur l'allure du canal plasma, puis sur sa capacité à guider le faisceau de pompe, et montrerons enfin qu'un effet laser à 32.8 nm a pu être obtenu par cette méthode, mais également sous certaines conditions en l'absence du guide préformé.

#### 6.4.1 Génération du canal plasma

La figure 6.10 illustre la nécessité du guidage du faisceau pompe. La zone sombre est due à l'ombre de la buse. Lorsqu'il est focalisé dans le jet de krypton à haute densité  $(> 10^{20} \text{ cm}^{-3})$ , la forte réfraction induite par le plasma fait qu'il diverge fortement. À ces fortes densités, l'utilisation d'un guide d'onde est donc indispensable non seulement pour générer un volume de gain de taille respectable, mais également pour que le rayonnement XUV émis se propage dans le plasma sans être absorbé.



FIGURE 6.10 – Interférogramme du plasma créé par le faisceau pompe dans le plasma en l'absence de guide d'onde. La zone sombre est due à l'ombre de la buse et le faisceau se propage de la gauche vers la droite. La distance à la buse est ici de 0.5 mm.

La figure 6.11 illustre l'intérêt d'utiliser l'impulsion *ignitor* pour créer un pré-canal. Nous avons vu que cette (pré)impulsion a finalement pour but d'optimiser la création du plasma en séparant la création d'une densité électronique non nulle du chauffage de ces électrons (comme dans le cas des lasers XUV sur cible solide). Le canal obtenu en utilisant seulement l'impulsion *heater* ne couvre pas toute la longueur du jet de gaz et n'est donc clairement pas envisageable pour notre expérience. En revanche, on pourrait envisager d'utiliser le canal généré par l'impulsion *ignitor* seule, qui couvre toute la longueur du plasma. Il est à noter que dans ce cas, la génération du canal ne s'effectue pas selon les mêmes mécanismes. Dans le cas "traditionnel" les électrons sont créés, soit par l'impulsion *ignitor* si elle est présente, soit par l'impulsion *heater*, et chauffés par bremsstrahlung inverse durant le passage de l'impulsion *heater*. Si seule l'impulsion fs est présente, c'est par OFI qu'une densité électronique suffisante est créée. Bien qu'on ne puisse pas déterminer proprement la largeur du canal, on note que celui obtenu par l'utilisation des deux impulsions semble plus large (d'environ 40%) et la densité électronique y est probablement plus élevée. Nous n'avons malheureusement pas pu calculer les profils de densité électronique correspondant à ces canaux plasma.



FIGURE 6.11 – Interférogrammes du canal plasma généré par (a) l'impulsion heater seule (200 mJ), (b) l'impulsion ignitor seule (70 mJ), et (c) les deux impulsions séparées de 350 ps. Le laser se propage de la gauche vers la droite.

Nous avons également pu tester différentes configurations permettant d'ajuster l'énergie laser disponible pour créer le guide. On rappelle que la répartition de l'énergie entre les deux impulsions du faisceau sonde sur cible est d'environ 70% pour l'impulsion *heater* contre 30% pour l'impulsion *ignitor*. La figure 6.12 donne les interférogrammes du canal plasma en fonction de l'énergie totale utilisée pour sa création.



FIGURE 6.12 – Interférogrammes du canal plasma généré par une énergie totale de (a) 80 mJ, (b) 240 mJ, (c) 410 mJ et (d) 550 mJ. Le laser se propage de la gauche vers la droite.

On constate donc qu'il n'est pas nécessaire d'utiliser une énergie très importante pour générer un canal capable de guider l'impulsion de pompe sur la longueur du jet de gaz. Les principaux effets d'une augmentation de l'énergie utilisée sont d'allonger le canal obtenu, mais également de l'élargir. Ceci est dû à une plus forte ionisation du gaz. On donne en figure 6.13 la densité électronique dans un canal plasma typiquement utilisé par la suite. On constate donc que celle-ci est très élevée, proche de  $10^{21}$  cm<sup>-3</sup> au début du canal. On constate également un profil conforme aux prédictions, capable de guider l'impulsion de pompe ( $\Delta n_e > 10^{20}$  cm<sup>-3</sup>) le long des 5 mm du plasma. Sa largeur est de l'ordre de 80  $\mu$ m le long du plasma, bien qu'on note une réduction jusqu'à 50  $\mu$ m vers la sortie du jet de gaz.



FIGURE 6.13 – (a) Densité électronique dans le canal plasma et (b) son profil radial à différentes abscisses z

On remarque également que la densité électronique diminue en moyenne lorsqu'on s'éloigne de l'entrée du canal, donc de l'axicon. Ceci est attendu dans la mesure où l'intensité laser des faisceaux focalisés par l'axicon diminue avec l'éloignement de ce dernier, comme le montre la relation 6.8. Enfin, on peut également noter la relative inhomogénéité de la densité le long du canal qui présente une structure en "bulles" généralement signe d'effets de focalisation/défocalisation successifs.

Tous les résultats présentés par la suite faisant intervenir un canal plasma préformé ont été obtenus dans la configuration suivante :

- Impulsion ignitor : 90 mJ, 35 fs sur cible
- Impulsion heater : 250 mJ, 400 ps sur cible
- Impulsion pompe :  $500 \,\mathrm{mJ}$ ,  $35 \,\mathrm{fs}$  sur cible

#### 6.4.2 Transmission du guide d'onde

Le canal plasma généré est donc valable pour le guidage de l'impulsion de pompe du milieu à gain. Grâce au dispositif d'imagerie à haut flux, nous avons pu enregistrer l'empreinte du faisceau de pompe dans le plan d'entrée du jet de krypton, puis dans le plan de sortie, avec ou sans canal plasma. La figure 6.14 donne les mesures (non normalisées) du profil spatial du faisceau pompe en entrée de jet (plan focal) et en sortie.



FIGURE 6.14 – Profil du faisceau non guidé, sans gaz

Le faisceau est donc focalisé à des dimensions (diamètre  $\geq 20 \,\mu$ m) proches de la limite de diffraction. Ces dimensions restant nettement inférieures au diamètre du guide tel que nous l'avons présenté plus haut, le couplage de ce faisceau dans le guide est envisageable. La figure 6.15 donne les profils du faisceau dans le plan de sortie du guide lorsque celui-ci est présent. Les différentes images correspondent à différents angles de couplage entre le faisceau et le guide.



FIGURE 6.15 – Profil du faisceau guidé dans le plan de sortie du guide plasma

La première constatation, faite en comparant ces profils à celui de la figure 6.14(b), est que le faisceau est bel et bien guidé par le canal. En effet, si on considère par exemple la première image de la série, le faisceau en sortie du canal possède un diamètre d'environ  $25 \,\mu$ m, donc comparable à celui en entrée du guide et à celui du guide lui-même. On est ici dans le cas d'un guidage quasimonomode. Du fait de la différence notable entre le diamètre du guide d'onde ( $80 \, mu$ m) et celui du faisceau en entrée du guide, un guidage monomode est pourtant théoriquement impossible. Il est néanmoins fort probable que le faisceau pompe subisse une défocalisation dans le plasma avant d'être injecté dans le guide et que son diamètre soit supérieur à celui mesuré dans le vide, rendant ainsi possible un couplage monomode.

On s'aperçoit également que le profil en sortie varie fortement selon les cas. Les différents cas exposés ici correspondent expérimentalement à différents angles d'injection du faisceau dans le guide. On peut observer des profils parfois composés de plusieurs taches bien distinctes, et parfois plus irréguliers. On est là dans le cas d'un guidage multimode. Il convient néanmoins dans notre cas de relativiser l'importance de l'angle d'injection dans le guide. En effet, nous ne pouvons pas introduire d'angle trop grand sous peine de ne plus coupler le faisceau dans le guide. Considérant le diamètre du guide, l'angle introduit ne doit impliquer une translation de la tache focale de plus de 50  $\mu$ m dans le plan d'entrée du guide. Ceci est également l'ordre de grandeur des fluctuations de pointé du faisceau. Dans des conditions expérimentales identiques, on peut ainsi observer des profils du faisceau différents en sortie de guide.

Les fluctuations du pointé du faisceau n'ont en revanche que peu d'influence sur la transmission totale du guide. Celle-ci a été mesurée sur plusieurs tirs consécutifs (Fig 6.16) et se situe globalement entre 35 et 50%.



FIGURE 6.16 – Transmission en énergie du guide d'onde pour différents tirs

#### 6.4.3 Guidage de l'impulsion pompe et effet laser

Toujours dans la même configuration, nous avons pu observer un effet laser à 32.8 nm en régime guidé. Le spectre donné en figure 6.17 est le résultat d'une accumulation de 10 tirs.



FIGURE 6.17 – (a) Spectre XUV obtenu par guidage de l'impulsion pompe à une densité atomique de  $1.4 \times 10^{20}$ . (b) Coupe transversale et comparaison au spectre obtenu à une pression de 30 mbar, en cellule. Un filtre en aluminium a été utilisé, expliquant la coupure du spectre à 17 nm

On donne également en figure 6.18 l'interférogramme du plasma et la carte de densité électronique déduite. Cette mesure a été effectuée pour un canal situé à une distance de 2.5 mm de la buse. La densité électronique à l'intérieur du plasma atteint jusqu'à  $1.4 \times 10^{21}$  cm<sup>-3</sup>, ce qui est proche de la densité critique à 800 nm. De plus, elle n'est pas réellement homogène le long du canal et on note une diminution globale de cette densité pour z croissant.



FIGURE 6.18 - (a) Interférogramme du plasma créé par guidage de l'impulsion pompe dans le canal préformé et (b) la carte de densité électronique correspondante. (c) donne la densité moyenne dans le canal le long du jet

Afin d'expliquer cette observation, il convient tout d'abord de se poser la question de l'importance de l'instant auquel nous avons sondé le plasma. Nous l'avons déterminé par ombroscopie et il est relativement mal connu. Nous avons néanmoins pu déterminer à l'aide d'autres mesures que pour cet interférogramme, le délai entre l'entrée de l'impulsion dans le canal plasma et l'instant où le plasma est sondé est de l'ordre de 10-15 ps, ce qui correspond à une position de l'impulsion pompe à environ 3-4 mm de l'entrée du plasma. Le plasma situé pour les z < 3 mm est donc issu de l'ionisation par l'impulsion de pompe, alors que le plasma pour les z supérieurs est simplement le canal préformé. La densité électronique mesurée dans ce dernier cas (clairement inférieure à  $10^{21}$  cm<sup>-3</sup>) est en effet comparable à celle mesurée dans le canal plasma seul.

Pour ce qui concerne le plasma ionisé par l'impulsion de pompe, nous devons également prendre en compte la rapidité des phénomènes collisionnels. En l'occurence, l'ionisation collisionnelle de l'espèce lasante  $\mathrm{Kr}^{8+}$ , rapide à une densité électronique de l'ordre de  $10^{21} \mathrm{ cm}^{-3}$ , fait que nous allons sonder à un instant donné un plasma dont le degré d'ionisation augmente. Nous avons tracé en figure 6.19 le résultat du calcul de l'évolution du degré d'ionisation moyen du plasma OFI issu d'une densité atomique de  $10^{20} \mathrm{ cm}^{-3}$ . On constate en premier lieu que l'ion lasant est totalement détruit moins de 300 fs après le passage de l'impulsion. Ce temps extrêmement court fait qu'en sondant à un délai donné, on ne peut connaître l'état du plasma lasant que sur une très faible distance (une centaine de  $\mu$ m). À partir de l'état de charge  $10^+$ , l'évolution est moins rapide. On peut donc estimer que le degré d'ionisation du plasma pour  $z < 3 \mathrm{ mm}$  se situe à l'instant auquel nous l'avons sondé entre 11 et 13. Ceci explique donc le fait que la densité électronique soit plus importante dans cette zone.



FIGURE 6.19 – Évolution temporelle du degré d'ionisation dans un plasma issu d'une densité de krypton de  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup>

Nous avons pu comparer le signal XUV en sortie à celui mesuré à partir d'une cellule de gaz à basse densité. Pour cette expérience, l'impulsion principale était focalisée à l'aide d'un miroir de focale de 1 m dans une cellule de 5 mm de long remplie de krypton à une densité de  $7.4 \times 10^{17}$  cm<sup>-3</sup> (30 mbar). Nous avons mesuré une amélioration sur l'énergie contenue dans l'impulsion XUV d'un facteur 5. Ceci est relativement faible si l'on considère la différence entre les gains et intensités de saturation attendus dans chaque cas (facteur 2 pour le gain, 3 ordres de grandeurs pour l'intensité de saturation. Le gain attendu est néanmoins environ 100 fois plus court , ce qui peut expliquer cette amélioration relativement modeste. L'impulsion XUV obtenue n'est donc pas beaucoup plus énergétique que pour une amplificateur à basse densité, mais beaucoup plus intense (au moins 2 ordres de grandeur).

#### 6.4.4 Autofocalisation relativiste et effet laser

Il est un effet que nous n'avons pas encore évoqué dans ce manuscrit et qui intervient à des intensités laser relativistes  $(I > 10^{18} \text{ W/cm}^2 \text{ dans le proche infrarouge})$ . Il s'agit de l'autofocalisation [202] [203] du faisceau dans le plasma, qui se développe à une densité électronique donnée lorsque la puissance du laser est supérieure à un seuil critique. Pour plus de détails sur le sujet, on peut se référer à [204].

Considérons tout d'abord le cas de l'optique non-linéaire conventionnelle, dans un gaz ou un diélectrique. L'indice de réfraction de ce milieu traversé par une forte intensité lumineuse peut s'écrire sous la forme  $n(r) = n_0 + n_2 I(r)$ , où  $n_2$  est appelé indice non-linéaire du milieu. Cet indice dépend donc de la coordonnée radiale *via* sa dépendance en intensité. Cela va donc pouvoir permettre une focalisation ou une défocalisation du faisceau laser. Dans notre cas cependant, l'impulsion interagit avec un milieu fortement ionisé et les phénomènes à prendre en compte relèvent de l'optique non-linéaire dans les plasmas [205].

L'autofocalisation relativiste est la combinaison de deux effets simultanés :

– Pour des éclairements laser dits relativistes  $(I > 10^{18} \text{ W/cm}^2)$ , la vitesse d'oscillation v des électrons dans le champ se rapproche de celle de la lumière. Ceci entraîne une augmentation de la masse effective de ces électrons :

$$m_e^{(\gamma)} = \frac{1}{\sqrt{1 - v^2/c^2}} m_e = \gamma m_e \tag{6.12}$$

En raison du profil radial d'éclairement laser, les électrons sur l'axe ont une masse effective plus importante que ceux à la périphérie. L'indice de réfraction du plasma dépendant de la masse des électrons  $\left(n^2 = 1 - \frac{n_e e^2}{\gamma m_e \epsilon_0 \omega^2}\right)$ , un indice de réfraction présentant un gradient radial favorable au guidage de l'impulsion peut être obtenu.

– Le mouvement d'un électron dans le champ laser ne se limite pas à suivre les variations du champ électrique. Sans détailler le calcul, nous pouvons écrire l'équation du mouvement fluide de l'électron en régime classique :

$$m_e \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + m_e(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = -e(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B})$$
(6.13)

On peut alors décomposer la vitesse de l'électron en un terme linéaire  $\mathbf{v_1}$  régi par l'équation obtenue dans le cas d'une onde plane  $m_e \frac{\partial \mathbf{v_1}}{\partial t} = -e\mathbf{E}$ , et en un terme non-linéaire  $\mathbf{v_2}$  régi par l'équation suivante après développement :

$$m_e \frac{\partial \mathbf{v_2}}{\partial t} = -\frac{e^2}{4m_e \omega^2} \nabla \mathbf{E}^2 \tag{6.14}$$

On constate donc la présence d'une force, dérivant du potentiel pondéromoteur  $U_p$  défini au chapitre 2 proportionnelle au gradient d'intensité laser. Cette force, appelée force pondéromotrice, présente une composante radiale ayant tendance à expulser les électrons de l'axe de propagation, diminuant ainsi la densité électronique sur l'axe et créant donc un profil d'indice de réfraction favorable au guidage.

Ces deux processus ont lieu dans des conditions expérimentales similaires et mènent à l'autofocalisation du faisceau dans le plasma. Précisons tout de même qu'une impulsion très courte ( $\tau_p \leq \omega_p$ ) ne peut pas s'autofocaliser par effet relativiste [206] [207], du fait de la génération par l'impulsion d'une perturbation de densité longitudinale défocalisante. On ne se situe néanmoins pas dans ce cas pour des densités électroniques supérieures à  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . L'effet de l'autofocalisation relativiste est perceptible dès lors qu'il est du même ordre de grandeur que la diffraction naturelle du faisceau. La comparaison de ces deux effets opposés a amené la notion de puissance critique, dont l'expression la plus communément utilisée est :

$$P_c \; [\text{GW}] = 17.4 \frac{n_c}{n_e} \tag{6.15}$$

Dans le cas d'impulsions intenses comme celles que nous avons utilisées, la densité électronique étant relativement proche de la densité critique, on peut s'attendre à observer l'autofocalisation du faisceau. L'autofocalisation relativiste peut entraîner la propagation de l'onde sur une très grande distance. La structure découlant de la compétition entre la diffraction et l'autofocalisation est usuellement composée d'une succession de foyers dont l'espacement est déterminé par les conditions de l'interaction. Cet effet a été observé pour la première fois en 1995 [208] dans un plasma d'hydrogène.

Nous avons focalisé l'impulsion pompe dans le jet de krypton lorsque celle-ci contient la totalité de l'énergie disponible, soit près de 1 J sur cible. L'intensité correspondante sur cible est alors de près de  $10^{19}$  W/cm<sup>2</sup> (dans le vide). On se situe alors clairement en régime relativiste. La puissance de l'impulsion est de l'ordre de 30 TW, largement supérieure à la puissance critique d'autofocalisation à une densité électronique de  $10^{21}$  cm<sup>-3</sup> (de l'ordre de 30 GW). L'impulsion peut donc s'autofocaliser, et c'est ce que nous avons observé.

On donne en figure 6.20 un interférogramme obtenu dans le cas de l'autofocalisation du faisceau pompe. Il a été enregistré avec un délai suivant l'arrivée de l'impulsion dans le gaz suffisamment grand pour que l'impulsion soit sortie du jet.



FIGURE 6.20 – Propagation de l'impulsion pompe à forte énergie sans guide d'onde : guidage par autofocalisation relativiste

On constate effectivement que l'impulsion est auto-guidée sur près de 3 mm puis est réfractée par le plasma. Le diamètre du canal créé est du même ordre que celui créé par le schéma *ignitor+heater*. La transmission globale est en revanche bien plus faible, de l'ordre du pourcent. Ceci a néanmoins rendu possible la mesure d'un effet laser à 32.8 nm (Fig. 6.21). Le signal mesuré est dans le meilleurs des cas comparable à celui obtenu en cellule de gaz. Nous avons également pu constater que l'intensité du signal XUV dépendait de la densité atomique de krypton. Plus précisément, un signal optimal a été obtenu pour une distance à la buse de 3.5 mm. Lorsque la densité augmente, les conditions d'autofocalisation changent et le canal a tendance à rétrécir. L'impulsion est alors beaucoup plus intense et crée un plasma d'état de charge au-delà de  $8^+$ , causant la disparition de l'effet laser.



FIGURE 6.21 – Spectre XUV obtenu par auto-guidage de l'impulsion de pompe dans le plasma et comparaison avec celui obtenu par guidage dans le canal plasma préformé

# 6.5 Conclusion

Nous avons pu démontrer pour la première fois la possibilité d'obtenir un effet laser dans le krypton nickelloïde à des densités atomiques supérieures à  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup>. Le guidage de l'impulsion de pompe, indispensable à ces densités, peut s'effectuer soit par l'intermédiaire d'un canal plasma préformé par laser, soit par autofocalisation de l'impulsion principale. L'utilisation d'un canal préformé permet de guider l'impulsion de pompe sur une distance d'environ 5 mm, correspondant à la longueur du jet de gaz. Une transmission en énergie de 50% a été mesurée. Dans le cas du guidage par autofocalisation relativiste, l'impulsion est guidée sur quelques millimètres, puis se propage en étant réfractée jusqu'à la fin du jet de gaz. La transmission totale n'est dans ce cas que de l'ordre du pourcent.

L'effet laser obtenu dans le cas du guidage par canal plasma préformé a permis de mesurer un gain en énergie d'un facteur 5 par rapport à celui obtenu à une densité atomique de quelques  $10^{17}$  cm<sup>-3</sup> dans une cellule de gaz 5 mm de long. Dans le cas du guidage par autofocalisation de l'impulsion, le signal est comparable à celui obtenu à basse densité. On peut trouver comme raison à cette modeste amélioration le fait que l'ionisation collisionnelle, plus forte à haute densité, détruit le milieu lasant beaucoup plus rapidement. La durée de vie du gain XUV est alors beaucoup plus courte, inférieure à 100 fs, ce qui explique un gain en énergie plus faible malgré un gain laser et une intensité de saturation de l'amplificateur plus importants. En optimisant le canal plasma puis la génération du milieu amplificateur, on devrait pouvoir obtenir un signal plus important.

Cette expérience ouvre la voie à l'obtention d'impulsions laser XUV énergétiques et ultrabrèves. Ceci est particulièrement remarquable dans le sens où, jusqu'à présent, la réduction de la durée des impulsions laser XUV (hors LEL) s'est toujours faite au détriment de l'énergie par impulsion. Nous avons ici la perspective de générer des impulsions à la fois plus courtes et plus énergétiques. La prochaine campagne expérimentale verra notamment le milieu amplificateur injecté par harmonique. On devrait ainsi pouvoir réellement mesurer la durée du gain et donc obtenir des informations sur la durée de l'impulsion XUV. La technique d'injection permettra également d'améliorer l'extraction d'énergie dans l'amplificateur et les qualités spatiales du faisceau XUV.

# Conclusion générale et perspectives

Nous avons étudié la source XUV obtenue par injection d'harmonique dans un amplificateur plasma créé par laser de manière extensive par diverses méthodes. Nous avons pu tout d'abord, en nous intéressant à l'influence des grandeurs caractéristiques de l'amplificateur (longueur, densité, niveau d'injection, etc...), nous rendre compte du grand nombre de paramètre expérimentaux permettant de contrôler aisément les caractéristiques du rayonnement XUV émis. On peut ainsi faire varier de manière quasi-indépendante la longueur de l'amplificateur, son gain, son intensité de saturation ou le régime d'amplification (exponentiel ou saturé).

La qualité spatiale exceptionnelle du faisceau laser obtenu en fait une source remarquable dans ce domaine spectral. Nous avons vu que, grâce au filtrage du faisceau harmonique par le gain de l'amplificateur, le faisceau XUV est fortement collimaté, cohérent, proche de la limite de diffraction, et présente un profil spatial régulier et homogène. Nous avons encore pu constater que ces caractéristiques spatiales sont également liées à certaines grandeurs caractéristiques de l'amplificateur et peuvent ainsi –dans une certaine mesure– être choisies en fonction de l'utilisation souhaitée. Notons par ailleurs que le contrôle de la forme de l'amplificateur par l'intensité de pompe utilisée pour le générer est une méthode originale pour créer des faisceaux avec un profil spatial de Bessel. Cette source est idéale pour des expériences d'imagerie ou d'holographie, et de manière générale pour l'optique dans le domaine XUV. Le bon front d'onde du faisceau offre aussi une très bonne capacité de focalisation, à des dimensions proches de la limite de diffraction, et l'éclairement obtenu devrait ainsi permettre une étude de l'interaction laser-matière dans ce domaine spectral encore relativement peu exploité.

En caractérisant l'impulsion XUV émise dans le domaine spectral par une méthode interférométrique, nous avons pu constater que celle-ci est –en régime de saturation du gain– limitée par transformée de Fourier et a une durée de quelques picosecondes, ce qui correspond à une raie spectrale de très grande finesse (10000). Par cette même méthode, nous avons pour la première fois mis en évidence un rétrécissement spectral par le gain de l'amplificateur en régime injecté. Toutes ces mesures ont été enrichies par les résultats numériques fournis par une modélisation simple basée sur l'équation de transfert radiatif usuelle. Dans le domaine temporel en revanche, les particularités du régime d'amplification (impulsion courte devant les temps caractéristiques d'évolution du milieu) font qu'un formalisme plus détaillé est nécessaire pour expliciter l'évolution de l'impulsion durant son amplification. En ce sens, les résultats fournis par un code numérique résolvant les équations de Maxwell-Bloch à deux niveaux sont en bon accord avec les mesures effectuées.

Il est néanmoins apparu que cette source, bien que mature pour une utilisation dans un champ varié d'applications, était à l'heure actuelle relativement limitée en termes de puissance. Nous avons donc cherché à développer l'amplificateur en vue de la production d'impulsions XUV intenses. L'augmentation de la densité du plasma est une piste prometteuse qui offre à la fois une augmentation de l'intensité de saturation et du gain de l'amplificateur, et une réduction de la durée de ce gain. La principale contrainte expérimentale posée –la propagation du faisceau laser de pompe dans le plasma– a été levée par une technique de guidage plasma préformé par laser. Grâce à cette technique relativement difficile à mettre en œuvre nous avons pu démontrer le guidage efficace de l'impulsion sur une longueur de plasma de près de 5 mm, et ainsi obtenir un effet laser dans ce même plasma ionisé par le champ laser, en régime d'ASE. Les perspectives offertes par cette technique se situent de manière générale dans le cadre des sources secondaires créées par laser (accélération de particules, sources X par électrons, etc...).

Nous avons mesuré une modeste amélioration en énergie par rapport au cas du laser XUV généré à basse densité qui va dans le sens d'une augmentation en intensité, la durée attendue du gain, et donc la durée maximale des impulsions XUV émises, n'excédant pas la centaine de femtosecondes. Cette expérience sera reproduite très bientôt avec une technique d'alignement des faisceaux améliorée, ce qui devrait permettre l'obtention d'impulsions d'une dizaine de microjoules et de durée inférieure à 100 fs. Le guidage de l'impulsion sur une longueur de plasma plus importante sera également testé et ce plasma amplificateur sera finalement injecté par harmonique. La dynamique du gain pourra ainsi être sondée avec une résolution inférieure à 30 fs.

La compréhension plus fine des phénomènes dont le plasma à une densité quasi-critique est le siège nécessite quelques modifications sur le code numérique existant, notamment la prise en compte des effets collisionnels ayant lieu au cours de l'ionisation par le champ laser. L'élargissement de la raie laser XUV devra de même être reconsidéré, l'élargissement par effet Stark n'étant *a priori* plus négligeable. De manière plus générale en ce qui concerne les codes numériques utilisés durant cette thèse, la prise en compte du profil spatial du champ infrarouge de pompe (mesuré à l'aide d'un senseur de front d'onde par exemple) pour le calcul du plasma d'ions lasants est également à prévoir. Ceci implique le passage du code de propagation en 3 dimensions.

Ce travail est également un pas encourageant vers la réalisation d'un laser XUV de longueur d'onde significativement plus courte. Comme nous avons pu le voir dans le premier chapitre, le schéma de pompage par recombinaison est en effet plus adapté que le schéma collisionnel à l'obtention d'inversions de population dans des transitions énergétiques. Ce schéma, tombé en désuétude depuis plusieurs années, nécessite la production contraignante d'un plasma dense et froid (qq 10 eV).

La création de ce plasma par ionisation par le champ laser est bien indiquée car autorise une inversion de population mettant en jeu le niveau fondamental de l'ion lasant et correspondant donc à une transition de courte longueur d'onde. On peut citer notamment la transition 3d - 2p ( $\lambda$ =10 nm) dans le néon lithiumoïde, ou la transition 2p - 1s dans l'azote totalement ionisé ( $\lambda$ =2.5 nm). Un autre aspect attrayant de ce schéma de pompage est que le temps de vie du gain est naturellement inférieur à la picoseconde, laissant présager



des impulsions XUV de courte durée. L'ionisation par le champ laser permet également, si celui-ci est polarisé linéairement, de limiter le chauffage des électrons du plasma. Comme le montre la figure ci-dessus (représentant le calcul de la distribution électronique du plasma après le passage d'une impulsion focalisée à une intensité de  $10^{17} \,\mathrm{W/cm^2}$ ), le doublage en fréquence du laser de pompe permet de réduire encore ce chauffage.

Finalement, nous pouvons dire que la technique d'injection d'harmonique est une méthode très efficace pour améliorer les caractéristiques de la source traditionnelle qu'est l'amplificateur en régime d'ASE. Elle a permis la production de faisceaux de qualité laser dans le domaine XUV, et se révèle donc incontournable pour certaines applications. Bien que relativement lourde à mettre en œuvre, sa généralisation aux installations laser XUV dédiées aux applications ne serait qu'extrêmement bénéfique pour une communauté d'utilisateurs. Si les progrès réalisés ces dernières années sur la production de sources laser XUV par plasma laser sont tout-à-fait remarquables, il est clair que cette science tirera profit de la construction de grands infrastructures laser telles que celles prévues (projet européen ELI, ILE en France) dans un futur proche.
## Annexe A

# Front d'onde d'un faisceau et aberrations

Le front d'onde d'un faisceau est la surface est défini comme la surface d'onde de ce dernier, soit comme l'ensemble des points de l'espace possédant la même phase. Autrement dit, tous les point du front d'onde ont parcouru le même chemin optique. Ceci implique donc que, dans le cas d'un faisceau réel, la notion de front d'onde n'a de sens que si le faisceau est cohérent transversalement.

En pratique, on définit le front d'onde par son écart (normal) à celui d'une onde de référence, supposée sphérique. Cet écart en un point **P** donné de la surface de référence est donc la différence de chemin optique  $\delta(\mathbf{P})$  parcourue par l'onde réelle par rapport à celui de l'onde de référence (Fig. A.1). On a pour coutume de le mesurer en microns ou en fraction de la longueur d'onde  $\lambda$ . Dans ce manuscrit, c'est cet écart normal  $\delta$  qui est appelé front d'onde.



FIGURE A.1 – Définition du front d'onde  $\Sigma$  d'un faisceau par son écart  $\delta$  à une surface d'onde plane  $\Sigma_{ref}$ 

On constate à l'aide de ce schéma que l'écart du front d'onde  $\delta$  à la surface d'onde de référence est défini à une constante près, appelée piston, selon la position du centre de la sphère de référence S que l'on choisit sur l'axe de propagation. Nous avons chois cette constante de façon à ce que l'écart de front d'onde moyen  $\langle \delta \rangle_{\Sigma}$  soit nul. Deux grandeurs permettent en général de quantifier les variations du front d'onde :

- L'écart crête-à-crête (ou PV pour *peak-to-valley*) qui est l'amplitude maximale des variations, définie par  $\Delta = -\delta$   $\delta$  (A 1)

$$\Delta_{P-V} = \delta_{max} - \delta_{min} \tag{A.1}$$

 L'écart normal quadratique (ou RMS pour *root-mean-square*) qui est l'écart-type de ces variations par rapport à leur valeur moyenne, défini par

$$\Delta_{RMS} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \left[\delta(P_i) - \langle \delta \rangle\right]^2}$$
(A.2)

où N est le nombre de ponts d'échantillonnage. Dans l'évaluation de la qualité d'un front d'onde, cette grandeur est plus significative que l'écart PV dans la mesure où elle est moins sensible à des défauts locaux de la surface d'onde ou à des erreurs de mesures qui apparaissent généralement en bord de pupille. Dans ce manuscrit, on l'appelera abusivement écart normal aberrant.

Pour plus de détails sur les aberrations et le développement de l'écart normal, on peut se reporter à [171]. Lorsque le front d'onde n'est pas parfaitement sphérique, on dit qu'il est entaché d'aberrations. De manière générale, on peut développer l'écart normal  $\delta$  en fonction de la position transverse dans le plan de mesure et dans une pupille définie au préalable (Fig. A.2). pour une pupille unitaire, ce développement s'écrit :

$$\delta(\rho, y, \theta) = \sum_{p,q,s>0} \alpha_{pqs} \,\rho^{2p} y^{2q} (\rho \, y \cos \theta)^s \tag{A.3}$$

Un développement classique est celui de Seidel obtenue en développent les  $(\cos \theta)^s$ :

$$\delta(\rho, y, \theta) = \sum_{p,q,m>0} \beta_{pqm} \, \rho^{2p+m} y^{2q+m} \cos(m\theta) \tag{A.4}$$

La dépendance en  $\rho$  est alors exprimée sur la base canonique des polynômes de  $\rho$ . On définit l'ordre *n* des aberrations par n = 2p + 2q + 2m - 1. L'écart s'exprime en puissance de n+1. Les aberrations les plus importantes sont donc celles d'ordres les plus bas.



FIGURE A.2 – Définition des variables

Dans le développement de Seidel, les aberrations d'ordre 1 comprennent :

- un terme en  $\rho^2$  désignant un écart de courbure sur la sphère, donc un défaut de mise au point inexistant dans notre cas
- un terme en  $\rho y \cos \theta$  désignant un déplacement latéral du centre de la sphère, donc un défaut de basculement (tilt) dû à l'incidence du faisceau sur le senseur
- un terme en  $y^2$  équivalent à un déplacement longitudinal du centre de la sphère; c'est le piston, qui n'est pas une aberration puisque le front d'onde reste sphérique

Ces aberrations correspondent à des changements de la sphère de référence et sont donc liés à la mesure. On parle réellement d'aberration à partir de l'ordre 3. Pour les décrire, on peut faire l'analogie avec la traversée d'un système optique. L'astigmatisme correspond à un déphasage induit entre les rayons tangentiels (dans le plan (x, z)) et les rayons sagittaux (dans le plan (y, z)). La courbure de champ revient à un défaut de mise au point variable dans le champ (champ courbé). La coma correspond au fait que les rayons en un point du champ y

Un autre développement possible des aberrations est celui des Zernike, plus adapté à l'étude d'aberrations fortes et à leur compensation. L'idée est de développer la dépendance en  $\rho$  sur une base orthogonale de polynômes. Cette base est celle des polynômes de Zernike normalisés  $R_n^m$ , avec  $n \ge m$  et n - m pair. Le développement de l'écart normal s'écrit alors :

$$\delta(\rho, y, \theta) = \sum_{m, n, q} \beta_{mnq} R_n^m(\rho) y^{2q+m} \cos(m\theta)$$
(A.5)

On donne en figure A.3 l'allure des premiers polynômes de Zernike avec la dépendance angulaire.



FIGURE A.3 – Polynômes de Zernike avec la dépendance en  $\theta$ 

Le terme n = 0 correspond au piston, et les termes n = 1 aux basculements à 0° et 90°. Le terme n = 2 et m = 0 correspond au défaut de mise au point. Ces défauts ont été retranchés dans

toutes nos mesures. On peut ensuite faire le lien avec les aberrations de Seidel.

- m = 0: aberration sphérique d'ordre 3 (n = 4), 5 (n = 6), etc...
- $m = \pm 1$ : coma à 0° et 90° d'ordre 3 (n = 3), 5 (n = 5), etc...
- $m = \pm 2$ : astigmatisme à 0° et 45° d'ordre 3 (n = 3), 5 (n = 5), etc...
- $m = \pm 3$ : trefoil à 0° et 45° d'ordre 5 (n = 3), 7 (n = 5), etc...
- $-m = \pm 4$ : quadrafoil
- etc...

## Annexe B

# Cohérence optique

Historiquement, le sens premier que l'on a donné à la cohérence d'un champ optique était sa capacité à produire des interférences. Dans son sens actuel, on la considère comme l'ensemble des propriétés de corrélation du champ optique. Pour des raisons pratiques, on distingue souvent la cohérence temporelle (ou longitudinale), la cohérence spatiale (ou transverse) et la cohérence de polarisation que nous ne traiterons pas ici. On considèrera dans l'approximation scalaire le champ U émis par une source constitué d'un ensemble d'émetteurs.

## Définition

Le problème posé est de savoir s'il existe une relation entre le champ en deux points A et B différents à deux instants différents  $t_1$  et  $t_2$ . Il est impossible de suivre les fluctuations irrégulières du champ émis par l'ensemble d'émetteurs non synchrones que constitue la source. On décrira alors le champ comme un processus aléatoire et on définit dans ce cadre la fonction de corrélation du champ, donnée par sa covariance

$$\Gamma_{AB}(t_1, t_2) = E\left[U_A(t_1)U_B^*(t_2)\right]$$
(B.1)

Dans l'hypothèse d'un processus stationnaire (propriétés statistiques invariantes dans le temps) et ergodique (la moyenne temporelle sur un grand nombre de réalisations est égale à la moyenne temporelle statistique) cette fonction s'écrit :

$$\Gamma_{AB}(\tau) = \langle U_A(t) U_B^*(t+\tau) \rangle \tag{B.2}$$

où  $\tau = t_1 - t_2$ . On introduit alors le degré de cohérence mutuelle normalisé :

$$\gamma_{AB}(\tau) = \frac{\Gamma_{AB}(\tau)}{\sqrt{\Gamma_{AA}(0)\,\Gamma_{BB}(0)}} = \frac{\Gamma_{AB}(\tau)}{\sqrt{I_A\,I_B}} \tag{B.3}$$

avec  $I_A$  (resp.  $I_B$ ) est l'intensité moyenne en A (resp. B). Le cas  $\gamma_{AB} = 1$  correspond à une cohérence totale et le cas  $\gamma_{AB}$  à une cohérence nulle.

#### B. Cohérence optique

On peut alors définir le degré de cohérence spatiale entre deux points A et B à un instant donné  $\gamma_{AB}(0)$  et le degré de cohérence temporelle en un point A donné  $\gamma_{AA}(\tau)$ :

$$\gamma_{AB}(0) = \frac{\Gamma_{AB}(0)}{\sqrt{I_A I_B}} \qquad \text{Cohérence spatiale} \tag{B.4}$$

$$\gamma_{AA}(\tau) = \frac{\Gamma_{AA}(\tau)}{I_A}$$
 Cohérence temporelle (B.5)

## Le théorème de Zernike-van Cittert pour la cohérence spatiale

La cohérence spatiale d'une source représente la capacité des champs émis par différents points de cette source à interférer entre eux. Il s'agit donc de caractériser la corrélation de phase des champs émis par chaque point de la source. Une source ponctuelle quasi-monochromatique sera donc totalement cohérente du point de vue de la cohérence spatiale. On peut alors se dire que si la distance d'observation de la source est suffisamment grande, celle-ci peut être considérée comme ponctuelle et sera donc vue comme cohérente. On parlera alors abusivement de la cohérence du rayonnement émis par la source. On peut calculer le degré de cohérence entre deux points distincts  $\mathbf{P_1}$  et  $\mathbf{P_2}$  d'un plan situé à une distance D de la source incohérente, et montrer que dans le cas où D est grande devant l'extension spatiale de la source, il est donné par la transformée de Fourier de la répartition d'intensité de la source :

$$|\Gamma(\mathbf{R_1}, \mathbf{R_2})| = \left| \frac{\iint_S I(\mathbf{r}) e^{i2\pi \frac{\mathbf{R_2} - \mathbf{R_1}}{\lambda D} \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r}}{\iint_S I(\mathbf{r}) d\mathbf{r}} \right| \simeq \frac{\left| \tilde{I} \left( \frac{\mathbf{P_2} - \mathbf{P_1}}{\lambda D} \right) \right|}{I_{source}}$$
(B.6)

dans le cas où  $|\mathbf{R}_1|$  et  $|\mathbf{R}_2|$  représentant les distances entre  $P_1$  et  $P_2$  et le point courant de la source **r** sont grandes devant  $|\mathbf{r}|$ . Ce résultat constitue le théorème de Zernike-van Cittert et montre qu'une source quasi-monochromatique d'étendue spatiale non-nulle rayonne une partie cohérente.

## Mesure de la cohérence et cas particulier des fentes d'Young pour la cohérence spatiale



FIGURE B.1 – Cohérence et interférences

Considérons un interféromètre à deux bras (Fig. B.1) et une source quasi-monochromatique  $k = 2\pi/\bar{\lambda}$ . L'intensité reçue par le détecteur en un point *P* s'écrit :

$$I_P = \left\langle \left| U_A \left( t - \frac{r_1}{c} \right) e^{ikr_1} + U_B \left( t - \frac{r_2}{c} \right) e^{ikr_2} \right|^2 \right\rangle \tag{B.7}$$

On peut montrer que :

$$I_P = I_A + I_B + 2 \,\Re e \Big[ \Gamma_{AB}(\tau) \, e^{ik(r_1 - r_2)} \Big]$$
(B.8)

puis en posant  $\Gamma_{AB}(\tau) = |\Gamma_{AB}(\tau)| e^{i\Phi_{AB}(\tau)}$ :

$$I_P = 2\bar{I} \left[ 1 + 2 |\gamma_{AB}(\tau)| \cos\left(\frac{2\pi}{\bar{\lambda}}\delta_P + \Phi_{AB}(\tau)\right) \right]$$
(B.9)

avec  $\tau \simeq t_1 - t_2$ ,  $\delta_P = r_1 - r_2$ ,  $\Phi_{AB} = \frac{2\pi c\tau}{\bar{\lambda}}$  et  $\bar{I}$  la valeur moyenne de l'interférogramme. Le contraste des franges obtenues est donc donné par le module du degré de cohérence normalisé.

La méthode de mesure la plus répandue pour la mesure de la cohérence spatiale d'une source (du moins dans le domaine XUV) est l'interférométrie par un système de doubles fentes d'Young d'espacement variable (Fig. B.2). Il s'agit d'un interféromètre à division de front d'onde composé de deux fentes parallèles dans un plan orthogonal à la direction de propagation du faisceau. Selon le principe d'Huygens-Fresnel, les deux ondes secondaires crées par les fentes ont notamment la même phase que les points correspondant de l'onde incidente. La diffraction dans la direction perpendiculaire aux fentes permet le recouvrement de ces deux ondes secondaires et donc l'apparition d'un champ d'interférences si elles sont mutuellement cohérentes.



FIGURE B.2 – Principe du dispositif des fentes d'Young

Le champ créé par une fente F de largeur e s'écrit en ce point en fonction de sa phase initiale  $\Psi_F E(F) = E_F \sin(\omega t + \Psi_F) \Pi\left(\frac{x}{e}\right)$  où  $\Pi$  la fonction porte. Considérons un point P situé sur le détecteur placé dans le plan orthogonal au plan des fentes et à une distance L de celles-ci. Le champ reçu par ce point est la somme des deux champs crées par chaque fente et s'écrit donc dans l'hypothèse où ces champs ont la même amplitude  $E_0$  (donc pour un faisceau incident centré sur les fentes) et la même phase initiale (onde cohérente) :

$$E(P) = E_0 \sin(\omega t) \operatorname{sinc}\left(\frac{\pi e}{\lambda L}x\right) + E_0 \sin(\omega t - \Delta\varphi) \operatorname{sinc}\left(\frac{\pi e}{\lambda L}x\right)$$
(B.10)

si on situe dans le cas de la diffraction de Fraunhoffer L >> e. Le déphasage  $\Delta \varphi$  est dû au fait que ces deux ondes ont suivi un chemin optique différent avant d'arriver au point P. Ce déphasage

s'écrit en fonction de la différence entre les chemins optiques de chaque onde, où différence de marche  $\delta(x)$  et on a dans le cas où la distance entre les fentes et le détecteur est grande devant l'espacement des fentes d:

$$\Delta \varphi = \frac{2\pi \delta(x)}{\lambda} \simeq \frac{2\pi d}{\lambda L} x \qquad \text{si} \qquad L >> d \tag{B.11}$$

L'intensité en P(x) s'écrit alors :

$$I(x) = I_0 \cos^2\left(\frac{\pi d}{\lambda L}x\right) \operatorname{sinc}\left(\frac{\pi e}{\lambda L}x\right)$$
(B.12)

On observe donc sur le détecteur une alternance de franges sombres  $(\Delta \varphi = (2n+1)\pi)$  et brillantes  $(\Delta \varphi = 2n\pi)$  enveloppées par une fonction sinus cardinal due à la diffraction par largeur non nulle de la fente.

La grandeur permettant de mesurer la cohérence entre les ondes émises par les fentes est le contraste, ou visibilité, des franges définie par :

$$V = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \tag{B.13}$$

La mesure de la visibilité des franges donne directement le degré de cohérence mutuelle entre les ondes, et donc celui de la source.

## Annexe C

# Équation paraxiale et modes de propagations dans le vide

Considérons une onde sphérique divergeant d'un point source  $\mathbf{r}_0$  observée en un point  $\mathbf{r}$ . Dans l'approximation paraxiale, cette onde s'écrit

$$u(x,y,z) = \frac{1}{q(z)} e^{-ik\frac{(x-x_0)^2 + (y-y_0)^2}{2q(z)}}$$
(C.1)

avec  $q(z) = q(z_0)+z-z_0$  le rayon de courbure de l'onde sphérique à l'abscisse z. Bien que solution de l'équation de propagation paraxiale, cette formulation n'est pas satisfaisante puisque l'amplitude de l'onde augmente indéfiniment avec la distance transverse. On peut s'en affranchir en considérant que le point source a des coordonnées complexes. Pour simplifier, on suppose  $x_0 = y_0 = 0$  et on soustrait une quantité arbitraire  $q_0$  complexe à q(z). Cela revient à considérer que  $q(z_0)$  est complexe dans l'expression précédente.

On écrit alors le rayon de courbure sous la forme  $\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{\pi w^2(z)}$ . L'expression de l'onde sphérique devient alors :

$$u(x,y,z) = \frac{1}{q(z)} e^{-ik\frac{x^2 + y^2}{2R(z)} - \frac{x^2 + y^2}{w^2(z)}}$$
(C.2)

R(z) est le rayon de courbure de l'onde (réel) et w(z) le waist du faisceau. On peut relier tous ces paramètres au waist minimal du faisceau  $w_0$  et à la distance de Rayleigh  $Z_R$  (cf chapitre 2) et écrire alors l'amplitude de l'onde sous la forme

$$u(x,y,z) = \frac{w_0}{w(z)} e^{-\frac{x^2 + y^2}{w^2(z)} - ik\frac{x^2 + y^2}{2R(z)} - ikz + i\zeta(z)}$$
(C.3)

où  $\zeta(z)$  est le déphasage de Gouy. C'est l'expression de l'onde sphérique gaussienne.

On peut s'intéresser aux modes gaussiens d'ordres supérieurs. Dans un système de coordonnées cartésiennes, on peut écrire

$$u_{nm}(x, y, z) = u_n(x, z)u_m(y, z)$$
 (C.4)

 $u_{nm}$  correspond au mode TEM<sub>nm</sub>.

Pour résoudre l'équation de propagation, on essaye une solution de la forme

$$u_n(x,z) = \mathcal{A}[q(z)] \mathcal{H}_n\left[\frac{x}{p(z)}\right]$$
(C.5)

où  $\mathcal{A}(q)$  et  $\mathcal{H}_n(\frac{x}{p})$  sont des fonctions *a priori* inconnues. En supposant qu'on a encore  $\frac{dq}{dz} = 1$ , l'équation de propagation paraxiale devient :

$$\mathcal{H}_{n}^{\prime\prime} - 2ik\left[\frac{p}{q} - p^{\prime}\right]x\mathcal{H}_{n}^{\prime} - ik\frac{p^{2}}{q}\left[1 + \frac{2q}{\mathcal{A}}\frac{d\mathcal{A}}{dq}\right]\mathcal{H}_{n} = 0$$
(C.6)

Cette équation ressemble à l'équation différentielle y'' - 2xy' + 2ny = 0 dont les polynômes de Hermite  $H_n$  sont solution.  $H_n(\frac{x}{p})$  sera donc solution si

$$\begin{cases} \frac{dp}{dz} &= \frac{p}{q} + \frac{i}{kp} \\ \frac{d\mathcal{A}}{dq} &= \left[ 2ikn\frac{p^2}{q} - 1 \right] \frac{\mathcal{A}}{2q} \end{cases}$$
(C.7)

Pour résoudre ce système, on suppose p réel, de la forme  $p(z) = w(z)/\sqrt{2}$ . p satisfait alors la 1<sup>re</sup> équation du système. L'intégration de la 2<sup>e</sup> équation mène à  $\mathcal{A}(q) = \mathcal{A}_0 \left[\frac{q_0}{q}\right]^{1/2} \left[\frac{q_0}{q_0^*}\frac{q^*}{q}\right]^{n/2}$ . On montre alors que la fonction  $u_{nm}$  peut se mettre sous la forme :

$$u_{nm}(x,y,z) = \frac{w_0}{w(z)} H_n\left(\frac{x\sqrt{2}}{w(z)}\right) H_m\left(\frac{y\sqrt{2}}{w(z)}\right) e^{-\frac{x^2+y^2}{w^2(z)} - ik\frac{x^2+y^2}{2R(z)} - ikz + i(n+m+1)\zeta(z)}$$
(C.8)

On peut alors écrire le champ total multimode comme superposition de modes TEM, également appelés modes de Hermite-Gauss :

$$u(x, y, z) = \sum_{n,m} \alpha_{nm} u_n(x, z) u_m(y, z)$$
(C.9)

Pour des système présentant une symétrie cylindrique, il peut être plus pratique de considérer les modes dits de Laguerre-Gauss :

$$u_{kl}(r,\theta,z) = \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(z)}\right)^l L_k^{(l)} \left(\frac{2r^2}{w^2(z)}\right) e^{-\frac{r^2}{w^2(z)} - ik\frac{r^2}{2R(z)} - ikz + il\theta + (2k+l+1)\zeta(z)}$$
(C.10)

où les  $L_k^{(l)}$  sont les polynômes de Laguerre généralisés.



FIGURE C.1 – Les premiers modes de Hermite-Gauss



FIGURE C.2 – Les premiers modes de Laguerre-Gauss

## Annexe D

# Guide plasma préformé par laser

Nous allons ici donner un petit plus de détails sur la physique sous-jacente à la création et au guidage d'une impulsion dans un guide d'onde plasma créé par laser. Rappelons que le principe est de focaliser une impulsion longue (qq 100 ps) dans un gaz. Cette impulsion va créer un plasma et chauffer les électrons de ce dernier. Le plasma va ensuite s'expandre et permettre l'apparition d'un profil de densité électronique idéal pour le guidage d'une impulsion lumineuse.

### Chauffage des électrons par bremsstrahlung inverse

La vitesse thermique moyenne d'un électron vaut  $\langle v_e \rangle = \sqrt{\frac{k_B T_e}{m_e}}$ , et la distance caractéristique entre un ion et un électron du plasma est donnée par le rayon de Wigner-Seitz, soit  $\ell_{ei} = \left[\frac{3}{4\pi n_e}\right]^{\frac{1}{3}}$ . Pour un plasma de densité électronique  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$  et de température 1 eV, le temps caractéristique de collision électron-ion est de l'ordre de quelques dizaines de fs. Pour une impulsion laser de 100 ps, le mécanisme de chauffage des électrons est donc l'absorption par bremsstrahlung inverse. On rappelle que ce mécanisme correspond à l'absorption d'un photon par un électron dans le champ d'influence d'un ion ou d'un atome. On suppose que le plasma est suffisamment loin de la densité critique afin de pouvoir négliger les effets de chauffage paramétriques qui apparaissent alors. Il peut être intéressant d'estimer l'énergie apportée aux électrons par bremsstrahlung inverse. Cette énergie va dépendre de l'énergie de l'impulsion laser, de sa durée, et de sa longueur d'onde. Dans le modèle de Lorentz et en l'absence de pertes, on peut montrer que le taux de chauffage des électrons dans un champ laser d'amplitude  $E_0$  et de fréquence  $\omega$  vaut :

$$\frac{d\epsilon}{dt} = \frac{e^2 E_0^2}{2m_e \omega^2} \frac{\omega^2}{\omega^2 + \nu_m^2} \nu_m \simeq 2U_p \nu_m \tag{D.1}$$

dans le cas où la fréquence  $\nu_m$  des collisions inélastiques électron-ion et électron-atome est faible devant la fréquence du laser.  $U_p$  est le potentiel pondéromoteur du laser, et un électron gagne dans ce cas une énergie de  $2U_p$  par collision. Considérons tout d'abord le cas du chauffage par bremsstrahlung inverse induit par les collisions électron-atome. On peut montrer que le taux de collision  $\nu_{ea}$  est indépendant de la vitesse des électrons et est proportionnel à la densité atomique du gaz. Pour un gaz rare à une densité de  $10^{19}$  cm<sup>-3</sup>, le temps caractéristique de collision –donc le temps caractéristique de chauffage noté  $t^*$ - est de l'ordre de 200 fs. En supposant une impulsion rectangulaire de durée  $\tau_p$ , l'énergie gagnée par les électrons est de l'ordre de :

$$k_B \Delta T_e \simeq \frac{4}{3} U_p \frac{\tau_p}{t^*} \tag{D.2}$$

et puisque  $U_p \propto \frac{\lambda^2 \epsilon_p}{\tau_p}$  où  $\epsilon_p$  est l'énergie contenue dans l'impulsion, on a :

$$\Delta T_e^{(ea)} \propto \epsilon_p \lambda^2 \tag{D.3}$$

L'énergie gagnée est donc indépendante de la durée de l'impulsion. Dans le cas des collisions électron-ion, la section efficace dépend fortement de la vitesse des électrons et on doit alors prendre en compte l'effet du champ laser sur les électrons. On peut évaluer qualitativement le chauffage en considérant le taux de collision  $\nu_{ei}^{(p)}$  dans la limite du champ fort  $U_p >> k_B T_e$ , valable aux premiers instants du chauffage. En considérant une température effective égale à  $T_{eff} = k_B T_e + U_p$ , donnant un taux de collision fonction du logarithme coulombien et de la densité ionique  $n_i$ :

$$\nu_{ei} \simeq \frac{4\pi Z^2 n_i e^4 \ln \Lambda}{m_e^{\frac{1}{2}} T_{eff}^{\frac{3}{2}}} \tag{D.4}$$

et moyennant quelques approximations, l'intégration de l'équation D.1 pour une impulsion rectangulaire mène à :

$$k_B T_e(t) \simeq U_p \left[ \left( \frac{t}{t^*} + 1 \right)^{\frac{2}{5}} - 1 \right]$$
 (D.5)

où  $t^* \propto \frac{1}{\nu_{ei}^{(p)}}$ , typiquement de l'ordre de quelques dizaines de fs pour nos paramètres expérimentaux, apparaît alors comme un temps caractéristique qui sépare deux régimes de chauffage :

$$k_B \Delta T_e \propto \begin{cases} \lambda^{4/5} \epsilon_p^{2/5} & \text{pour } \tau_p >> t^* \text{ (impulsion longue)} \\ \frac{\tau_p^{3/2}}{\lambda \epsilon_p^{1/2}} & \text{pour } \tau_p << t^* \text{ (impulsion courte)} \end{cases}$$
(D.6)

Dans le cas d'une impulsion de quelques centaines de p<br/>s comme c'est notre cas, on se situe sans aucun doute dans le régime d'impulsion longue, dans le<br/>quel le chauffage des électrons est encore une fois indépendant de la durée de l'impulsion. On peut également montrer que, pour une même énergie, une impulsion longue chauffera plus efficacement le plasma qu'une impulsion courte. L'énergie apportée aux électrons pour une impulsion infrarouge de 100 ps focalisée à  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> est de l'ordre de 200 eV.

### Ionisation collisionnelle par avalanche électronique

L'augmentation de température électronique par bremsstrahlung inverse va provoquer l'ionisation collisionnelle des espèces présentes, conduisant à une augmentation de la densité électronique. Cette augmentation s'écrit :

$$\frac{dn_e}{dt} = n_e \left[ n_0 - n_e \right] S(T_e) \tag{D.7}$$

où  $n_0$  est la densité ionique ou atomique initiale, et  $S(T_e)$  est le taux d'ionisation collisionnelle. Pour une distribution électronique de Maxwell, avec  $U_P \ll k_B T_e$  et dans le cadre d'un atome hydrogénoïde (une généralisation est possible à l'aide d'un Z effectif) de potentiel d'ionisation  $U_i$ , ce taux est donné par :

$$S(T_e) = 10^{-5} \left(\frac{T_e}{U_i}\right)^{1/2} \frac{\exp\left[-\frac{U_i}{T_e}\right]}{U_i^{3/2} \left(6 + \frac{T_e}{U_i}\right)}$$
(D.8)

Il apparaît un temps caractéristique d'évolution de la densité,  $\tau_e = \frac{1}{n_0 S(T_e)}$  (qq ps pour  $n_e = 10^{19} \,\mathrm{cm}^{-3}$  et  $T_e = 100 \,\mathrm{eV}$  dans le Krypton neutre).

Si  $\tau_p < \tau_e$ , l'ionisation collisionnelle a lieu après le passage de l'impulsion. Si  $\tau_e < \tau_p$ , l'ionisation se produit pendant le passage de l'impulsion et est limitée par le temps de chauffage des électrons à une fraction significative de  $T_e$ . Le temps nécessaire pour atteindre la saturation d'un état d'ionisation donné  $\tau_{sat}$  peut être estimé en fixant  $n_e = n_0/2$ . On obtient alors  $\tau_{sat} = \tau_e \ln \left[\frac{n_0 - n_{e_0}}{n_{e_0}}\right]$ ,  $n_{e_0}$  étant la densité électronique à laquelle commence l'ionisation collisionnelle. Le temps de saturation d'un état d'ionisation collisionnelle. C'est donc l'efficacité de l'ionisation multiphotonique qui va déterminer le temps nécessaire à l'ionisation complète du gaz. C'est notamment pourquoi la présence d'un gaz léger facilement ionisable est nécessaire lors de la création d'un canal plasma par décharge. On peut également envisager l'addition d'un tel gaz afin de faciliter la création du plasma par laser, mais comme nous l'avons vu ce n'est pas souhaitable si on souhaite obtenir une forte température électronique après le passage de l'impulsion guidée.

### Formation d'une onde de choc et expansion du plasma

Compte-tenu de la différence de masse entre les ions et les électrons, le flux électronique est beaucoup plus important que le flux ionique, ce qui crée une charge d'espace, donc un champ électrique qui a tendance à freiner les électrons et accélérer les ions pour assurer la quasi-neutralité <sup>1</sup> du plasma. Ceci n'est néanmoins pas possible dans l'intégralité du volume du plasma. On peut montrer que la décroissance de  $n_i$  et la croissance de la vitesse de l'écoulement ionique  $v_i$  deviennent singulières lorsque  $v_i = c_s$ , où  $c_s = \sqrt{\langle Z \rangle k_B T_e/m_i}$  est la vitesse acoustique ionique locale.

La quasi-neutralité du plasma est en fait assurée à sa périphérie par une structure non-neutre, la gaine, qui régule les flux. L'épaisseur de la gaine est de quelques longueurs de Debye  $\lambda_D = \sqrt{\frac{k_B T e}{4\pi n_e c^2}}$ . A  $T_e = 50 \,\mathrm{eV}$  et  $n_e = 10^{20} \,\mathrm{cm}^{-3}$ , on a  $\lambda_D = 500 \,\mathrm{nm}$ . Afin de garantir l'égalité des flux électronique et ionique sur la paroi, la densité ionique doit être supérieure à la densité électronique dans la gaine. Cela implique que  $v_i > c_s$  dans la gaine. On a donc  $v_i = c_s$  à l'interface gaine/plasma, donc l'expansion du plasma a lieu à la vitesse  $c_s$ . Cette vitesse est plus grande que la vitesse acoustique dans le gaz neutre ou faiblement ionisé autour du plasma, ce qui provoque la formation d'une onde de choc d'un point de vue hydrodynamique. Le temps caractéristique d'expansion du plasma est  $r_0/c_s$ , si  $r_0$  est le rayon initial. L'expansion du plasma se traduit par une diminution de la densité électronique le long de l'axe qui va permettre le guidage.

<sup>1.</sup> L'hypothèse de quasi-neutralité est valable pour les phénomènes plus lents que les oscillations plasma à  $\omega_p$  et sur des échelles de longueur plus grandes que la longueur de Debye  $\lambda_D$ 

### Guidage optique

Considérons un faisceau gaussien de waist  $w_0$  traversant un milieu présentant un gradient radial d'indice de réfraction. On note  $\Delta n = n(0) - n(w_0)$ . Après la traversée d'une longueur dz de ce milieu, la variation du rayon de courbure de ce faisceau due à la diffraction s'écrit :

$$dR_{diff} = dz \left( 1 + \frac{Z_R^2}{dz^2} \right) \tag{D.9}$$

où  $Z_R$  est la distance de Rayleigh du faisceau. La diffraction implique une augmentation de la courbure de l'onde donc une défocalisation du faisceau. On peut calculer sur la même distance la variation du rayon de courbure induite par le gradient d'indice :

$$dR_n \simeq -\frac{w_0^2}{2\Delta n dz} \tag{D.10}$$

Un gradient d'indice  $\Delta n$  négatif –correspondant à un indice de réfraction plus faible au niveau de l'axe optique qu'à la périphérie– aura donc pour effet de s'additionner à la diffraction en défocalisant le faisceau. On est dans le cas classique d'un plasma réfractant tel que celui étudié jusqu'à présent. En revanche, pour un gradient d'indice positif –soit un indice plus important sur l'axe optique– l'onde sera plus retardée sur l'axe, ce qui va compenser la courbure induite par la diffraction. On peut en déduite la condition de guidage suivante, obtenue pour  $dR_n + dR_{diff} = 0$  correspondant à une courbure nulle induite sur l'onde, et donc à une extension transverse de faisceau constante :

$$\Delta n = \frac{1}{kZ_R} \tag{D.11}$$

où  $k = \frac{2\pi n_0}{\lambda}$  avec  $n_0$  l'indice optique sur l'axe. Il est à noter que ce gradient d'indice est faible devant  $n_0$ , même pour le guidage d'un faisceau de waist étroit : pour un faisceau à 800 nm et un waist de 10  $\mu$ m, on a  $\Delta n = 3 \times 10^{-4}$ .

On a vu au chapitre 2 que l'indice optique d'un plasma sous-dense peut s'écrire en fonction de sa densité électronique comme :

$$n \simeq 1 - \frac{1}{2} \frac{n_e}{n_c} \tag{D.12}$$

où  $n_c$  est la densité critique du plasma à la fréquence considérée. On peut donc en déduire la condition de guidage du faisceau sur la densité électronique :

$$\Delta n_e = \frac{1}{r_e \pi w_0^2} \tag{D.13}$$

où  $r_e = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 m_e c^2} \simeq 2.8 \,\mathrm{fm}$  est le rayon classique de l'électron. Le gradient de densité électronique doit cette fois négatif, soit une densité électronique plus faible sur l'axe. Cette condition est exacte dans le cas d'un profil de densité parabolique, et offre une bonne précision dans le cas d'autres profils. On peut calculer que pour  $w_0 = 10 \,\mu\mathrm{m}$ , la différence de densité électronique est de l'ordre de  $10^{18} \,\mathrm{cm}^{-3}$ .

Il est remarquable que cette condition de guidage ne dépende pas de la longueur d'onde du faisceau guidé. Dans le cas de la génération de laser XUV, le rayonnement XUV sera donc également guidé par le plasma.

#### D. Guide plasma préformé par laser

On peut également s'intéresser à la structure des modes d'un tel guide. L'équation de propagation de la transformée de Fourier du champ électrique s'écrit pour un milieu non magnétique :

$$\nabla \tilde{\mathbf{E}} + \frac{\omega^2}{c^2} n^2 \tilde{\mathbf{E}} = \nabla \left( -\frac{1}{n^2} \tilde{\mathbf{E}} \cdot \nabla n^2 \right)$$
(D.14)

Il peut être intéressant d'évaluer l'importance du terme de droite –appelé terme de polarisation– dans cette équation. On peut montrer qu'il est négligeable devant le terme de gauche (propagation) si  $E \frac{\Delta n^2}{n^2 \ell_t^2} << \frac{\Delta E}{\ell_t^2}$ , où  $\ell_t$  représente une dimension transverse caractéristique et  $\Delta E$  la variation de l'amplitude du champ sur cette distance. Ceci équivaut à :

$$\frac{\Delta n^2}{n^2} \ll \frac{\Delta E}{E} \tag{D.15}$$

Dans le cas d'un guidage, la quasi-totalité de l'énergie du champ est comprise dans le plasma, ce qui équivaut à  $\frac{\Delta E}{E} \simeq 1$ . Nous venons de voir que la variation relative d'indice (égale à celle de la densité électronique) est faible devant 1, donc cette condition est plutôt bien vérifiée. En réalité, pour le confinement de modes d'ordres très élevés, les variations transverses d'indice doivent être plus importantes et on ne peut peut plus négliger le terme de polarisation.

On considère un champ se propageant le long de l'axe optique z sous la forme  $u(r, \theta)e^{i\beta z}$  où  $\beta$  est la constante de propagation dans le guide. L'équation D.14 peut alors s'écrire :

$$\nabla_{\perp} u + \kappa^2 u = 0 \tag{D.16}$$

où  $\kappa^2 = n^2 \frac{\omega^2}{c^2} - \beta^2$  est le nombre d'onde transverse. Les solutions de cette équation peuvent être séparées en trois catégories :

- $-\kappa^2 > 0$  pour tout r, donc  $\kappa$  est réel partout : ces ondes se propagent donc librement dans le milieu et ne sont donc pas guidées ; on peut encore les appeler modes radiatifs.
- Il existe un rayon  $r_m$  à l'intérieur duquel  $\kappa^2 > 0$  et à l'extérieur duquel  $\kappa^2 < 0$ : ces ondes ne se propagent que dans un milieu d'extension radiale  $r_m$ , et pas à l'extérieur; ce sont les modes guidés. Il s'agit néanmoins d'une idéalisation puisqu'en réalité, la densité électronique tombe à 0 à certain rayon  $r_s$  après le front de choc. On décrit alors les modes réels tels que : –  $\kappa^2 > 0$  pour  $r < r_m$  et  $r > r_s$ : ces onde sont confinées dans un rayon  $r_m$  mais des fuites
- vers les modes radiatifs à  $r > r_s$  existent ; on appelle ces modes des modes quasi-guidés ou modes à fuites.

Il n'y a donc pas à proprement parler de modes guidés dans ce type de plasma, mais plutôt des modes radiatifs et des modes à fuites confinés à des degrés variés.

Un profil de densité parabolique infini  $n_e(r) = n_e(0) + n_c \frac{r^2}{r_0^2}$  offre des solutions analytiques guidées ( $\kappa^2 < 0$  pour  $r > r_m$ ) à l'équation D.16. Il s'agit des modes de Laguerre-Gauss  $u_{kl}(r,\theta)$  présentant k + 1 maxima dans la direction radiale et 2l maxima dans la direction azimutale. La constante de propagation associée est  $\beta_{kl}^2 = \frac{\omega^2}{c^2} - 4\pi n_e(0) - \frac{4}{w_c^2}(2k + l + 1)$  où  $w_c = \frac{r_0}{\sqrt{\pi r_e n_c}}$  est le rayon à 1/e du mode fondamental.

On peut considérer qu'une onde guidée par le plasma se propageant en dehors de celui avec une ouverture  $\alpha$  donnée par

$$\tan \alpha = \frac{\kappa_0}{\beta} \tag{D.17}$$

avec  $\kappa_0^2 = \frac{\omega^2}{c^2} - \beta^2$ . Dans le cas des modes du guide parabolique, on montre que pour une faible ouverture  $\alpha$  on a :

$$\frac{\omega}{c}\tan\alpha \simeq \sqrt{4\pi r_e n_e(0) + \frac{4}{w_c^2}(2k+l+1)} \tag{D.18}$$

ce qui montre que le couplage d'une onde vers un mode (k, l) donné peut être optimisé en ajustant l'angle d'entrée. Ce résultat est également vrai dans le cas d'un guide réel possédant des modes à fuites. Pour plus de détails sur les modes à fuites, on peut se référer à [209]. On peut également consulter [210] et [211] pour tout ce qui concerne l'auto-piégeage résonant des faisceaux de Bessel utilisés pour créer le plasma.

# Bibliographie

- F. R. Elder, A. M. Gurewitsch, R. V. Langmuir, and H. C. Pollock. Radiation from electrons in a synchrotron. *Phys. Rev.*, 71(11) :829–830, 1947.
- [2] H. Motz. Application of the radiation from fast electron beams. J. Appl. Phys., 22:527-535, 1951.
- [3] H. Motz, W. Thon, and R. N. Whitehurst. Experiments on radiation by fast electron beams. J. Appl. Phys., 24:826-833, 1953.
- [4] J. M. J. Madey. Stimulated emission of bremsstrahlung in a periodic magnetic field. J. Appl. Phys., 42:1906, 1971.
- [5] D. A. G. Deacon, L. R. Elias, J. M. J. Madey, G. J. Ramian, H. A. Schwettman, and T. I. Smith. First operation of a free-electron laser. *Phys. Rev. Lett.*, 38(16) :892–894, 1977.
- [6] K. J. Kim and M. Xie. Self-amplified spontaneous emission for short wavelength coherent radiation. Nucl. Instrum. Methods A, 331:359, 1993.
- [7] P. Emma, R. Akre, J. Arthur, R. Bionta, C. Bostedt, J. Bozek, A. Brachmann, P. H. Bucksbaum, R. Coffee, F.-J. Decker, Y. Ding, D. Dowell, S. Edstrom, A. Fisher, J. Frisch, S. Gilevich, J. Hastings, G. Hays, Ph. Hering, Z. Huang, R. Iverson, H. Loos, M. Messerschmidt, A. Miahnahri, S. Moeller, H.-D. Nuhn, G. Pile, D. Ratner, J. Rzepiela, D. Schultz, T. Smith, P. Stefan, H. Tomkins, J. Turner, J. Welch, W. White, J. Wu, G. Yocky, and J. Galayda. Fist lasing and operation of an angstrom-wavelength free-electron laser. *Nat. Photon.*, 4 :641–647, 2010.
- [8] A. S. Schwarz. The European X-ray free electron laser project at DESY. In Proceedings of FEL 2004, 2004.
- T. Shintake. Status of Japanese XFEL project and SCSS Test Accelerator. In Proceedings of FEL 2006, BESSY, Berlin, Germany, 2006.
- [10] K. Tiedtke, A. Azima, N. von Bargen, L. Bittner, S. Bonfigt, S. Düsterer, B. Faatz, U. Frühling, M. Gensch, Ch. Gerth, N. Guerassimova, U. Hahn, T. Hans, M. Hesse, K. Honkavaar, U. Jastrow, P. Juranic, S. Kapitzki, B. Keitel, T. Kracht, M. Kuhlmann, W. B. Li, M. Martins, T. Nuñez, E. Plönjes, H. Redlin, E. L. Saldin, E. A. Schneidmiller, J. R. Schneider, S. Schreiber, N. Stojanovic, F. Tavella, S. Toleikis, R. Treush, H. Weigelt, M. Wellhöfer, H. Wabnitz, M. V. Yurkov, and J. Feldhaus. The soft x-ray free-electron laser FLASH at DESY : beamlines, diagnostics and end-stations. *New J. Phys.*, 11 :023029, 2009.
- [11] C. Ronsivalle, L. Avaldi, C. Carbone, A. Cricenti, A. Pifferi, P. Perfetti, T. Prosperi, V. Rossi Albertini, C. Quaresima, and N. Zema. The SPARC project : a high-brightness electron beam source at LNF to drive a SASE-FEL experiment. *Nucl. Instrum. Methods A*, 507 :345–349, 2003.
- [12] G. Lambert, T. Hara, D. Garzella, T. Tanikawa, M. Labat, B. Carré, H. Kitamura, T. Shintake, M. Bougeard, S. Inoue, Y. Tanaka, P. Salières, H. Merdji, O. Chubar, O. Gobert, K. Tahara, and M.-E. Couprie. Injection of harmonics generated in gas in a free-electron laser providing intense and coherent extreme-ultraviolet light. *Nat. Phys.*, 4(4) :296–300, 2008.
- [13] G. Lambert. Un laser innovant et compact pour l'étude de phénomènes ultra-rapides. PhD thesis, Université Paris-Sud, 2007.
- [14] N. H. Burnett, H. A. Baldis, M. C. Richardson, and G. D. Enright. Harmonic generation in CO<sub>2</sub> laser target interaction. *App. Phys. Lett.*, 31 :172–174, 1977.
- [15] E. A. McLean, J. A. Stamper, B. H. Ripin, J. M. McMahon, S. E. Bodner, and H. R. Griem. Harmonic generation in nd :glass laser produced plasma. App. Phys. Lett., 1977.
- [16] Giovanielli D. V. and R. P. Godwin. Optics in laser-produced plasmas. Am. J. Phys., 43(9):808–817, 1975.
- [17] N. S. Erokhin, V. E. Zakharov, and S. S. Moiseev. Second harmonic generation by an electromagnetic wave incident on an inhomogeneous plasma. Sov. Phys. JETP, 1969.

- [18] P. Gibbon. Harmonic generation by femtosecond laser-solid interaction : A coherent "water-window" light source? Phys. Rev. Lett., 76(1):50–53, 1996.
- [19] P. A. Norreys, M. Zepf, S. Moustaizis, A. P. Fews, J. Zhang, P. Lee, M. Bakarezos, C. N. Danson, A. Dyson, P. Gibbon, P. Loukakos, D. Neely, F. N. Walsh, J. S. Wark, and A. E. Dangor. Efficient extreme UV harmonics generated from picosecond laser pulse interactions with solid targets harmonics generated from picosecond laser pulse interactions with solid targets. *Phys. Rev. Lett.*, 76(11) :1832–1835, 1996.
- [20] R. Lichters, J. Meyer-ter Vehn, and A. Pukhov. Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity. *Phys. Plasmas*, 3(9) :3425–3437, 1996.
- [21] G. D. Tsakiris, K. Eidmann, J. Meyer-ter Vehn, and F. Krausz. Route to intense single attosecond pulses. New J. Phys., 8 :19, 2006.
- [22] F. Quéré, C. Thaury, P. Monot, S. Dobosz, Ph. Martin, J.-P. Geindre, and P. Audebert. Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, 96(12) :125004, 2006.
- [23] F. Brunel. Not-so-resonant, resonant absorption. Phys. Rev. Lett., 59(1):52-55, 1987.
- [24] C. Thaury, F. Quéré, J.-P. Geindre, A. Levy, T. Ceccotti, P. Monot, M. Bougeard, F. Réau, P. D'Oliveira, P. Audebert, R. Marjoribanks, and Ph. Martin. Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics. *Nat. Phys.*, 3 :424–429, 2007.
- [25] S. V. Bulanov, N. M. Naumova, and F. Pegorado. Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser pulse with an overdense plasma. *Phys. Plasmas*, 1(3):745–757, 1994.
- [26] G. H. C. New and J. F. Ward. Optical third-harmonic generation in gases. Phys. Rev. Lett., 19(10):556-559, 1967.
- [27] J. Reintjes, R. C. Eckardt, C. Y. She, N. E. Karangelen, R. C. Elton, and R. A. Andrews. Generation of coherent radiation at 53.2 nm by fifth-harmonic conversion. *Phys. Rev. Lett.*, 37(23):1540–1543, 1976.
- [28] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Generation of coherent soft X-rays at 2.7 nm using high harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 79(16) :2967–2970, 1997.
- [29] J.-F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Agostini, B. Carré, and P. Salières. Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range. *Phys. Rev. A*, 66(2):021801, 2002.
- [30] J. Seres, E. Seres, A. J. Verhoef, G. Tempea, C. Streli, P. Wobrauschek, V. Yakovlev, A. Scrinzi, C. Spielmann, and F. Krausz. Laser technology : sources of coherent kiloelectronvolt X-rays. *Nature*, 433(7026) :596, 2005.
- [31] E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa. Dramatic enhancement of high-order harmonic generation. Phys. Rev. Lett., 99(5) :053904, 2007.
- [32] X. Zhang, A. L. Lytle, T. Popmintchev, X. Zhou, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, and O. Cohen. Quasi-phase-matching and quantum-path control of high-harmonic generation using counterpropagating light. *Nat. Phys.*, 3(4) :270–275, 2007.
- [33] M. Zepf, B. Dromey, M. Landreman, P. Foster, and S. M. Hooker. Bright quasi-phase-matched soft-X-ray harmonic radiation from argon ions. *Phys. Rev. Lett.*, 99(14) :143901, 2007.
- [34] L. B. E. Bom, R. A. Ganeev, J. Abdul-Hadi, F. Vidal, and T. Ozaki. Intense multimicrojoule high-order harmonics generated from neutral atoms of In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanoparticles. *Appl. Phys. Lett.*, 94(11) :111108, 2009.
- [35] Y. Nomura, Horlein R., P. Tzallas, B. Dromey, S. Rykovanov, Z. Major, J. Osterhoff, S. Karsch, L. Veisz, M. Zepf, D. Charalambidis, F. Krausz, and G. D. Tsakiris. Attosecond phase-locking of harmonics emitted from laser-produced plasmas. *Nat. Phys.*, 5(2) :124–128, 2009.
- [36] J. Boullet, Y. Zaouter, J. Limpert, S. Petit, Y. Mairesse, B. Fabre, J. Higuet, E. Mével, E. Constant, and E. Cormier. High-order harmonic generation at a megahertz-level repetition rate directly driven by an ytterbium-doped-fiber chirpedpulse amplification system. Opt. Lett., 34(9) :1489–1491, 2009.
- [37] P. B. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. Phys. Rev. Lett., 71(13):1994–1997, 1993.
- [38] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, Anne L'Huillier, and P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. A*, 49(3) :2117–2132, 1994.
- [39] S. Kazamias. Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordres élevés pour l'optique non-linéaire dans l'extrême UV. PhD thesis, École Polytechnique, 2003.
- [40] Ph. Balcou, P. Pascal Salières, A. L'Huillier, and M. Lewenstein. Generalized phase-matching conditions for high harmonics : The role of field-gradient forces. *Phys. Rev. A*, 55(4) :3204–3210, 1997.
- [41] Anne L'Huillier and Ph. Balcou. High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser. Phys. Rev. Lett., 70(6) :774–777, 1993.

- [42] C. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnürer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek, and F. Krausz. generation of coherent X-rays in the water window using 5-femtosecond laser pulses. *Science*, 278(5338):661– 664, 1997.
- [43] Eiji J. Takahashi, Tsuneto Kanai, Kenichi L. Ishikawa, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa. Coherent water window x ray by phase-matched high-order harmonic generation in neutral media. *Phys. Rev. Lett.*, 101(25) :253901, 2008.
- [44] M.-C. Chen, P. Arpin, T. Popmintchev, M. Gerrity, B. Zhang, M. Seaberg, D. Popmintchev, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Bright, coherent, ultrafast soft x-ray harmonics spanning the water window from a tabletop light source. *Phys. Rev. Lett.*, 105(17) :173901, 2010.
- [45] J. W. G. Tisch, R. A. Smith, J. E. Muffett, M. Ciarrocca, J. P. Marangos, and M. H. R. Hutchinson. Angularly resolved high-order harmonic generation in helium. *Phys. Rev. A*, 49(1):R28–R31, 1994.
- [46] J. Peatross and D. D. Meyerhofer. Angular distribution of high-order harmonics emitted from rare gases at low density. *Phys. Rev. A*, 51(2) :R906–R909, 1995.
- [47] X. He, M. Miranda, J. Schwenke, O. Guilbaud, T. Ruchon, C. Heyl, E. Georgadiou, R. Rakowski, A. Persson, M. B. Gaarde, and A. L'Huillier. Spatial and spectral properties of the high-order harmonic emission in argon for seeding applications. *Phys. Rev. A*, 79(6) :063829, 2009.
- [48] T. Ditmire, E. T. Gumbrell, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, D. D. Meyerhofer, and M. H. R. Hutchinson. Spatial coherence measurement of soft x-ray radiation produced by high order harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 77(23) :4756–4759, 1996.
- [49] A.-S. Morlens. Applications en optique XUV de la phase temporelle et spatiale des harmoniques d'ordres élevés : des miroirs chirpés à l'holographie. PhD thesis, École Polytechnique, 2007.
- [50] L. Le Déroff, P. Salières, B. Carré, D. Joyeux, and D. Phalippou. Measurement of the degree of spatial coherence of high-order harmonics using a fresnel-mirror interferometer. *Phys. Rev. A*, 61(4) :043802, 2000.
- [51] J. Gautier, Ph. Zeitoun, C. Hauri, A.-S. Morlens, G. Rey, C. Valentin, E. Papalazarou, J.-Ph. Goddet, S. Sebban, F. Burgy, P. Mercère, M. Idir, G. Dovillaire, X. Levecq, S. Bucourt, M. Fajardo, H. Merdji, and J.-P. Caumes. Optimization of the wave-front of high-order harmonics. *Eur. Phys. J. D*, 48(3) :459–463, 2008.
- [52] D. G. Lee, J. J. Park, J. H. Sung, and C. H. Nam. Wave-front phase measurements of high-order harmonic beams by use of point-diffraction interferometry. *Opt. Lett.*, 28(6):480–482, 2003.
- [53] G. Lambert, F. Tissandier, J. Gautier, C. Hauri, Ph. Zeitoun, C. Valentin, T. Marchenko, J.-Ph. Goddet, M. Ribière, A. Sardinha, M. Fajardo, F. Hamouda, G. Maynard, G. Rey, and S. Sebban. Aberration-free high-harmonic source generated with a two-colour field. *EPL*, 89 :24001, 2010.
- [54] P.-M. Paul, A. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller, P. Agostini, and P. Salières. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292(1689–1692), 2001.
- [55] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovacev, R. Taïeb, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini, and P. Salières. Attosecond synchronization of high-harmonic soft x-rays. *Science*, 392 :1540–1543, 2003.
- [56] S. Kazamias and Ph. Balcou. Intrinsic chirp of attosecond pulses : Single-atom model versus experiment. Phys. Rev. A, 69(6) :063416, 2004.
- [57] P. B. Corkum and F. Krausz. Attosecond science. Nat. Phys., 3:381–387, 2007.
- [58] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, R. Altucci, C. Velotta, S. Stagira, S. de Silvestri, and M. Nisoli. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 314 :443, 2006.
- [59] I. J. Sola, E. Mével, L. Elouga, E. Constant, V. Strelkov, L. Poletto, P. Villoresi, E. Benedetti, J.-P. Caumes, S. Stagira, C. Vozzi, G. Sansone, and M. Nisoli. Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating. *Nat. Phys.*, 2 :319–322, 2006.
- [60] Y. Zheng, Z. Zeng, X. Li, X. Chen, P. Liu, H. Xiong, H. Lu, S. Zhao, P. Wei, L. Zhang, Z. Wang, J. Liu, Y. Cheng, R. Li, and Z. Xu. Enhancement and broadening of extreme-ultraviolet supercontinuum in a relative phase controlled two-color laser field. *Opt. Lett.*, 33(3):234–236, 2008.
- [61] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, C. Spielmann, G. A. Reider, P. B. Corkum, and F. Krausz. X-ray pulses approaching the attosecond frontier. *Science*, 291 :1923, 2001.
- [62] R. López-Martens, K. Varjú, P. Johnsson, J. Mauritsson, Y. Mairesse, P. Salières, M. B. Gaarde, K. J. Schafer, A. Persson, S. Svanberg, C.-G Wahlström, and A. L'Huillier. Amplitude and phase control of attosecond light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 94(3) :033001, 2005.

- [63] A.-S. Morlens, Ph. Balcou, Ph. Zeitoun, C. Valentin, V. Laude, and S. Kazamias. Compression of attosecond harmonic pulses by extreme-ultraviolet mirrors. Opt. Lett., 30(12) :1554–1556, 2005.
- [64] A. Ravasio, D. Gauthier, F. R. N. C. Maia, M. Billon, J-P. Caumes, D. Garzella, M. Géléoc, O. Gobert, J-F. Hergott, A-M. Pena, H. Perez, B. Carré, E. Bourhis, J. Gierak, A. Madouri, D. Mailly, B. Schiedt, M. Fajardo, J. Gautier, P. Zeitoun, P. H. Bucksbaum, J. Hajdu, and H. Merdji. Single-shot diffractive imaging with a table-top femtosecond soft x-ray laser-harmonics source. *Phys. Rev. Lett.*, 103(2) :028104, 2009.
- [65] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pépin, J.-C. Kieffer, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve. Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, 432 :867–871, 2004.
- [66] T. H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. Nature, 187:493-494, 1960.
- [67] D. L. Matthews, P. L. Hagelstein, M. D. Rosen, M. J. Eckart, N. M. Ceglio, A. U. Hazi, H. Medecki, B. J. MacGowan, J. E. Trebes, B. L. Whitten, E. M. Campbell, C. W. Hatcher, A. M. Hawryluk, R. L. Kauffman, L. D. Pleasance, G. Rambach, J. H. Scofield, G. Stone, and T. A. Weaver. Demonstration of a soft X-ray amplifier. *Phys. Rev. Lett.*, 54(2) :110–113, 1985.
- [68] M. D. Rosen, P. L. Hagelstein, D. L. Matthews, E. M. Campbell, A. U. Hazi, B. L. Whitten, B. MacGowan, R. E. Turner, R. W. Lee, G. Charatis, Gar. E. Busch, C. L. Shepard, and P. D. Rockett. Exploding-foil technique for achieving a soft X-ray laser. *Phys. Rev. Lett.*, 54(2) :106–109, 1985.
- [69] S. Suckewer, C. H. Skinner, H. Milchberg, C. Keane, and D. Voorhees. Amplification of stimulated soft x-ray emission in a confined plasma column. *Phys. Rev. Lett.*, 55(17) :1753–1756, 1985.
- [70] L. I. Gudzenko and L. A. Shelepin. Radiation enhancement in a recombining plasma (radiation enhancement in nonquilibrium highly ionized recombining plasma with inversely populated energy levels). Sov. Phys. Dokl., 10 :147–149, 1965.
- [71] G. Jamelot, P. Jaeglé, A. Carillon, A. Sureau, and M. Cukier. Experimental evidence for the possible existence of a stimulated emission in the extreme uv range. *Phys. Lett. A*, 36(3):167–168, 1971.
- [72] D. Jacoby, G. J. Pert, S. A. Ramsden, L. D. Shorrock, and G. J. Tallents. Observation of gain in a possible extreme ultraviolet lasing system. Opt. Commun., 37(3) :193–196, 1981.
- [73] S. Suckewer, C. H. Skinner, D. Kim, E. Valeo, D. Voorhees, and A. Wouters. Divergence measurements of soft-X-ray laser beam. *Phys. Rev. Lett.*, 57(8) :1004–1007, 1986.
- [74] G. Jamelot, A. Klisnick, A. Carillon, H. Guennou, A. Sureau, and P. Jaeglé. Amplification of soft-X-ray spontaneous emission in aluminium and magnesium plasma. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys., 18(23), 1985.
- [75] P. Jaeglé, A. Carillon, A. Klisnick, G. Jamelot, H. Guennou, and A. Sureau. Soft-X-ray amplification in recombining aluminium plasma. *Europhys. Lett.*, 1(11), 1986.
- [76] J. F. Seely, C. M. Brown, U. Feldman, M. Richardson, B. Yaakobi, and W. E. Behring. Evidence for gain on the C VI 182 å transition in a radiation-cooled selenium/formvar plasma. *Opt. Commun.*, 54(5) :289–294, 1985.
- [77] F. E. Irons and N. J. Peacock. Experimental evidence for population inversion in C<sup>5+</sup> in an expanding laser-produced plasma. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys., 7(9), 1974.
- [78] G. J. Pert. Model calculations of XUV gain in rapidly expanding cylindrical plasmas. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys., 9(18), 1976.
- [79] G. J. Pert. Model calculations of XUV gain in rapidly expanding cylindrical plasmas. ii. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys., 12(12), 1979.
- [80] Yutaka Nagata, Katsumi Midorikawa, Shoich Kubodera, Minoru Obara, Hideo Tashiro, and Koichi Toyoda. Soft-X-ray amplification of the Lyman- $\alpha$  transition by optical-field-induced ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71(23) :3774–3777, 1993.
- [81] D. V. Korobkin, C. H. Nam, S. Suckewer, and A. Goltsov. Demonstration of soft X-ray lasing to ground state in Li III. Phys. Rev. Lett., 77(26) :5206–5209, 1996.
- [82] J. Peyraud and N. Peyraud. Population inversion in laser plasmas. J. Appl. Phys., 43, 1972.
- [83] W. A. Jones and A. W. Ali. Theory of short-wavelength lasers from recombining plasmas. Appl. Phys. Lett., 26, 1975.
- [84] R. C. Elton. Extension of 3p-3s ion lasers into the vacuum ultraviolet region. Appl. Opt., 14(1):97–101, 1975.
- [85] A. Carillon, H. Z. Chen, P. Dhez, L. Dwivedi, J. Jacoby, P. Jaeglé, G. Jamelot, J. Zhang, M. H. Key, A. Kidd, A. Klisnick, R. Kodama, J. Krishnan, C. L. S. Lewis, D. Neely, P. Norreys, D. O'Neill, G. J. Pert, S. A. Ramsden, J. P. Raucourt, G. J. Tallents, and J. Uhomoibhi. Saturated and near-diffraction-limited operation of an XUV laser at 23.6 nm. *Phys. Rev. Lett.*, 68(19) :2917–2920, 1992.

- [86] M. A. Duguay and P. M. Rentzepis. Some approaches to vacuum UV and X-ray lasers. Appl. Phys. Lett., 10, 1967.
- [87] J. Zhao, Q. L. Dong, S. J. Wang, L. Zhang, and J. Zhang. X-ray lasers from inner-shell transitions pumped by the free-electron laser. Opt. Express, 16(6):3546–3559, 2008.
- [88] N. Rohringer and R. London. Atomic inner-shell x-ray laser pumped by an x-ray free-electron laser. Phys. Rev. A, 80(1) :013809, 2009.
- [89] M. Ribière, S. Jacquemot, S. Sebban, S. Corde, K. Ta Phuoc, C. Valentin, J. Gautier, P. Zeitoun, G. Lambert, F. Tissandier, and A. Rousse. Femtosecond coherent pulses in the kev range from inner-shell transitions pumped by a betatron source. *Appl. Phys. B*, Online First, 2010.
- [90] R. Kodama, D. Neely, Y. Kato, H. Daido, K. Murai, G. Yuan, A. MacPhee, and C. L. S. Lewis. Generation of smalldivergence soft x-ray laser by plasma waveguiding with a curved target. *Phys. Rev. Lett.*, 73(24) :3215–3218, 1994.
- [91] J. Nilsen, Y. Li, P. Lu, J. C. Moreno, and E. E. Fill. Relative merits of using curved targets and the prepulse technique to enhance the output of the neon-like germanium x-ray laser. Optics Commun., 124(3-4) :287 – 291, 1996.
- [92] T. Boehly, M. Russotto, R. S. Craxton, R. Epstein, B. Yaakobi, L. B. Da Silva, J. Nilsen, E. A. Chandler, D. J. Fields, B. J. MacGowan, D. L. Matthews, J. H. Scofield, and G. Shimkaveg. Demonstration of a narrow-divergence x-ray laser in neonlike titanium. *Phys. Rev. A*, 42(11) :6962–6965, 1990.
- [93] M. Nantel, A. Klisnick, G. Jamelot, P. B. Holden, P. Jaeglé, Ph. Zeitoun, G. J. Tallents, A. G. MacPhee, and C. L. S. Lewis. Effect of weak prepulses on collisional x-ray laser plasmas. *Opt. Lett.*, 20(22) :2333–2335, 1995.
- [94] B. Rus, A. Carillon, P. Dhez, P. Jaeglé, G. Jamelot, A. Klisnick, M. Nantel, and P. Zeitoun. Efficient, high-brightness soft-X-ray laser at 21.2 nm. Phys. Rev. A, 55(5) :3858–3873, 1997.
- [95] B. Rus, T. Mocek, A. R. Präg, M. Kozlová, G. Jamelot, A. Carillon, D. Ros, D. Joyeux, and D. Phalippou. Multimilijoule, highly coherent x-ray laser at 21 nm operating in deep saturation through double-pass amplification. *Phys. Rev. A*, 66(6) :063806, 2002.
- [96] B. J. MacGowan, S. Maxon, P. L. Hagelstein, C. J. Keane, R. A. London, D. L. Matthews, M. D. Rosen, J. H. Scofield, and D. A. Whelan. Demonstration of soft X-ray amplification in nickel-like ions. *Phys. Rev. Lett.*, 59(19) :2157–2160, 1987.
- [97] B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. J. Fields, C. J. Keane, J. A. Koch, R. A. London, D. L. Matthews, S. Maxon, S. Mrowka, A. L. Osterheld, J. H. Scofield, G. Shimkaveg, J. E. Trebes, and R. S. Walling. Short wavelength X-ray laser research at the Lawrence Livermore National Laboratory. *Phys. Fluids. B*, 4(7), 1992.
- [98] S. Sebban. Lasers collisionnels X-UV à ions néonoïdes Étude du milieu amplificateur et optimisation du pompage -Application à la luminescence induite par un laser à 21.2 nm. PhD thesis, Université Paris Sud - Orsay, 1997.
- [99] J. Zhang, A. G. MacPhee, J. Nilsen, J. Lin, T. W. Barbee, Jr., C. Danson, M. H. Key, C. L. S. Lewis, D. Neely, R. M. N. O'Rourke, G. J. Pert, R. Smith, G. J. Tallents, J. S. Wark, and E. Wolfrum. Demonstration of saturation in a Ni-like Ag X-ray laser at 14 nm. *Phys. Rev. Lett.*, 78(20) :3856–3859, 1997.
- [100] D. Ros. Extension du pompage des lasers X-UV aux ions nickelloïdes Réalisation d'un laser à 13.9 nm Modélisation de la cohérence spatiale des lasers X-UV. PhD thesis, Université Paris Sud - Orsay, 1998.
- [101] Y. V. Afanas'ev and V. N Shlyaptsev. Formation of a population inversion of transitions in Ne-like ions in steady-state and transient plasmas. Sov. J. Quantum Electron., 16(12) :1606, 1989.
- [102] P. V. Nickles, V. N. Shlyaptsev, M. Kalachnikov, M. Schnürer, I. Will, and W. Sandner. Short pulse X-ray laser at 32.6 nm based on transient gain in Ne-like titanium. *Phys. Rev. Lett.*, 78(14) :2748–2751, 1997.
- [103] M. P. Kalachnikov, P. V. Nickles, M. Schnürer, W. Sandner, V. N. Shlyaptsev, C. Danson, D. Neely, E. Wolfrum, J. Zhang, A. Behjat, A. Demir, G. J. Tallents, P. J. Warwick, and C. L. S. Lewis. Saturated operation of a transient collisional X-ray laser. *Phys. Rev. A*, 57(6) :4778–4783, 1998.
- [104] A. Klisnick, J. Kuba, D. Ros, R. Smith, G. Jamelot, C. Chenais-Popovics, R. Keenan, S. J. Topping, C. L. S. Lewis, F. Strati, G. J. Tallents, D. Neely, R. Clarke, J. Collier, A. G. MacPhee, F. Bortolotto, P. V. Nickles, and K. A. Janulewicz. Demonstration of a 2 ps transient X-ray laser. *Phys. Rev. A*, 65(3):033810, 2002.
- [105] O. Guilbaud. Etudes et applications des propriétés de cohérence des lasers X-UV à pompage transitoire. PhD thesis, Université Paris Sud - Orsay, 2005.
- [106] R. Keenan, J. Dunn, P. K. Patel, D. F. Price, R. F. Smith, and V. N. Shlyaptsev. High-repetition-rate grazing-incidence pumped X-ray laser operating at 18.9 nm. *Phys. Rev. Lett.*, 94(10) :103901, 2005.

- [107] S. Kazamias, K. Cassou, D. Ros, F. Plé, G. Jamelot, A. Klisnick, O. Lundh, F. Lindau, A. Persson, C.-G. Wahlström, S. de Rossi, D. Joyeux, B. Zielbauer, D. Ursescu, and T. Kühl. Characterization of a transient collisional Ni-like molybdenum soft-X-ray laser pumped in grazing incidence. *Phys. Rev. A*, 77(3) :033812, 2008.
- [108] M. Grüning, C. Imesh, F. Staub, and J. E. Balmer. Saturated X-ray lasing in Ni-like Sn at 11.9 nm using the GRIP scheme. Opt. Commun., 282 :267–271, 2009.
- [109] D. Zimmer, B. Zielbauer, M. Pittman, O. Guilbaud, J. Habib, S. Kazamias, D. Ros, V. Bagnoud, and T. Kuehl. Optimization of a table-top high-repetition-rate soft x-ray laser pumped in double-pulse single-beam grazing incidence. *Opt. Lett.*, 35(4):450–452, 2010.
- [110] Y. Wang, M. A. Larotonda, B. M. Luther, D. Alessi, M. Berrill, V. N. Shlyaptsev, and J. J. Rocca. Demonstration of high-repetition-rate tabletop soft-x-ray lasers with saturated output at wavelengths down to 13.9nm and gain down to 10.9nm. Phys. Rev. A, 72(5):053807, 2005.
- [111] J. E. Balmer, C. Imesh, and F. Staub. Saturated XUV lasing down to 8.85 nm using the grazing incidence scheme. In not yet in press, editor, Proceedings of the 12th International Conference on X-Ray Lasers, 2010.
- [112] P. Lu, T. Kawachi, M. Kishimoto, K. Sukegawa, M. Tanaka, N. Hasegawa, M. Suzuki, R. Tai, M. Kado, K. Nagashima, H. Daido, and Y. Kato. Demonstration of a transient-gain nickel-like xenon-ion x-ray laser. *Opt. Lett.*, 27(21):1911–1913, 2002.
- [113] B. E. Lemoff, C. P. J. Barty, and S. E. Harris. Femtosecond-pulse-driven, electron-excited XUV lasers in eight-timesionized noble gases. Opt. Lett., 19(8) :569–571, 1994.
- [114] B. E. Lemoff, G. Y. Yin, C. L. Gordon III, C. P. J. Barty, and S. E. Harris. Demonstration of a 10-Hz femtosecondpulse-driven XUV laser at 41.8 nm in Xe IX. *Phys. Rev. Lett.*, 74(9) :1574–1577, 1995.
- [115] S. Sebban, R. Haroutunian, Ph. Balcou, G. Grillon, A. Rousse, S. Kazamias, T. Marin, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman, J. P. Chambaret, A. Antonetti, D. Hulin, D. Ros, A. Klisnick, A. Carillon, P. Jaeglé, G. Jamelot, and J. F. Wyart. Saturated amplification of a collisionally pumped optical-field-ionization soft X-ray laser at 41.8 nm. *Phys. Rev. Lett.*, 86(14) :3004–3007, 2001.
- [116] S. Sebban, T. Mocek, D. Ros, L. Upcraft, Ph. Balcou, R. Haroutunian, G. Grillon, B. Rus, A. Klisnick, A. Carillon, G. Jamelot, C. Valentin, A. Rousse, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman, and D. Hulin. Demonstration of a Ni-like Kr optical-field-ionization collisional soft X-ray laser at 32.8 nm. *Phys. Rev. Lett.*, 89(25) :253901, 2002.
- [117] I. Bettaïbi. Développement et caractérisation des lasers XUV crées par laser femtoseconde. PhD thesis, Université Paris Sud - Orsay, 2005.
- [118] T. Mocek, C. M. McKenna, B. Cros, S. Sebban, D. J. Spence, G. Maynard, I. Bettaïbi, V. Vorontsov, A. J. Gonsavles, and S. M. Hooker. Dramatic enhancement of XUV laser output using a multimode gas-filled capillary waveguide. *Phys. Rev. A*, 71(1):013804, 2005.
- [119] A. Butler, A. J. Gonsalves, C. M. McKenna, D. J. Spence, S. M. Hooker, S. Sebban, T. Mocek, I. Bettaibi, and B. Cros. Demonstration of a collisionally excited optical-field-ionization XUV laser driven in a plasma waveguide. *Phys. Rev. Lett.*, 91(20) :205001, 2003.
- [120] A. Butler, A. J. Gonsalves, C. M. McKenna, D. J. Spence, S. M. Hooker, S. Sebban, T. Mocek, I. Betttaibi, and B. Cros. 41.8 nm Xe<sup>8+</sup> laser driven in a plasma waveguide. *Phys. Rev. A*, 70(2) :023821, 2004.
- [121] M.-C. Chou, P.-H. Lin, C.-A. Lin, J.-Y. Lin, J. Wang, and S.-Y. Chen. Dramatic enhancement of optical-field-ionization collisional-excitation X-ray lasing by an optically preformed plasma waveguide. *Phys. Rev. Lett.*, 99(6) :063904, 2007.
- [122] P.-H. Lin, M.-C. Chou, C.-A. Lin, H.-H. Chu, J.-Y. Lin, J. Wang, and S.-Y. Chen. Optical-field-ionization collisionalexcitation X-ray lasers with an optically preformed plasma waveguide. *Phys. Rev. A*, 76(5) :053817, 2007.
- [123] Y. Wang, E. Granados, F. Pedaci, D. Alessi, B. Luther, M. Berrill, and J. J. Rocca. Phase-coherent, injection-seeded, table-top soft-X-ray lasers at 18.9 nm and 13.9 nm. *Nat. Photon.*, 2(94), 2008.
- [124] E. Oliva, Ph. Zeitoun, S. Sebban, M. Fajardo, P. Velarde, K. Cassou, and D. Ros. Optimization of soft x-ray amplifier by tailoring plasma hydrodynamics. *Opt. Lett.*, 34(17) :2640–2642, 2009.
- [125] J. J. Rocca, V. Shlyaptsev, F. G. Tomasel, O. D. Cortazar, D. Hartshorn, and J. L. A. Chilla. Demonstration of a discharge pumped table-top soft-X-ray laser. *Phys. Rev. Lett.*, 73(16) :2192–2195, 1994.
- [126] A. V. Vinogradov and J. J. Rocca. Repetitively pulsed X-ray laser operating on the 3p–3s transition of the Ne-like argon in a capillary discharge. *Quantum Electron.*, 33(1):7–17, 2003.
- [127] J. E. Trebes, S. B. Brown, E. M. Campell, D. L. Matthews, D. G. Nilson, G. F. Stone, and D. A. Whelan. Demonstration of X-ray holography with an X-ray laser. *Science*, 238:517–519, 1987.

- [128] L. B. Da Silva, J. E. Trebes, R. Balhorn, S. Mrowka, E. Anderson, D. T. Attwood, T. W. Barbee Jr., J. Brase, M. Corzett, J. Gray, J. A. Koch, C. Lee, D. Kern, R. A. London, B. J. MacGowan, and G. Stone. X-ray laser microscopy of rat sperm nuclei. *Science*, 258 :269–271, 1992.
- [129] G. Vaschenko, F. Brizuela, C. A. Brewer, M. Grisham, H. Mancini, C. S. Menoni, M. Marconi, J. J. Rocca, W. Chao, J. A. Liddle, E. H. Anderson, D. T. Attwood, A. V. Vinogradov, I. A. Artyukov, Y. P. Pershyn, and V. V. Kondratenko. Nanoimaging with a compact extreme-ultraviolet laser. *Opt. Lett.*, 30(16) :2095–2097, 2005.
- [130] C. A. Brewer, F. Brizuela, P. Wachulak, D. H. Martz, W. Chao, E. H. Anderson, D. T. Attwood, A. V. Vinogradov, I. A. Artyukov, A. G. Ponomareko, V. V. Kondratenko, M. Marconi, J. J. Rocca, and C. S. Menoni. Single-shot extreme ultraviolet laser imaging of nanostructures with wavelength resolution. *Opt. Lett.*, 33(5):518–520, 2008.
- [131] G. Vaschenko, A. G. Etxarri, C. S. Menoni, J. J. Rocca, O. Hemberg, S. Bloom, W. Chao, E. H. Anderson, D. T. Attwood, Y. Lu, and B. Parkinson. Nanometer-scale ablation with a table-top soft X-ray laser. *Opt. Lett.*, 31(24) :3615–3617, 2006.
- [132] D. H. Kalantar, M. H. Key, L. B. Da Silva., S. G. Glendinning, J. P. Knauer, B. A. Remington, F. Weber, and S. V. Weber. Measurement of 0.35 μm laser imprint in a thin Si foil using an X-ray laser backlighter. *Phys. Rev. Lett.*, 76(19):3574–3577, 1996.
- [133] D. H. Kalantar, M. H. Key, L. B. Da Silva, S. G. Glendinning, B. A. Remington, J. E. Rothenberg, F. Weber, S. V. Weber, E. Wolfrum, N. S. Kim, D. Neely, J. Zhang, J. S. Wark, A. Demir, J. Lin, R. Smith, G. J. Tallents, C. L. S. Lewis, A. MacPhee, J. Warwick, and J. P. Knauer. Measurement of direct drive laser imprint in thin foils by radiography using an X-ray laser backlighter. *Phys. Plasmas*, 4 :1985–1993, 1997.
- [134] R. Cauble, L. B. Da Silva, T. W. Barbee Jr., P. Celliers, C. Decker, R. A. London, J. C. Moreno, J. E. Trebes, A. S. Wan, and F. Weber. Simultaneous measurement of local gain and electron density in X-ray lasers. *Science*, 273(5278) :1093– 1096, 1996.
- [135] L. B. Da Silva, T. W. Barbee, Jr., R. Cauble, P. Celliers, D. Ciarlo, S. Libby, R. A. London, D. Matthews, S. Mrowka, J. C. Moreno, D. Ress, J. E. Trebes, A. S. Wan, and F. Weber. Electron density measurements of high density plasmas using soft x-ray laser interferometry. *Phys. Rev. Lett.*, 74(20) :3991–3994, 1994.
- [136] D. Ress, L. B. Da Silva, R. A. London, J. E. Trebes, S. Mrowka, R. J. Procassini, T. W. Barbee Jr., and D. E. Lehr. Measurement of laser-plasma electron density with a soft-X-ray laser deflectometer. *Science*, 265:514–517, 1994.
- [137] F. Brizuela, Y. Wang, C. A. Brewer, F. Pedaci, W. Chao, E. H. Anderson, Y. Liu, K. A. Goldberg, P. Naulleau, P. Wachulak, M. Marconi, D. T. Attwood, J. J. Rocca, and C. S. Menoni. Microscopy of extreme ultraviolet lithography masks with 13.2 nm tabletop laser illumination. *Opt. Lett.*, 34(3):271–273, 2009.
- [138] J. Grava, M. A. Purvis, J. Filevich, M. C. Marconi, J. J. Rocca, J. Dunn, S. J. Moon, and V. N. Shlyaptsev. Dynamics of a dense laboratory plasma jet investigated using soft x-ray laser interferometry. *Phys. Rev. E*, 78(1) :016403, 2008.
- [139] R. F. Smith, J. Dunn, J. Nilsen, V. N. Shlyaptsev, S. Moon, J. Filevich, J. J. Rocca, M. C. Marconi, J. R. Hunter, and T. W. Barbee. Picosecond x-ray laser interferometry of dense plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, 89(6) :065004, 2002.
- [140] G. J. Linford, E. R. Peressini, W. R. Sooy, and M. L. Spaeth. Very long lasers. Appl. Opt., 13(2):379-390, 1974.
- [141] R. Tommasini and E. E. Fill. Generalized Linford formula. JOSA B, 17(10) :1665–1670, 2000.
- [142] B. Talin, A. Calisti, L. Godbert, R. Stamm, R. W. Lee, and L. Klein. Frequency-fluctuation model for line-shape calculations in plasma spectroscopy. *Phys. Rev. A*, 51(3) :1918–1928, 1995.
- [143] J. A. Koch, B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. L. Matthews, J. H. Underwood, Ph. J. Batson, R. W. Lee, R. A. London, and S. Mrowka. Experimental and theoretical investigation of neonlike selenium X-ray laser spectral linewidths and their variation with amplification. *Phys. Rev. A*, 50(2):1877–1898, 1994.
- [144] S. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. Sov. Phys. JETP, 20(5), 1965.
- [145] V. Hughes and L. Grabner. The radiofrequency spectrum of  $rb^{85}$ f and  $rb^{87}$ f by the electric resonance method. *Phys. Rev.*, 79(2):314–322, 1950.
- [146] M. Goeppert-Mayer. Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen. Annalen der Physik, 401 :273–294, 1931.
- [147] W. Kaiser and Garret C. G. B. Two-photon excitation in CaF<sub>2</sub> :  $Eu^{2+}$ . Phys. Rev. Lett., 7 :229–231, 1961.
- [148] J. L. Hall, E. J. Robinson, and L. M. Branscomb. Laser double-quantum photodetachment of i<sup>-</sup>. Phys. Rev. Lett., 14(25) :1013–1016, 1965.
- [149] S. L. Chin, F. Yergeau, and P. Lavigne. Tunnel ionization of Xe in an ultra-intense co<sub>2</sub> laser field (10<sup>14</sup> w.cm<sup>-2</sup>) with multiple charge creation. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys., 18(8) :L213, 1985.

- [150] S. Augst, D. Strickland, D. D. Meyerhofer, S. L. Chin, and J. H. Eberly. Tunneling ionization of noble gases in a high-intensity laser field. *Phys. Rev. Lett.*, 63(20) :2212–2215, 1989.
- [151] S. Augst, D. D. Meyerhofer, D. Strickland, and S. L. Chin. Laser ionization of noble gases by Coulomb-barrier suppression. JOSA B, 8(4) :858–867, 1991.
- [152] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagetic field. Sov. Phys. JETP, 64(6) :1191–1194, 1986.
- [153] N. B. Delone and V. P. Krainov. Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field. *Phys.-Usp.*, 41(5):469–485, 1998.
- [154] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and F. Brunel. Above-threshold ionization in the long-wavelength limit. Phys. Rev. Lett., 62(11) :1259–1262, 1989.
- [155] G. J. Pert. The calculation of the electron distribution function following tunnelling ionization using a Fokker-Planck method. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys., 34(5) :881, 2001.
- [156] G. J. Pert. Inverse bremsstrahlung in strong radiation fields at low temperatures. Phys. Rev. E, 51(5):4778–4789, 1995.
- [157] G. Maynard, F. Lambert, N. Andreev, B. Robillart, A. Boudaa, J. Clerouin, B. Cros, A. Lenglet, T. Mocek, and S. Sebban. Determination of the ion temperature in a plasma created by optical field ionization. *Contrib. Plasma Phys*, 47(4-5):352–359, 2007.
- [158] M. Dunne, T. Afshar-Rad, J. Edwards, A. J. MacKinnon, S. M. Viana, O. Willi, and G. J. Pert. Experimental observations of the expansion of an optical-field-induced ionization channel in a gas jet target. *Phys. Rev. Lett.*, 72(7) :1024–1027, 1994.
- [159] D. Salzmann. Atomic physics in hot plasmas. Oxford University Press, 1998.
- [160] H. Van Regemorter. Rate of collisional excitation in stellar atmospheres. Astrophys. J., 136:906–915, 1962.
- [161] P. Chessa, E. De Wispelaere, F. Dorchies, V. Malka, J. R. Marquès, G. Hamoniaux, P. Mora, and F. Amiranoff. Temporal and angular resolution of the ionization-induced refraction of a short laser pulse in helium gas. *Phys. Rev. Lett.*, 82(3):552–555, 1999.
- [162] R. Rankin, C. E. Capjack, N. H. Burnett, and P. B. Corkum. Refraction effects associated with multiphoton ionization and ultrashort-pulse laser propagation in plasma waveguides. *Opt. Lett.*, 16(11):835–837, 1991.
- [163] B. Robillart. Modélisation de la physique atomique et du transfert radiatif pour le laser XUV. PhD thesis, Université Paris-Sud, 2010.
- [164] M. Pittman, S. Ferré, J.-Ph. Rousseau, L. Notebaert, J.P. Chambaret, and G. Chériaux. Design and characterization of a near-diffraction-limited femtosecond 100-tw 10-hz high-intensity laser system. Appl. Phys. B, 74(6) :529–535, 2002.
- [165] D. Strickland and G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. Opt. Commun., 56(3):219-221, 1985.
- [166] A. Jullien, O. Albert, F. Burgy, G. Hamoniaux, J.-Ph. Rousseau, J.-P. Chambaret, F. Augé-Rochereau, G. Chériaux, J. Etchepare, Minkovski N., and S. M. Saltiel. 10<sup>-10</sup> temporal contrast for femtosecond ultraintense lasers by crosspolarized wave generation. *Opt. Lett.*, 30(8) :920–922, 2005.
- [167] A. Jullien, S. Kourtev, O. Albert, G. Chériaux, J. Etchepare, Minkovski N., and S. M. Saltiel. Highly efficient temporal cleaner for femtosecond pulses based on cross-polarized wave generation in a dual crystal scheme. *Appl. Phys. B*, 84(3) :409–414, 2006.
- [168] B. Dromey, S. Kar, M. Zepf, and P. Foster. The plasma mirror—a subpicosecond optical switch for ultrahigh power lasers. *Rev. Sci. Instr.*, 75(3) :645, 2004.
- [169] T. Wittmann, J.-P. Geindre, P. Audebert, R. S. Marjoribanks, J.-Ph. Rousseau, F. Burgy, D. Douillet, T. Lefrou, K. Ta Phuoc, and J.-P. Chambaret. Towards ultrahigh-contrast ultraintense laser pulses—complete characterization of a double plasma-mirror pulse cleaner. *Rev. Sci. Instr.*, 77(8) :083109, 2006.
- [170] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, C. Spielmann, and P. Tournois. Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter : pulse compression and shaping. *Opt. Lett.*, 25(8) :575–577, 2000.
- [171] M. Born and E. Wolf. Principles of Optics. Pergamon Press, 1959.
- [172] D. T. Attwood. Soft X-rays and extreme ultraviolet radiation. Cambridge University Press, 2000.
- [173] E. Spiller. Reflective multilayer coatings for the far UV region. Appl. Opt., 15(10) :2333–2338, 1976.

- [174] A. V. Vinogradov and B. Y. Zeldovich. X-ray and far UV multilayer mirrors : principles and possibilities. Appl. Opt., 16(1):89–93, 1977.
- [175] D. H. Reitze, S. Kazamias, F. Weihe, G. Mullot, D. Douillet, F. Augé, O. Albert, V. Ramanathan, J.-P. Chambaret, D. Hulin, and P. Balcou. Enhancement of high-order harmonic generation at tuned wavelengths through adaptive control. *Opt. Lett.*, 29(1) :86–88, 2004.
- [176] CXRO X-Ray interaction with matter webpage : http://henke.lbl.gov/optical\_constants/.
- [177] J.-Ph. Goddet. Étude et développement de sources laser XUV par injection d'harmonique d'ordre élevé. PhD thesis, École Polytechnique, 2009.
- [178] O. Guilbaud, A. Klisnick, K. Cassou, S. Kazamias, D. Ros, G. Jamelot, D. Joyeux, and D. Phalippou. Origin of microstructures in picosecond X-ray laser beams. *Europhys. Lett.*, 74(5) :823, 2006.
- [179] J.-Ph. Goddet, S. Sebban, A.-S. Morlens, J. Gautier, J.-Ph. Rousseau, F. Burgy, Ph. Zeitoun, C. Valentin, C. Hauri, G. Maynard, A. Boudaa, J.-P. Caumes, H. Merdji, T. Mocek, M. Kozlova, and K. Jakubczak. Demonstration of a spatial filtering amplifier for high-order harmonics. *Opt. Lett.*, 32(11) :1498–1501, 2007.
- [180] M. Berrill, D. Alessi, Y. Wang, S. R. Domingue, D. H. Martz, B. M. Luther, Y. Liu, and J. J. Rocca. Improved beam characteristics of solid-target soft X-ray laser amplifiers by injection seeding with high harmonic pulses. *Opt. Lett.*, 35(14):2317–2320, 2010.
- [181] P. Mercère, Ph. Zeitoun, M. Idir, S. Le Pape, D. Douillet, X. Levecq, G. Dovillaire, S. Bucourt, K. A. Goldberg, P. P. Naulleau, and S. Rekawa. Hartmann wave-front measurement at 13.4 nm with λ<sub>EUV</sub>/120 accuracy. Opt. Lett., 28(17) :1534–1537, 2003.
- [182] S. Le Pape, Ph. Zeitoun, M. Idir, P. Dhez, J. J. Rocca, and M. François. Electromagnetic-field distribution measurements in the soft x-ray range : Full characterization of a soft x-ray laser beam. *Phys. Rev. Lett.*, 88(18) :183901, 2002.
- [183] J.-Ph. Goddet, S. Sebban, J. Gautier, Ph. Zeitoun, C. Valentin, F. Tissandier, T. Marchenko, G. Lambert, M. Ribière, D. Douillet, T. Lefrou, G. Iaquaniello, F. Burgy, G. Maynard, B. Cros, B. Robillard, T. Mocek, J. Nejdl, M. Kozlova, and K. Jakubczak. Aberration-free laser beam in the soft X-ray range. *Opt. Lett.*, 34(16) :2438–2440, 2009.
- [184] J. Gautier, F. Delmotte, M. Roulliay, F. Bridou, M.-F. Ravet, and A. Jérome. Study of normal incidence of threecomponent multilayer mirrors in the range 20-40 nm. *Appl. Opt.*, 44(3):384–390, 2005.
- [185] D. Benredjem, A. Sureau, and C. Möller. Zeeman splitting in the Maxwell-Bloch theory of collisionally pumped lasers. *Phys. Rev. A*, 55(6):4576–4584, 1997.
- [186] D. Benredjem, J. Kuba, C. Möller, and O. Z. Zabaydullin. Modeling of saturation and refraction in X-ray lasers. Phys. Rev. A, 67(4) :043816, 2003.
- [187] I. R. Al'miev, O. Larroche, D. Benredjem, J. Dubau, S. Kazamias, C. Möller, and A. Klisnick. Dynamical description of transient X-ray lasers seeded with high-order harmonic radiation through Maxwell-Bloch numerical simulations. *Phys. Rev. Lett.*, 99(12) :123902, 2007.
- [188] C. M. Kim, K. A. Janulewicz, H. T. Kim, and J. Lee. Amplification of a high-order harmonic pulse in an active medium of a plasma-based X-ray laser. *Phys. Rev. A*, 80(5):053811, 2009.
- [189] Alain Sureau and Philip B. Holden. From amplification of spontaneous emission to saturation in X-ray lasers : A Maxwell-Bloch treatment. Phys. Rev. A, 52(4) :3110–3125, 1995.
- [190] J. Dunn, R. F. Smith, J. Nilsen, J. R. Hunter, S. Hubert, S. Jacquemot, C. Rémond, R. Marmoret, M. Fajardo, Ph. Zeitoun, L. Vanbostal, C. L. S. Lewis, M.-F. Ravet, and F. Delmotte. Longitudinal coherence measurements of a transient collisional X-ray laser. Opt. Lett., 28 :1, 2003.
- [191] P. Celliers, F. Weber, L. B. Da Silva, T. W. Barbee Jr., R. Cauble, A. S. Wan, and J. C. Moreno. Fringe formation and coherence of soft-X-ray laser beam illuminating a Mach-Zehnder interferometer. *Opt. Lett.*, 20 :1907, 1995.
- [192] Ph. Zeitoun, S. Le Pape, J. J. Rocca, A. Carillon, P. Dhez, M. François, S. Hubert, M. Idir, and D. Ros. Characterization of a X-ray laser beam. In *Proceeding of SPIE San Diego*, 2001.
- [193] D. Joyeux, Pollack F., J. Svatos, and D. Phalippou. Applications of wavefront division interferometers in soft X-rays. *Rev. Sci. Instr.*, 66 :2, 1995.
- [194] B. Cros, T. Mocek, I. Bettaibi, G. Vieux, M. Farinet, J. Dubau, S. Sebban, and G. Maynard. Characterization of the collisionally pumped optical-field-ionized soft X-ray laser at 41.8 nm driven in capillary tubes. *Phys. Rev. A*, 73(3) :033801, 2006.

- [195] M.-C. Chou, P.-H. Lin, T.-S. Hung, J.-Y. Lin, J. Wang, and S.-Y. Chen. Experimental investigation of the parameter space for optical-field-ionization cluster-jet X-ray lasers. *Phys. Rev. A*, 74(2) :023804, 2006.
- [196] C. G. Durfee and H. M. Milchberg. Light Pipe for High Intensity Laser Pulses. Phys. Rev. Lett., 71(15) :2409–2412, 1993.
- [197] C. G. Durfee, J. Lynch, and H. M. Milchberg. Mode Properties of a Plasma Waveguide for Intense Laser Pulses. Opt. Lett., 19(23) :1937–1939, 1994.
- [198] L. C. Johnson and T. K. Chu. Measurements of Electron Density Evolution and Beam Self-Focusing in a Laser-Produced Plasma. Phys. Rev. Lett., 32(10) :517–520, 1974.
- [199] J. H. McLeod. The axicon : A new type of optical element. J. Opt. Soc. Am., 44(8) :592-592, 1954.
- [200] P. Volfbeyn, E. Esarey, and W. P. Leemans. Guiding of laser pulses in plasma channels created by the ignitor-heater technique. In *The 40th annual meeting of the division of plasma physics of the american physical societyociety*, volume 6, pages 2269–2277, 1999.
- [201] V. V. Korobkin, L. Ya Polonskii, V. P. Poponin, and L. N. Pyatnitskii. Focusing of Gaussian and super-Gaussian laser beams by axicons to obtain continuous laser sparks. Sov. J. Quantum Electron., 16(2) :178–182, 1986.
- [202] C. E. Max, J. Arons, and A. B. Langdon. Self-modulation and self-focusing of electromagnetic waves in plasmas. Phys. Rev. Lett., 33(4):209–212, 1974.
- [203] P. Sprangle, C. M Tang, and E. Esarey. Relativistic self-focusing of short-pulse radiation beams in plasmas. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 15(2) :145–153, 1987.
- [204] P. Sprangle, E. Esarey, and A. Ting. Nonlinear interaction of intense laser pulses in plasmas. Phys. Rev. A, 41(8) :4463–4469, 1990.
- [205] W. B. Mori. The physics of the nonlinear optics of plasmas at relativistic intensities for short-pulse lasers. IEEE J. Quant. Elec., 33(11):1942–1953, 1997.
- [206] A. Ting, E. Esarey, and P. Sprangle. Nonlinear wake-field generation and relativistic focusing of intense laser pulses in plasmas. *Phys. Fluids. B*, 2(6) :1390, 1990.
- [207] P. Sprangle, E. Esarey, and A. Ting. Nonlinear theory of intense laser-plasma interactions. Phys. Rev. Lett., 64(17):2011– 2014, 1990.
- [208] P. Monot, T. Auguste, P. Gibbon, F. Jakober, G. Mainfray, A. Dulieu, M. Louis-Jacquet, G. Malka, and J. L. Miquel. Experimental demonstration of relativistic self-channeling of a multiterawatt laser pulse in an underdense plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 74(15) :2953–2956, 1995.
- [209] T. R. Clark and H. M. Milchberg. Optical mode structure of the plasma waveguide. Phys. Rev. E, 61(2) :1954–1965, 2000.
- [210] J. Fan, E. Parra, and H. M. Milchberg. Resonant self-trapping and absorption of intense bessel beams. Phys. Rev. Lett., 84(14) :3085–3088, 2000.
- [211] J. Fan, E. Parra, K. Y. Kim, I. Alexeev, H. M. Milchberg, J. Cooley, and T. M. Antonsen. Resonant self-trapping of high intensity bessel beams in underdense plasmas. *Phys. Rev. E*, 65(5), 2002.