



Développement d'un accélérateur laser-plasma à haut taux de répétition pour des applications à la diffraction ultra-rapide d'électrons

Benoit Beaurepaire

► To cite this version:

Benoit Beaurepaire. Développement d'un accélérateur laser-plasma à haut taux de répétition pour des applications à la diffraction ultra-rapide d'électrons. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Université Paris Saclay (COMUE), 2016. Français. NNT : 2016SACLX013 . tel-01493678

HAL Id: tel-01493678

<https://pastel.hal.science/tel-01493678>

Submitted on 21 Mar 2017

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.

NNT : 2016 SACLX023

THESE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY
PREPAREE A
“L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE”

ÉCOLE DOCTORALE N° 288
Ondes et Matière

Spécialité: Physique des plasmas

Par

Benoît BEAUREPAIRE

Développement d'un accélérateur laser-plasma à haut taux de répétition
pour des applications à la diffraction ultra-rapide d'électrons

Thèse présentée et soutenue à « Palaiseau », le « 16/09/2016 » :

Composition du Jury :

M. MORA Patrick, Directeur de recherche, Centre de Physique Théorique - Président du jury
M. MUGGLI Patric, Professeur, Future Accelerators Group Max-Planck-Institut für Physik - Rapporteur
M. DORCHIES Fabien, Directeur de recherche, CENtre Lasers Intenses et Applications - CNRS - Rapporteur
M. COMPARAT Daniel, Directeur de recherche, Laboratoire Aimé Cotton - Examineur
M. LUNDH Olle, Professeur, Lund University - Examineur
M. FAURE Jérôme, Directeur de recherche, CNRS - ENSTA - Directeur de thèse

Remerciements

Ce manuscrit de thèse est le fruit de quatre années de préparation, de mise en place, d'expérimentations, de simulations, de dépouilles et de rédactions d'articles. Tout cela a été rendu possible grâce à l'aide et au soutien de nombreuses personnes que je souhaite remercier.

Tout d'abord, je souhaite remercier mon directeur de thèse, Jérôme Faure qui m'a énormément apporté sur le plan professionnel et personnel. Il a su me guider et m'accompagner, surtout à mes débuts, et je lui suis extrêmement reconnaissant de la confiance et de la liberté qu'il m'a accordé au cours de cette thèse. Je tiens aussi à le remercier de m'avoir offert l'opportunité de voyager régulièrement pour présenter nos résultats et de réaliser des expériences aux Etats-Unis.

Je remercie également Agustin Lifschitz dont l'expérience m'a été très précieuse pour la réalisation de mes simulations numériques. Travailler aux côtés d'un numéricien qui comprend et s'intéresse aux problématiques expérimentales fut très appréciable. Je souhaite ensuite remercier Aline Vernier pour son aide dans la mise en place de l'expérience, sa bonne humeur à toute épreuve et son entrain au quotidien. Je me souviendrai longtemps des premiers électrons que nous avons observé en Salle Noire, encore peu sûrs de nous.

Mes remerciements vont aussi aux autres membres du groupe APPLI, qui ont agrandi notre équipe progressivement. Merci à Maxence Thévenet et Geoffrey Gallé pour nos innombrables discussions (et pauses cafés...) qui débutaient toujours nos journées dans la bonne humeur. Vous avez été d'excellents partenaires lors de nos sessions rugby dans le jardin du LOA ou pour les séances de coaching personnel à la salle de bloc. Diego Guénou nous a rejoint par la suite, je le remercie d'avoir travaillé avec moi lors de nos longues soirées de manip. Je le remercie également pour l'organisation de notre soirée combat de catch et dîner aux insectes absolument mémorable. Enfin Dominykas Gustas, arrivé pour prendre la relève, merci de continuer à travailler sur l'expérience qui, je l'espère, donnera de bons résultats.

Je suis également très reconnaissant envers les personnes que je voyais au quotidien, et qui contribuaient à la bonne ambiance générale qui règne au LOA. Merci à Rodrigo Lopez-Martens pour m'avoir permis de travailler avec le laser de la Salle Noire, et aussi pour avoir tant animé nos déjeuners. C'était un plaisir de travailler avec Maïmouna Bo-

coum, nous avons fait ensemble nos armes sur le laser, merci pour son soutien lors des derniers mois de ma thèse. J'aimerai aussi remercier Aurélie Jullien et Frederik Böhle pour toute l'aide qu'ils m'ont apporté avec le laser, ainsi que Florian Mollica, Hermance Jacquemin, Olivier Albert, Jean-Philippe Rousseau, Magali Lozano, et encore Stefan Haessler.

Je remercie également tous ceux dont l'aide fut très précieuse pendant cette thèse : Victor Malka, Alessandro Flacco, Emilien Guillaume, Kim Ta Phuoc, Guillaume Lambert, Maxence Le Sourd, Charly et Micka. Merci à l'équipe de choc du secrétariat : Patricia, Sandrine, Lucie, Octavie, Carole et Catherine, pour leur efficacité redoutable ! Enfin, je remercie mes collègues de l'université du Michigan, Alec Thomas, Karl Krushelnick, Zhao-han He et John Nees, pour l'opportunité de réaliser ma première expérience laser-plasma.

Je tiens également à remercier les membres du jury Patrick Mora, Daniel Comparat et Olle Lundh, et particulièrement les rapporteurs Patric Muggli et Fabien Dorchies, pour s'être intéressés à mes travaux et pour avoir pris de temps de lire ce manuscrit. Merci pour vos retours qui m'ont permis d'améliorer ce manuscrit, ainsi que pour les discussions que nous avons pu avoir sur ces travaux.

J'ai une pensée pour mes amis grâce à qui j'ai traversé ces années de thèse de façon agréable. Merci à Antoine et Florence pour toutes les soirées que l'on a passées ensemble, notamment lorsqu'on était voisin. Merci à mes amis de Supop, notamment Clément, David, JB & Charlotte, Thibault, Fredo, Tatiana et Vincent ... ainsi qu'aux potes du quiz : Chris, Olivier, Adrien et Martin.

Pour finir, j'aimerai remercier mes parents, ma soeur et mon frère qui ont toujours cru en moi et m'ont soutenu pendant mes études. Leur affection et leurs conseils avisés m'ont toujours été très précieux. Merci beaucoup d'avoir consacré du temps à la préparation du pot de thèse afin que je puisse me concentrer sur la soutenance finale. Merci aussi à Daniel et Sylvie pour leur soutien. Et je termine en te remerciant Aurélie d'avoir été à mes côtés pendant ces années de thèse et de m'avoir toujours soutenu, même pendant les périodes plus difficiles de manip et de rédaction. Merci énormément pour tous ces voyages que l'on a fait ces dernières années et qui m'ont fait un bien fou.

Table des matières

1	Introduction	2
1.1	Références	9
2	Théorie de la diffraction d'électrons	12
2.1	Introduction	12
2.2	Formule de Bragg : approche intuitive de la diffraction	14
2.3	Diffusion d'une onde sur un atome	15
2.4	Définition de la structure cristalline	18
2.5	Diffraction dans l'espace réel	19
2.6	Diffraction dans l'espace réciproque	19
2.7	Caractéristiques de la source idéale pour la diffraction ultra-rapide d'électrons	23
2.8	Conclusion	28
2.9	Références	28
3	Théorie de l'accélération laser-plasma	30
3.1	Ionisation par suppression de barrière	31
3.2	Définition des grandeurs laser et plasma	34
3.3	Génération d'ondes plasma	38
3.4	La problématique de l'injection	43
3.5	Injection dans un gradient de densité	47
3.6	Le régime de la bulle	48
3.7	Applications numériques : accélération d'un paquet d'électrons dans le régime de la bulle pour des expériences de diffraction d'électrons	52
3.8	Références	53
4	Expériences d'accélération d'électrons au LOA	57
4.1	Le système laser "Salle Noire"	58
4.2	Montage expérimental	60
4.3	Résultats expérimentaux : étude de l'accélération laser-plasma avec le laser de la "Salle Noire"	68
4.4	Conclusion et perspectives	83
4.5	Références	84

5	Premières expériences de diffraction d'électrons - expériences au CUOS	86
5.1	Montage expérimental et caractérisation du faisceau d'électrons	87
5.2	Preuve de principe : première expérience de diffraction d'électrons statique avec un accélérateur laser-plasma	91
5.3	Principe de l'expérience de diffraction résolue en temps	94
5.4	Résultats et analyse de la stabilité de la source	100
5.5	Améliorations envisageables de l'expérience	109
5.6	Conclusions	110
5.7	Références	110
6	Autocompression d'impulsions laser induite par ionisation	112
6.1	Introduction sur les méthodes de post-compression d'impulsions femtose- condes	113
6.2	Introduction sur les couplages spatio-temporels	114
6.3	Montage expérimental	116
6.4	Résultats expérimentaux : auto-compression de l'impulsion à 12 fs	119
6.5	Simulations PIC	124
6.6	Etude des couplages spatio-temporels.	129
6.7	Conclusion	132
6.8	Références	132
7	Etude numérique de la génération de faisceaux d'électrons à 5 MeV	135
7.1	Etude préliminaire : effet de la dispersion spectrale et des effets non linéaires sur des impulsions ultra-courtes	136
7.2	Propagation d'une impulsion de durée 5 fs dans un plasma sous-dense	139
7.3	Accélération d'électrons à 5 MeV	142
7.4	Optimisation du faisceau d'électrons	149
7.5	Conclusions et perspectives	154
7.6	Références	155
8	Conclusion et perspectives	157
8.1	Références	162
A	Calcul du taux de fuite à travers un capillaire.	I
A.1	Hypothèses	I
A.2	Calcul du débit massique.	III

Liste des figures

1.1	Photographie enregistrée en 1894 par Etienne-Jules Marey, permettant de mettre en évidence les différentes étapes de la chute d'un chat. Dans un premier temps le chat se plie sur lui-même de sorte que l'avant et l'arrière du corps tournent autour d'un axe différent. Ensuite, il modifie le moment d'inertie de l'avant puis de l'arrière de son corps en tendant ou en pliant ses pattes. De cette façon, il est capable de tourner dans un premier temps la moitié avant, puis la seconde moitié de son corps.	3
2.1	Exemples de diffraction d'une onde. A gauche : diffraction d'une onde mécanique, une vague, par les 2 rochers au centre de l'image. A droite : diffraction d'une onde lumineuse, expérience des trous d'Young. Images prises sur internet.	13
2.2	Schéma d'une onde diffusée par des atomes appartenant à 2 plans séparés d'une distance d	15
2.3	Vecteurs d'onde et vecteurs de position pour la diffusion sur un atome. . . .	16
2.4	Libre parcours moyen et section efficace de diffusion en fonction de l'énergie cinétique pour la diffraction d'électrons sur l'or solide.	17
2.5	Construction d'un cristal par convolution du réseau de Bravais par un motif. (image provenant d'internet)	18
2.6	Exemples de mailles et de plans définis par les indices de Miller. (image adaptée de Wikipedia)	20
2.7	Représentation d'un réseau cubique centré à gauche et cubique à faces centrées à droite. Les points rouges désignent la position des atomes dans le réseau.	21
2.8	Représentation de la sphère d'Ewald pour 2 angles de Bragg différents. En pratique, il est plus commode de tourner le cristal plutôt que de changer l'angle du faisceau incident. A gauche, l'angle optimise la diffraction sur le pic d'indice $(h,k) = (0,2)$, et à droite sur le pic $(h,k) = (0,1)$	22
2.9	Evolution de l'espace (x, p_x) au cours de la propagation d'un faisceau. L'émission transverse du faisceau est conservée tout au long de la propagation. . .	25
2.10	Mise en évidence de la longueur de cohérence transverse L_T caractérisant la distance sur laquelle les ondes diffusées sont en phase pour 2 sources séparées angulairement de $\Delta\theta$	26

3.1	A gauche : Potentiel coulombien d'un électron gravitant autour du noyau en l'absence de champ extérieur. A droite : effet du champ laser sur le potentiel vu par un électron : la barrière est abaissée (courbe bleue), jusqu'à ce que l'électron puisse s'échapper (courbe rouge).	33
3.2	Génération d'onde plasma pour différentes valeurs de a_0 dans un plasma de densité électronique $n_e = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. L'enveloppe laser, représentée en rouge, à une durée de $\tau = 24 \text{ fs}$	41
3.3	Représentation des champs longitudinaux et transverse associés à la génération d'une onde plasma non linéaire. En haut : carte de la densité électronique. L'impulsion laser est représentée en rouge, et la flèche indique la direction de propagation. La vitesse de phase de l'onde plasma excitée est proche de la vitesse de groupe de l'impulsion laser. Au milieu : Champ électrique longitudinal. En bas : champ électrique transverse. La longueur d'onde plasma $\lambda_p \approx 1 - 10 \mu\text{m}$ donne une idée de la longueur d'onde typique dans les expériences d'accélération d'électrons. La partie arrière de la cavité ionique est propice pour l'accélération d'électrons car les champs y sont à la fois accélérateur et focalisant.	42
3.4	Haut : champ longitudinal associé à l'onde plasma. Bas : orbites des électrons en fonction de leur quantité de mouvement initiale pour $a_0 = 1$, $\tau = 24 \text{ fs}$ et $n_e = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$	45
3.5	Gauche : Evolution de l'énergie nécessaire aux électrons pour être piégés en fonction de la vitesse de l'onde plasma. Droite : Evolution de l'énergie nécessaire aux électrons pour être piéger en fonction du potentiel électrostatique de l'onde plasma.	47
3.6	Carte de densité électronique représentant une cavité ionique créée par une impulsion laser intense dans le cadre du régime de la bulle. Le rayon local de la cavité vaut $r_b(\xi)$, et le rayon maximal vaut R_b . La bulle est entourée d'une fine couche de densité électronique élevée et d'épaisseur Δ	49
3.7	Résultat de simulations PIC provenant de [7] montrant les électrons initialement hors-axe (en rouge et bleu) circulant autour de la bulle avant d'y être injectés.	50
4.1	Schéma du système laser double CPA de la "Salle Noire". Au départ, l'oscillateur est couplé à un premier étage CPA. Le contraste des impulsions est augmenté grâce à un XPW, puis elles sont amplifiées dans le second CPA. En fin de chaine, le profil transverse des implusions est filtré grâce à une fibre creuse.	59
4.2	Photographie de la "Salle Noire". A droite se trouve l'enceinte de compression dans laquelle le faisceau est mis en forme, et la chambre expérimentale est à gauche.	61

4.3	Montage installé dans la chambre expérimentale pour l'accélération d'électrons.	62
4.4	Gauche : Schéma du système de fixation du capillaire permettant une utilisation en continu, et image d'un capillaire de diamètre intérieur 100 μm et de diamètre extérieur 140 μm monté dans la chambre d'interaction (droite).	64
4.5	Mesure de la densité atomique a) pour une pression de 20 bars dans le capillaire de 200 μm , b) pour une pression de 30 bars dans le capillaire de 100 μm , et c) pour une pression de 60 bars dans le capillaire de 50 μm . Ces mesures ont été faites en utilisant de l'Argon et l'échelle de couleur représente la densité atomique mesurée en m^{-3} . d) Comparaison des profils transverses mesurés avec les 3 capillaires à une hauteur de 40 μm au dessus du capillaire.	65
4.6	Tache focale expérimentale, dont la largeur totale à mi-hauteur vaut $W_0 = 2.2 \mu\text{m}$	68
4.7	a) Interférogramme représentant le déphasage dû au plasma. On voit en haut l'ombre du capillaire b) Carte du déphasage accumulé à travers le plasma c) Carte de la densité électronique du plasma. Ces mesures ont été faites dans de l'azote.	69
4.8	Résultats expérimentaux. a) profil de la densité électronique mesuré en vert et charge du faisceau électronique accéléré par tir en fonction de la position du plan focal en bleu. b) Charge par tir en fonction de $\omega_p(z)\tau$, ou $\omega_p(z)$ est calculé à partir de la densité électronique dans le plan focal. La courbe verte correspond à l'amplitude théorique $\Delta\phi$ des ondes plasma. Les barres d'erreur horizontales correspondent à une incertitude de $\pm 20 \mu\text{m}$ sur la position du plan focal. c), d) et e) correspondent à des profils typiques du faisceau d'électrons mesurés un jour différent et intégrés sur 500 à 1000 tirs.	70
4.9	Mesure de la distribution en énergie du faisceau d'électrons. A gauche : la position des électrons sur le scintillateur lorsque les aimants sont retirés représente l'axe du faisceau. Au milieu : le faisceau est dévié par les aimants. A droite : La distribution en énergie mesurée en bleu est très similaire à celle obtenue dans les simulations PIC dans les mêmes conditions (rouge pointillé).	72
4.10	Cartes de la densité électronique dans le gradient de sortie à différents instants provenant d'une simulation PIC faites avec des paramètres laser et plasma expérimentaux.	73
4.11	a) Carte de la densité électronique dans le gradient de sortie lorsque l'injection des électrons dans l'onde plasma commence. b) Energie des électrons en fonction de leur position longitudinale au même instant.	74
4.12	Distribution transverse de l'intensité laser mesurée 2 jours différents au foyer et dans le champ intermédiaire à $z = \pm 40 \mu\text{m}$ autour du foyer. A droite sont représentés des profils typiques des faisceaux d'électrons accélérés avec le profil laser correspondant.	75

4.13 Schéma de principe de l'algorithme itératif de Gerchberg-Saxton permettant de retrouver la phase laser à partir des profils d'intensité mesurés dans 2 plans : à gauche au foyer et à droite après 40 μm de propagation.	76
4.14 Panel du haut : images expérimentales de l'intensité laser en $z = -2z_R$, $z = 0$ et $z = 2z_R$. Panel du milieu : distribution de l'intensité laser reconstruite grâce à l'algorithme de Gerchberg-Saxton appliqué aux images expérimentales. Panel du bas : intensité laser reconstruite à partir de la distribution et foyer et avec une phase plate.	77
4.15 Résultats de simulations PIC faites avec différents profils laser : a) tache focale et front d'onde expérimentaux, b) tache focale expérimentale mais front d'onde plan, c) gaussienne parfaite. Colonne de gauche : Intensité et front d'onde au foyer. Colonne du milieu : coupe du champ transverse dans l'onde plasma $E_{\perp}/E_p$ à $t = 0.6\text{ ps}$ et pour $z=28\text{ }\mu\text{m}$. Colonne de droite : Distribution transverse du faisceau d'électrons loin du jet de gaz.	78
4.16 Etude de la stabilité de la source.	79
4.17 a) Installation du second jet de gaz de diamètre $\phi_2 = 200\text{ }\mu\text{m}$ après le premier capillaire de diamètre $\phi_1 = 100\text{ }\mu\text{m}$. b) Distribution électronique transverse mesurée avec le premier jet de gaz (Azote) uniquement. c) Distribution électronique transverse mesurée avec les 2 jets de gaz (Azote).	81
4.18 Interférogramme et carte de la densité électronique mesurée avec les 2 jets de gaz. On ne peut voir que l'ombre du capillaire sur l'interférogramme (en haut), le second jet de diamètre $\phi_2 = 200\text{ }\mu\text{m}$ étant trop loin par rapport à l'axe de propagation du laser.	82
4.19 Distribution en énergie des électrons accélérés dans le premier jet de gaz uniquement (bleu), et dans les 2 jets de gaz (rouge).	82
5.1 Distributions transverses du faisceau électronique obtenues pour différentes configurations du miroir déformable, provenant de [1]. a) Miroir plan (intégrée sur 500 tirs). b) Optimisation de l'intensité laser au foyer (intégrée sur 500 tirs). c) Optimisation de la charge de la distribution électronique (intégrée sur 100 tirs).	88
5.2 Schéma du dispositif expérimental permettant de : a) Mesurer la distribution transverse du faisceau d'électrons au foyer du solénoïde, b) mesurer l'énergie des électrons, et c) faire des expériences de diffraction d'électrons (statique).	89

5.3	Distribution transverse du faisceau d'électrons filtré par le pinhole lorsque le solénoïde est éteint (a) et lorsqu'il est allumé (b). c) En rouge : coupe de la distribution transverse du faisceau focalisé par le solénoïde, en bleu pointillé le résultat d'un fit réalisé avec le code GPT. d) Spectres électroniques lorsque le solénoïde est éteint (vert) et lorsqu'il est allumé (bleu). Le spectre bleu pointillé représente le spectre modélisé avec le code GPT lorsque le faisceau est focalisé par le solénoïde. La résolution en énergie du spectromètre est indiquée par les barres en haut.	90
5.4	Figures de diffraction en statique sur un échantillon polycristallin d'épaisseur 10 nm d'Aluminium.	92
5.5	Images de diffraction mesurées sur un échantillon d'or monocristallin avec la source laser-plasma à 95 keV à gauche, et avec une source conventionnelle composée d'une photocathode et d'un champ statique de 50 kV à droite. Le temps d'intégration pour ces images était de l'ordre de la seconde.	92
5.6	Observation d'un changement de la structure cristalline (non résolue en temps). A gauche : image de diffraction obtenue sur l'or monocristallin pendant que nous alignions le solénoïde. A droite : nous avons accidentellement fondu l'échantillon avec le laser. On voit clairement que l'aspect monocristallin est moins bien défini et que des anneaux de diffraction apparaissent à la place des pics de Bragg.	94
5.7	Principe du montage pour améliorer la résolution temporelle : en haut, on sélectionne l'ordre 0 et 2 pics (220) grâce à une fente placée entre l'échantillon et le scintillateur. En bas, on représente les pics étirés par le spectromètre, ce qui permet de les étirer davantage et ainsi d'améliorer la résolution temporelle le long des pics.	95
5.8	Diagramme de bande du Silicium, qui est un semi-conducteur à gap indirect. Pour exciter un électron de la bande de valence vers la bande de conduction, il faut un photon de longueur d'onde inférieure à 400 nm (flèches vertes). Les électrons et trous créés se dés excitent vers les minima des bandes de conduction et de valence en émettant un phonon (flèches pointillées bleues).	96
5.9	A gauche : figure de diffraction sur un échantillon monocristallin de Si d'épaisseur 33 nm. A droite : Evolution de l'intensité des pics de Bragg (220) en fonction du délai entre l'impulsion pompe à 400 nm et le faisceau d'électrons sonde à 55 keV. Ces 2 images provenant de [7] montrent le signal que l'on souhaite mesurer avec la source laser-plasma.	97
5.10	A gauche : image au TEM de l'échantillon, montrant une grille de pas 350 μm sur laquelle sont synthétisées des couches de 30 nm de Si. A droite : Photo de l'échantillon dans sa monture, dans l'enceinte expérimentale.	98
5.11	Montage expérimental mis en place à l'université du Michigan. Schéma fourni par Zhaohan He.	99

5.12	Stabilité de la charge lors de 1600 acquisitions de la distribution transverse, de 300 tirs chacune.	100
5.13	Stabilité de la charge contenue dans le pic de Bragg (220) au cours de 1000 acquisitions de 600ms (300 tirs) chacune. L'analyse de la stabilité qui est représentée repose uniquement sur la série sans excitation par l'impulsion pompe.	101
5.14	a) Schéma du montage pour la calibration pompe-sonde : la plume plasma créée par l'ionisation de l'aiguille perturbe localement le paquet d'électrons. En variant le délai entre le paquet d'électrons et l'impulsion pompe, il est possible de perturber les électrons à différentes positions y. b) Image des électrons défléchis par le spectromètre sans pompe. c) Electrons défléchis par le spectromètre avec pompe. d) Différence des images avec et sans pompe. e) Variation de l'intensité le long de l'axe y permettant de mettre en évidence l'effet de l'impulsion pompe sur l'aiguille. f) Evolution du délai introduit sur la pompe en fonction de la position y pour laquelle le paquet d'électrons est perturbé. Les bars d'erreur représentent la largeur de la transition (en pixels) pour que la variation du signal passe de 10 % à 90 % de la valeur crête.	103
5.15	a) Figure de diffraction statique sur l'échantillon de Si, et b) signal avec pompe - sans pompe. La variation de l'intensité intégrée sur chacun des pics de Bragg est différente, indiquant que cette variation est causée par le signal de pompe. Le délai pompe-sonde pour cette expérience est d'environ 300 ps.	104
5.16	a) Géométrie dans l'espace réciproque pour la diffraction à un angle légèrement hors condition de Bragg. b) Effet d'une rotation des plans de Bragg sur l'intensité des pics de diffraction. La courbe bleue représente la position initiale du cristal, telle que le pic (220)-1 soit à l'angle de Bragg et le pic (220)-2 fasse un angle d'environ 0.2° par rapport à l'angle de Bragg. Si on tourne le cristal de 0.2° (courbe rouge), l'intensité du premier pic diminue alors que celle du second pic augmente.	105
5.17	a) Images de diffraction statique moyennée sur 10 minutes. b) Signal avec pompe - sans pompe : $I_1 - I_0$. c) Evolution du signal $(I_1 - I_0)/I_0$ le long du pic de diffraction mesuré avec la source laser-plasma en bleu, et avec un canon à électrons en vert. La résolution temporelle avec le canon à électrons était inférieure à 300fs, et le signal varie en $\exp(-t/\tau)$ avec $\tau = 3\text{ps}$ pour $t > 0$. La courbe rouge représente le résultat de la corrélation d'une décroissance exponentielle de temps caractéristique 3.1 ps avec une gaussienne de FWHM = 8 ps.	107
6.1	Représentation d'un couplage en amplitude pour une impulsion dont le spectre est plus large au centre que sur les bords (a). Du point de vue temporel, cela correspond à une impulsion qui serait plus courte au centre, sous l'hypothèse d'une phase spectrale plate.	115

6.2	Représentation de l'effet du couplage spatio-temporel $\phi(x, y, \omega) = \alpha(x^2 + y^2)(\omega - \omega_0)$. a) Intensité $I(x, t)$ d'une impulsion dont le spectre en intensité correspond au type de spectre mesuré expérimentalement après élargissement spectral, et dont la phase spectrale représente ce couplage appelé "pulse front curvature". b) Résultat de la propagation de l'impulsion jusque dans le champ lointain : la durée de l'impulsion augmente de 7 fs FWHM dans le champ proche à 21 fs FWHM au foyer.	116
6.3	Montage expérimental pour l'expérience de compression temporelle induite par ionisation.	117
6.4	Exemples d'interférogrammes obtenus pour la mesure d'une haute densité électronique du plasma avec a) l'ancien système d'imagerie dont l'ouverture numérique est inférieure à 0.1, et b) le nouveau système d'imagerie d'ouverture numérique $NA = 0.6$. c) Carte de densité électronique validant le nouveau système d'imagerie pour la mesure de haute densité, ici $n_e \simeq 1.5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$	118
6.5	Auto-compression temporelle de l'impulsion laser. a-b) Traces FROG brutes mesurées avec et sans gaz respectivement. c) Enveloppe temporelle retrouvée par l'algorithme FROG pour l'impulsion initiale (rouge), après auto-compression (bleu) et en limite de transformée de Fourier (pointillés bleus). d) Courbe pleine : amplitude et phase spectrale retrouvée par l'algorithme FROG. courbe pointillée : spectre laser mesuré avec le spectromètre.	119
6.6	Homogénéité spatiale pour 2 positions du plan focal dans le jet de gaz. Image brute dans le champ proche de la distribution laser en intensité : a) à la position 1 $z_{foc} = -50 \mu\text{m}$ par rapport au centre du jet de gaz, b) sans interaction avec gaz et c) à la position 2 $z_{foc} = -150 \mu\text{m}$. Les points rouges représentent les 8 positions auxquelles les mesures spectrales et temporelles ont été faites.	120
6.7	Résultats sur l'homogénéité spectrale. a-b) Spectre laser élargi aux 8 positions le long du champ proche pour les positions 1 (homogène) et 2 (inhomogène). La courbe rouge représente le spectre laser initial. c-d) Tache focale (dans le champ lointain) résolue spectralement.	121
6.8	Etude de l'homogénéité temporelle. a) Exemple de trace FROG obtenue à la position 1, pour laquelle l'élargissement spectral était homogène. b) Evolution de la durée le long de l'impulsion. Durée FWHM retrouvée à partir des mesures FROG en rouge, et durée en limite de transformée de Fourier en rouge. c) Trace FROG obtenue à la position 2. d) Durée FWHM en limite de transformée de Fourier, les traces FROG n'étant pas suffisamment homogènes pour le calcul de la durée avec l'algorithme FROG.	123

6.9	Résultat de simulation PIC illustrant le mécanisme d'auto-compression de l'impulsion par ionisation. En haut est représentée l'enveloppe de l'intensité laser à différents instants au cours de la propagation : a) au centre du jet de gaz, b) en sortie du jet de gaz et c) après propagation en champ proche. En bas : coupe temporelle du profil de l'intensité sur l'axe de propagation. .	125
6.10	Analyse temps-fréquence de l'impulsion laser à différentes positions dans le jet de gaz. a-b) Transformée de Wigner du champ laser sur l'axe respectivement au milieu et en sortie du jet de gaz, permettant de mettre en évidence la position des fréquences au sein de l'impulsion. c-d) Vert : champ laser sur l'axe. Bleu : densité électronique sur l'axe.	126
6.11	Comparaison de l'impulsion provenant de la simulation PIC en bleu avec le champ retrouvé par l'algorithme FROG, en rouge.	127
6.12	Résultats des simulations PIC en champ proche pour les positions 1 et 2, qui correspondent aux 2 positions du plan focal laser dans le jet de gaz pour lesquelles nous avons fait ces mesures.	127
6.13	Intensité et phase spectrale dans le champ lointain pour la simulation à la position 1 ($z_{foc} = -50 \mu\text{m}$).	129
6.14	Résultat d'un modèle permettant de mettre en évidence les couplages spatio-spectraux dus à l'ionisation. a) Carte de la densité électronique due à l'ionisation d'atomes d'azote à la densité $n_{at} = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ par une impulsion laser d'intensité crête $I_L = 10^{17} \text{ W/cm}^2$ et de durée 25 fs. b) Phase accumulée par l'impulsion laser après l'ionisation du gaz sur $100 \mu\text{m}$. c) Intensité spectrale après $100 \mu\text{m}$ de propagation. d) Phase spectrale après $100 \mu\text{m}$ de propagation.	130
6.15	Enveloppes temporelle (a) et spectrale (b) de l'impulsion obtenues après propagation jusqu'en champ proche du spectre et de la phase provenant du modèle pour l'ionisation.	131
6.16	Résultat de la propagation dans le champ lointain de la simulation PIC à la position 1. a) Distribution transverse de l'intensité au foyer. b) Durée FWHM dans la tache focale.	132
7.1	Comparaison de la largeur spectrale pour des impulsions de durée en limite de transformée de Fourier 4 fs en bleu et 25 fs en rouge.	136
7.2	Elargissement spectral causé par l'auto-modulation de phase relativiste. . .	137
7.3	Elargissement spectral causé par l'onde plasma.	138
7.4	Propagation d'une impulsion de durée 5 fs dans un plasma de densité $n/n_c = 5\%$: a-j) Carte de l'intensité laser $ E/E_0 ^2$ à différentes positions lors de la propagation. b-k) Carte de la densité électronique n/n_c montrant les ondes plasmas générées par l'impulsion. c-l) Spectre laser sur l'axe (en bleu) et phase spectrale (en vert). La courbe bleue pointillée représente le spectre laser initial.	140

7.5	Evolution de la durée et du spectre laser lors de la propagation. a) Vert pointillé : profil de la densité électronique. Bleue : évolution de la durée FWHM de l'impulsion en intensité et sur l'axe au cours de la propagation. b) Bleue : fréquence centrale laser sur l'axe. Vert pointillé : largeur spectrale rms de l'impulsion au cours de la propagation.	141
7.6	Courbe bleue : évolution de la position de l'arrière de la première arche de l'onde plasma (Δx) par rapport à l'avant de la fenêtre glissante. Courbe verte pointillée : évolution de la taille longitudinale de la première arche de l'onde plasma (L_{bucket}). Courbe noire pointillée : profil de la densité électronique.	143
7.7	Courbe bleue : évolution du potentiel vecteur normalisé a_0 au cours de la propagation. Courbe verte pointillée : évolution de la charge électronique pour les électrons d'énergie $E > 3$ MeV et situés à moins de $2.5 \mu\text{m}$ de l'axe.	145
7.8	Carte de la densité électronique dans l'espace des phases ($x, p_x/mc$) à 3 positions différentes dans le plasma. Courbe verte : Champ électrique longitudinal sur l'axe associé à l'onde plasma.	146
7.9	a) Distribution en énergie des l'ensemble des électrons à la fin de la première ($x = 125 \mu\text{m}$) et de la seconde ($x = 137 \mu\text{m}$) injection en bleu et vert respectivement. b) Densité électronique des électrons dans l'espace des phases transverses ($p_y/m_e c, p_z/m_e c$), où y correspond à la direction de polarisation du laser.	148
7.10	Evolution du potentiel vecteur normalisé a_0 au cours de la propagation pour différentes valeurs du chirp. Courbe bleue : impulsion non chirpée. Les courbes verte, rouge et violette : impulsions chirpées à 7, 9 et 13.7 fs respectivement. Courbe verte pointillée : profil de la densité électronique.	150
7.11	Représentation du champ laser (gauche), et de l'intensité (droite, bleu) et de la phase spectrale (droite, gauche) à la position où l'intensité laser est maximale, pour les simulations : sans chirp initial (a-b), chirpée positivement à $\tau = 7$ fs (c-d), $\tau = 9$ fs (e-f), et $\tau = 13.7$ fs (g-h).	151
7.12	Evolution de la charge électronique au cours de la propagation de l'impulsion pour les électrons d'énergie $E > 3$ MeV et situés à moins de $2.5 \mu\text{m}$ de l'axe. Courbe bleue : impulsion initialement non chirpée. Courbes verte, rouge et violette : impulsions chirpées à 7, 9 et 13.7 fs respectivement. La courbe noire correspond à une impulsion initialement chirpée négativement à 7 fs.	152
7.13	Distribution électronique dans l'espace des phases en sortie du jet de gaz pour la simulation avec une impulsion initialement chirpée positivement à 9 fs.	153
8.1	a) Ligne de transport pour comprimer le paquet d'électrons à une durée de 2 fs. b) Evolution de la durée rms du paquet d'électrons lors de la propagation à travers la ligne de transport.	160

8.2	a) Distribution transverse du faisceau d'électrons mesurée dans de l'Azote avec un capillaire de diamètre 100 μm . La divergence du faisceau est d'environ 40 mrad FWHM. b) Distribution en énergie des électrons.	161
A.1	Schéma de principe : on souhaite calculer les paramètres P , ρ , T et v en sortie du capillaire.	II

Liste des tableaux

2.1 Paramètres requis de la source d'électrons pour les expériences de diffraction résolue en temps.	28
3.1 Seuil d'ionisation par suppression de barrière	34
4.1 Calcul du taux de fuite	67

Chapitre 1

Introduction

« The thing about quotes on the internet is that you can not confirm their validity »

Abraham Lincoln

Sommaire

1.1 Références 9

L'optique a joué un rôle crucial dans le but de comprendre le monde qui nous entoure, notamment grâce au développement de l'imagerie qui a permis de révéler des phénomènes ou des objets invisibles jusqu'alors. Les premiers télescopes par exemple, construits au tout début du XVII^e siècle par Galilée et Kepler notamment, ont ouvert une fenêtre sur l'immensité de l'univers.

Toujours dans le domaine de l'imagerie, une révolution a eu lieu avec l'invention de la photographie en 1839 par Daguerre. Evidemment, des scientifiques ont bien compris l'intérêt que représentait cette invention. On peut citer les travaux de Etienne-Jules Marey, qui consistaient à mettre en évidence des phénomènes trop rapides pour être perceptibles à l'œil nu. En 1882, il inventa la chronophotographie, qui consiste à exposer une même plaque photosensible plusieurs fois et à intervalles réguliers grâce à un obturateur rotatif. La figure 1.1, une des premières chronophotographies prise en 1894, représente les différentes étapes de la chute d'un chat. Cette image a permis de comprendre comment le chat retombe sur ses pattes alors qu'on le lâche avec un moment angulaire nul. D'une certaine façon, il s'agit d'une des premières expériences opérant en régime stroboscopique. Marey a été un pionnier dans l'analyse du mouvement "résolu en temps".

D'autres scientifiques se sont intéressés au monde de l'infiniment petit en développant les premiers microscopes au début du XVII^e siècle. La microscopie a permis de faire un grand nombre de découvertes, en biologie notamment, comme la mise en évidence de la division cellulaire sur des cellules végétales d'une taille de 100 μm environ par Walther Flemming en 1879. Malgré toutes les améliorations qui ont été réalisées et qui peuvent

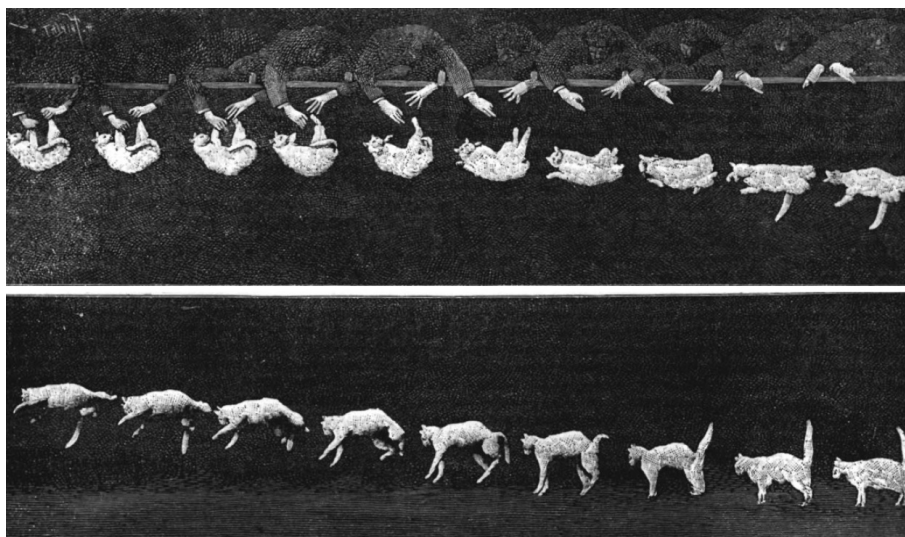


FIGURE 1.1 – Photographie enregistrée en 1894 par Etienne-Jules Marey, permettant de mettre en évidence les différentes étapes de la chute d'un chat. Dans un premier temps le chat se plie sur lui-même de sorte que l'avant et l'arrière du corps tournent autour d'un axe différent. Ensuite, il modifie le moment d'inertie de l'avant puis de l'arrière de son corps en tendant ou en pliant ses pattes. De cette façon, il est capable de tourner dans un premier temps la moitié avant, puis la seconde moitié de son corps.

être apportées, la microscopie optique se heurte inévitablement à une limitation physique : la longueur d'onde. Il est impossible d'observer directement des objets dont la taille est inférieure à quelques centaines de nanomètres ($1 \text{ nm} = 10^{-9} \text{ m}$). L'optique, qui se limitait jusqu'alors au spectre visible, n'a donc pas permis d'expliquer comment la matière est organisée. Toutefois, des techniques de mesures astucieuses permettent d'améliorer la résolution des microscopes. Récemment, la microscopie à fluorescence super résolue a permis d'enregistrer des images de molécules fluorescentes avec une résolution de l'ordre de 20 nm . En se plaçant dans un régime où la fluorescence est faible, des chercheurs ont pu garantir qu'une seule molécule fluoresce par acquisition. L'image obtenue de la fluorescence correspond alors à la réponse impulsionnelle du système de détection. Grâce à une opération de déconvolution, il leur a été possible de repérer la position de la molécule avec une précision de l'ordre de 20 nm . En réalisant un très grand nombre d'acquisitions de sorte que chaque molécule fluoresce sur au moins une des acquisitions, il a été possible d'enregistrer des images, de la division cellulaire par exemple, avec une résolution inégalée. Ces travaux ont été récompensés par le prix Nobel de chimie en 2014.

Toutefois, il est remarquable que l'observation des solides cristallins a abouti dès le XVIII^e siècle à la théorie de la cristallographie. Il a été observé que l'angle entre les faces d'un cristal d'une espèce donnée est toujours le même, et ce même lorsqu'on le casse. Ainsi, il a été proposé qu'un cristal consiste en un petit volume élémentaire se répétant un très grand nombre de fois. Ce n'est qu'en 1913 qu'une preuve expérimentale de l'organisation périodique de la matière dans un cristal a été apportée par la première expérience de diffraction de rayons X. En effet, les rayons X de longueur d'onde $\lambda \sim 0.1 \text{ nm}$

permettent de mesurer indirectement certaines propriétés de la structure cristalline, et ces expériences ont validé cette organisation de la matière au sein des cristaux. La dualité onde-particule énoncée par De Broglie en 1924 suggère qu'à une particule de quantité de mouvement p est associée une onde, de longueur d'onde $\lambda = h/p$ avec h la constante de Planck. Une implication de cette théorie est que les électrons, tout comme les rayons X, peuvent diffracter sur un cristal dès lors que leur quantité de mouvement est suffisamment élevée. Deux expériences indépendantes réalisées par George Thomson à l'université de Aberdeen (Ecosse) et par Davisson et Germer aux Bell Labs en 1929 ont permis de valider l'hypothèse de De Broglie.

De la même façon que la chronophotographie a permis de comprendre des phénomènes à échelle humaine, la "chronodiffraction", appelée diffraction résolue en temps, permet de comprendre comment réagissent les atomes d'un cristal lorsqu'on les soumet à une perturbation. Dans le cas de l'expérience de Marey, qui souhaite résoudre un déplacement de l'ordre de 10 cm lors d'une chute à 1 m/s, une résolution temporelle de 100 ms est suffisante pour mettre en évidence les différentes étapes de la chute du chat. Ainsi, une telle résolution a pu être obtenue en utilisant un obturateur mécanique. Dans la matière condensée, on peut estimer que le temps nécessaire pour qu'une perturbation se propageant à la vitesse du son (~ 10 km/s) parcoure la distance typique d'une liaison ($\sim 1 \text{ \AA} = 0.1 \text{ nm}$) est d'environ 100 fs ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$). Pour pouvoir étudier la réponse ultra-brève de la matière, il a fallu être capable de l'exciter en un laps de temps plus court que le temps caractéristique de propagation de la perturbation. Le développement des laser femtosecondes dans les années 1980 a abouti à la génération d'impulsions ultra-courtes grâce au *mode-locking* dans les cavités laser [1], et ultra-intenses suite aux travaux de Mourou [2]. Ces avancées ont permis de "pomper" la matière en un temps très court (environ 25 fs), initiant une modification de la configuration du cristal ou un changement de phase. Les modifications photoinduites peuvent être mesurées grâce à une impulsion "sonde", qui peut être une impulsion X ou un paquet d'électrons, qui doit évidemment être plus courte que le temps caractéristique du phénomène étudié.

Dans la prochaine section, nous discuterons des avantages et des inconvénients des électrons par rapport aux rayons X. Dans la dernière section, nous présenterons brièvement l'état de l'art des sources conventionnelles d'électrons ainsi que les avantages qu'offrent potentiellement les sources laser-plasma.

Diffraction d'électrons et diffraction des rayons X

Une différence fondamentale entre la diffraction d'électrons et la diffraction X s'opère dans le processus de diffusion par un atome. Pour les rayons X, l'électrodynamique classique permet d'expliquer la diffusion en considérant un électron élastiquement lié à son atome : le champ électrique décale les électrons liés à l'atome de leur position d'équilibre de sorte qu'une force de rappel se met en place. En oscillant, l'électron émet une

onde, c'est l'onde diffusée. La diffraction X s'effectue donc uniquement par les électrons de l'atome.

La diffusion des électrons est due au potentiel coulombien que subit l'électron incident lorsqu'il pénètre dans le nuage atomique, et elle est principalement causée par l'effet du noyau atomique écranté par les électrons les plus proches. Le mécanisme en jeu est plus avantageux pour les expériences de diffraction d'électrons, dont la section efficace de diffusion est $10^4 - 10^6$ fois plus grande que celle des rayons X. De plus, dans le cas d'échantillons biologiques, la probabilité que la diffusion soit élastique (sans transfert d'énergie avec l'atome diffusant) plutôt qu'inélastique (avec transfert d'énergie) est 3 fois plus grande pour des électrons d'énergie 80 – 500 keV comparés à des rayons X d'énergie 8 keV (ce qui correspond aux énergies que l'on arrive facilement à produire avec ce type de sources). L'énergie déposée par collisions inélastiques est alors 1000 fois plus importante dans le cas de la diffusion X [3]. Par conséquent, l'éclairement d'une source d'électrons peut être significativement plus faible pour obtenir une image de diffraction de même qualité et, comme les électrons déposent moins d'énergie, le risque d'endommager l'échantillon est plus faible. Enfin, la longueur d'onde de ces sources est également très différente. L'énergie E des X est reliée à la longueur d'onde λ par la relation avec $E = hc/\lambda$, avec h la constante de planck, c la vitesse de la lumière dans le vide, et e la charge de l'électron. Ainsi, les X d'énergie quelques keV ont une longueur d'onde de l'ordre de l'Angström ($1\text{\AA} = 0.1\text{ nm}$), alors que pour des électrons d'énergie environ 100 keV elle est de l'ordre du picomètre. Nous justifierons que de nombreux pics de Bragg sont visibles dans les expériences de diffraction d'électrons, alors qu'on ne peut observer qu'un seul pic à la fois pour la diffraction X.

Les sources X les plus performantes à ce jour sont les laser à électrons libres, qui nécessitent de larges installations (plusieurs km d'accélération linéaire pour les électrons) et génèrent des impulsions d'éclairement très élevé et de durée sub-100 fs [4]. Des impulsions X de durée 100 fs peuvent également être générées grâce à la technique du *slicing* dans les synchrotrons. Le *slicing* consiste à moduler, au sein même d'un onduleur, un paquet d'électrons de durée plusieurs dizaines de picosecondes dans une impulsion laser intense copropagative de durée environ 100 fs. Le champ laser va ainsi créer une structure de période $\lambda_{\text{Laser}} \sim 800\text{ nm}$ à l'intérieur du paquet d'électrons. Lorsque la période d'oscillation de l'onduleur est résonnante avec la période laser, une impulsion X intense peut être générée, de même durée que l'impulsion laser [5]. Cependant, ce type de sources demande aussi de larges installations, avec un temps d'accès restreint pour réaliser des expériences. Une autre source, plus compacte, est basée sur la génération d'impulsions X sur cible solide. En focalisant une impulsion laser ultra-courte et intense sur une cible solide, un plasma chaud est créé à la surface, et des électrons rapides sont accélérés par absorption résonnante à la densité critique. Une partie de ces derniers se propagent ballistiquement dans la cible, où ils perdent leur énergie en ionisant directement en couche interne les atomes. Lorsque les électrons des couches supérieures comblent cette lacune, un rayonnement de fluorescence X est émis, appelé rayonnement K_α . La durée du rayon-

nement $X-K_\alpha$ dépend alors de la durée de l'impulsion laser, ainsi que du temps nécessaire pour que les électrons rapides perdent leur énergie dans le solide. Ce rayonnement peut être très court, des impulsions X quasi-monochromatique à $\lambda \sim 0.5 \text{ nm}$ (2.5 keV) et de durée environ 100 fs ont été produites [6, 7]. La radiance de ce type de sources n'est pas très élevée car le rayonnement X est émis dans un angle solide important, mais elles peuvent fonctionner à un taux de répétition élevé.

Concernant les sources d'électrons, il est assez simple d'accélérer des électrons à des énergies de l'ordre de 50 – 100 keV avec un champ électrique statique. La durée de la source est alors principalement limitée par la charge d'espace à quelques centaines de femtosecondes : les électrons, chargés négativement, se repoussent augmentant la durée du paquet.

Les sources d'électrons présentent de nombreux avantages pour les expériences de diffraction ultra-rapide, comme la compacité de la source ou la possibilité d'enregistrer des images comportant de nombreux pics de diffraction, la principal difficulté étant de générer des paquets d'électrons de durée sub-100 fs.

Sources pour la diffraction ultra-rapide d'électrons

Sources d'électrons conventionnelles

Les canons à électrons constituent les sources dites conventionnelles pour les expériences de diffraction d'électrons résolue en temps. Ils sont formés d'une photocathode sur laquelle des électrons sont arrachés par effet photo-électrique avec un laser, puis sont accélérés par un champ électrique. Des paquets d'électrons de durée de plusieurs centaines de femtosecondes et d'énergie $E \leq 100 \text{ keV}$ peuvent être accélérés par un champ statique [8], et ce type d'accélérateurs a été utilisé pour des expériences de diffraction ultra-rapide d'électrons avec beaucoup de succès [9, 10]. Lorsque les électrons naissent au repos sur la photo-cathode, la charge d'espace et une faible dispersion initiale en énergie font exploser le paquet d'électrons qui devient, après accélération, beaucoup plus long que la durée de l'impulsion laser excitatrice [8]. L'utilisation de cavités radio-fréquence a permis de comprimer des paquets jusqu'à une durée d'environ 100 fs en y injectant les électrons de sorte que l'arrière du paquet subisse un champ accélérateur plus fort que l'avant [11]. L'utilisation de champs radio-fréquence permet également d'atteindre des valeurs crêtes du champ plus élevées qu'avec un champ statique, et ainsi d'accélérer des électrons à plus haute énergie. De plus, lorsque les électrons deviennent relativistes, *i.e.* lorsqu'ils atteignent une vitesse proche de la vitesse de la lumière, l'effet de la charge d'espace s'atténue et il devient possible de conserver la durée du faisceau lors de la propagation. Des paquets d'électrons d'énergie $E_{e^-} \sim 5 \text{ MeV}$ et de durée 100 fs ont été obtenus, et quelques expériences de diffraction ont été réalisées à ces énergies [12, 13].

Toutefois, les cavités radiofréquence souffrent de problème de *jitter* : d'un tir à l'autre les paquets d'électrons se déphasent légèrement dans le champ radio-fréquence. Ce dé-

phasage se traduit par une incertitude sur le moment d'arrivée des paquets sur l'échantillon, diminuant la résolution temporelle lorsqu'on intègre le signal sur un grand nombre de paquets d'électrons. Le jitter limite la résolution temporelle dans les expériences de diffraction d'électrons à la centaine de femtosecondes environ.

Accélérateurs laser-plasma

Le principe des accélérateurs laser plasma a été proposé en 1979 par Tajima et Dawson, qui ont montré comment un champ laser transverse ultra-intense peut générer un champ électrique longitudinal lorsqu'il se propage dans un plasma sous-dense [14]. La structure accélératrice générée dans le sillage de l'impulsion est appelée onde plasma. Les premières expériences ont été réalisées avec des impulsions laser longues, de durée plusieurs centaines de femtosecondes, voir picosecondes. Les ondes plasma étaient alors excitées par auto-modulation de l'enveloppe laser, et la durée des paquets d'électrons était sensiblement la même que la durée de l'impulsion laser. De plus, les électrons interagissent avec le champ laser, ce qui contribue à augmenter leur dispersion en énergie. Les spectres en énergie mesurés dans ce régime suivent alors une distribution Maxwellienne [15, 16]. Par la suite, les progrès laser ont donné accès à des impulsions énergétiques (Joule) et ultra-courtes (30 – 40 fs). Dans un premier temps, ces impulsions étaient focalisées très fortement dans un plasma de densité élevée ($> 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) afin de générer des ondes plasma les plus intenses possibles, et les ondes plasma étaient encore excitées par auto-modulation de l'enveloppe laser. Les électrons étaient alors accélérés sur des distances courtes et se déphasaient rapidement avec les ondes plasma, générant des spectres toujours Maxwelliens [17]. En 2004, des progrès significatifs ont été réalisés en focalisant modérément les impulsions laser dans des plasmas de plus faible densité ($\sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$). Dans ce régime, le laser est guidé sur une longue distance par auto-focalisation dans le plasma, et des faisceaux d'électrons monoénergétiques à 180 MeV environ ont été créés en laboratoire [18, 19, 20].

L'intérêt majeur de ce type d'accélérateurs porte sur la durée des paquets d'électrons produits. Les électrons sont accélérés dans une onde plasma, une structure à l'intérieur de laquelle les champs électriques sont extrêmement élevés (environ 100 GV/m), et le paquet d'électrons reste confiné dans une zone de longueur typiquement inférieure à 10 – 20 μm . Dans [21], Lundh *et al.* ont mesuré des paquets d'électrons d'énergie 100 MeV et de durées inférieures à 2 fs.

Ainsi, les accélérateurs laser-plasma sont particulièrement intéressants pour les expériences de diffraction résolue en temps car ils peuvent générer des paquets d'électrons particulièrement courts. Toutefois, il faut que l'énergie des électrons soit inférieure à 5 – 10 MeV pour qu'une application à la diffraction soit envisageable. Le travail que j'ai réalisé lors de ma thèse a consisté à développer un accélérateur laser-plasma à haut taux de répétition fournissant des paquets d'électrons d'énergie inférieure à 5 MeV pour des expériences de diffraction résolue en temps.

Plan de la thèse

- Dans le premier chapitre, nous présenterons les bases de la théorie de la diffraction. Nous aborderons également la notion de qualité de faisceaux pour les expériences de diffraction d'électrons, et enfin nous établirons un cahier des charges pour spécifier les paramètres requis de la source.
- Le second chapitre traitera de la théorie de l'accélération laser-plasma. Nous présenterons notamment deux mécanismes permettant d'injecter des électrons dans la structure accélératrice : l'injection dans un gradient de densité que nous avons mis en oeuvre au laboratoire, et l'auto-injection dans le régime de la bulle. Des lois d'échelle ont été établies dans le régime de la bulle, permettant d'estimer les paramètres laser et plasma requis pour accélérer les électrons à une énergie donnée [22, 23]. Grâce à ces lois d'échelle, nous montrerons que des impulsions laser de 5 mJ et 5 fs sont nécessaires pour générer des paquets ultra-courts d'électrons d'énergie 5 MeV dans ce régime.
- Les résultats de l'expérience d'accélération d'électrons que nous avons réalisée au laboratoire avec un laser délivrant des impulsions de 3 mJ et 20 fs seront présentés dans le chapitre 3. Avec l'appui de simulations numériques, nous avons mis en évidence l'effet du front d'onde laser dans un accélérateur laser-plasma à haut taux de répétition. La source que nous avons développée accélère des faisceaux d'électrons dont le spectre présente une distribution Maxwellienne, s'étalant jusqu'à 100 keV.
- En collaboration avec le *Center for Ultrafast Optical Science*, nous avons réalisé les premières expériences de diffraction d'électrons (statique et résolue en temps) avec la source laser-plasma de l'Université du Michigan générant des paquets d'électrons à 100 keV. Nous montrerons dans le chapitre 4 que les images de diffraction obtenues avec cette source sont de bonne qualité. Dans un second temps, nous exposerons les résultats d'une expérience lors de laquelle nous avons mesuré une dynamique de temps caractéristique 3 ps.
- Afin de réaliser des expériences de diffraction d'électrons avec une résolution sub-100 fs, il sera nécessaire de générer des électrons relativistes d'énergie environ 5 MeV. Dans le chapitre 4, nous détaillerons les résultats d'une expérience de post compression d'impulsions laser 4 mJ et 25 fs se propageant librement dans un plasma. Nous avons montré qu'il est possible d'auto-comprimer l'impulsion dans le plasma, et nous avons mesuré une durée de 10 fs homogène dans le champ proche. Toutefois, une étude fine à l'aide de simulations numériques a mis en évidence un couplage spatio-temporel en phase qui dégrade la qualité de l'impulsion lorsqu'on la focalise.
- Le dernier chapitre porte sur des simulations numériques que nous avons réalisés afin d'étudier l'accélération d'électrons dans un plasma sous-dense avec une impulsion laser de 5 mJ et 5 fs. Ce régime d'interaction est particulier car le spectre laser est extrêmement large : de 400 à 1000 nm environ. L'injection des électrons

se produit alors en 2 étapes : (i) le déferlement dans le régime de la bulle accélère un premier paquet d'électrons, puis (ii) des effets non-linéaires ainsi que la dispersion modifient fortement le spectre laser, provoquant un ralentissement brutal des ondes plasma qui s'accompagne d'une seconde injection. Les électrons accélérés par le second mécanisme atteignent une énergie finale de 5 MeV et pourraient être utilisés pour des expériences de diffraction d'électrons.

- Pour finir, nous concluons sur les progrès qui ont été réalisés ces dernières années sur le développement d'une source laser-plasma pour les expériences de diffraction ultra-rapide d'électrons. Nous aborderons également les perspectives à plus ou moins long terme, qui devraient placer les sources laser-plasma comme celles permettant d'étudier les phénomènes les plus courts avec une résolution inégalée.

1.1 Références

- [1] J. A. Valdmanis, R. L. Fork, and J. P. Gordon. Generation of optical pulses as short as 27 femtoseconds directly from a laser balancing self phase modulation, group velocity dispersion, saturable absorption, and saturable gain. *Opt. Lett.*, 10(3) :131–133, Mar 1985. [4](#)
- [2] D. Strickland et al. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 56(3) :219–221, 1985. [4](#)
- [3] Wayne E. King, Geoffrey H. Campbell, Alan Frank, Bryan Reed, John F. Schmerge, Bradley J. Siwick, Brent C. Stuart, and Peter M. Weber. Ultrafast electron microscopy in materials science, biology, and chemistry. *Journal of Applied Physics*, 97(11), 2005. [5](#)
- [4] Brian WJ McNeil and Neil R Thompson. X-ray free-electron lasers. *Nature photonics*, 4(12) :814–821, 2010. [5](#)
- [5] RW Schoenlein, S Chattopadhyay, HHW Chong, TE Glover, PA Heimann, CV Shank, AA Zholents, and MS Zolotarev. Generation of femtosecond pulses of synchrotron radiation. *Science*, 287(5461) :2237–2240, 2000. [5](#)
- [6] Margaret M Murnane, Henry C Kapteyn, et al. Ultrafast x-ray pulses from laser-produced plasmas. *Science*, 251(4993) :531, 1991. [6](#)
- [7] Christian Rischel, Antoine Rousse, Ingo Uschmann, Pierre-Antoine Albouy, Jean-Paul Geindre, Patrick Audebert, Jean-Claude Gauthier, Eckhart Fröster, Jean-Louis Martin, and Andre Antonetti. Femtosecond time-resolved x-ray diffraction from laser-heated organic films. *Nature*, 390(6659) :490–492, 1997. [6](#)

- [8] Germán Sciaini and R J Dwayne Miller. Femtosecond electron diffraction : heralding the era of atomically resolved dynamics. *Reports on Progress in Physics*, 74(9) :096101, 2011. [6](#)
- [9] B. J. Siwick et al. An atomic-level view of melting using femtosecond electron diffraction. *Science*, 302(5649) :1382–1385, 2003. [6](#)
- [10] M. Harb et al. Excitation of longitudinal and transverse coherent acoustic phonons in nanometer free-standing films of (001) si. *Physical Review B*, 79, 2009. [6](#)
- [11] T. van Oudheusden, E. F. de Jong, S. B. van der Geer, W. P. E. M. Op 't Root, O. J. Luiten, and B. J. Siwick. Electron source concept for single-shot sub-100 fs electron diffraction in the 100 kev range. *Journal of Applied Physics*, 102(9), 2007. [6](#)
- [12] J. B. Hastings, F. M. Rudakov, D. H. Dowell, J. F. Schmerge, J. D. Cardoza, J. M. Castro, S. M. Gierman, H. Loos, and P. M. Weber. Ultrafast time-resolved electron diffraction with megavolt electron beams. *Applied Physics Letters*, 89(18), 2006. [6](#)
- [13] P. Musumeci, J. T. Moody, C. M. Scoby, M. S. Gutierrez, and M. Westfall. Laser-induced melting of a single crystal gold sample by time-resolved ultrafast relativistic electron diffraction. *Applied Physics Letters*, 97(6), 2010. [6](#)
- [14] J. M. Dawson T. Tajima. Laser electron accelerator. *Physical Review Letters*, 43(4) :267–270, 1979. [7](#)
- [15] A. Modena, A.E. Dangor, Z. Najmudin, C.E. Clayton, K. Marsh, C. Joshi, V. Malka, C.B. Darrow, D. Neely, and F.N. Walsh. Electron acceleration from the breaking of electron plasma waves. *Nature*, 377 :606–608, 1995. [7](#)
- [16] D. Gordon, K. C. Tzeng, C. E. Clayton, A. E. Dangor, V. Malka, K. A. Marsh, A. Modena, W. B. Mori, P. Muggli, Z. Najmudin, D. Neely, C. Danson, and C. Joshi. Observation of electron energies beyond the linear dephasing limit from a laser-excited relativistic plasma wave. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :2133–2136, Mar 1998. [7](#)
- [17] V. Malka, J. Faure, J. R. Marquès, F. Amiranoff, J. P. Rousseau, S. Ranc, J. P. Chambaret, Z. Najmudin, B. Walton, P. Mora, and A. Solodov. Characterization of electron beams produced by ultrashort (30 fs) laser pulses. *Physics of Plasmas*, 8(6) :2605–2608, 2001. [7](#)
- [18] S. P. D. Mangles et al. Monoenergetic beams of relativistic electrons from intense laser-plasma interactions. *Nature*, 431 :535–538, 2004. [7](#)
- [19] C. G. R. Geddes et al. High-quality electron beams from a laser wakefield accelerator using plasma-channel guiding. *Nature*, 431 :538–541, 2004. [7](#)
- [20] J. Faure et al. A laser-plasma accelerator producing monoenergetic electron beams. *Nature*, 431 :541–544, 2004. [7](#)

- [21] O. Lundh et al. Few femtosecond, few kiloampere electron bunch produced by a laser-plasma accelerator. *Nature Physics*, 7 :219–222, 2011. [7](#)
- [22] W. Lu et al. A nonlinear theory for multidimensional relativistic plasma wave wake-fields a). *Physics of Plasmas*, 13, 2006. [8](#)
- [23] W. Lu et al. Generating multi-gev electron bunches using single stage laser wake-field acceleration in a 3d nonlinear regime. *PHYSICAL REVIEW SPECIAL TOPICS - ACCELERATORS AND BEAMS*, 10, 2007. [8](#)

Chapitre 2

Théorie de la diffraction d'électrons

« AAA »

BBB

Sommaire

2.1 Introduction	12
2.2 Formule de Bragg : approche intuitive de la diffraction	14
2.3 Diffusion d'une onde sur un atome	15
2.4 Définition de la structure cristalline	18
2.5 Diffraction dans l'espace réel	19
2.6 Diffraction dans l'espace réciproque	19
2.6.1 Construction de la sphère d'Ewald	22
2.7 Caractéristiques de la source idéale pour la diffraction ultra-rapide d'électrons	23
2.7.1 Energie du faisceau d'électrons	23
2.7.2 Emittance et longueur de cohérence	25
2.7.3 Choix du type de source	27
2.8 Conclusion	28
2.9 Références	28

2.1 Introduction

Le phénomène de diffraction a été mis en évidence en 1665 par Grimaldi, qui observa la lumière du soleil entrant dans une chambre noire à travers un trou. Il fit alors deux observations. D'une part la lumière ne suivit pas le comportement prédit par l'optique géométrique, et d'autre part la tache qu'il observa contenait des raies colorées. Il mit ainsi en évidence le caractère ondulatoire de la lumière. De manière plus générale la diffraction est un phénomène caractéristique qui se produit lorsque une onde rencontre un objet de taille comparable à sa longueur d'onde. Cela est vrai dans le cadre de l'expérience

précédente, dans laquelle Grimaldi a observé la diffraction de la lumière par un trou de taille micrométrique, mais cela est également vrai pour des ondes mécaniques comme par exemple des vagues se propageant à la surface de la mer. Le phénomène de diffraction pour une onde mécanique et pour une onde électro-magnétique est représenté sur la figure 2.1.

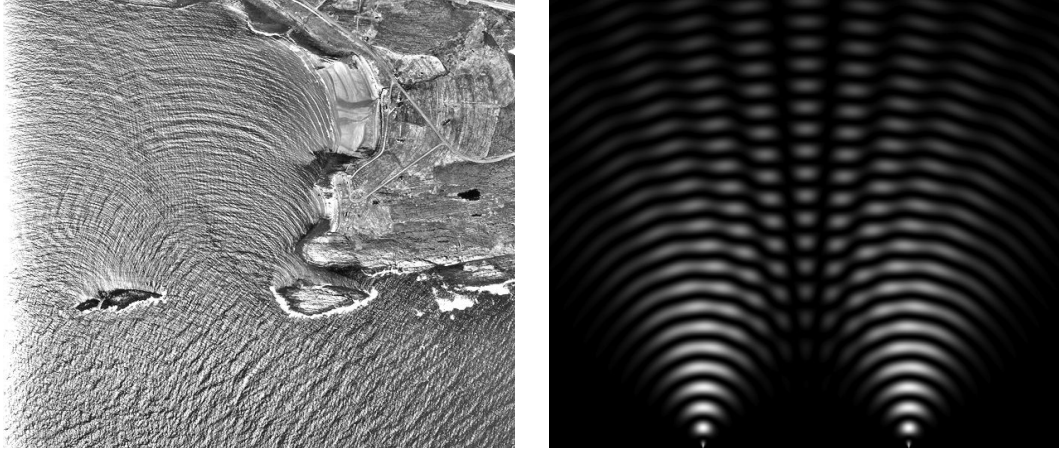


FIGURE 2.1 – Exemples de diffraction d'une onde. A gauche : diffraction d'une onde mécanique, une vague, par les 2 rochers au centre de l'image. A droite : diffraction d'une onde lumineuse, expérience des trous d'Young. Images prises sur internet.

La diffraction d'une onde électromagnétique par les atomes constituant un matériau est également possible, mais il a fallu attendre plus de 200 ans avant que l'on sache produire des rayons X, une onde électromagnétique dont la longueur d'onde de l'ordre de l'Angström ($1\text{\AA} = 10^{-10}\text{ m}$) est comparable à la distance inter-atomique, ce qui rend possible la diffraction sur un cristal. En 1913, les Bragg, père et fils, ont utilisé une source de rayons X et ont montré qu'il est possible de retrouver des informations sur un matériau à partir de son image de diffraction. Ils ont alors analysé la structure cristalline du NaCl [1] et ont reçu le prix Nobel de Physique en 1915 pour leurs travaux portant sur "l'analyse de la structure cristalline au moyen des rayons X".

En parallèle des travaux sur la caractérisation des cristaux, De Broglie proposa en 1924 la théorie de la dualité onde-particule. L'hypothèse de De Broglie affirme qu'à des particules de quantité de mouvement p est associé un paquet d'onde de longueur d'onde centrale λ_{Broglie} . Nous allons principalement nous intéresser au cas d'électrons dont la vitesse est proche de la vitesse de la lumière, pour lesquels il faut apporter une correction relativiste à la longueur d'onde :

$$\lambda_{\text{Broglie}} = \frac{h}{p} = \frac{h}{\gamma m_e v} = \frac{h}{\sqrt{2m_e e E_c} \sqrt{1 + \frac{e E_c}{2m_e c^2}}} \quad (2.1)$$

ou $\gamma = 1/\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}$ est le facteur de Lorentz associé à une particule de masse m_e et de vitesse v . La longueur d'onde d'un électron peut aussi être exprimée en fonction de sa masse m_e et de son énergie cinétique E_c . La longueur d'onde associée à un électron de 10 keV vaut

$\lambda_{\text{Broglie}} = 12.3 \text{ pm}$, ce qui justifie que les électrons sont adaptés pour des expériences de diffraction sur des cristaux. On utilisera généralement le facteur de Lorentz γ (sans unité) pour parler de l'énergie $E = E_m + E_c$ (exprimée en électron-volt) des électrons relativistes, où $E_m = m_e c^2$ est l'énergie de masse et $E_c = (\gamma - 1) m_e c^2$ l'énergie cinétique. Il n'a fallu attendre que 3 ans pour que la théorie proposée par De Broglie soit validée par la première expérience de diffraction d'électrons sur un échantillon de nickel monocristallin par Davisson et Germer.

Ainsi, la théorie de la diffraction que nous allons présenter par la suite est valable pour la diffraction des rayons X comme pour la diffraction d'électrons. Ce chapitre est organisé de la façon suivante :

- Nous aborderons dans un premier temps la démarche proposée par Bragg dans laquelle la diffraction est vue comme la réflexion d'une onde sur des plans atomiques. Cette approche intuitive permet de comprendre simplement les figures de diffraction obtenues sur des cristaux par exemple, mais elle ne permet pas de saisir toutes les subtilités de la diffraction.
- Nous étudierons alors la contribution de chaque atome constituant un cristal. Nous verrons comment, en considérant que la diffraction est due aux interférences constructives des ondes diffusées par les atomes constituant le cristal, il est possible de calculer l'amplitude et la phase de l'onde diffractée.
- Nous terminerons ce chapitre en introduisant les concepts de qualité de faisceau pour les expériences de diffraction ultra-rapide d'électrons. Nous établirons un cahier des charges qui nous servira tout au long de ce manuscrit afin de juger de la qualité de la source que nous nous attelons à construire.

2.2 Formule de Bragg : approche intuitive de la diffraction

Nous allons dans un premier temps adopter la démarche proposée par Bragg pour expliquer la diffraction d'une onde par un cristal. Un schéma de principe est représenté sur la figure 2.2. Dans un cristal, la position des atomes se répète périodiquement, et on peut alors définir des plans auxquels appartiennent un grand nombre d'atomes et qui sont séparés d'une distance d avec leurs voisins.

A partir de ce schéma on peut établir la formule de Bragg, indiquant que l'onde diffractée à un angle θ avec le cristal sera intense si la contribution de chaque plan est en phase avec la contribution des autres plans [2] :

$$2d \sin \theta_B = m\lambda \quad (2.2)$$

où θ_B est l'angle de Bragg, et le terme de gauche correspond au déphasage entre les ondes diffractées par les 2 plans de la figure 2.2. Ces ondes interfèrent constructivement si ce déphasage est proportionnel à la longueur d'onde λ de l'onde incidente, m est donc un entier indiquant l'ordre de diffraction. Une représentation, sous forme vectorielle, peut

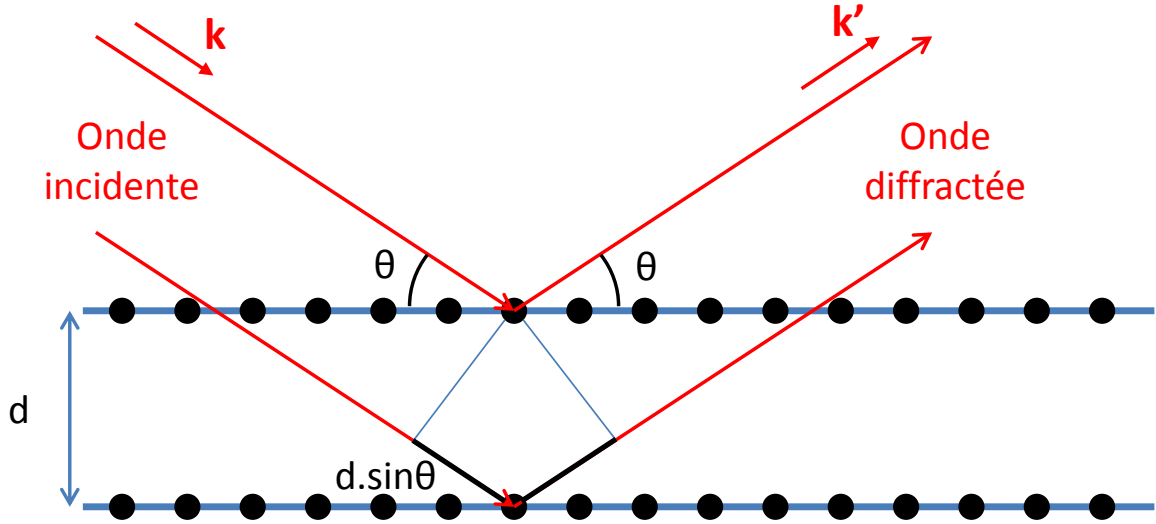


FIGURE 2.2 – Schéma d'une onde diffusée par des atomes appartenant à 2 plans séparés d'une distance d .

être tirée de cette loi pour la diffraction. On note $\mathbf{k}$ et $\mathbf{k}'$ les vecteurs d'onde pour l'onde incidente et pour l'onde diffractée. On peut alors montrer que la formule de Bragg 2.21 est équivalente à :

$$\mathbf{k}' - \mathbf{k} = \frac{2\pi m}{d} \mathbf{n} \quad (2.3)$$

où $\mathbf{n}$ correspond au vecteur unitaire normal aux plans de diffraction. Nous verrons par la suite que le vecteur diffraction $\Delta \mathbf{K} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$ est important pour expliquer la diffraction, et les formules 2.2 et 2.3 permettent d'établir la condition suivante pour la diffraction :

$$\Delta \mathbf{K} = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta \quad (2.4)$$

Cette approche est intéressante car elle explique simplement les angles auxquels les ondes diffractées par les plans atomiques interfèrent constructivement. Toutefois, il manque des informations comme par exemple l'intensité des ondes diffractées, et il faut étudier la contribution de chacun des atomes pour expliquer complètement la diffraction.

2.3 Diffusion d'une onde sur un atome

Dans cette section, nous allons traiter de la diffusion dans le cadre de l'approximation de Born. Ainsi, on considère que l'onde incidente n'est pas absorbée, donc dans le cadre de la diffusion élastique, et qu'elle n'est diffusée qu'une seule fois par le cristal. On se place ainsi dans un régime où la diffusion est faible. La conservation de l'énergie se traduit par la conservation de la norme des vecteurs d'onde incident et diffusé : $|\mathbf{k}| = |\mathbf{k}'|$.

On considère une onde $\psi(\mathbf{r}, t)$ de vecteur d'onde $\mathbf{k}$ et de fréquence ω diffusée par un atome. On définit l'amplitude de l'onde plane incidente :

$$\psi_i(\mathbf{r}, t) = \psi_0 e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})} \quad (2.5)$$

La géométrie du problème est posée sur la figure 2.7 : on note $\mathbf{r}_j$ la position de l'atome j par rapport à l'origine O qui est un atome quelconque du cristal. La phase de l'onde incidente au niveau de l'atome vaut donc $\phi_i(\mathbf{r}_j) = -\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j$.

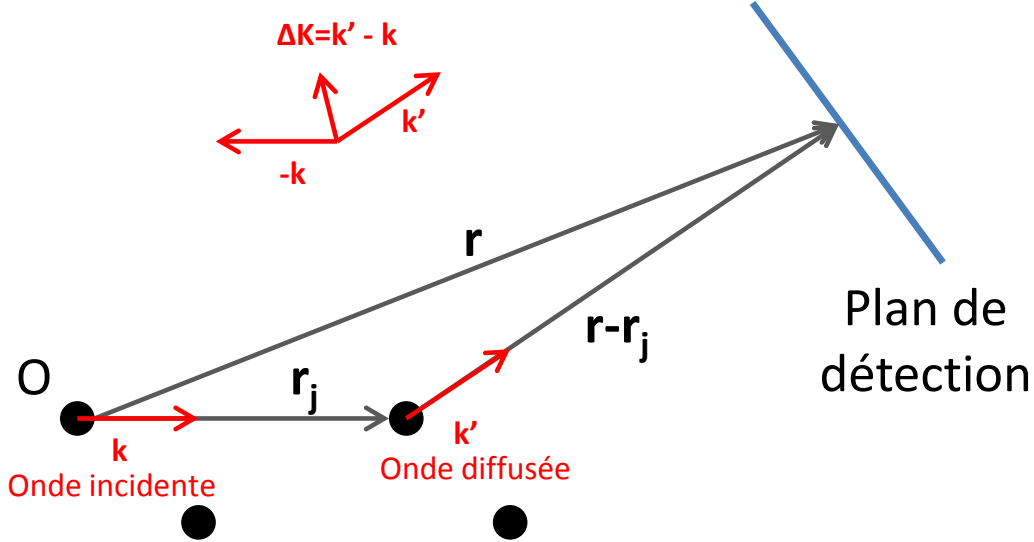


FIGURE 2.3 – Vecteurs d'onde et vecteurs de position pour la diffusion sur un atome.

La phase en $\mathbf{r}$ où on observe l'onde diffusée par l'atome j vaut $\phi_d(\mathbf{r} - \mathbf{r}_j) = -\mathbf{k}' \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_j)$. On considère que la taille du cristal est très petite par rapport à la distance avec le détecteur, c'est-à-dire que $|\mathbf{r}| \gg |\mathbf{r}_j|$. En notant $f_j(\Delta\mathbf{K})$ le facteur de diffusion atomique qui caractérise la capacité de l'atome j à diffuser une onde, l'amplitude de l'onde diffusée au niveau du plan de détection s'écrit :

$$\psi_d(\mathbf{r}_j, t) = \psi_0 f_j(\Delta\mathbf{K}) e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j)} e^{-i\mathbf{k}' \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_j)} \quad (2.6)$$

$$= \psi_0 f_j(\Delta\mathbf{K}) e^{i(\omega t - \mathbf{k}' \cdot \mathbf{r})} e^{i\Delta\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_j} \quad (2.7)$$

où $\Delta\mathbf{K} = \mathbf{k}' - \mathbf{k}$ est le vecteur de diffraction. Le facteur de diffusion atomique est propre à une espèce atomique, et on pourra le considérer indépendant de la variable j dès lors que le cristal n'est composé que d'une seule espèce atomique.

Dans le cadre du modèle de Thomas-Fermi, on définit R le rayon de Bohr effectif de l'atome $R = a_0 Z^{-1/3}$, avec $a_0 = \epsilon_0 \hbar^2 / \pi m_e c^2$ le rayon de Bohr. Le facteur de diffusion atomique peut être relié au potentiel Coulombien vu par un électron passant à une distance r de l'atome diffusant de numéro atomique Z écranté par le nuage électronique :

$$V(r) = -\frac{e^2 Z}{4\pi\epsilon_0 r} e^{-r/R} \quad (2.8)$$

Dans le cadre de la première approximation de Born, le facteur de diffusion atomique vaut [3] :

$$f(\Delta\mathbf{K}) = -\frac{\gamma m_e}{2\pi\hbar^2} \int V(\mathbf{r}') \exp(2i\pi\Delta\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}') d^3 r' \quad (2.9)$$

que l'on peut écrire, en tenant compte de l'écriture du potentiel Coulombien de la formule 2.8, et de $\int \frac{\exp(-r/R)}{r} \exp(-i\Delta\mathbf{K}\cdot\mathbf{r}) d^3r = \frac{4\pi}{1/R^2 + \Delta K^2}$:

$$f(\Delta K) = \frac{2Za_0}{\Delta K^2 a_0^2 + Z^{2/3}} \quad (2.10)$$

La formule 2.10 indique que les atomes dont le numéro atomique Z est grand produiront des pics de diffraction intenses. On voit aussi que l'intensité des pics de diffraction est d'autant plus grande que l'angle de diffraction est petit.

On peut montrer que ce facteur s'écrit de la façon suivante : $|f(\Delta\mathbf{K})|^2 = d\sigma/d\Omega$ [3]. Le facteur de diffusion atomique correspond ainsi à la surface $d\sigma$ que présente l'atome pour diffuser l'onde incidente dans un angle solide $d\Omega$. La section efficace totale est donnée par l'intégrale suivante :

$$\sigma_t = 2\pi \int_0^\pi \frac{d\sigma}{d\Omega} \sin\theta d\theta \quad (2.11)$$

Le calcul de la section efficace permet de calculer le libre parcours moyen L_m dans un matériau, qui correspond à la distance moyenne entre 2 diffusions successives. On définit la distance L_m telle qu'il n'y ait qu'un seul atome diffusant dans le volume de diffusion $V = L_m\sigma = 1/\rho$, où ρ est la densité en atome/m³. On peut donc exprimer le libre parcours moyen en fonction de la section efficace et de la densité :

$$L_m = \frac{1}{\sigma\rho} \quad (2.12)$$

Dans [4], l'auteur propose une résolution numérique de l'équation 2.11 pour différents matériaux dans le cadre de l'approximation de Born et en considérant que la diffusion est élastique. On représente sur la figure 2.4 l'évolution du libre parcours moyen en fonction de l'énergie pour des électrons diffusés sur un cristal d'or solide, dont la densité vaut $\rho_{Au} = 5.9 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$.

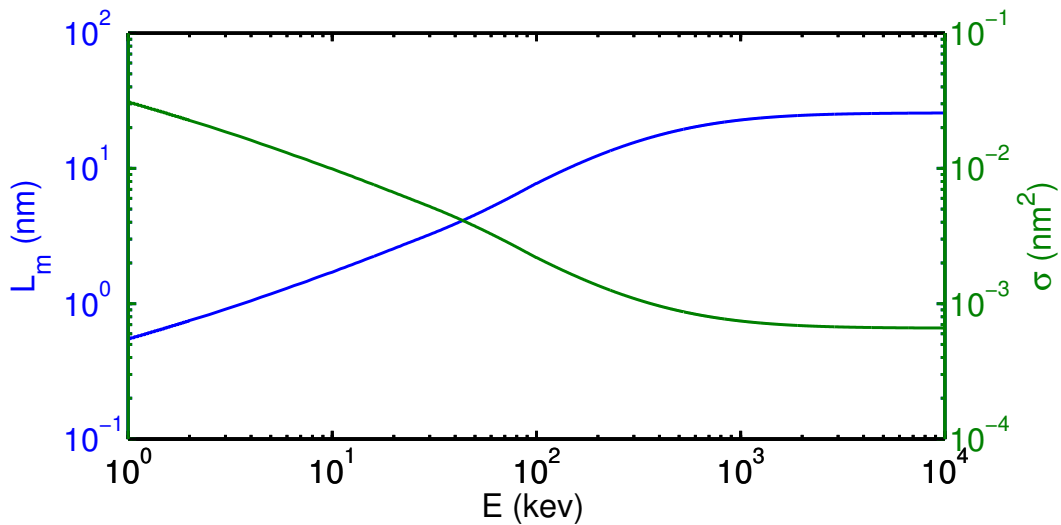


FIGURE 2.4 – Libre parcours moyen et section efficace de diffusion en fonction de l'énergie cinétique pour la diffraction d'électrons sur l'or solide.

Le libre parcours moyen définit l'épaisseur maximale que peut avoir un cristal pour que l'onde incidente ne soit diffusée qu'une seule fois lorsqu'elle le traverse. On voit sur la figure 2.4 que le libre parcours moyen augmente avec l'énergie, puis devient constant à $L_m = 26 \text{ nm}$ au delà de 1 MeV dans l'or. Le libre parcours moyen étant petit, il sera nécessaire d'utiliser des échantillons très fins pour les expériences de diffraction. Aussi, la section efficace de diffusion devient constante pour $E > 1 \text{ MeV}$, et elle est $10^4 - 10^5$ fois plus grande que pour la diffraction des rayons X. Ainsi, on peut travailler à haute énergie $E > 1 \text{ MeV}$, de sorte que la section efficace soit assez élevée et constante.

2.4 Définition de la structure cristalline

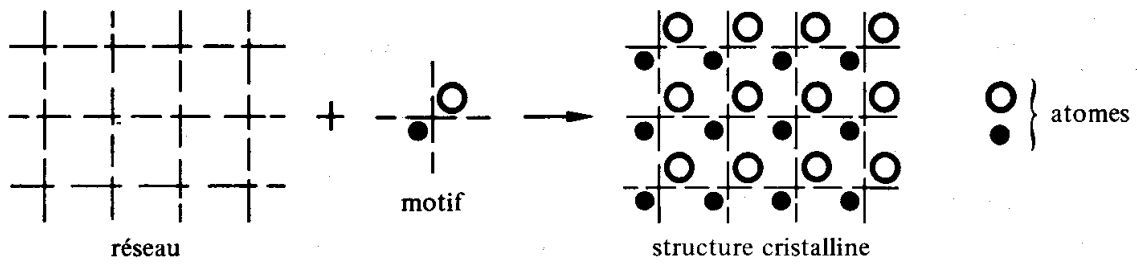


FIGURE 2.5 – Construction d'un cristal par convolution du réseau de Bravais par un motif. (image provenant d'internet)

Les cristaux sont des matériaux dans lesquels les atomes sont rangés périodiquement, ce sont donc des matériaux anisotropes. La périodicité du milieu permet de définir mathématiquement le cristal. On définit une origine O dans le cristal, à partir de laquelle on peut construire un réseau grâce aux translations décrites par le vecteur :

$$\mathbf{r}_l = m\mathbf{a}_x + n\mathbf{a}_y + o\mathbf{a}_z \quad (2.13)$$

où $m, n, o \in \mathbb{Z}$. L'ensemble de ces points (appelés noeuds) forment le réseau cristallin, ou réseau de Bravais.

On associe maintenant à chacun des noeuds du réseau de Bravais un motif, qui définit l'emplacement dans la maille élémentaire des atomes par rapport au noeud considéré. Le vecteur $\mathbf{r}_j$ ci-dessous permet de pointer les atomes d'un motif :

$$\mathbf{r}_j = u\mathbf{a}_x + v\mathbf{a}_y + w\mathbf{a}_z \quad (2.14)$$

avec $u, v, w \in \mathbb{R}$.

La construction d'un cristal 2D à partir du réseau de Bravais et du motif défini précédemment est représentée sur la figure 2.5. Les noeuds du réseau de Bravais sont donc virtuels, alors que le motif donne la position physique des atomes dans le cristal. Nous allons nous servir de cette représentation de la structure cristalline pour calculer l'amplitude et la phase des ondes diffusées par chaque atome.

2.5 Diffraction dans l'espace réel

Nous allons maintenant étudier les interférences des ondes diffusées par chaque atome du cristal. Nous avons vu que le vecteur $\mathbf{r}_l + \mathbf{r}_j$ donne la position du j-ième atome du motif associé au l-ième noeud du réseau de Bravais.

Si l'on prend en compte la contribution des m noeuds du réseau de Bravais, on peut montrer que l'onde diffractée par le cristal atteignant le détecteur s'écrit [3] :

$$\Psi_{d,\text{réseau}} = \Psi_0 e^{i(\omega t - \mathbf{k}' \cdot \mathbf{r})} f_j \sum_{l=1}^m e^{i\Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_l} \quad (2.15)$$

L'équation 2.15 fait intervenir le facteur de forme F :

$$F = \sum_{l=1}^m e^{i\Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_l} \quad (2.16)$$

Si l'on somme l'amplitude des ondes diffusées par les n atomes constituant un motif, l'amplitude de l'onde dans le plan de détection s'écrit :

$$\Psi_{d,\text{cristal}} = \Psi_0 e^{i(\omega t - \mathbf{k}' \cdot \mathbf{r})} F \sum_{j=1}^n f_j e^{i\Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_j} \quad (2.17)$$

où on reconnaît le facteur de structure S :

$$S = \sum_{j=1}^n f_j e^{i\Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_j} \quad (2.18)$$

La formule 2.17 donne l'amplitude et la phase de l'onde diffusée par le cristal. Le facteur de forme et le facteur de structure contiennent la physique qui nous intéresse, bien que ce ne soit pas évident à voir dans l'espace réel.

2.6 Diffraction dans l'espace réciproque

On va dans un premier temps s'intéresser au facteur de forme 2.16. La somme sur le très grand nombre de noeuds du réseau m est à priori nulle, à moins que le vecteur diffraction ne vérifie la condition :

$$\forall \mathbf{r}_l \in \text{réseau}, e^{i\Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{r}_l} = 1 \quad (2.19)$$

Avec $\mathbf{r}_l = m\mathbf{a}_x + n\mathbf{a}_y + o\mathbf{a}_z$ où m, n, o $\in \mathbb{Z}$. On définit alors une nouvelle base $(\mathbf{a}_x^*, \mathbf{a}_y^*, \mathbf{a}_z^*)$ dans laquelle le vecteur diffraction s'écrit $\Delta \mathbf{K} = h\mathbf{a}_x^* + k\mathbf{a}_y^* + l\mathbf{a}_z^*$. On peut alors montrer que dans la base $(\mathbf{a}_x^*, \mathbf{a}_y^*, \mathbf{a}_z^*)$, définie telle que $\mathbf{a}_f \cdot \mathbf{a}_g^* = 2\pi\delta_{fg}$ (avec (f,h) = (x,y,z) et δ_{fg} le symbole de Kronecker), la condition 2.19 est remplie pour h, k, l $\in \mathbb{Z}$. L'espace décrit par la base $(\mathbf{a}_x^*, \mathbf{a}_y^*, \mathbf{a}_z^*)$ est appelé le réseau réciproque, tel que

$$\mathbf{a}_x^* = 2\pi \frac{\mathbf{a}_y \wedge \mathbf{a}_z}{\mathbf{a}_x \cdot (\mathbf{a}_y \wedge \mathbf{a}_z)} \quad (2.20)$$

où a_y^* et a_z^* sont définis par permutation circulaire des indices x, y et z.

Ce critère définit la condition de Von Laue : il y a diffraction si $\Delta\mathbf{K}$ est un vecteur du réseau réciproque. Les conditions de Bragg et de Von Laue décrivent la même physique, mais la condition de Bragg est traduite dans l'espace réel alors que la condition de Von Laue donne un critère dans l'espace réciproque. Les indices de Miller (hkl) entiers tels que $\Delta\mathbf{K} = h\mathbf{a}_x^* + k\mathbf{a}_y^* + l\mathbf{a}_z^*$ font le lien entre les espaces réel et réciproque. On définit les plans atomiques séparés d'une distance d_{hkl} comme pour la figure 2.2. Pour un plan qui coupe les axes x, y et z en x/h , y/k et z/l respectivement, on appelle par convention ce plan (hkl). On attribue la valeur 0 à un indice ainsi défini lorsque le plan ne coupe jamais l'axe en question. On peut voir sur la figure 2.6 les plans définis par les indices de Miller (100), (110) et (111).

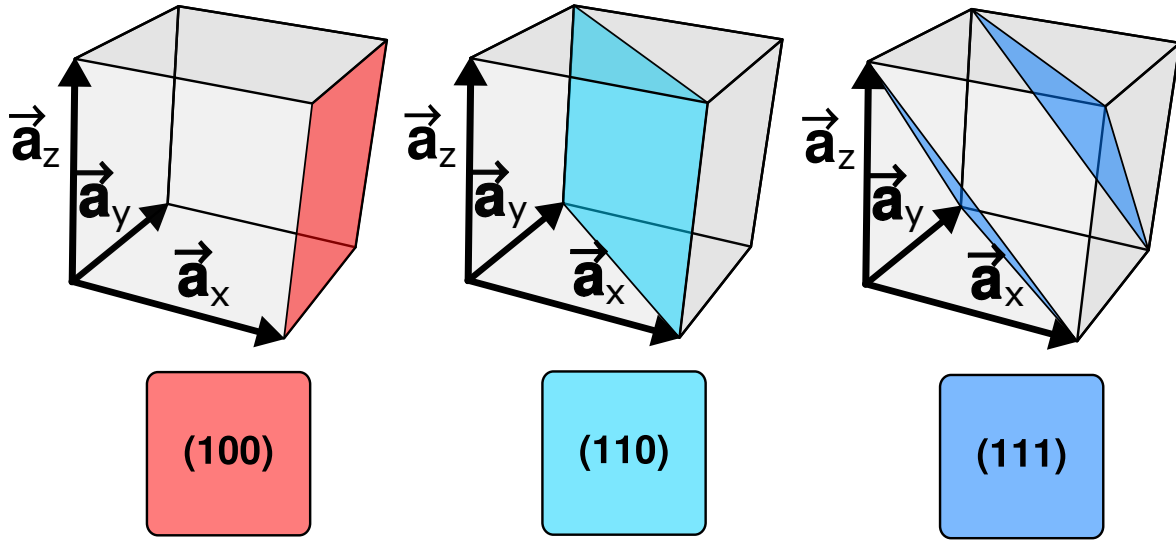


FIGURE 2.6 – Exemples de mailles et de plans définis par les indice de Miller. (image adaptée de Wikipedia)

On peut alors montrer que la formule de Bragg peut s'écrire de la façon suivante :

$$\sin \theta_B = \frac{\lambda}{2d_{hkl}} \quad (2.21)$$

Le calcul du facteur de forme nous apporte une information supplémentaire. Comme il y a un nombre fini de noeuds dans le cristal, le facteur de forme ne tombe pas immédiatement à 0 dès que la condition de Von Laue n'est pas vérifiée. Cet effet est comparable à la largeur des raies en fonction du nombre de traits éclairés par un faisceau optique dans le cas de la diffraction sur un réseau optique. Si on note N_x , N_y et N_z le nombre de noeuds dans les trois directions de la base (a_x , a_y , a_z), on peut écrire l'équation 2.16 sous la forme suivante :

$$|F| = \frac{\sin(\frac{1}{2}N_x\Delta\mathbf{K}\cdot\mathbf{a}_x)}{\sin(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{K}\cdot\mathbf{a}_x)} \cdot \frac{\sin(\frac{1}{2}N_y\Delta\mathbf{K}\cdot\mathbf{a}_y)}{\sin(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{K}\cdot\mathbf{a}_y)} \cdot \frac{\sin(\frac{1}{2}N_z\Delta\mathbf{K}\cdot\mathbf{a}_z)}{\sin(\frac{1}{2}\Delta\mathbf{K}\cdot\mathbf{a}_z)} \quad (2.22)$$

Ainsi, le facteur de forme donne la largeur des pics de diffraction. Un pic de diffraction sera d'autant plus étroit qu'il y a un grand nombre de mailles sur lesquelles l'onde inci-

dente est diffusée.

On va maintenant s'intéresser au facteur de structure défini par l'équation 2.18. La somme dans le facteur de structure porte sur l'ensemble des atomes constituant un motif, donnant l'intensité des pics de diffraction pour tous les triplets (h,k,l) entiers. Pour cela, on considère un type de cristal en particulier afin de définir l'organisation des atomes dans le cristal.

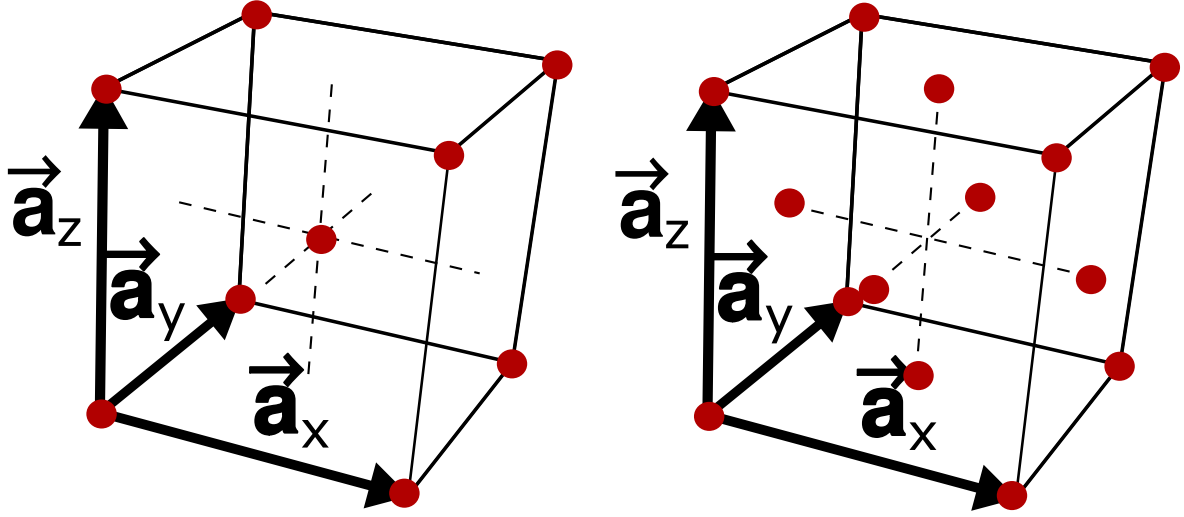


FIGURE 2.7 – Représentation d'un réseau cubique centré à gauche et cubique à faces centrées à droite. Les points rouges désignent la position des atomes dans le réseau.

On représente sur la figure 2.7 deux exemples de réseaux cristallins. Dans le cas simple du réseau cubique centré (figure de gauche), il y a 2 atomes par maille, dont les positions dans la base $(\mathbf{a}_x, \mathbf{a}_y, \mathbf{a}_z)$ sont $(0, 0, 0)$ et $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$. Bien que l'on puisse voir davantage d'atomes sur la figure 2.7, tous les autres atomes sont décrits par translation de ces deux atomes avec un vecteur $\mathbf{r}_1 = m\mathbf{a}_x + n\mathbf{a}_y + o\mathbf{a}_z$ où $m, n, o \in \mathbb{Z}$. Si on suppose que le cristal n'est constitué que d'une seule espèce atomique, et donc que $f_j = f$, le facteur de structure vaut :

$$S_{cc} = f \left(1 + e^{i\pi(h+k+l)} \right) = \begin{cases} 2f & \text{si } h+k+l \text{ est pair} \\ 0 & \text{si } h+k+l \text{ est impair} \end{cases} \quad (2.23)$$

Dans le cas particulier de la structure cubique centrée, les pics de diffraction ne sont donc visibles que pour les plans (hkl) dont la somme des indices est paire.

On a représenté sur la figure 2.7 à droite la structure cubique à faces centrées. Cette structure est intéressante car elle correspond à la structure cristalline de l'or, que nous étudierons dans le chapitre 5. Les atomes sont situés en $(0, 0, 0)$, $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0)$, $(0, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$, et $(\frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2})$ dans un motif. Pour ce type de cristaux, le facteur de structure vaut :

$$S_{fcc} = f \left(1 + (-1)^{h+k} + (-1)^{k+l} + (-1)^{h+l} \right) = \begin{cases} 4f & \text{si } h, k \text{ et } l \text{ sont tous pairs ou tous impairs} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.24)$$

Ainsi, le facteur de forme donne l'ensemble des angles possibles pour lesquels les interférences sont constructives, ainsi que la largeur des pics de diffraction. Le facteur de structure apporte des conditions supplémentaires pour l'existence ou non des pics de diffraction, et il donne également l'intensité relative des pics.

2.6.1 Construction de la sphère d'Ewald

Nous disposons maintenant des éléments permettant d'aborder la diffraction de façon schématique grâce à la construction de la sphère d'Ewald. Pour des questions de lisibilité, nous allons projeter la sphère d'Ewald sur un espace en 2D mais la construction peut être facilement extrapolée pour une représentation 3D. On considère donc un cristal dont l'ensemble des pics de diffraction possibles est donné par le facteur de structure 2.18. L'ensemble des indices de Miller 2D (h, k) satisfaisant la condition de Laue est représenté dans l'espace réciproque par un point bleu sur la figure 2.8. Ces points sont élargis car le facteur de forme nous dit que pour un cristal "réel", de dimension finie donc, le pic de diffraction aura une largeur donnée. De plus, pour des expériences de diffraction en transmission, nous avons vu qu'il est nécessaire que l'échantillon ait une épaisseur de l'ordre de la dizaine de nanomètres seulement pour que l'onde ne soit diffusée qu'une seule fois dans le cristal. Il y a donc un nombre de noeuds assez faible selon cette direction, et par conséquent, d'après la formule 2.22 le pic de diffraction sera large selon cette direction. Enfin, l'intensité relative des pics est donnée par le facteur de diffusion atomique 2.10 : l'intensité est proportionnelle à $\frac{1}{Z^{2/3} + (\Delta K a_0)^2}$.

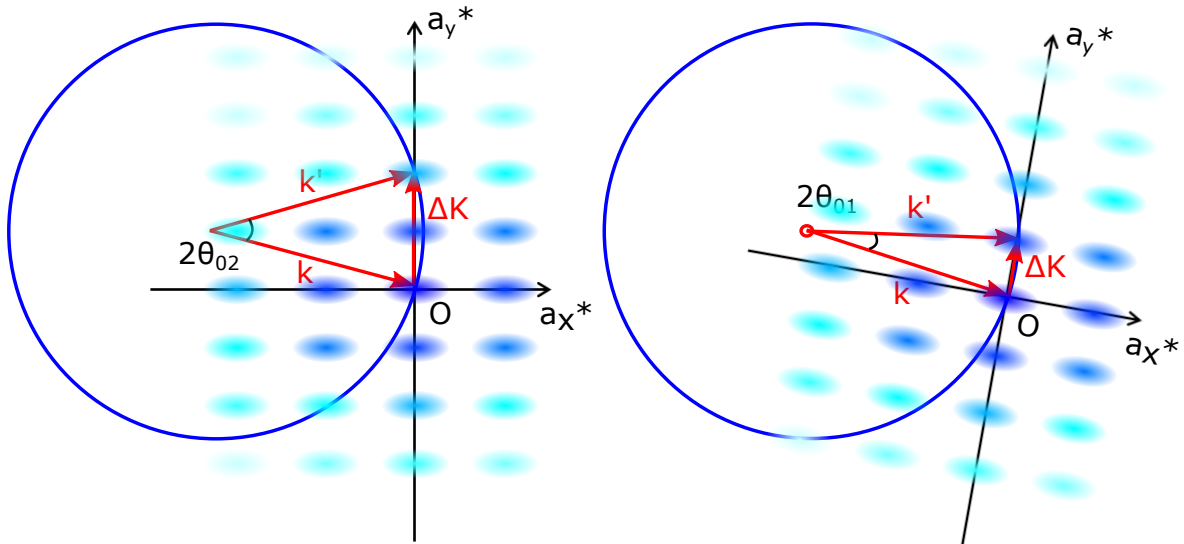


FIGURE 2.8 – Représentation de la sphère d'Ewald pour 2 angles de Bragg différents. En pratique, il est plus commode de tourner le cristal plutôt que de changer l'angle du faisceau incident. À gauche, l'angle optimise la diffraction sur le pic d'indice $(h,k) = (0,2)$, et à droite sur le pic $(h,k) = (0,1)$.

La figure 2.8 représente la sphère d'Ewald (cercle bleu) de rayon $|\mathbf{k}|$ tel que $\mathbf{k}$ pointe l'origine de la sphère. D'après la condition de Von Laue, la diffraction sur un plan (hk)

est possible lorsque $\Delta\mathbf{K} = h\mathbf{a}_x^* + k\mathbf{a}_y^*$ est un vecteur du réseau réciproque, il n'y a donc qu'une seule sphère passant par l'origine et par la coordonnée (h,k) , et dont le rayon vaut $|\mathbf{k}|$. On a représenté sur cette figure la direction de $\mathbf{k}'$ par rapport au cristal qui optimise la diffraction sur le pic $(h,k) = (0,2)$ à gauche, et sur le pic $(h,k) = (0,1)$ à droite. Les pics d'ordres élevés sont diffractés avec un angle par rapport au faisceau incident plus grand, et l'intensité de ces pics est plus faible que celle des pics d'ordre plus faible.

Note : Lorsque $|\mathbf{k}| \gg |\Delta\mathbf{K}|$, la sphère d'Ewald est autour de l'origine et au premier ordre un plan de normal $\mathbf{k}$. Ainsi, un grand nombre de pics sont quasiment à l'angle de Bragg, et plusieurs pics de diffraction sont généralement visibles sur les images de diffraction. De plus, les électrons utilisés pour les expériences de diffraction ont une longueur d'onde $\lambda_e \leq 1$ pm, alors que les rayons X ont une longueur d'onde de l'ordre de $\lambda_X \sim 1$ Å, et ainsi $k_e/k_X \sim 100$. Un avantage de la diffraction des électrons sur la diffraction X est donc qu'elle permet de mesurer un plus grand nombre de pics de diffraction sur une même image.

2.7 Caractéristiques de la source idéale pour la diffraction ultra-rapide d'électrons

Dans cette section, nous allons établir les caractéristiques que doit avoir la source d'électrons. On cherche à construire une source ayant les propriétés suivantes :

- taux de répétition élevé, typiquement supérieur à 100 Hz, car ce type d'expérience nécessite d'accumuler un grand nombre de données afin de les moyenner, et ainsi d'augmenter le rapport signal sur bruit.
- durée du paquet d'électrons de l'ordre de la dizaine de femtosecondes au niveau de l'échantillon afin de concurrencer les sources conventionnelles.
- encombrement raisonnable de l'expérience, c'est-à-dire que le montage ne doit pas dépasser quelques mètres.
- la figure de diffraction mesurée doit être de bonne qualité : pics de diffractions fins et bien séparés les uns des autres.

2.7.1 Energie du faisceau d'électrons

La propriété la plus importante que l'on souhaite conserver est la durée du faisceau d'électrons.

- Considérations sur la durée du paquet d'électrons :

Il y a 2 effets qui vont principalement affecter la durée du paquet lors de la propagation : la dispersion en énergie et la charge d'espace. Tout d'abord, on considère une source d'électrons se propageant selon l'axe z , de vitesse v_z telle que $v_z \gg v_x, v_y$, de durée initiale t_0 , et qui présente une dispersion en énergie dE/E . Comme le paquet est constitué

de particules se propageant à des vitesses différentes, sa durée, après une distance de propagation L , vaut $t_{z=L} = t_0 + dt$ tel que :

$$dt = \frac{L}{v_z} \frac{\delta E}{E} \frac{m_e^2 c^4}{(E + m_e c^2)(E + 2m_e c^2)} \quad (2.25)$$

Dans le cas d'électrons non-relativistes, leur énergie cinétique est négligeable devant l'énergie de masse. On peut alors simplifier cette formule :

$$dt = \frac{L}{v_z} \frac{\delta E}{2E} \quad (2.26)$$

Pour des électrons relativistes, leur vitesse vaut alors $v_z \simeq c$, et on utilise le facteur de Lorentz γ plutôt que l'énergie E . Ainsi, la dispersion en énergie s'écrit $d\gamma/\gamma$, et leur énergie cinétique est supérieure à l'énergie de masse :

$$dt = \frac{L}{c} \frac{d\gamma}{\gamma} \frac{1}{\gamma^2} \quad (2.27)$$

Pour un paquet d'électrons de dispersion en énergie $d\gamma/\gamma = 1\%$, la durée du paquet d'électrons après 1 m de propagation augmente de $dt = 33 \text{ ps}/\gamma^2$. Cette considération simple nous montre qu'il faut accélérer les électrons à des énergies élevées afin de conserver la durée initiale du paquet, depuis la source jusqu'au cristal. De plus, la charge d'espace, qui est la force caractérisant la répulsion coulombienne des électrons composant le paquet, évolue en $F \propto 1/\gamma^3$ [5]. Cette force nous indique également qu'il est préférable d'utiliser un faisceau d'électrons énergétiques $\gamma \gg 1$ afin de préserver les propriétés spatiales et temporelles du faisceau.

Une dispersion en énergie a également un effet sur la figure de diffraction. En effet, pour de petits angles de diffraction θ_B la condition de Bragg s'écrit $\theta_B \simeq \lambda/2d$, et par conséquent une dispersion en longueur d'onde provoque un étalement angulaire $\Delta\theta_B$ du pic de diffraction :

$$\Delta\theta_B = \theta_B \frac{\Delta\lambda}{\lambda} \quad (2.28)$$

Les pics de diffraction ayant une certaine largeur naturelle, une dispersion en longueur d'onde $\Delta\lambda/\lambda < 1\%$ permet d'avoir des pics bien définis. Toutefois, nous verrons au chapitre 5 une technique permettant de profiter d'une forte dispersion en énergie pour des expériences de diffraction d'électrons résolues en temps.

- Considérations pratiques sur les cristaux pour la diffraction :

La figure 2.4 indique qu'il faut travailler avec des énergies $E > 1 \text{ MeV}$ pour que le libre parcours moyen L_m des électrons dans le cristal soit le plus grand possible. Un cristal d'épaisseur 20 nm est constitué d'environ 50 plans atomiques seulement. Cela est un problème que l'on a pour les expériences de diffraction d'électrons en général : il n'est pas simple de produire des cristaux aussi fins.

- Conclusion sur l'énergie du paquet d'électrons :

Un faisceau d'énergie $E \simeq 5 \text{ MeV}$ semble être l'énergie maximale permettant d'avoir une expérience de taille raisonnable. En effet, d'après la formule de Bragg à 5 MeV, il faut typiquement 4 mètres de propagation pour séparer le premier ordre de diffraction de l'ordre 0 de 1 mm environ. De plus, la formule 2.26 indique que même à 5 MeV il sera compliqué de conserver la durée du paquet d'électrons. Il faudra certainement utiliser des éléments magnétiques afin de compenser la dispersion, et ainsi comprimer le paquet d'électrons au niveau de l'échantillon [6].

2.7.2 Emittance et longueur de cohérence

Nous allons maintenant nous intéresser à la qualité de la figure de diffraction. Nous avons étudié la diffraction d'une onde plane sur un cristal, mais les paquets d'électrons dans les expériences ne sont pas des ondes planes.

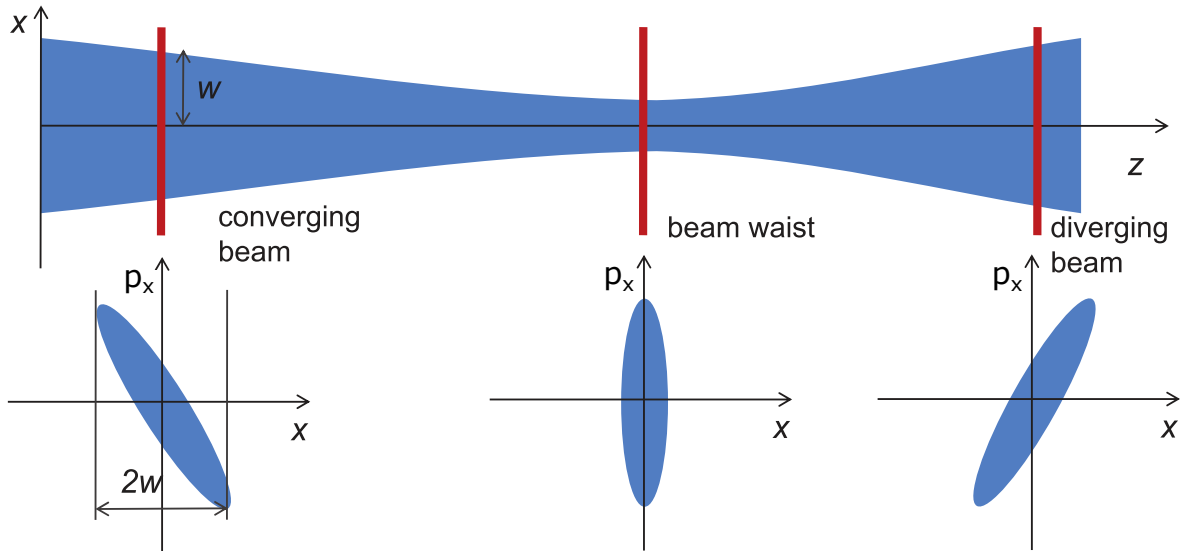


FIGURE 2.9 – Evolution de l'espace (x, p_x) au cours de la propagation d'un faisceau. L'émittance transverse du faisceau est conservée tout au long de la propagation.

Un faisceau réel caractérisé par son waist et par sa divergence est représenté sur la figure 2.9. Le concept d'émittance permet de quantifier la qualité du faisceau. L'émittance transverse normalisée d'un faisceau à une position z , centré en $\langle x \rangle = 0$, de largeur $\langle x^2 \rangle$ et de quantité de mouvement p_x selon cette direction est définie comme :

$$\epsilon_{n,x} [\text{mm.mrad}] = \frac{1}{mc} \sqrt{\langle x^2 \rangle \langle p_x^2 \rangle - \langle x p_x \rangle} \quad (2.29)$$

où $\langle . \rangle$ correspond à la moyenne sur la distribution. Au niveau du waist les corrélations angles - positions disparaissent et $\langle x p_x \rangle = 0$. On peut définir $\sigma_\theta = \sigma_{p_x} / p_z$ comme la divergence non corrélée de la source. La divergence non corrélée de la source apparaît sur la figure 2.9 au waist dans l'espace (x, p_x) : l'ensemble de la collection des p_x y est superposée en $x = 0$. Si on regarde cette distribution de part et d'autre du waist, à chaque position

x est associé un sous-ensemble de quantité de mouvement p_x plus restreint. Ainsi, l'émittance se réduit à $\epsilon_{n,x} = \frac{1}{mc} \sqrt{\langle x^2 \rangle \langle p_x^2 \rangle} = \frac{1}{mc} \sigma_x \sigma_{p_x}$. L'intérêt de cette grandeur est qu'elle se conserve dans l'espace (x, p_x) lors de la propagation de l'impulsion selon z . L'émittance est beaucoup utilisée en physique des particules car elle traduit la qualité spatiale d'un faisceau.

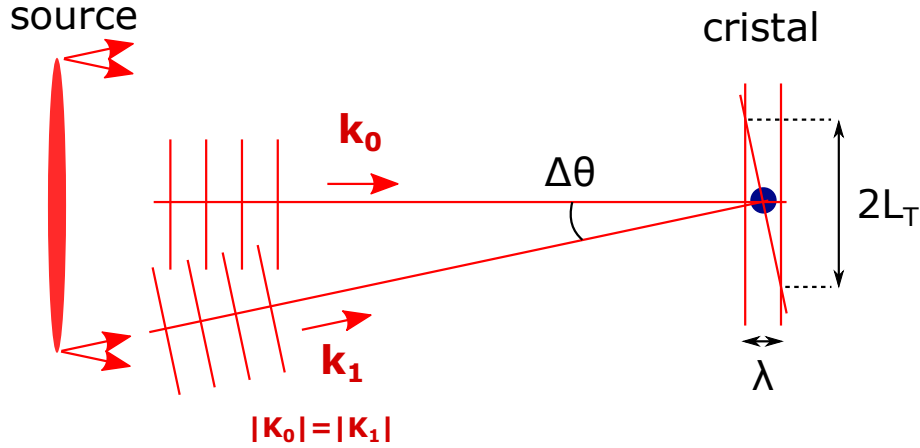


FIGURE 2.10 – Mise en évidence de la longueur de cohérence transverse L_T caractérisant la distance sur laquelle les ondes diffusées sont en phase pour 2 sources séparées angulairement de $\Delta\theta$.

Un faisceau réel d'émittance non nulle présente alors une largeur angulaire non corrélée $\Delta\theta$: on peut considérer que chaque point le long de la source se comporte comme un point source émettant dans un cône d'angle $\Delta\theta$. On peut raisonner sur 2 ondes planes séparées angulairement de $\Delta\theta$, dont la phase accumulée lors de la propagation entre la source et le cristal sera différente comme représenté sur la figure 2.10. On définit la longueur de cohérence transverse L_T comme la distance pour laquelle les fronts d'onde provenant des deux sources sont déphasés de moins de $\Delta\phi = 2\pi$. Ainsi, cette grandeur permet de caractériser la distance transverse sur laquelle les ondes diffusées par les atomes du cristal sont en phase. En supposant que la divergence de la source est faible ($\Delta\theta \ll 1$), on a $L_T \simeq \lambda / \Delta\theta$.

Par analogie avec le degré de cohérence transverse d'une source optique spatialement étendue, on peut écrire la longueur de cohérence transverse d'un faisceau d'électrons faiblement divergent en fonction de sa longueur d'onde λ et de sa divergence rms σ_θ de la façon suivante [7] :

$$L_T = \frac{\lambda}{2\pi\sigma_\theta} \quad (2.30)$$

Toujours en supposant que le faisceau d'électrons est faiblement divergent, on peut écrire $p_x \simeq \theta_x p_z$, et donc $\sigma_{p_x} \simeq \sigma_{\theta_x} p_z$ où σ_{θ_x} traduit la largeur angulaire non corrélée de la source. On peut donc modifier l'équation 2.29 pour aboutir à $\epsilon_{n,x} = \frac{1}{mc} \sigma_x \sigma_{p_x} = \frac{p_z}{mc} \sigma_x \sigma_{\theta_x}$

Il est alors possible de relier la longueur de cohérence transverse à l'émittance du fais-

ceau :

$$L_T = \frac{\lambda}{2\pi\sigma_\theta} = \frac{\hbar}{m_e c} \frac{\sigma_x}{\epsilon_{n,x}} = \frac{\hbar}{\sigma_{p_x}} \quad (2.31)$$

La longueur de cohérence est d'autant plus grande que la longueur d'onde est grande, et donc, dans les cas des électrons, qu'ils sont faiblement énergétiques. Aussi, il faut que la longueur de cohérence soit plus grande que la distance d_{hkl} entre les plans atomiques d'indices de Miller (hkl) pour que les atomes constituant ces plans puissent interférer constructivement, et donc pour qu'un pic de diffraction soit visible.

On souhaite typiquement que $L_T > 1$ nm pour que la figure de diffraction soit de bonne qualité. Pour un faisceau d'électrons à 5 MeV, la longueur d'onde des électrons vaut $\lambda = 0.23$ pm et il faut donc que $\sigma_\theta < 36$ μ rad. Lors des expériences, nous avons mesuré une taille transverse de la source d'électrons sur l'échantillon de $\sigma_x = 100$ μ m environ (voir le chapitre 5). Il faudrait donc que l'émittance transverse normalisée de la source soit de $\epsilon_{n,x} = 4 \times 10^{-2}$ mm.mrad pour que les images de diffraction soient de bonne qualité.

2.7.3 Choix du type de source

Les 2 technologies permettant potentiellement de fournir des paquets d'électrons de cette qualité sont (i) les canons à électrons couplés à une cavité radio-fréquence et (ii) les accélérateurs laser-plasma. Nous allons présenter les avantages et inconvénients de ces sources.

- Canon à électrons :

Bien que les cavités radio-fréquence permettent de comprimer les paquets d'électrons à des durées de l'ordre de la centaine de femtosecondes, il est compliqué de contrôler précisément la phase à laquelle les électrons sont injectés dans le champ pulsé. Chaque paquet d'électrons voit alors, en moyenne, un champ plus ou moins fort ce qui se traduit par un décalage du temps d'arrivée des paquets sur l'échantillon. Il a récemment été montré que ce problème de stabilité de la phase (appelé *jitter*) limite la résolution temporelle à plusieurs centaines de femtosecondes pour des expériences de diffraction d'électrons résolues en temps [8, 9]. Il est donc compliqué de répondre au cahier des charges que l'on a établi précédemment avec ce type de sources, et il faut se tourner vers une autre technologie.

- Accélérateur laser-plasma :

Il a déjà été montré que ce type d'accélérateur permet de produire des paquets d'électrons de durée d'environ 2 fs, a priori sans aucun jitter car le paquet d'électrons est parfaitement synchronisé avec la source laser [10]. Nous verrons dans le chapitre suivant qu'il est possible d'accélérer des faisceaux d'électrons à ~ 5 MeV dans un plasma avec des impulsions laser de durée ~ 5 fs et d'énergie ~ 5 mJ, et il a été démontré en 2014 que ce type d'impulsions laser pouvait être produit au kHz [11]. Bien qu'une expérience d'accélération laser-plasma d'électrons à 5 MeV n'a toujours pas été réalisée à ce jour avec ce type d'accélérateur, les expériences qui ont été faites à plus haute énergie ont montré que la

qualité des faisceaux accélérés est bonne : des paquets d'électrons dont la dispersion en énergie est inférieure au % et dont la divergence est de l'ordre du mrad ont été produits [12, 13, 14]. Ce type d'accélérateur s'avère donc être prometteur pour des expériences de diffraction ultra-rapide d'électrons.

2.8 Conclusion

Le tableau ci-dessous récapitule les paramètres requis pour la source d'électrons dont nous allons détailler le développement dans ce manuscrit :

Critère	
Taux de répétition	>100 Hz
Durée	$\tau \ll 100$ fs
Energie	$E_{e^-} \simeq 5$ MeV
$\delta E/E$	$\sim 1\%$
L_T	>1 nm
$\epsilon_{n,x}$	$\sim 10^{-2}$ mm.mrad

TABEAU 2.1 – Paramètres requis de la source d'électrons pour les expériences de diffraction résolue en temps.

2.9 Références

- [1] W. L. Bragg W. H. Bragg. The reflection of x-rays by crystals. *Proceedings of the Royal Society of London*, pages 428–438, 1913. [13](#)
- [2] W. L. Bragg. The specular reflection of x-rays. *Nature*, 90 :410–410, 1912. [14](#)
- [3] J. Howe B. Fultz. Transmission electron microscopy and diffractometry of materials, fourth edition. *Springer*, 2013. [16](#), [17](#), [19](#)
- [4] Francesc Salvat. Elastic scattering of fast electrons and positrons by atoms. *Phys. Rev. A*, 43 :578–581, Jan 1991. [17](#)
- [5] W. E. King et al. Ultrafast electron microscopy in materials science, biology, and chemistry. *J. Appl. Phys.*, 97, 2005. [24](#)
- [6] J. Faure, B. van der Geer, B. Beaurepaire, G. Gallé, A. Vernier, and A. Lifschitz. Concept of a laser-plasma-based electron source for sub-10-fs electron diffraction. *Phys. Rev. Accel. Beams*, 19 :021302, Feb 2016. [25](#)
- [7] T. van Oudheusden, E. F. de Jong, S. B. van der Geer, W. P. E. M. Op 't Root, O. J. Luiten, and B. J. Siwick. Electron source concept for single-shot sub-100 fs electron diffraction in the 100 keV range. *Journal of Applied Physics*, 102(9), 2007. [26](#)

- [8] Y. Murooka, N. Naruse, S. Sakakihara, M. Ishimaru, J. Yang, and K. Tanimura. Transmission-electron diffraction by mev electron pulses. *Applied Physics Letters*, 98(25), 2011. [27](#)
- [9] Robert P. Chatelain, Vance R. Morrison, Chris Godbout, and Bradley J. Siwick. Ultra-fast electron diffraction with radio-frequency compressed electron pulses. *Applied Physics Letters*, 101(8), 2012. [27](#)
- [10] O. Lundh et al. Few femtosecond, few kiloampere electron bunch produced by a laser-plasma accelerator. *Nature Physics*, 7 :219–222, 2011. [27](#)
- [11] F. Bohle et al. Compression of cep-stable multi-mj laser pulses down to 4 fs in long hollow fibers. *Laser Physics Letters*, 11, 2014. [27](#)
- [12] J. Faure et al. Controlled injection and acceleration of electrons in plasma wakefields by colliding laser pulses. *Nature*, 444 :737–739, 2006. [28](#)
- [13] E. Esarey et al. Physics of laser-driven plasma-based electron accelerators. *Reviews of Modern Physics*, 81 :1229–1285, 2009. [28](#)
- [14] C. Rechatin et al. Controlling the phase-space volume of injected electrons in a laser-plasma accelerator. *Physical Review Letters*, 09, 2009. [28](#)

Chapitre 3

Théorie de l'accélération laser-plasma

« AA »

Auteur

Sommaire

3.1 Ionisation par suppression de barrière	31
3.2 Définition des grandeurs laser et plasma	34
3.2.1 Paramètres laser	34
3.2.2 Interaction entre le champ laser et un électron	35
3.2.3 Paramètres plasma	36
3.2.4 Propagation d'une onde plane dans un plasma	37
3.3 Génération d'ondes plasma	38
3.3.1 Mise en évidence de la force pondéromotrice	39
3.3.2 Génération d'ondes plasma linéaire	39
3.3.3 Modèle 1D de la génération d'ondes plasma non linéaire	40
3.4 La problématique de l'injection	43
3.4.1 Trajectoire des électrons dans l'onde plasma	43
3.4.2 Etude du seuil d'injection	46
3.5 Injection dans un gradient de densité	47
3.6 Le régime de la bulle	48
3.6.1 Le régime de la bulle	48
3.6.2 Les lois d'échelle	50
3.7 Applications numériques : accélération d'un paquet d'électrons dans le régime de la bulle pour des expériences de diffraction d'électrons	52
3.8 Références	53

L'objectif de ce chapitre est de montrer que des paquets d'électrons accélérés par des sources laser-plasma remplissent le cahier des charges que l'on a établi au chapitre précédent, notamment en terme d'énergie et de durée. Le concept d'accélérateur laser-plasma

a été proposé en 1979 par Tajima et Dawson [1] qui ont montré comment le champ laser transverse pouvait être transformé en une oscillation de la densité électronique dont le champ longitudinal est accélérateur pour des électrons. De nombreux groupes de recherche à travers le monde se sont alors lancés dans l'aventure de l'accélération laser-plasma, qui a connu une révolution en 2004 lorsque des faisceaux d'électrons collimatés et monoénergétiques ont été mesurés pour la première fois et dans 3 groupes de recherche simultanément [2, 3, 4]. En à peine plus de dix ans, des avancées significatives ont été faites. D'une part, la théorie de l'accélération d'électrons dans un plasma sous-dense est maintenant très bien maîtrisée [5, 6, 7, 8, 9]. Du point de vue expérimental, deux axes de recherche ont été principalement développés. La qualité des faisceaux a été grandement améliorée par des expériences dans lesquelles l'injection des électrons dans l'onde plasma est déclenchée de manière contrôlée [10, 11, 12, 13, 14, 15, 16]. Ces expériences visant à séparer la partie injection de la partie accélération ont démontré qu'on peut accélérer des faisceaux d'électrons de faible divergence ($\sigma_{\theta, rms} \sim 1 \text{ mrad}$), de faible dispersion en énergie ($\delta E/E \sim 1\%$), ou encore qu'on est capable de contrôler l'énergie des électrons accélérés. Les progrès incessants dans le domaine des laser ont poussé certains groupes de recherche à se lancer dans la course aux hautes énergies, avec pour objectif de remplacer un jour les synchrotrons par des sources laser-plasma qui seraient plus compactes et moins chères. L'état de l'art actuel permet de produire des faisceaux d'électrons dont l'énergie est de l'ordre de quelques GeV [17, 18].

Les seules applications des sources laser-plasma ont concerné l'imagerie X statique [19, 20]. A ce jour, aucune expérience n'a tiré profit du point fort de ces sources, à savoir la durée particulièrement courte des paquets d'électrons. Ce chapitre n'a pas pour vocation à refaire de manière exhaustive la théorie de l'accélération laser-plasma qui a déjà été traitée dans des revues de référence [21, 9] et dans de nombreuses thèses, mais plutôt à justifier que ce type de source est adapté aux expériences de diffraction d'électrons. Il s'articule autour des points suivants :

- La première partie traite de la création du plasma par l'ionisation des atomes avec un champ électrique.
- Nous décrirons ensuite les équations de bases aboutissant à la génération d'une onde-plasma par un champ laser, et nous verrons sous quelles conditions il est possible d'accélérer une partie des électrons du plasma.
- Ensuite, nous justifierons que le système laser que nous allons utiliser pour nos expériences nécessite que l'on déclenche l'injection des électrons dans l'onde-plasma. Nous traiterons alors du cas de l'injection d'électrons dans un gradient de densité.

3.1 Ionisation par suppression de barrière

Nous allons dans un premier temps expliquer le mécanisme permettant la création d'un plasma à partir d'un gaz grâce à un champ électrique intense. Nous supposons un

gaz composé d'atomes de numéro atomique Z baignant dans un champ E , qui correspond dans nos expériences au champ laser. Chaque électron i du noyau est sur un niveau d'énergie donné, et il est lié par le potentiel $V_{Coul,i}$ prenant en compte l'attraction due au noyau ainsi que l'interaction avec les autres électrons. Ainsi, le potentiel V_i vu par l'électron i subissant l'interaction coulombienne ainsi qu'un champ électrique extérieur E orienté selon un axe x s'écrit :

$$V_i = V_{Coul,i} - eE.x \quad (3.1)$$

Le potentiel coulombien qui prend en compte l'interaction du noyau de charge Ze avec les autres électrons de charge $-e$ s'écrit :

$$V_{Coul,i} = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0|r_i|} + \sum_{i \neq j} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} \quad (3.2)$$

où r_i correspond à la distance de l'électron au noyau. Pour simplifier les calculs, on fait l'approximation du champ central, qui consiste à remplacer les interactions électron-électron par l'interaction d'un électron avec un nuage électronique à symétrie sphérique [22]. Cela se traduit par une modification de l'écriture du potentiel coulombien afin de prendre en compte l'effet d'écrantage par le nuage électronique, et on peut alors écrire le potentiel vu par l'électron dans l'approximation du champ central :

$$V_i = -\frac{Z^*e^2}{4\pi\epsilon_0 r_i} - eE.x \quad (3.3)$$

où Z^* est le numéro atomique effectif, qui traduit l'écrantage du champ du noyau par les électrons du nuage atomique. Afin de mener à bien le calcul, on suppose que le champ E est suffisamment fort pour que $r = \sqrt{x^2 + y^2 + z^2} \simeq x$. Aussi, dès lors que l'électron est assez loin de l'atome, on peut considérer que le numéro atomique effectif est indépendant de r . Cette hypothèse sera justifiée car, pour ioniser l'électron, il est nécessaire que le champ E l'éloigne suffisamment de l'atome. Le potentiel vu par l'électron s'écrit alors :

$$V_i = -\frac{Z^*e^2}{4\pi\epsilon_0 x} - eE.x \quad (3.4)$$

L'effet du champ laser est représenté sur la figure 3.1 : sur la figure (a) on voit qu'en l'absence de champ extérieur, un électron d'énergie E_i est confiné dans la barrière de potentiel. En revanche, la figure (b) montre qu'un champ extérieur abaisse la barrière de potentiel (courbe bleue), et lorsque le potentiel devient inférieur au seuil $-E_i$, l'électron est libéré (courbe rouge).

On souhaite maintenant connaître l'intensité laser nécessaire pour pouvoir ioniser un électron d'énergie $-E_i$ par suppression de barrière. On veut donc calculer le champ E à appliquer afin que $\forall r > 0, V(r) < -E_i$. On voit sur la figure b) que cela consiste à calculer le potentiel au point M tel que $(\partial V / \partial r_i)_{r_M} = 0$. Le potentiel est alors maximal en $r_M = \pm \left(\frac{Z^*e}{4\pi\epsilon_0 E} \right)^{1/2}$, et il vaut :

$$V_i(r_M) = 2e \left(\frac{Z^*eE}{4\pi\epsilon_0} \right)^{1/2} \quad (3.5)$$

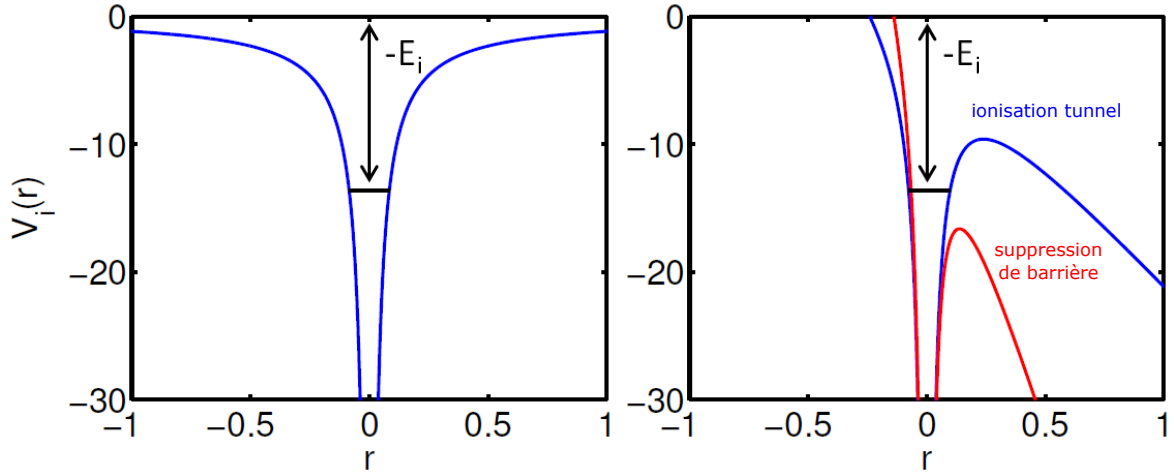


FIGURE 3.1 – A gauche : Potentiel coulombien d'un électron gravitant autour du noyau en l'absence de champ extérieur. A droite : effet du champ laser sur le potentiel vu par un électron : la barrière est abaissée (courbe bleue), jusqu'à ce que l'électron puisse s'échapper (courbe rouge).

Cette équation nous permet donc de calculer le champ $E = E_{sb}$ tel que $V_i(r_M) < -E_i$ qui correspond au champ électrique seuil pour atteindre le régime de suppression de barrière : $E_{sb} = \frac{\pi\epsilon_0 E_i^2}{Z^* e^3}$. Il est usuel d'exprimer ce résultat en intensité $I = \frac{c\epsilon_0 E^2}{2}$ qui est une grandeur facilement mesurable :

$$I_{sb} [\text{J/s/m}^2] = \frac{\pi^2 c \epsilon_0^3 E_i^4}{2 e^6 Z^{*2}} \quad (3.6)$$

Le premier électron qui va être ionisé est celui situé sur la couche la plus externe. Il est soumis au potentiel du noyau écranté par $Z-1$ électrons, et le numéro atomique effectif dans l'approximation du champ central vaut donc $Z^* = Z - (Z-1) = 1$. De manière générale, le numéro atomique effectif correspond à la charge de l'ion produit par l'ionisation de l'électron considéré. Toujours dans l'idée de travailler avec des unités qui correspondent à des grandeurs mesurables, on peut simplifier la formule 3.6 :

$$I_{sb} (\text{W/cm}^2) = 4 \times 10^9 \frac{E_i^4 (\text{eV})}{Z^{*2}} \quad (3.7)$$

Le tableau ci-dessous donne l'intensité laser nécessaire pour ioniser les électrons constituant les couches externes des atomes d'Helium et d'Azote sous forme gazeuse, qui correspondent aux principales espèces utilisées pour les expériences qui seront présentées dans ce manuscrit.

Avec ce modèle, l'abaissement de la barrière de potentiel permet l'ionisation du premier électron de l'Azote en $r_M = 7.7 \mu\text{m}$. A titre de comparaison, le rayon de Bohr pour l'atome d'hydrogène est beaucoup plus petit : $a_0 = 52.9 \text{ pm}$. L'hypothèse $r \simeq x$ que nous avons faite est valide pour l'ionisation par suppression de barrière. Comme nous le verrons dans la prochaine section, des intensités laser $I_{laser} > 10^{18} \text{ W/cm}^2$ sont nécessaires pour piéger et accélérer des électrons relativistes. L'intensité laser est alors nettement supérieure au seuil d'ionisation par suppression de barrière, qui est le mécanisme via

atome	1+	2+	3+	4+	5+	6+
He	1.4×10^{15}	8.8×10^{15}				
N ₂	1.7×10^{14}	7.7×10^{14}	2.3×10^{15}	9×10^{15}	1.5×10^{16}	10^{19}

TABLEAU 3.1 – Intensité laser seuil en W/cm^2 pour l'ion $i+$ par suppression de barrière pour les espèces N₂ et He.

lequel le plasma est créé. Le tableau 3.1 montre que le nombre d'électrons libérés par un atome peut varier grandement d'une espèce à une autre, et nous reviendrons sur les conséquences pratiques dans le chapitre suivant. D'autres mécanismes comme l'ionisation tunnel ou l'ionisation multiphotonique peuvent conduire à l'ionisation d'un atome pour des intensités $I_{laser} < I_{sb}$, mais nous ne les détaillerons pas dans ce manuscrit car nous n'avons pas travaillé dans ces régimes.

Nous avons montré dans cette partie comment il est possible de créer un plasma à partir d'atomes grâce à un champ électrique. Nous allons voir dans la suite de ce chapitre, après avoir défini les grandeurs laser et plasma que l'on utilisera, comment le champ laser peut ordonner les électrons du plasma afin de générer une structure favorable à l'accélération d'électrons.

3.2 Définition des grandeurs laser et plasma

3.2.1 Paramètres laser

Une impulsion laser est une onde électromagnétique, caractérisée par les champs électrique E et magnétique B , qui satisfait les équations de Maxwell :

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (3.8a) \quad \nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (3.9a)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (3.8b) \quad \nabla \times \mathbf{B} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mu_0 \mathbf{j} \quad (3.9b)$$

où ϵ_0 est la permittivité et μ_0 la perméabilité du vide, ρ la densité de charge, et $\mathbf{j}$ est la densité de courant du milieu dans lequel l'onde se propage. On peut facilement écrire l'équation d'onde dans le vide que vérifient les champs E et B :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} - c^2 \nabla^2 \right) \mathbf{E}, \mathbf{B} = 0 \quad (3.10)$$

Les faisceaux gaussiens sont une solution de l'équation d'onde dans le vide dans le cadre de l'approximation paraxiale, et ils décrivent particulièrement bien la propagation d'un faisceau laser. Pour cette raison, nous modélisons les impulsions laser par des faisceaux suivant une distribution gaussienne transversalement et longitudinalement. On

définit alors le waist W_0 , qui correspond à la demi largeur à $1/e^2$ de la distribution transverse en intensité, et la durée totale à mi-hauteur τ_0 , qu'on appellera durée FWHM pour "Full Width at Half Maximum". Le champ électrique d'une impulsion de fréquence ω_0 polarisée selon l'axe x et se propageant selon z s'écrit alors :

$$\mathbf{E}(r, z, t) = E_0 \frac{W_0}{W(z)} \exp\left(-\frac{r^2}{W(z)^2} - i k_0 \frac{r^2}{2R(z)}\right) \exp\left(-2 \ln 2 \frac{(z - ct)^2}{c^2 \tau_0^2}\right) \Re\left(e^{i(k_0 z - \omega_0 t + \text{atan}(\frac{z}{z_R}))} \mathbf{u}_x\right) \quad (3.11)$$

La propagation de l'impulsion est principalement déterminée par le rayon de courbure du front d'onde $R(z)$ et la taille transverse de l'impulsion $W(z)$, qui évoluent selon :

$$W(z) = W_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad (3.12)$$

$$R(z) = z \left(1 + \frac{z_R}{z}\right) \quad (3.13)$$

où $z_R = \pi W_0^2 / \lambda$ est la longueur de Rayleigh. Cette grandeur correspond à la distance sur laquelle l'intensité reste élevée : $I(z = z_R) = I_0/2$.

Il est utile de lier le champ électrique laser à l'intensité I que l'on exprime généralement en W/cm^2 . Cette grandeur, qui définit donc la quantité d'énergie qui traverse une unité de surface par unité de temps, permet de caractériser l'interaction du laser avec la matière, comme on l'a vu précédemment pour l'ionisation d'un atome. L'intensité laser correspond à la moyenne temporelle du vecteur de Poynting $I = \langle II \rangle = \langle \mathbf{E} \times \mathbf{H} \rangle$:

$$I_0 = \frac{c\epsilon_0}{2} E_0^2 \quad (3.14)$$

L'intensité maximale I_0 vaut :

$$I_0 = \frac{2P}{\pi W_0^2} \quad (3.15)$$

où $P = 2\sqrt{\ln 2 / \pi} E / \tau_0$ est la puissance du laser en W .

3.2.2 Interaction entre le champ laser et un électron

Une considération physique assez simple nous permet d'estimer l'intensité laser requise pour les expériences d'accélération d'électrons : on s'intéresse à un électron de masse m_e soumis à un champ laser. Ce dernier va mettre l'électron en mouvement d'après la formule de Lorentz :

$$\mathbf{F}_{\text{Lorentz}} = \frac{d\gamma m_e \mathbf{v}_e}{dt} = -e (\mathbf{E} + \mathbf{v}_e \times \mathbf{B}) \quad (3.16)$$

Avec γ le facteur de Lorentz associé à l'électron. Ainsi, pour un électron non relativiste : $v_e/c \ll 1$ et $B = E/c \ll E$, l'équation 3.16 se réduit à $\frac{dm_e \mathbf{v}_e}{dt} = -e\mathbf{E}$, que l'on peut intégrer en supposant que l'électron ait une vitesse initiale nulle :

$$m_e \mathbf{v}_e = -e\mathbf{A} \quad (3.17)$$

où $\mathbf{A}$ est le potentiel laser défini par $\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$. Si l'on considère un champ laser défini par 3.11, alors l'électron va osciller autour de sa position initiale à la fréquence laser dans la direction de polarisation du champ électrique, et la vitesse maximale atteinte par l'électron vaut :

$$v_{e,max} = \frac{e|E_0|}{m_e \omega_0} \quad (3.18)$$

Toutefois, cette formule n'est valide que pour un électron non relativiste car lorsque la vitesse de l'électron s'approche de la vitesse de la lumière, la composante magnétique de l'équation 3.16 n'est plus négligeable. La grandeur $a_0 = \frac{e|E_0|}{m_e \omega_0 c}$, appelée potentiel vecteur normalisé, permet alors de définir la limite entre le régime classique et le régime relativiste. Pour $a_0 \ll 1$ l'électron a un comportement classique dans le champ laser alors que pour $a_0 \geq 1$ il faut prendre en compte les effets relativistes. On peut relier le potentiel vecteur normalisé à l'intensité laser grâce à l'équation 3.14 :

$$a_0 = \sqrt{\frac{e^2}{2\pi^2 m c^5 m^2 \epsilon_0}} \lambda^2 I = 8.52 \times 10^{-10} \lambda[\mu m] \sqrt{I[W/cm^2]} \quad (3.19)$$

Les laser principalement utilisés pour les expériences d'accélération d'électrons émettent des impulsions de longueur d'onde centrale $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$. Le seuil $a_0 = 1$ est alors atteint pour une intensité $I = 2.15 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$.

3.2.3 Paramètres plasma

Un plasma fait référence à un état de la matière dans lequel les atomes sont ionisés. Bien que cet état soit rare sur terre, la très grande majorité de la matière présente dans l'univers se trouve à l'état plasma. Les conditions de température et de pression à la surface de la terre font qu'un plasma est créé uniquement lors de phénomènes extrêmes, comme au sein des flammes, des aurores boréales ou de la foudre. Toutefois, les progrès effectués au cours de ces dernières décennies font qu'il est assez simple de créer un plasma en laboratoire à partir d'une impulsion laser.

On considère que les plasmas créés pour les expériences d'accélération d'électrons satisfont les hypothèses suivantes :

- Plasma globalement neutre.
- Plasma de faible température : la vitesse initiale des électrons est négligeable par rapport à la vitesse gagnée dans le champ laser.
- Plasma non collisionnel.

Les plasmas qui nous intéressent sont composés de 2 espèces de particules : les électrons et les ions. Si l'on déplace légèrement un électron de charge $q = -e$ de sa position d'équilibre, un champ électrostatique $\mathbf{E}$ est créé, et une force de rappel $\mathbf{F} = q\mathbf{E}$ se met en place. La particule va alors osciller autour de sa position d'équilibre à la fréquence plasma

[23] :

$$\omega_{pe} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}} \quad (3.20)$$

avec n_e la densité électronique du plasma, e la charge de l'électron, et m_e la masse d'un électron. On peut également définir une fréquence plasma associée aux ions. La masse des ions étant nettement supérieure à celle des électrons, $m_i/m_e \sim 25000$ pour un atome d'azote, la fréquence plasma associée aux ions est très inférieure à celle des électrons. Ainsi, aux échelles de temps qui nous intéressent, les ions restent immobiles mais ils assurent la neutralité du plasma. Par abus de langage, on appelle alors fréquence plasma, notée ω_p , la fréquence plasma associée aux électrons.

3.2.4 Propagation d'une onde plane dans un plasma

On considère une onde plane de vecteur d'onde k et de fréquence ω se propageant dans un plasma de densité électronique n_e . En se plaçant dans un régime faiblement relativiste, et en utilisant les équations 3.9a, 3.9b et 3.17, on peut montrer que la relation de dispersion que vérifie l'onde dans le plasma s'écrit :

$$\omega^2 = \omega_p^2 + k^2 c^2 \quad (3.21)$$

On voit donc que le rapport ω^2/ω_p^2 définit la transition entre 2 régimes différents, pour lesquels l'onde peut ou non se propager dans le plasma. De manière pratique, la fréquence de l'onde ω_0 étant propre au laser utilisé, la seule variable d'ajustement est la densité électronique du plasma. On définit la densité critique n_c du plasma telle que $\omega_p(n_c) = \omega_0$:

$$n_c = \frac{\omega_0^2 \epsilon_0 m_e}{e^2} \quad (3.22)$$

Pour un laser de fréquence centrale 800 nm, la densité critique vaut $n_c = 1.75 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$.

- Pour $\omega_0^2/\omega_p^2 < 1 \equiv n_e > n_c$, la relation de dispersion n'admet pas de solutions réelles. Un tel plasma est appelé "plasma sur-dense" : le laser ne peut pas s'y propager. Il y a formation d'une onde évanescence à l' "entrée" du plasma, et le laser est réfléchi. L'interaction laser - plasma sur-dense est une discipline en soi et nous ne la traitons pas dans ce manuscrit. On peut toutefois noter certaines applications remarquables, comme le développement de miroirs plasma pour nettoyer le contraste d'une impulsion laser [24], la génération d'impulsions attosecondes [25, 26], ou encore l'accélération d'ions par laser [27, 28, 29].
- Pour $\omega_0^2/\omega_p^2 > 1 \equiv n_e < n_c$, le plasma est dit "sous-dense" et le laser peut s'y propager. On va traiter de l'accélération d'électrons dans ce régime.

On peut déduire les vitesses de phase v_ϕ et de groupe v_g , ainsi que l'indice de réfraction η vu par une onde à la fréquence ω_0 se propageant dans un plasma sous-dense ($\omega_p^2 \ll \omega_0^2$) :

$$v_\phi = \frac{\omega_0}{k} = \frac{c}{\sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2}}} \simeq c \left(1 + \frac{1}{2} \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} \right) \quad (3.23)$$

$$v_g = \frac{\partial \omega_0}{\partial k} = c \sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2}} \simeq c \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} \right) \quad (3.24)$$

$$\eta = \frac{c}{v_\phi} = \sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2}} \quad (3.25)$$

3.3 Génération d'ondes plasma

Dans cette partie, nous allons démontrer les équations décrivant la formation d'ondes plasma par un laser tel que nous l'avons défini en 3.11. Le plasma étant composé d'un nombre extrêmement élevé d'électrons, il n'est pas envisageable de calculer la trajectoire suivie par chacun d'entre eux. Il est alors plus judicieux de décrire le comportement collectif des électrons, en adoptant une approche fluide [30]. On modélise alors les électrons du plasma par un fluide de température nulle, de vitesse $\mathbf{V}$ et de quantité de mouvement $\mathbf{p}$, alors que les ions restent immobiles. On fait dans un premier temps l'hypothèse que l'intensité laser est non-relativiste, $a^2 \ll 1$, et on se place dans la jauge de Coulomb pour le potentiel laser $\nabla \cdot \mathbf{A} = 0$. L'équation décrivant la dynamique du fluide est la suivante :

$$\frac{\partial \mathbf{p}}{\partial t} + (\mathbf{V} \cdot \nabla) \mathbf{p} = -\frac{e}{m} (\mathbf{E} - \nabla \Phi + \mathbf{V} \times \mathbf{B}) \quad (3.26)$$

Cette équation nous indique que l'accélération du fluide (le terme de gauche de l'équation) est due à un déplacement des électrons en présence d'un champ laser via la force de Lorentz, ainsi qu'au champ électrostatique $\nabla \Phi$ issu du déplacement des charges par le laser.

On écrit la densité électronique sous la forme $n_e = n_0 + \delta n$, avec n_0 la densité électronique du plasma avant le passage du laser et δn la perturbation de la densité électronique créée par le laser. L'équation de Poisson s'écrit alors :

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{-e(n_0 + \delta n)}{\epsilon_0} \quad (3.27)$$

Enfin, nous supposons que le plasma est très rapidement ionisé à l'avant de l'impulsion laser, et qu'à ces échelles de temps des processus de recombinaison n'ont pas le temps de se produire. On suppose également qu'il n'y a pas d'électrons créés derrière l'impulsion laser. On peut alors écrire l'équation de conservation pour la densité électronique :

$$\frac{\partial \delta n}{\partial t} + n_0 \nabla \cdot (\mathbf{V}) = 0 \quad (3.28)$$

3.3.1 Mise en évidence de la force pondéromotrice

On va négliger dans un premier temps la réponse électrostatique $\nabla\Phi$ du plasma à la perturbation créée par le champ laser. Si on considère uniquement la partie linéaire de l'équation 3.26 : $\frac{\partial \mathbf{V}_L}{\partial t} = -\frac{e}{m} \mathbf{E}_L$ [30], alors la vitesse du fluide excité par le champ laser vaut en polarisation linéaire :

$$\mathbf{V}_L = c\mathbf{a} \quad (3.29)$$

avec $\mathbf{a} = \frac{e\mathbf{A}}{mc}$ le potentiel vecteur normalisé. On trouve un résultat similaire à la résolution de l'équation 3.16 : les électrons oscillent transversalement dans le champ laser. Si on injecte la réponse linéaire dans l'équation 3.26, on peut montrer que l'accélération non-linéaire du fluide s'écrit :

$$\frac{\partial \mathbf{V}_{NL}}{\partial t} = -c^2 \frac{\nabla a^2}{2} \quad (3.30)$$

Ce terme, proportionnel au gradient de a^2 , et donc au gradient de l'intensité laser, s'appelle la force pondéromotrice. Les électrons sont donc expulsés des zones de plus fortes intensités. L'effet des composantes linéaire et non linéaire sur le fluide électronique est complètement différent. La réponse linéaire du plasma s'annule lorsqu'on effectue la moyenne sur un cycle optique, et les électrons reviennent à leur position d'équilibre après le passage de l'impulsion. En effet, le potentiel laser en polarisation linéaire peut se mettre sous la forme $\mathbf{a} = \hat{a}(r, z - v_g t) \cos(\omega_0 t - k_0 z) \mathbf{e}_x$ avec $\hat{a}$ désignant l'enveloppe du champ, et $\langle a \rangle = 0$. En revanche, le terme pondéromoteur ne s'annule pas lorsqu'on le moyenne et va donc pouvoir déplacer des électrons de leur position initiale, même après le passage de l'impulsion : $\langle \hat{a}^2 \rangle = \hat{a}^2/2$. Cette approche est justifiée par le fait que pour un plasma sous-dense, les oscillations dans le champ laser ont une durée caractéristique ω_0^{-1} très courte devant la période naturelle d'oscillation des électrons dans le plasma ω_p^{-1} . L'équation fluide du mouvement 3.26 moyennée sur une période laser s'écrit :

$$\frac{\partial \langle \mathbf{V} \rangle}{\partial t} = \frac{e}{m} \nabla \Phi - c^2 \frac{\nabla \hat{a}^2}{4} \quad (3.31)$$

L'impulsion laser va ainsi séparer spatialement les électrons des ions via la force pondéromotrice, permettant à un champ de charge d'espace de se mettre en place.

3.3.2 Génération d'ondes plasma linéaire

On peut calculer analytiquement l'évolution du potentiel électrostatique au passage de l'impulsion laser dans le cas faiblement relativiste ($a^2 \ll 1$). Pour cela, on linéarise les équations 3.26, 3.27 et 3.28 en écrivant $\gamma = 1 + \delta\gamma$, $n = n_0 + \delta n$ et $\phi = \delta\phi$ avec $\delta\gamma/\gamma$, $\delta n/n_0$ et $\delta\phi mc^2/e \ll 1$. On arrive au système d'équations suivant :

$$\nabla^2 \phi = \frac{\omega_p^2}{c^2} \frac{\delta n}{n_0} \quad (3.32)$$

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} + \omega_p^2 \right) \Phi = \omega_p^2 \frac{\hat{a}^2}{4} \quad (3.33)$$

où $\Phi = e\phi/mc^2$ est le potentiel électrostatique normalisé, δn est la perturbation de la densité électronique, et n_0 la densité électronique du plasma avant le passage du laser. Afin de résoudre analytiquement ces équations, on effectue le changement de variables suivant : $\tau = t$ et $\xi = z - v_g t$ où v_g est la vitesse de groupe du laser dans le plasma. De plus, on se place dans le cadre de l'approximation quasi-statique pour laquelle $\partial/\partial\tau \ll c\partial/\partial\xi$. Cette approximation consiste à négliger les variations temporelles des grandeurs laser et plasma par rapport à leur évolution spatiale. Les variations temporelles ont lieu sur une échelle de temps $\partial/\partial\tau \sim 1/\tau_{\text{Laser}}$ avec τ_{Laser} le temps d'évolution du laser, qui est de l'ordre de la longueur de Rayleigh $\tau_{\text{Laser}} = z_R/c$. Quant à l'évolution spatiale, sous l'impulsion laser elle varie comme $\partial/\partial\xi \sim 1/L_0$ où L_0 est la longueur de l'impulsion, et derrière l'impulsion les paramètres plasma évoluent comme $\partial/\partial\xi \sim k_p$. L'approximation quasistatique implique donc que $L_0/c \ll \tau_{\text{Laser}}$ et que $\omega_p^{-1} \ll \tau_{\text{Laser}}$, c'est-à-dire que l'impulsion laser ne varie pas au cours de l'interaction.

On peut alors montrer que l'équation décrivant la génération d'une onde plasma linéaire par la force pondéromotrice s'écrit :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial \xi^2} + k_p^2 \right) \Phi = k_p^2 \frac{\hat{a}^2}{4} \quad (3.34)$$

avec $k_p = \omega_p/c$. Cette équation différentielle peut être résolue pour une impulsion excitatrice définie par $\hat{a}^2 = a_0^2 e^{-r^2/W_0^2} e^{-\xi^2/L_0^2}$, où $L_0 = \frac{c\tau_0}{2\sqrt{2}\ln 2}$. On peut alors calculer les champs électriques longitudinaux et transverses derrière l'impulsion laser :

$$E_z = -\frac{\partial\Phi}{\partial\xi} = \frac{mc\omega_p}{e} \sqrt{\pi} a_0^2 \frac{k_p L_0}{4} \exp(-k_p^2 L_0^2/4) \exp(-2r^2/W_0^2) \cos(k_p \xi) \quad (3.35)$$

$$E_r = -\frac{\partial\Phi}{\partial r} = -\frac{mc\omega_p}{e} \sqrt{\pi} a_0^2 \frac{L_0 r}{\omega_0^2} \exp(-k_p^2 L_0^2/4) \exp(-2r^2/W_0^2) \sin(k_p \xi) \quad (3.36)$$

Les champs sont maximaux lorsque la condition de résonance pour l'excitation de l'onde plasma $k_p L_0 = \sqrt{2}$ est satisfaite, et on définit l'amplitude maximale du champ $E_p = mc\omega_p/e$ atteignable dans le régime linéaire pour $\delta n/n = 1$. Le champ longitudinal et le champ transverse étant déphasés de 90° dans le régime linéaire, une période de l'onde plasma est formée de 4 régions : accélératrice / focalisante, accélératrice / défocalisante, décélératrice / défocalisante et décélératrice / focalisante. L'accélération d'électrons ne sera efficace que dans la partie accélératrice / focalisante, dont la longueur vaut $\lambda_p/4$.

3.3.3 Modèle 1D de la génération d'ondes plasma non linéaire

Toutefois ce modèle ne décrit que la réponse linéaire du plasma à la perturbation apportée par le champ laser. Il faut modifier l'équation fluide 3.26 pour prendre en compte les effets relativistes sur la génération d'onde plasma :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{p} - e\mathbf{A}) = e\nabla\Phi - mc^2\nabla\gamma \quad (3.37)$$

où $\gamma = \sqrt{1 + \frac{p^2}{m^2 c^2}}$ est le facteur de Lorentz. Le dernier terme représente la force pondomotrice relativiste [31, 32, 33]. L'équation du mouvement 3.37 peut être simplifiée en supposant que les grandeurs ne dépendent que de z et du temps et en faisant l'approximation quasi-statique. On peut alors transformer cette équation pour aboutir à une équation différentielle décrivant l'excitation d'onde plasma non linéaire :

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial \xi^2} = k_p^2 \left(\gamma_p^2 \left(\beta_p \left(1 - \frac{1 + \hat{a}^2/2}{\gamma_p^2 (1 + \phi)^2} \right)^{-1/2} - 1 \right) \right) \simeq \frac{k_p^2}{2} \left(\frac{1 + \hat{a}^2/2}{(1 + \phi)^2} - 1 \right) \quad (3.38)$$

Cette équation fait intervenir les facteurs relativistes associés à l'onde plasma : $\gamma_p = (1 - \beta_p^2)^{-1/2}$ et $\beta_p = v_p/c$, où $v_p = v_g$ est la vitesse de phase de l'onde plasma. La simplification de 3.38 suppose que $\beta_p \sim 1$, c'est-à-dire que le plasma est très sous-dense. Cette équation n'a pas de solution analytique, mais elle peut être résolue numériquement. La figure 3.2 représente le potentiel électrostatique ϕ et la perturbation de densité $\delta n/n$ générés par une impulsion laser de durée $\tau = 24 \text{ fs}$ se propageant dans un plasma de densité électronique $n_e = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

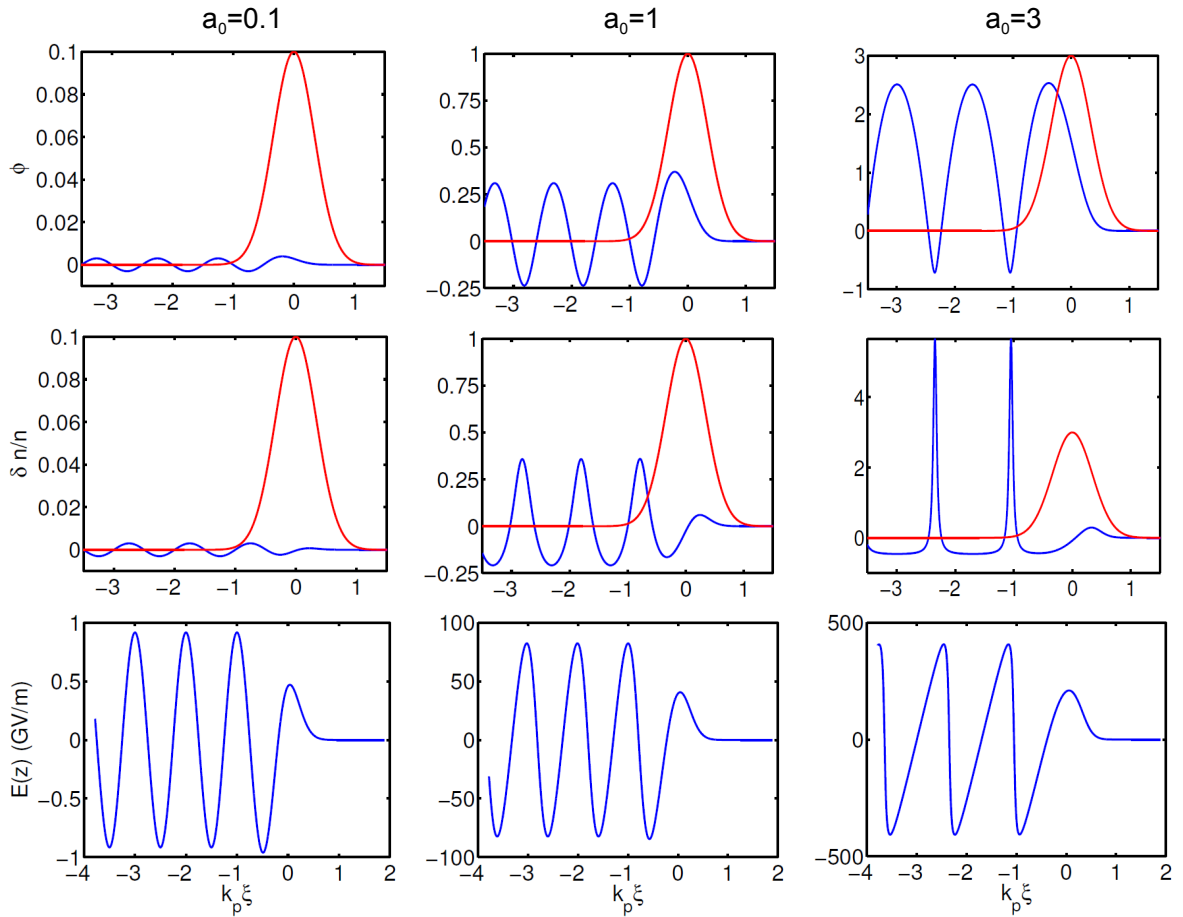


FIGURE 3.2 – Génération d'onde plasma pour différentes valeurs de a_0 dans un plasma de densité électronique $n_e = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. L'enveloppe laser, représentée en rouge, à une durée de $\tau = 24 \text{ fs}$.

Pour $a_0 = 0.1$, les ondes plasma sont sinusoïdales, de période spatiale λ_p . Lorsque l'intensité augmente $a_0 \geq 1$, un pic de densité électronique de plus en plus fin et de plus en plus dense se forme et la densité électronique entre 2 pics de densité tend vers $n_0/2$. Le

champ électrique longitudinal $E_z = -\partial\phi/\partial\xi$ accélère les électrons dans la première demi-période de l'onde plasma et les décélère dans la seconde moitié. Ce modèle nous montre qu'il est assez facile de produire des champs longitudinaux supérieurs à $10\text{ GeV}/m$ dans un plasma, soit des champs 100 à 1000 fois supérieurs à ceux produits dans les accélérateurs conventionnels. Dans le cas $a_0 = 1$, on peut générer un champ accélérateur d'intensité maximale $E_z = 80\text{ GV}/m$.

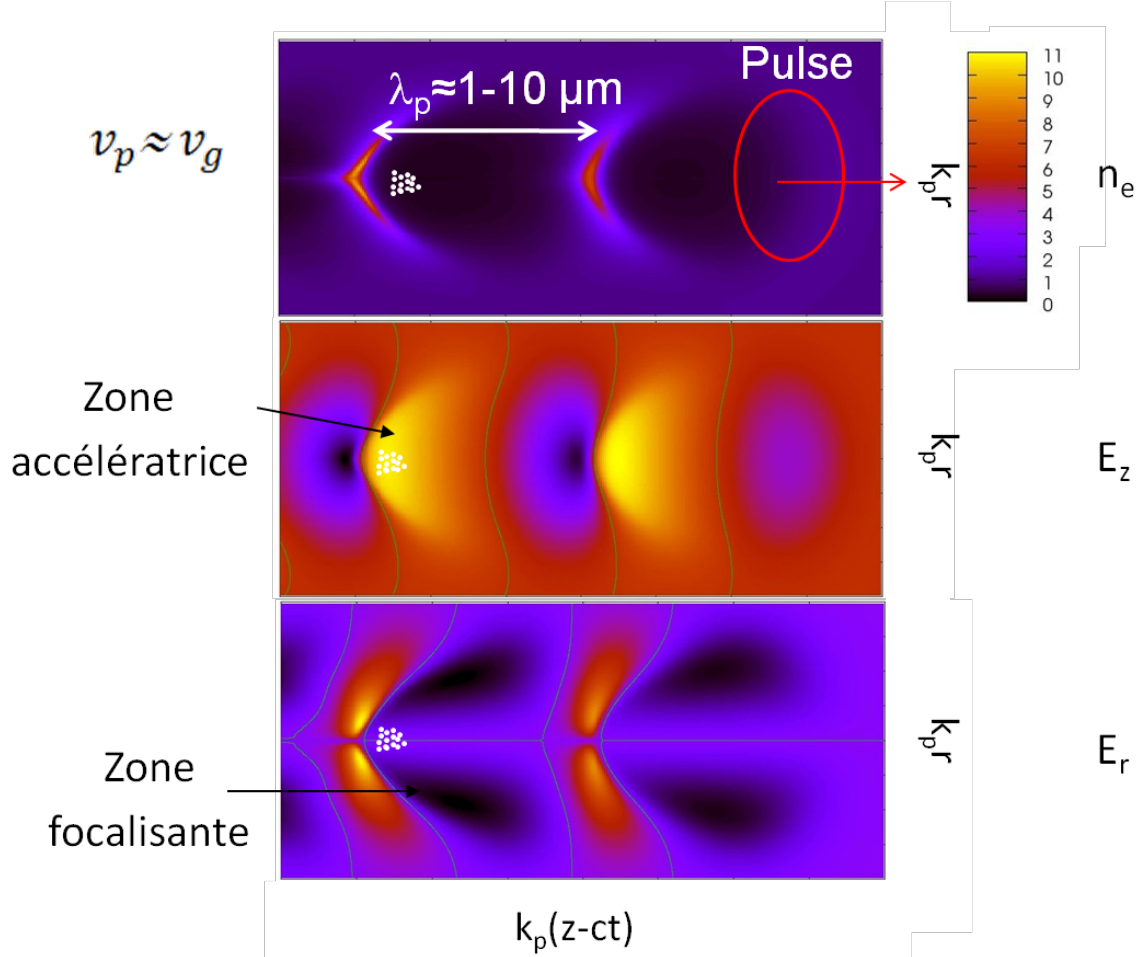


FIGURE 3.3 – Représentation des champs longitudinaux et transverse associés à la génération d'une onde plasma non linéaire. En haut : carte de la densité électronique. L'impulsion laser est représentée en rouge, et la flèche indique la direction de propagation. La vitesse de phase de l'onde plasma excitée est proche de la vitesse de groupe de l'impulsion laser. Au milieu : Champ électrique longitudinal. En bas : champ électrique transverse. La longueur d'onde plasma $\lambda_p \approx 1 - 10\ \mu\text{m}$ donne une idée de la longueur d'onde typique dans les expériences d'accélération d'électrons. La partie arrière de la cavité ionique est propice pour l'accélération d'électrons car les champs y sont à la fois accélérateur et focalisant.

Toutefois, ce modèle 1D ne nous apporte pas d'information sur la dimension transverse. Des simulations numériques avec des codes "particule-in-cell" (PIC) sont très largement utilisées dans le domaine de l'interaction laser-plasma afin de modéliser les expériences en tenant compte des effets 2D ou 3D [30]. Ces simulations résolvent les équations de Maxwell pour la propagation de l'impulsion laser ainsi que l'équation du mouvement

pour les électrons et reproduisent ainsi très fidèlement les expériences. Les champs associés à la génération d'une onde plasma non linéaire ($I = 10^{19} \text{ W/cm}^2$) sont représentés sur la figure 3.3. Les électrons sont repoussés par la force pondéromotrice de l'impulsion, créant ainsi une cavité ionique derrière le laser. A cette cavité sont associés des champs longitudinaux et transverses. Nous avons déjà vu que le champ à l'arrière de la cavité est accélérateur pour les électrons avec un champ statique extrêmement intense, mais on voit que le champ transverse est également focalisant. Contrairement au cas 1D que l'on a traité précédemment dans lequel la valeur maximale de la perturbation de densité vaut $\delta n = -n_0/2$, la prise en compte des effets transverses indique que la cavité peut être complètement dépourvue d'électrons si l'intensité laser est suffisamment grande. De plus, la prise en compte des phénomènes 3D montrent que la zone accélératrice et focalisante couvre $\lambda_p/2$. Cette structure est donc bien adaptée pour l'accélération d'électrons de par son caractère à la fois accélérateur et focalisant, permettant ainsi de générer un faisceau énergétique et de bonne qualité en termes de divergence et d'émittance.

3.4 La problématique de l'injection

3.4.1 Trajectoire des électrons dans l'onde plasma

Nous avons montré que la force pondéromotrice laser provoque des oscillations collectives des électrons du plasma, générant ainsi une structure accélératrice propice à l'accélération d'électrons qui y seraient piégés. Mais ce modèle ne donne pas d'information sur les trajectoires des électrons dans l'onde plasma, et ils sont à priori contraints à osciller autour de leur position d'équilibre. Pour étudier les conditions sous lesquelles un électron peut être piégé dans la zone accélératrice de l'onde plasma et suivre l'impulsion laser dans le modèle 1D non-linéaire, on va considérer l'Hamiltonien (normalisé) d'un électron soumis au champ laser ainsi qu'au potentiel électrostatique ϕ :

$$H = \gamma - \phi(z - v_g t) \quad (3.39)$$

où γ correspond au facteur de Lorentz de l'électron, et le second terme $\phi(z - v_g t)$ correspond à son énergie potentielle. L'énergie cinétique de l'électron peut être décomposée $\gamma = \sqrt{1 + u_\perp^2 + u_z^2}$ pour faire apparaître la quantité de mouvement normalisée $u = p/mc$. En faisant la transformation canonique transformant les variables (z, u_z) en (ξ, u_z) , on peut réécrire le nouvel hamiltonien pour ces nouvelles coordonnées :

$$H_{(\xi, u_z)} = \sqrt{1 + u_\perp^2 + u_z^2} - \phi(\xi) - \beta_p u_z \quad (3.40)$$

La quantité de mouvement transverse de l'électron peut se décomposer sous la forme $u_\perp = u_{\perp,0} + a$, où $u_{\perp,0}$ désigne la quantité de mouvement initiale de l'électron alors que le second terme correspond à la quantité de mouvement gagnée dans l'impulsion laser. De plus, dans le cas 1D l'impulsion canonique transverse est conservée : $\dot{P}_\perp = -\frac{\partial H}{\partial r_\perp} = 0$, et H ne dépend pas de la dimension transverse. Ainsi, $u_\perp = u_{\perp,0} + a = \text{cste}$. En supposant que les

électrons sont au repos avant le passage de l'impulsion, la quantité de mouvement transverse est uniquement due au terme pondérateur $u_{\perp}^2 = a(\xi)^2$. L'hamiltonien décrivant le mouvement de l'électron ne dépend pas du temps et il est donc une constante $H = H_0$. La quantité de mouvement u_z de l'électron est alors la solution de l'équation du second degré suivante :

$$(H_0 + \phi(\xi) + \beta_p u_z)^2 = 1 + a(\xi)^2 + u_z^2 \quad (3.41)$$

dont la solution vaut :

$$u_z = \beta_p \gamma_p^2 (H_0 + \phi) \pm \gamma_p \sqrt{\gamma_p^2 (H_0 + \phi)^2 - \gamma_{\perp}^2} \quad (3.42)$$

Les trajectoires des électrons dans l'espace des phases $(k_p \xi, u_z)$ sont représentées sur la figure 3.4 pour des paramètres correspondant aux paramètres du laser "Salle Noire" : $a_0 = 1$, $\tau = 24$ fs et pour une densité électronique $n_e = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. On voit que les électrons vont avoir un comportement complètement différent en fonction de leur énergie initiale.

La première trajectoire à étudier est celle des électrons au repos avant le passage du laser, dont l'Hamiltonien vaut $H_0(+\infty, 0) = 1$. La trajectoire de ces électrons est appelée "orbite fluide" et est représentée en noir sur la figure 3.4 : ces électrons oscillent et forment l'onde plasma. Cette trajectoire est ouverte, indiquant que ces électrons ne vont donc pas suivre l'impulsion laser. Une autre trajectoire remarquable est celle d'un électron qui serait à la position ξ_{min} telle que $\phi(\xi_{min}) = \phi_{min}$. Cette position, qui définit la trajectoire appelée "séparatrice", est intéressante car le champ longitudinal y est nul $E_z(\xi_{min}) = 0$. La quantité de mouvement de l'électron sera donc invariante $u_z(\xi_{min}) = \beta_p \gamma_p$, et son Hamiltonien vaut $H_{sep} = 1/\gamma_p - \phi_{min}$. Cette trajectoire est tracée en rouge, et elle donne les bornes supérieure et inférieure de la quantité de mouvement initiale pour qu'un électron soit piégé dans l'onde plasma. Les trajectoires comprises entre l'orbite fluide et la séparatrice correspondent aux électrons qui participent à la génération de l'onde plasma. Enfin, les trajectoires à l'intérieur de la zone définie par la séparatrice correspondent aux orbites des électrons piégés dans l'onde plasma : leur quantité de mouvement oscille autour de $u_z = \beta_p \gamma_p$ en passant alternativement dans la zone accélératrice puis décélératrice de la cavité.

La figure 3.4 montre que les électrons piégés sur la séparatrice d'Hamiltonien $H_{sep} = 1/\gamma_p - \phi_{min}$ vont pouvoir gagner le maximum d'énergie :

$$u_{z,max} = \beta_p \gamma_p^2 (H_{sep} + \phi_{max}) + \gamma_p \sqrt{\gamma_p^2 (H_{sep} + \phi_{max})^2 - \gamma_{\perp}^2} \quad (3.43)$$

Pour un plasma sous-dense tel que $\gamma_p \gg 1$, cette équation peut se simplifier :

$$u_{z,max} \simeq 2\gamma_p^2 \Delta\phi \quad (3.44)$$

avec $\Delta\phi = \phi_{max} - \phi_{min}$. Cette équation nous indique que des ondes plasma rapides et intenses permettent d'accélérer des électrons à haute énergie.

Cette figure permet également d'introduire la notion de longueur de déphasage, qui correspond à la distance après laquelle un électron passe de la zone accélératrice à la

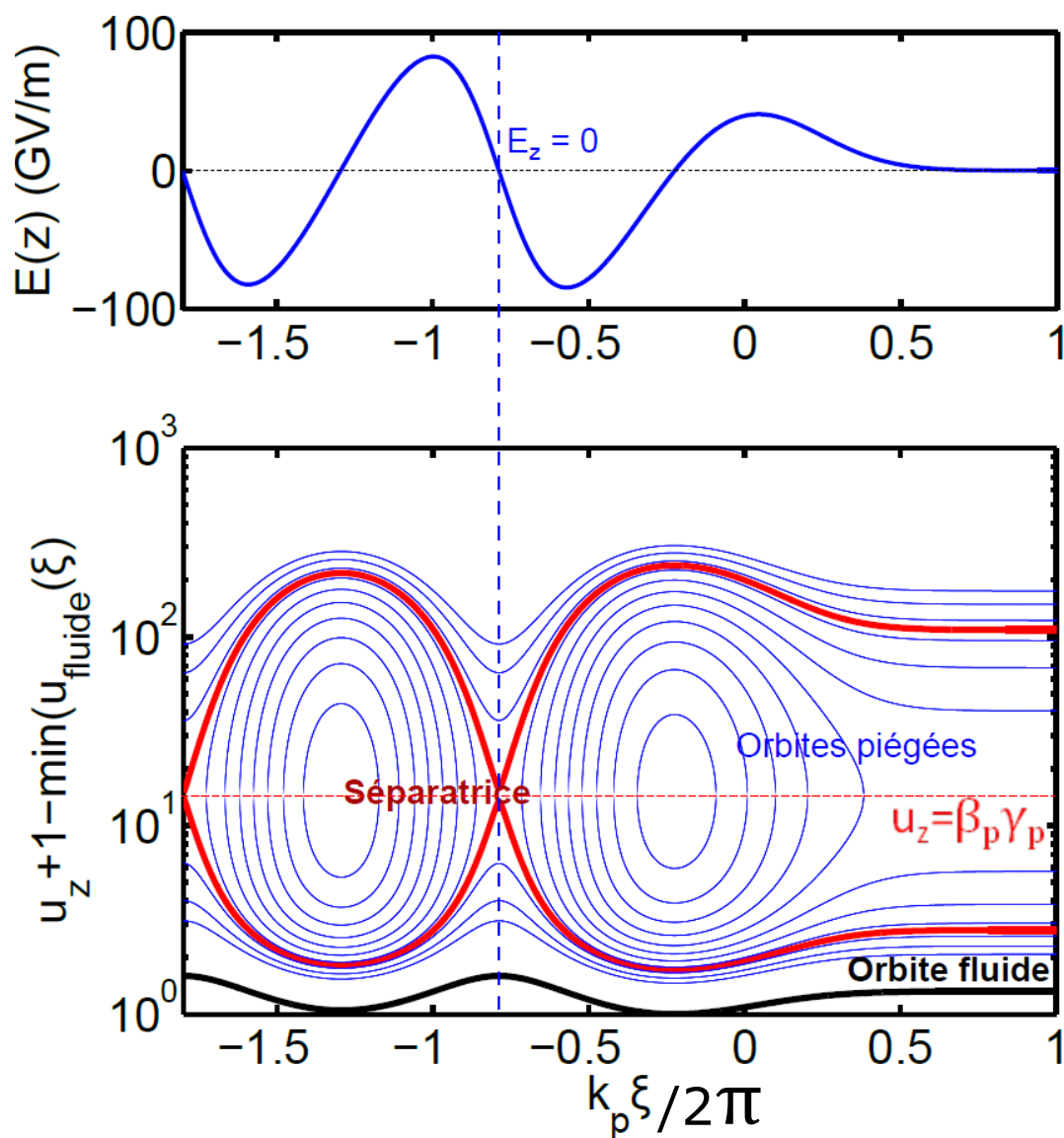


FIGURE 3.4 – Haut : champ longitudinal associé à l'onde plasma. Bas : orbites des électrons en fonction de leur quantité de mouvement initiale pour $a_0 = 1$, $\tau = 24$ fs et $n_e = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

zone décélératrice de l'onde plasma. Afin de calculer la longueur d'onde de déphasage, il est nécessaire de faire certaines hypothèses. D'une part, un électron est accéléré sur une distance maximale équivalente à $\lambda_p/2$. D'autre part, on considère un électron relativiste, ayant donc une vitesse constante $v \simeq c$. L'électron se propage donc à c alors que la vitesse de phase de l'onde plasma vaut $v_p < c$, et il est déphasé dans l'onde plasma après un temps T_{deph} défini par :

$$(c - v_p)T_{deph} = \frac{\lambda_p}{2} \quad (3.45)$$

Ainsi, la longueur de déphasage que l'on définit par $L_{deph} = T_{deph}c$ vaut :

$$L_{deph} = \frac{\lambda_p}{2(1 - \beta_p)} \quad (3.46)$$

Cette grandeur est importante lorsque l'on souhaite dimensionner un accélérateur laser-plasma, car elle définit la longueur permettant d'optimiser le transfert d'énergie vers les électrons accélérés par l'onde plasma.

3.4.2 Etude du seuil d'injection

Nous allons maintenant étudier les conditions sur l'énergie initiale E_{trap} des électrons afin d'être piégés, ce qui consiste à calculer la quantité de mouvement initiale pour atteindre l'orbite défini par la séparatrice :

$$E_{trap} = m_e c^2 (\sqrt{1 + u_{z,sep}^2} - 1) \quad (3.47)$$

En injectant l'Hamiltonien correspondant à la séparatrice dans la formule 3.42, on peut directement évaluer l'influence de l'amplitude et de la vitesse de phase des ondes plasma sur l'énergie minimale nécessaire pour qu'un électron soit piégé. La figure 3.5 indique qu'il est d'autant plus facile de piéger des électrons que les ondes plasma sont lentes et intenses. Lorsque l'énergie nécessaire aux électrons du plasma pour être piégé s'approche de $E_{trap} = 0$ eV, les électrons qui constituent l'onde plasma sont piégés et accélérés. Il est évidemment impossible que tous les électrons de l'onde plasma soient accélérés. Lorsque la charge électronique est trop importante, les électrons piégés vont écranter le champ statique associé à l'onde plasma, diminuer son amplitude, et mettre fin à l'accélération. On parle alors de *beam loading* pour désigner ce phénomène qui empêche l'accélération d'une charge trop importante [34].

Note : Avec $a_0 = 1$ et dans un plasma de densité $n_e = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, le facteur de Lorentz associé à l'onde plasma vaut $\gamma_p = 13$ et le minimum du potentiel électrostatique vaut $\phi_{min} = -0.25$.

La figure 3.5 montre que dans nos conditions expérimentales, les électrons doivent avoir une énergie minimale $E_{trap} \sim 360 \text{ keV}$ afin d'être piégés. Afin d'estimer l'énergie maximale des électrons constituant le plasma, on va considérer l'ionisation de la molécule d'azote que l'on a étudiée dans la section 3.1. L'ion N^{5+} est créé lorsque l'intensité laser atteint $I_{\text{N}^{5+}} = 1.5 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$. L'électron ainsi ionisé va alors subir la force de Lorentz

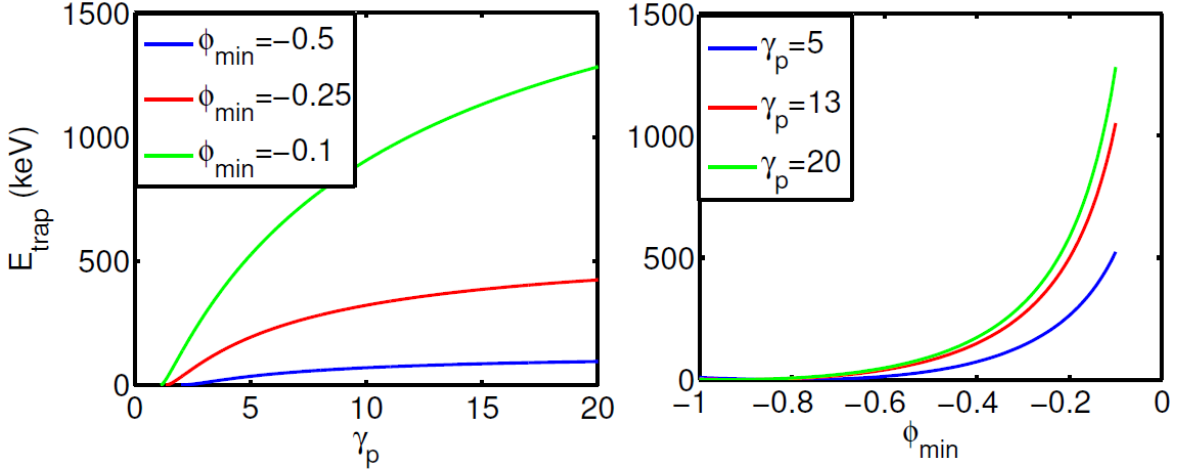


FIGURE 3.5 – Gauche : Evolution de l'énergie nécessaire aux électrons pour être piégés en fonction de la vitesse de l'onde plasma. Droite : Evolution de l'énergie nécessaire aux électrons pour être piéger en fonction du potentiel électrostatique de l'onde plasma.

et gagner une quantité de mouvement maximale donnée par $m_e v_{e,max} = \frac{e|E_0|}{\omega_0}$. On peut déduire de cette formule la vitesse (non relativiste) d'un électron ainsi ionisé, et ainsi estimer l'énergie maximale des électrons du plasma : $E_{ionisation} \sim 10 \text{ eV}$. Ce modèle indique que les électrons composant le plasma ont une énergie très nettement inférieure à l'énergie requise pour que l'auto-injection des électrons dans le plasma soit possible. De plus, il est compliqué de focaliser une impulsion laser à $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ sur un waist plus petit que $W_0 \simeq 2 \mu\text{m}$ afin d'augmenter l'intensité des ondes plasma, car cela nécessiterait l'emploi d'un miroir parabolique de trop grande ouverture.

Comme nous avons une marge de manoeuvre assez limitée pour augmenter l'intensité des ondes plasma afin de faciliter l'auto-injection des électrons, il serait astucieux de jouer sur sa vitesse de phase pour accélérer des électrons. Dans la section suivante, nous allons montrer comment l'injection d'électrons devient possible en générant des ondes plasma dans un gradient de densité.

3.5 Injection dans un gradient de densité

La fréquence plasma est reliée à la densité électronique via la relation $\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}}$, et nous avons vu que les électrons formant l'onde plasma oscillent au cours du temps à la fréquence plasma. Dans un gradient de densité, la fréquence plasma est donc une fonction de la position longitudinale z , et par conséquent le vecteur d'onde local associé à l'onde plasma dépend également de z : $k_p(z) = c/\omega_p$. L'équation 3.34 décrivant la génération d'une onde plasma dans le cas faiblement relativiste et dans le cadre de l'approximation quasi-statique doit donc être modifiée pour prendre en compte cette dépendance en z :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial \xi^2} + k_p^2(z) \right) \phi = k_p^2(z) \frac{\langle \hat{a}^2 \rangle}{4} \quad (3.48)$$

En supposant que le gradient de densité évolue lentement : $k_p L_{grad} \gg 1$, la solution de cette équation derrière l'impulsion laser est de la forme :

$$\phi(\xi, z) = \phi_0(z) \sin[k_p(z)(z - v_g t)] \quad (3.49)$$

La phase associée à l'onde plasma $\Phi = k_p(z)(z - v_g t)$ nous permet de calculer la fréquence locale ainsi que le vecteur d'onde de l'onde plasma dans un gradient de densité [8] :

$$\omega = -\frac{\partial \Phi}{\partial t} = k_p(z) v_g = \omega_p(z) \quad (3.50)$$

$$k(z, t) = \frac{\partial \Phi}{\partial z} = k_p(z) + \frac{\partial k_p}{\partial z}(z - v_g t) \quad (3.51)$$

On peut donc déduire des 2 formules précédentes la vitesse de phase de l'onde plasma dans un gradient de densité :

$$v_p(z, t) = \frac{\omega}{k} = v_g \frac{1}{1 + \frac{1}{k_p} \frac{\partial k_p}{\partial z}(z - v_g t)} \quad (3.52)$$

Dans un gradient descendant de densité, c'est-à-dire dans le gradient de sortie d'un jet de gaz, $k_p(z) \propto 1/\lambda_p(z)$ diminue avec z , et le terme $z - v_g t$ qui correspond à la distance du gradient par rapport à l'impulsion laser est négatif (derrière l'impulsion laser, lorsque l'onde plasma est créée). La vitesse de phase de l'onde plasma diminue donc au cours du temps. Si l'on attend suffisamment longtemps, la vitesse de phase sera assez faible pour que des électrons soient injectés dans l'onde plasma (cf. figure 3.5). L'inconvénient majeur de cette méthode d'injection est qu'elle n'est pas contrôlée. D'une part, l'injection se produit après un temps *suffisamment long* et on ne sait donc pas précisément où sont les électrons par rapport à l'impulsion laser. D'autre part, l'injection peut se produire pendant un temps long et dans plusieurs arches de l'onde plasma. Par conséquence, la durée intrinsèque du faisceau d'électrons accélérés peut être assez longue. Cette méthode d'injection a été mise en place expérimentalement et nous reviendrons sur ces considérations dans le chapitre suivant.

Nous allons terminer ce chapitre théorique par l'étude de l'auto-injection d'électrons dans le régime dit *de la bulle* en se basant sur le modèle phénoménologique proposé par Lu et publié dans [6, 7].

3.6 Le régime de la bulle

3.6.1 Le régime de la bulle

Le régime de la bulle correspond au cas particulier où une cavité ionique complètement dépourvue d'électrons est générée dans le sillage d'un faisceau exciteur très intense où les électrons sont repoussés par la force pondéromotrice. Il a été observé grâce aux simulations PIC que la taille de la cavité r_b dépend de l'intensité laser, et lorsque leur

taille transverse vérifie $k_b r_b = 2\sqrt{a_0}$, il se forme une cavité ionique sphérique entourée d'une couche électronique de forte densité, comme représenté sur la figure 3.6 [35]. Dans ce cas, l'impulsion est à l'intérieur de la bulle et elle est guidée par les gradients transverse d'indice optique ayant un effet focalisant.

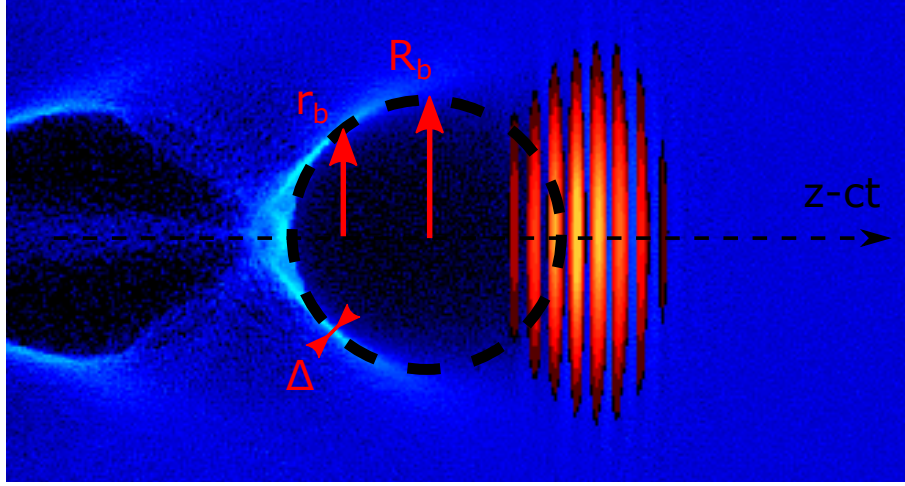


FIGURE 3.6 – Carte de densité électronique représentant une cavité ionique créée par une impulsion laser intense dans le cadre du régime de la bulle. Le rayon local de la cavité vaut $r_b(\xi)$, et le rayon maximal vaut R_b . La bulle est entourée d'une fine couche de densité électronique élevée et d'épaisseur Δ .

Il est possible de calculer le potentiel électrostatique $\phi(\xi, r)$ à l'intérieur de la bulle en fonction du rayon r_b ainsi que de l'épaisseur Δ de la couche autour de la bulle [6] :

$$\phi(\xi, r) = \frac{r_b(\xi)^2}{4} (1 + \Delta/r_b) - \frac{r^2}{4} \quad (3.53)$$

dans la limite $\Delta \ll r_b$. Dans le cadre de cette limite, on peut utiliser l'équation relativiste du mouvement pour les électrons du plasma soumis au champ laser et au potentiel donné par 3.53 pour calculer l'équation différentielle décrivant la trajectoire des électrons formant la couche autour de la bulle [36].

$$\frac{r_b}{4} \frac{d^2 r_b}{d\xi^2} + \frac{r_b}{2} \left(\frac{dr_b}{d\xi} \right)^2 + \frac{r_b}{4} \left(1 + \frac{1 + \hat{a}^2/2}{(1 + \Delta/r_b r_b^2/4)^2} \right) = - \frac{d\hat{a}^2/dr}{4 + \Delta/r_b r_b^2} \quad (3.54)$$

où le rayon r_b est normalisé par le rayon maximal de la bulle R_b , et ξ est en unité de k_p . Dans le cas d'un faisceau exciteur très intense, le rayon de la bulle vérifie $r_b k_p \gg 1$, et donc $\Delta/r_b \ll 1$. On peut alors calculer le champ électrique longitudinal à l'intérieur de la bulle à partir des équations 3.53 et 3.54 :

$$\frac{E_z(\xi)}{E_p} \simeq \frac{k_p r_b}{2} \frac{dr_b}{d\xi} \quad (3.55)$$

où E_p est l'amplitude de l'onde plasma dans le régime linéaire. Cette formule montre qu'il est possible d'avoir des champs accélérateurs extrêmement forts à l'arrière de la

bulle si la géométrie est adaptée. L'injection transverse des électrons dans ce régime devient possible : la figure 3.7 montre que les électrons proches de l'axe forment la couche autour de la bulle, et que des électrons initialement hors axe vont pouvoir être piégés puis accélérés à l'arrière de la bulle.

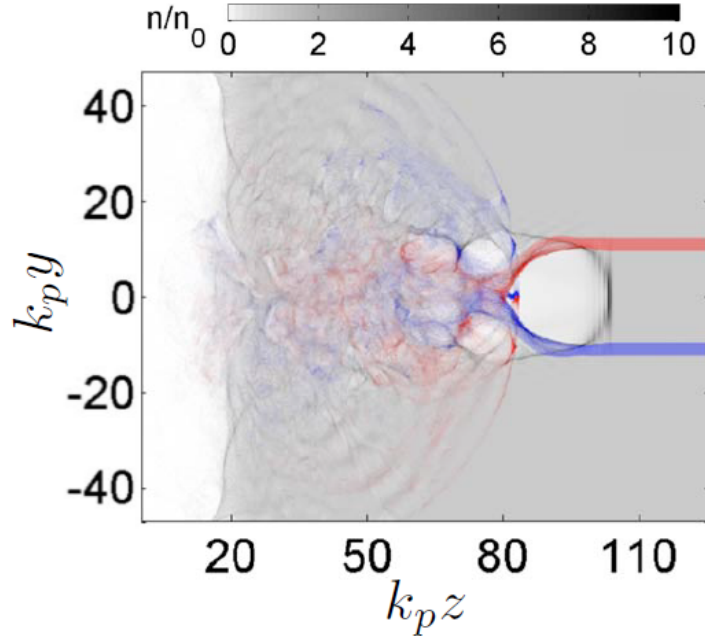


FIGURE 3.7 – Résultat de simulations PIC provenant de [7] montrant les électrons initialement hors-axe (en rouge et bleu) circulant autour de la bulle avant d'y être injectés.

Une théorie phénoménologique donnant les conditions favorable à l'accélération laser-plasma dans le régime de la bulle a alors été établie en se basant sur les résultats des simulations PIC.

3.6.2 Les lois d'échelle

Dans [7], Lu *et al.* établissent des formules liant les paramètres laser et plasma pour atteindre le régime de la bulle. Leur constat est le suivant : l'intensité laser doit être suffisamment élevée pour créer cette pellicule autour de la cavité avec une densité électronique importante. Toutefois, cet effet est contre-balançé par une considération transverse : la taille de l'impulsion laser doit être similaire à la taille de la bulle. En effet, si le waist est trop petit la force pondéromotrice va très fortement repousser les électrons proches de l'axe, mais les électrons légèrement hors axe seront peu déviés, créant ainsi une couche très large autour de la cavité ionique. A l'inverse si le waist est trop grand l'intensité laser ne sera pas assez grande pour créer la cavité ionique. Ces considérations peuvent être écrites sous la forme suivante :

$$k_p R \simeq k_p W_0 = 2\sqrt{a_0} \quad (3.56)$$

Pour que ce régime soit stable, il est souhaitable que l'impulsion laser soit guidée sur une longue distance. Indépendamment de la bulle, les gradients transverses de l'intensité

laser créent des gradients transverses d'indice optique qui ont pour effet de focaliser l'impulsion. Dans [37], les auteurs montrent que l'impulsion reste guidée sur une distance supérieure à la longueur de Rayleigh dès lors que l'effet auto-focalisant compense la défocalisation causée par la diffraction naturelle du faisceau. On parle alors d'auto-focalisation relativiste dans le plasma, qui permet de guider l'impulsion dès lors que $P > P_c = 17\omega_0^2/\omega_p^2$ [GW]. On peut alors réécrire l'équation 3.56 afin de prendre en compte la condition sur l'auto-focalisation :

$$a_0 \geq 2 \left(\frac{P}{P_c} \right)^{1/3} \quad (3.57)$$

La dernière considération à prendre en compte est longitudinale. Deux grandeurs sont importantes pour l'accélération d'électrons. La première est la longueur de déplétion L_{dep} : bien que l'arrière de l'impulsion laser soit guidée par les gradients focalisants de la bulle, l'avant de l'impulsion transfère de l'énergie au plasma en créant l'onde plasma. Le laser s'érrode au bout de la distance L_{dep} . La vitesse à laquelle l'avant de l'impulsion s'érrode a été calculée [38] : $v_{depletion} \simeq c\omega_p^2/\omega_0^2$. La distance après laquelle l'impulsion est érodée vaut alors :

$$L_{depletion} \simeq \frac{c}{v_{depletion}} c\tau_0 \simeq \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} c\tau_0 \quad (3.58)$$

Ainsi, la partie de l'impulsion qui excite l'onde plasma recule à la vitesse $v_{front} = v_g - v_{depletion}$. La seconde longueur à prendre en compte pour l'accélération d'électrons est la longueur de déphasage $L_{dephasage}$, qui correspond à la distance après laquelle des électrons injectés initialement à l'arrière de la bulle sont arrivés à la position pour laquelle le champ devient décélérateur :

$$L_{dephasage} \simeq \frac{c}{c - v_{front}} R \simeq \frac{2\omega_0^2}{3\omega_p^2} R \quad (3.59)$$

Il est souhaitable que les électrons soient accélérés sur au moins $L_{dephasage}$ afin qu'ils gagnent un maximum d'énergie et donc que $L_{dephasage} < L_{depletion}$. Cette condition implique donc que :

$$c\tau_0 > 2R/3 \quad (3.60)$$

Dans ces conditions, l'impulsion laser est guidée sur une distance supérieure à la longueur de Rayleigh. Comme l'impulsion s'érrode au cours de la propagation, il est nécessaire que l'intensité soit supérieure au seuil d'auto-focalisation relativiste, afin de garantir le guidage tout au long de la propagation :

$$a_0 > \left(\frac{n_c}{n_e} \right)^{(1/5)} \quad (3.61)$$

Enfin, Lu *et al.* calculent le champ électrique à l'intérieur de la cavité en supposant une bulle parfaitement sphérique, et ils peuvent ainsi estimer l'énergie maximale que peuvent atteindre les électrons injectés :

$$\Delta E = \frac{2}{3} mc^2 \left(\frac{\omega_0}{\omega_p} \right)^2 a_0 \quad (3.62)$$

Ces lois d'échelle sont puissantes, car le système formé par les équations 3.56, 3.61, 3.60 et 3.62 permet d'estimer les paramètres laser et plasma afin d'accélérer des électrons à une énergie donnée.

3.7 Applications numériques : accélération d'un paquet d'électrons dans le régime de la bulle pour des expériences de diffraction d'électrons

La tendance principale pour les accélérateurs plasma a longtemps consisté à accélérer des électrons les plus énergétiques possibles. Des électrons ont été accélérés dans le régime de la bulle jusqu'à plusieurs centaines de MeV dans un premier temps [2, 3, 4], et même jusqu'à quelques GeV grâce aux laser peta-Watt qui ont été construits au cours des dernières années [17, 18]. Les lois d'échelle ont ainsi justifié la course aux lasers toujours plus puissants. En effet, pour accélérer des électrons très énergétiques (au GeV) il faut que la vitesse de groupe de l'impulsion laser soit élevée pour que les électrons restent longtemps en phase dans l'onde plasma, et donc que le plasma soit très sous-dense : $n_e \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. L'impulsion laser doit être assez longue temporellement, $\tau \geq 40 \text{ fs}$, et focalisée modérément à $W_0 \simeq 20 \mu\text{m}$. Il est donc nécessaire que l'impulsion laser soit très énergétique $E_L \sim 2 \text{ J}$ pour atteindre le régime d'autofocalisation relativiste $P > P_c = 17 n_c / n_e \text{ [GW]}$ dans lequel l'impulsion reste intense sur une distance supérieure à la longueur de Rayleigh [37, 39, 40]. Ce type de système laser a été développé grâce à la technique du "Chirped Pulse Amplification" (CPA) dans des cristaux de Titane :Saphire [41].

A l'inverse, certaines applications - la diffraction d'électrons par exemple (cf. chapitre précédent) - requièrent des faisceaux d'électrons beaucoup moins énergétiques. Pour accélérer des électrons à $E \leq 10 \text{ MeV}$, ces lois d'échelle indiquent qu'il faut focaliser une impulsion laser d'énergie $E_L \sim 5 \text{ mJ}$ et de durée $\tau_0 \sim 5 \text{ fs}$ sur une taille $W_0 \sim 2.5 \mu\text{m}$ dans un plasma de densité $n_e \sim 7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. La longueur nécessaire pour atteindre cette énergie est très courte : $45 \mu\text{m}$ seulement. De plus, la longueur du paquet d'électrons n'est qu'une fraction de la longueur d'onde plasma, soit environ $\lambda_p \sim 4 \mu\text{m}$. On peut donc espérer que la durée du paquet d'électrons soit inférieure à $\tau_{e-} \leq \lambda_p / c = 13 \text{ fs}$, durée difficilement envisageable dans les accélérateurs conventionnels. Aucune expérience d'accélération d'électrons à 10 MeV dans le régime de la bulle n'a été réalisée à ce jour car les premiers systèmes laser capables d'atteindre ce niveau de durée et d'énergie n'ont été démontrés que très récemment [42, 43, 44]. Nous reviendrons plus en détail sur les difficultés rencontrées pour la génération d'impulsions laser de durée inférieure à 20 fs ainsi que sur les méthodes mises en oeuvre pour y parvenir dans le chapitre 6.

Le système laser que j'ai utilisé lors de ma thèse délivrant des impulsions de durée $\tau_0 \simeq 24 \text{ fs}$ et d'énergie $E_L \sim 3 - 4 \text{ mJ}$, il ne nous a pas été permis d'atteindre le régime de

la bulle. Nous avons toutefois fait des expériences d'accélération d'électrons en utilisant la méthode de l'injection dans un gradient descendant de densité. Afin d'accélérer des électrons, il est toutefois nécessaire d'atteindre des intensités relativistes. On peut alors calculer le waist W_0 auquel il faut focaliser ces impulsions afin d'atteindre $a_0 = 1$:

$$a_0 = 1 \Rightarrow I_0 = 2.15 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2 \Rightarrow w_0 = 2.2 \mu\text{m} \quad (3.63)$$

On voit donc qu'il sera nécessaire de focaliser fortement l'impulsion laser pour atteindre des intensités relativistes avec le laser de la "Salle Noire", avec pour conséquence une longueur de Rayleigh de seulement $z_R = 20 \mu\text{m}$. Nous allons détailler dans le chapitre suivant les résultats des expériences que nous avons réalisées au LOA, qui ont notamment permis de mettre en évidence l'importance de la qualité spatiale de l'impulsion laser dans les accélérateurs laser-plasma.

3.8 Références

- [1] J. M. Dawson T. Tajima. Laser electron accelerator. *Physical Review Letters*, 43(4) :267–270, 1979. [31](#)
- [2] S. P. D. Mangles et al. Monoenergetic beams of relativistic electrons from intense laser-plasma interactions. *Nature*, 431 :535–538, 2004. [31](#), [52](#)
- [3] C. G. R. Geddes et al. High-quality electron beams from a laser wakefield accelerator using plasma-channel guiding. *Nature*, 431 :538–541, 2004. [31](#), [52](#)
- [4] J. Faure et al. A laser-plasma accelerator producing monoenergetic electron beams. *Nature*, 431 :541–544, 2004. [31](#), [52](#)
- [5] E. Esarey, P. Sprangle, J. Krall, and A. Ting. Overview of plasma-based accelerator concepts. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 24(2) :252–288, Apr 1996. [31](#)
- [6] W. Lu et al. A nonlinear theory for multidimensional relativistic plasma wave wakefields a). *Physics of Plasmas*, 13, 2006. [31](#), [48](#), [49](#)
- [7] W. Lu et al. Generating multi-gev electron bunches using single stage laser wakefield acceleration in a 3d nonlinear regime. *PHYSICAL REVIEW SPECIAL TOPICS - ACCELERATORS AND BEAMS*, 10, 2007. [vi](#), [31](#), [48](#), [50](#)
- [8] A. V. Brantov et al. Controlled electron injection into the wake wave using plasma density inhomogeneity. *Physics of Plasmas*, 15, 2008. [31](#), [48](#)
- [9] E. Esarey et al. Physics of laser-driven plasma-based electron accelerators. *REVIEWS OF MODERN PHYSICS*, 81 :1229–1285, 2009. [31](#)
- [10] T.-Y. Chien et al. Spatially localized self-injection of electrons in a self-modulated laser-wakefield accelerator by using a laser-induced transient density ramp. *Physical Review Letters*, 94, 2005. [31](#)

- [11] J. Faure et al. Controlled injection and acceleration of electrons in plasma wakefields by colliding laser pulses. *Nature*, 444, 2006. [31](#)
- [12] C. G. R. Geddes et al. Plasma-density-gradient injection of low absolute-momentum-spread electron bunches. *Physical Review Letters*, 100, 2008. [31](#)
- [13] C. Rechatin et al. Controlling the phase-space volume of injected electrons in a laser-plasma accelerator. *Physical Review Letters*, 102, 2009. [31](#)
- [14] C. McGuffey et al. Ionization induced trapping in a laser wakefield accelerator. *Physical Review Letters*, 104, 2010. [31](#)
- [15] A. Pak et al. Injection and trapping of tunnel-ionized electrons into laser-produced wakes. *Physical Review Letters*, 104, 2010. [31](#)
- [16] J. Faure, C. Rechatin, O. Lundh, L. Ammoura, and V. Malka. Injection and acceleration of quasimonoenergetic relativistic electron beams using density gradients at the edges of a plasma channel. *Physics of Plasmas*, 17(8), 2010. [31](#)
- [17] H. T. Kim et al. Enhancement of electron energy to the multi-gev regime by a dual-stage laser-wakefield accelerator pumped by petawatt laser pulses. *Physical Review Letters*, 111, 2013. [31](#), [52](#)
- [18] X. Wang et al. Quasi-monoenergetic laser-plasma acceleration of electrons to 2 gev. *Nature Communications*, 4, 2013. [31](#), [52](#)
- [19] Y. Glinec et al. High-resolution gamma-ray radiography produced by a laser-plasma driven electron source. *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 94, 2005. [31](#)
- [20] J. M. Cole et al. Laser-wakefield accelerators as hard x-ray sources for 3d medical imaging of human bone. *Scientific Reports*, 2015. [31](#)
- [21] W. B. Mori. The physics of the nonlinear optics of plasmas at relativistic intensities for short-pulse lasers. *IEEE JOURNAL OF QUANTUM ELECTRONICS*, 33(11) :1942–1953, 1997. [31](#)
- [22] C. Cohen-Tannoudji. Mécanique quantique. page 1404, 1997. [32](#)
- [23] L. Tonks et al. Oscillations in ionized gases. *PHYSICAL REVIEW*, 33 :195–210, 1929. [37](#)
- [24] C. Thaury et al. Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics. *Nature Physics*, 3 :424–429, 2007. [37](#)
- [25] Y. Nomura et al. Attosecond phase locking of harmonics emitted from laser-produced plasmas. *Nature Physics*, 5 :124–128, 2008. [37](#)

- [26] A. Borot et al. Attosecond control of collective electron motion in plasmas. *Nature Physics*, 8 :416–421, 2012. [37](#)
- [27] S. J. Gitomer, R. D. Jones, F. Begay, A. W. Ehler, J. F. Kephart, and R. Kristal. Fast ions and hot electrons in the laser–plasma interaction. *Physics of Fluids*, 29(8) :2679–2688, 1986. [37](#)
- [28] R. A. Snavely, M. H. Key, S. P. Hatchett, T. E. Cowan, M. Roth, T. W. Phillips, M. A. Stoyer, E. A. Henry, T. C. Sangster, M. S. Singh, S. C. Wilks, A. MacKinnon, A. Offenberger, D. M. Pennington, K. Yasuike, A. B. Langdon, B. F. Lasinski, J. Johnson, M. D. Perry, and E. M. Campbell. Intense high-energy proton beams from petawatt-laser irradiation of solids. *Phys. Rev. Lett.*, 85 :2945–2948, Oct 2000. [37](#)
- [29] Andrea Macchi, Marco Borghesi, and Matteo Passoni. Ion acceleration by superintense laser-plasma interaction. *Rev. Mod. Phys.*, 85 :751–793, May 2013. [37](#)
- [30] W. L. Kruer. The physics of laser plasma interactions. *Westview Press*, 1988. [38](#), [39](#), [42](#)
- [31] P. Mora et al. Electron cavitation and acceleration in the wake of an ultraintense, self-focused laser pulse. *PHYSICAL REVIEW E*, 53(3), 1996. [41](#)
- [32] P. Mora et al. Kinetic modeling of intense, short laser pulses propagating in tenuous plasmas. *Phys. Plasmas*, 4, 1997. [41](#)
- [33] P. Mora et al. Theory and simulation of the interaction of ultraintense laser pulses with electrons in vacuum. *Phys. Rev. E*, 58 :3719, 1998. [41](#)
- [34] M. Tzoufras, W. Lu, F. S. Tsung, C. Huang, W. B. Mori, T. Katsouleas, J. Vieira, R. A. Fonseca, and L. O. Silva. Beam loading in the nonlinear regime of plasma-based acceleration. *Phys. Rev. Lett.*, 101 :145002, Sep 2008. [46](#)
- [35] A. Pukhov et al. Laser wake field acceleration : the highly non-linear broken-wave regime. *Applied Physics B*, 74 :355–361, 2002. [49](#)
- [36] M. Tzoufras et al. The physical picture of beam loading in the blowout regime. *Proceedings of PAC07, Albuquerque, New Mexico, USA*, pages 3061–3063, 2007. [49](#)
- [37] P. Sprangle et al. Relativistic self-focusing of short-pulse radiation beams in plasmas. *IEEE TRANSACTIONS ON PLASMA SCIENCE*, 15, 1987. [51](#), [52](#)
- [38] C. D. Decker et al. The evolution of ultra-intense, short-pulse lasers in underdense plasmas. *Phys. Plasmas*, 3, 1996. [51](#)
- [39] G.-Z. Sun et al. Self-focusing of short intense pulses in plasmas. *Physics of Fluids*, 30, 1987. [52](#)
- [40] A. B. Borisov et al. Self-focusing of short intense pulses in plasmas. *Phys. Rev. A*, 45, 1992. [52](#)

- [41] D. Strickland et al. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 56(3) :219–221, 1985. [52](#)
- [42] S. Bohman et al. Generation of 5.0 fs, 5.0 mj pulses at 1 khz using hollow-fiber pulse compression. *Optics Letters*, 35 :1887–1889, 2010. [52](#)
- [43] L. Veisz et al. Generation and applications of sub-5-fs multi- 10-tw light pulses. *Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim*, 2013. [52](#)
- [44] F. Bohle et al. Compression of cep-stable multi-mj laser pulses down to 4 fs in long hollow fibers. *Laser Physics Letters*, 11, 2014. [52](#)

Chapitre 4

Expériences d'accélération d'électrons au LOA

« *sf* »

Auteur

Sommaire

4.1 Le système laser "Salle Noire"	58
4.2 Montage expérimental	60
4.2.1 Installation de l'enceinte de compression	60
4.2.2 Construction de la chambre d'interaction	62
4.2.3 Caractérisation des jets de gaz et problématique liée au pompage	63
4.3 Résultats expérimentaux : étude de l'accélération laser-plasma avec le laser de la "Salle Noire"	68
4.3.1 Objectif de l'expérience	68
4.3.2 Résultats expérimentaux sur l'accélération d'électrons	68
4.3.3 Etude du mécanisme d'injection grâce aux simulations PIC	71
4.3.4 Propagation du laser et mesure du front d'onde	74
4.3.5 Effet du front d'onde dans un accélérateur laser-plasma	76
4.3.6 Stabilité de la source	79
4.3.7 Expériences d'accélération d'électrons avec 2 jets de gaz	80
4.4 Conclusion et perspectives	83
4.5 Références	84

L'activité liée au développement d'une source d'électrons pour des expériences de diffraction résolue en temps n'a commencé au laboratoire que lorsque je suis arrivé. Comme toutes les expériences d'accélération d'électrons avaient été faites avec le laser de la "Salle Jaune" et que les électrons atteignaient des énergies de l'ordre de la centaine de MeV [1], il a fallu construire un nouvel accélérateur pour notre sujet de recherche. Le laser le plus

adapté pour ce type d'expérience était le laser de la "Salle Noire" qui pouvait fonctionner, à cette époque, au kHz dans deux régimes différents :

- En régime "impulsions longues" pour une durée $\tau_0 = 26$ fs et une énergie $E_L \sim 800 \mu\text{J}$ sur cible.
- En régime "impulsions courtes" pour une durée $\tau_0 = 5$ fs et une énergie $E_L \sim 500 \mu\text{J}$ sur cible.

Une collaboration a alors débuté entre notre groupe et le groupe qui gère ce laser, dont le but était d'unifier nos forces financière et humaine afin d'augmenter l'énergie à 5 mJ et de réduire la durée des impulsions à 5 fs. Toutefois, les modifications à apporter sur le système laser pour atteindre ces performances sont conséquentes et prennent donc du temps. Nous avons alors décidé d'alterner entre des phases de développement laser et des périodes consacrées aux expériences.

Dans ce chapitre, je présenterai dans un premier temps le système laser ainsi que les premières améliorations qui ont été apportées. Je présenterai ensuite le travail que j'ai effectué pendant la première année de ma thèse sur la construction de l'expérience et sur l'installation d'une enceinte dans laquelle est ajustée la forme temporelle et spatiale de l'impulsion pour les expériences. Nous terminerons par les résultats des expériences d'accélération d'électrons que nous avons pu faire avec des impulsions de durée $\tau_0 = 20$ fs et d'énergie $E_L \sim 3$ mJ au cours desquelles nous avons étudié :

- l'effet du front d'onde laser dans un accélérateur laser-plasma.
- la stabilité de la source.
- l'accélération d'électrons avec 2 jets de gaz.

4.1 Le système laser "Salle Noire"

Le système laser de la "Salle Noire", représenté schématiquement sur la figure 4.1, est un assemblage d'éléments commerciaux et d'éléments construits au laboratoire.

Un oscillateur génère à 80 MHz des impulsions d'énergie 2.5 nJ centrées à $\lambda_0 = 800$ nm. L'architecture pour l'amplification est basée sur la technologie double CPA (Chirped Pulse Amplification) [2] qui consiste à abaisser l'intensité laser en étirant l'impulsion temporellement, pour ensuite l'amplifier lors de plusieurs passages dans un cristal amplificateur. Le premier étage d'amplification consiste en un amplificateur Ti:Sa multi-pass, en sortie duquel les impulsions ont une durée de 30 fs et une énergie de 1.35 mJ. La cadence du laser est abaissée à 1 kHz lors de l'amplification grâce à une cellule de Pockels, puis les impulsions sont envoyées dans un module XPW (*Cross Polarized Wave generation*) qui permet d'augmenter le contraste des impulsions en réduisant drastiquement le bruit lié à l'émission spontanée amplifiée (ASE) principalement issue de l'amplificateur [3]. Le contraste incohérent dans la chaîne laser est de 10^{-10} , ce qui correspond au rapport de l'intensité du bruit provenant de l'ASE par rapport à l'intensité maximale de l'impulsion. Le contraste cohérent monte jusqu'à 10^{-4} à 4 ps, c'est-à-dire qu'une pré-impulsion d'intensité 10 000

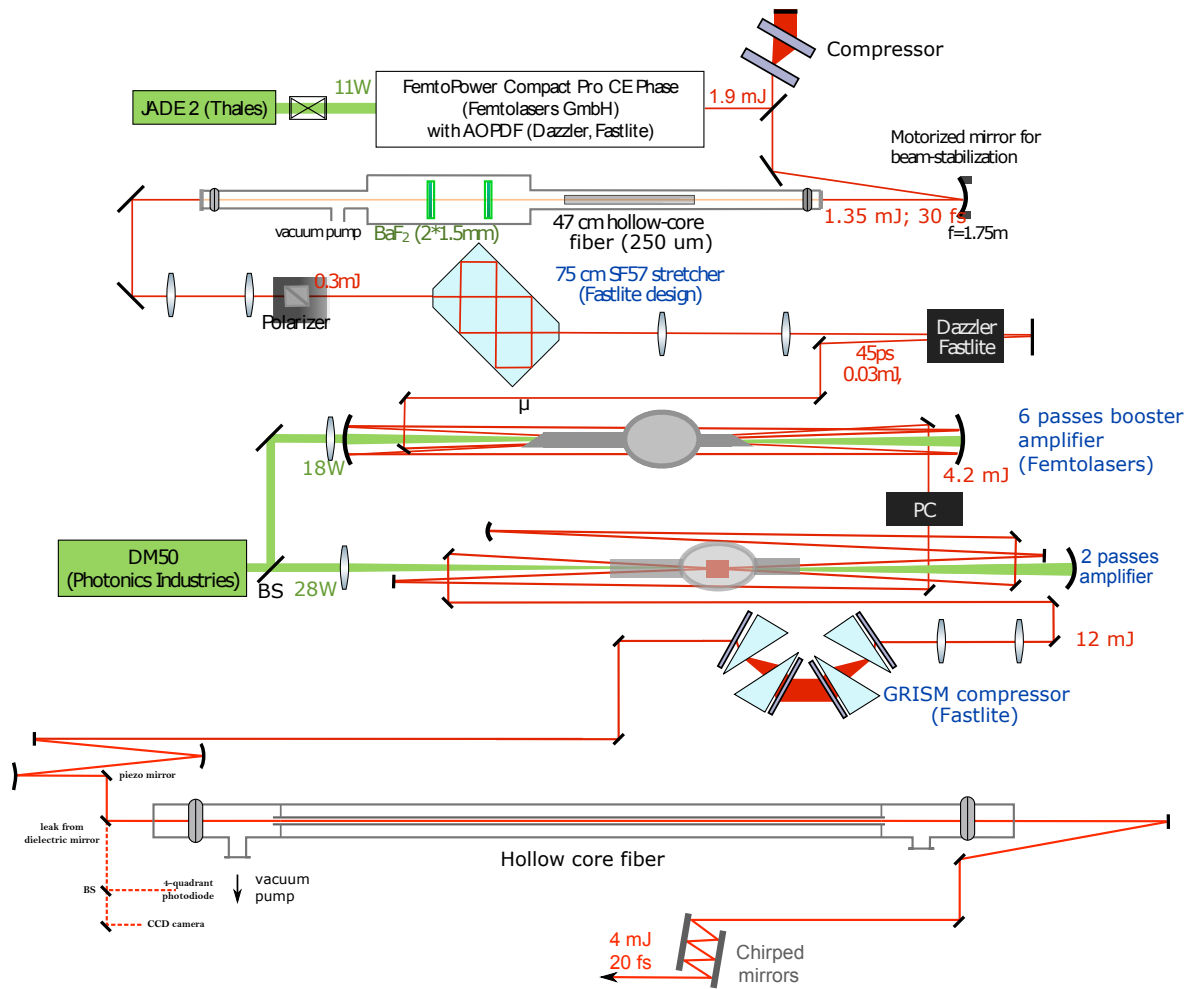


FIGURE 4.1 – Schéma du système laser double CPA de la "Salle Noire". Au départ, l'oscillateur est couplé à un premier étage CPA. Le contraste des impulsions est augmenté grâce à un XPW, puis elles sont amplifiées dans le second CPA. En fin de chaîne, le profil transverse des impulsions est filtré grâce à une fibre creuse.

fois plus faible arrive avant l'impulsion principale. Cette pré-impulsion n'est pas un problème pour nos expériences car son intensité sur cible est assez faible : elle ne suffit pas à ioniser un atome d'Hélium, et elle correspond juste au seuil d'ionisation du premier électron pour l'Azote.

Pour le deuxième étage d'amplification, l'impulsion est étirée temporellement à 45 ps dans un milieu dispersif, puis amplifiée lors de plusieurs passages dans un autre cristal de Ti :Sa. Dans notre chaîne laser l'impulsion passe successivement dans deux étages d'amplifications, ce qui permet d'augmenter l'énergie dans l'impulsion à 12 mJ en sortie du dernier étage. Un nouveau laser de pompe fournissant une puissance moyenne de 50 W avait été acheté au début de ma thèse. Ces 50 W étaient répartis sur les 2 étages d'amplifications, et remplaçaient les 18 W qui étaient disponibles jusqu'alors avec un ancien laser de pompe. Après le dernier étage d'amplification, l'impulsion est envoyée dans un compresseur de type "GRISM" formé de 4 réseaux en transmission chacun collé à un prisme, afin de comprimer l'impulsion jusqu'à une durée d'environ 200 fs. A ce niveau, le profil transverse de l'intensité laser est assez inhomogène car l'amplification "recopie" les inhomogénéités du profil d'intensité du laser de pompe. L'impulsion est alors couplée dans une fibre creuse de longueur 1 m afin de nettoyer le mode transverse. En parallèle de l'installation du nouveau laser de pompe, j'ai participé à l'installation d'une enceinte sous vide dans laquelle l'impulsion est comprimée jusqu'à sa durée en limite de transformée de Fourier $\tau_0 = 20$ fs. L'impulsion n'est complètement comprimée que lorsqu'elle est sous vide car une impulsion de plusieurs mJ, de durée 20 fs et de diamètre ~ 1 cm subirait des effets non-linéaires (effet Kerr) lors de la propagation à l'air et dans les hublots pour rentrer dans les chambres sous vide qui déformeraient son spectre. Les effets non-linéaires dégraderaient alors les aspects spatiaux et temporels de l'impulsion.

4.2 Montage expérimental

4.2.1 Installation de l'enceinte de compression

J'ai pu apprendre à manipuler les laser femto-secondes en installant l'enceinte de compression dans laquelle l'impulsion est mise en forme (voir figure 4.2). Dans un premier temps $\sim 5\%$ de l'énergie est prélevé sur l'impulsion laser grâce à une lame séparatrice afin de créer un faisceau "sonde" qui permettra de faire des mesures de la densité électronique du plasma, le délai entre les 2 impulsions étant ajusté grâce à une ligne à retard. Les 2 impulsions sont ensuite comprimées temporellement jusqu'à $\tau_0 = 20$ fs grâce à des miroirs chirpés, et le diamètre de l'impulsion principale est ajusté grâce à un télescope afin de couvrir la pupille du miroir parabolique de focalisation $\Phi = 50$ mm. Une attention particulière a été apportée aux problèmes d'atténuation des impulsions pour pouvoir aligner la parabole en sécurité. On utilise généralement des densités neutres qui vont réduire l'énergie en en absorbant une partie. Dans notre cas, les impulsions sont énergétiques et à haut taux de répétition. La puissance dissipée dans les densités neutres

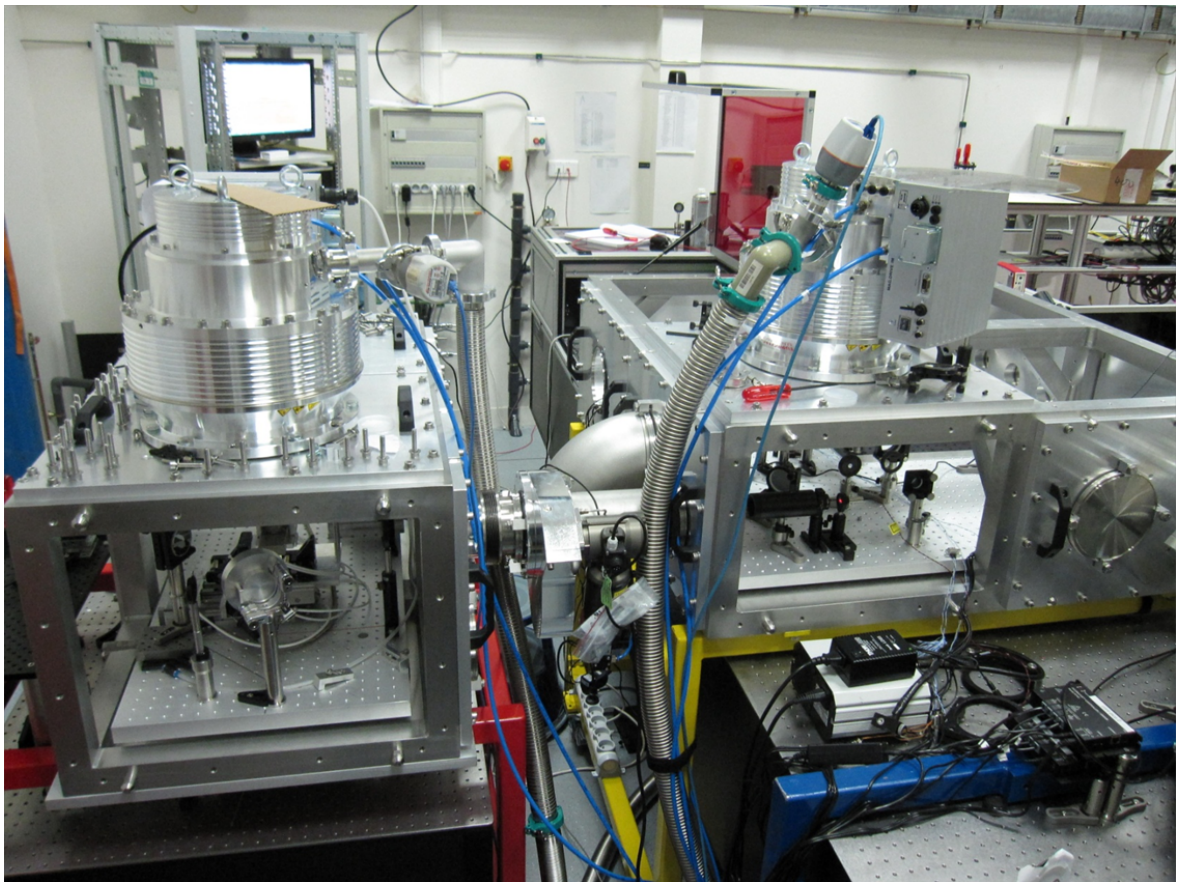


FIGURE 4.2 – Photographie de la "Salle Noire". A droite se trouve l'enceinte de compression dans laquelle le faisceau est mis en forme, et la chambre expérimentale est à gauche.

était telle que la surface se déformait car le centre des densités chauffait, ce qui déformait les impulsions. Nous avons alors mis au point des atténuateurs en réflexion, composés sur un même bloc motorisé d'une partie "miroir argent réfléchissant" et d'une autre partie en verre sur laquelle environ 4% de l'impulsion se réfléchit, permettant ainsi d'atténuer ou non l'impulsion en translatant un moteur. Ce problème, bien qu'il semble anodin, illustre la difficulté de travailler avec des impulsions de puissance moyenne si élevée. De plus, l'impossibilité d'utiliser des optiques en transmission ou de travailler à l'air impose une certaine rigueur.

4.2.2 Construction de la chambre d'interaction

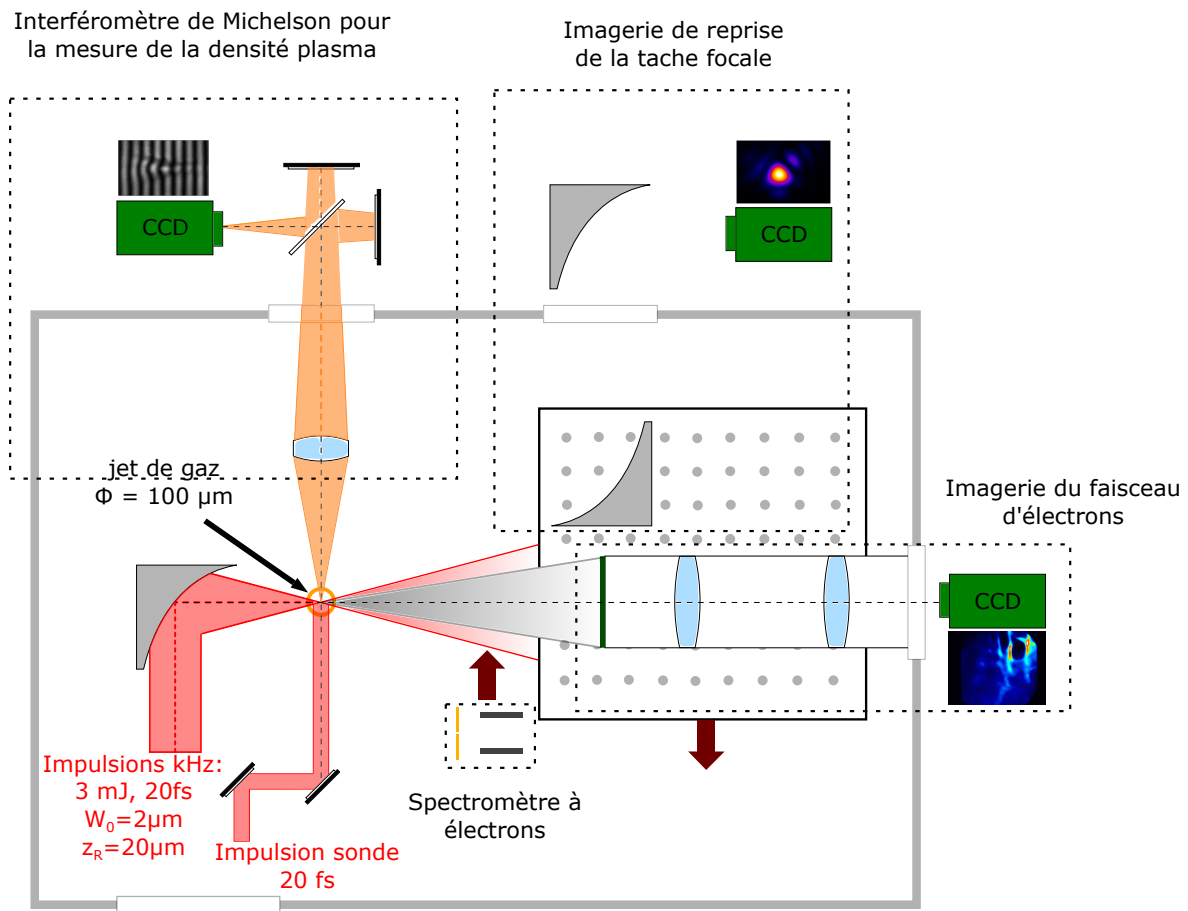


FIGURE 4.3 – Montage installé dans la chambre expérimentale pour l'accélération d'électrons.

J'ai également passé du temps en début de thèse à travailler sur le design et la construction de l'expérience. Un schéma de l'expérience est représenté sur la figure 4.3 : l'impulsion principale est focalisée sur un waist $W_0 = 2 \mu\text{m}$ grâce à un miroir parabolique d'axe 90° , de diamètre 50 mm et de focale effective $f' = 50 \text{ mm}$. Un jet de gaz est positionné dans le plan focal grâce à une monture 3 axes motorisée. Les contraintes sur les platines de translation sont fortes car la précision sur le positionnement du jet de gaz doit être meilleure que la longueur de Rayleigh $z_R \approx 20 \mu\text{m}$. Nous avons alors choisi d'utiliser des platines de translation dont la précision est inférieure au micromètre. Il est également

possible d'éclipser le jet de gaz perpendiculairement à l'axe optique afin d'imager la tache focale grâce à un objectif de microscope (qui n'est pas représenté sur la figure 4.3). Après l'interaction du laser avec le jet de gaz, il est possible de faire :

- des mesures optiques en recollimatant le laser avec un second miroir parabolique, et en ré-imageant la tache focale en dehors de l'enceinte d'interaction.
- des mesures sur le faisceau d'électrons accélérés dans le plasma. Afin d'imager la distribution transverse, l'énergie du faisceau d'électrons est déposée dans un scintillateur en CsI qui émet des photons à 550 nm par phosphorescence. Une fine couche d'aluminium déposée sur la face avant du scintillateur ainsi qu'un filtre BG39 positionné avant la caméra permettent de bloquer l'impulsion laser. On mesure alors la distribution en énergie en imageant la face arrière du scintillateur sur une caméra. La durée de vie de la phosphorescence est inférieure à la milli-seconde, ce qui permet de profiter du taux de répétition élevé du laser. L'énergie du faisceau d'électrons peut être mesurée en insérant un spectromètre composé de 2 aimants permanents et dont le principe de fonctionnement est présenté dans [4].

Il est possible de passer d'un type de mesure à l'autre en translatant un plateau depuis l'extérieur de l'enceinte grâce à une tirette. Enfin, la densité électronique du plasma est mesurée interférométriquement grâce au faisceau sonde (voir Fig. 4.3). Le jet de gaz que l'on utilise consiste en un capillaire de petit diamètre au travers duquel s'écoule le gaz. Nous allons aborder dans la section suivante les résultats de la caractérisation des jets de gaz que nous avons utilisés.

4.2.3 Caractérisation des jets de gaz et problématique liée au pompage

Le jet de gaz est un élément déterminant pour les expériences d'accélération d'électrons. Nous avons introduit au chapitre précédent la longueur de déphasage, qui correspond à la longueur optimale sur laquelle accélérer les électrons. Pour l'accélération dans le régime de la bulle avec des impulsions de durée 5 fs et d'énergie 5 mJ, nous avons vu que la longueur de déphasage vaut seulement $z_R = 45 \mu\text{m}$. Toutefois, les paramètres du laser dont nous disposons ne permettent pas d'atteindre l'auto-focalisation relativiste, nécessaire pour l'accélération d'électrons dans le régime de la bulle.

Comme nous devons focaliser fortement les impulsions laser pour atteindre des intensités relativistes au foyer du miroir parabolique, la longueur de Rayleigh théorique $z_R \simeq 20 \mu\text{m}$ est extrêmement courte. Par conséquent, il est nécessaire d'utiliser un jet de gaz de diamètre similaire à la longueur de Rayleigh, typiquement de l'ordre de $\Phi_{\text{capillaire}} \sim 100 \mu\text{m}$ pour éviter que la défocalisation induite par l'ionisation d'un volume trop important de gaz ne réduise l'intensité laser au foyer [5]. Nous disposons de capillaires de diamètre 50 μm , 100 μm et 200 μm que nous avons caractérisés au laboratoire. Le système de montage des capillaires est représenté sur la figure 4.4. Ce système a l'avantage de fonctionner en continu, ce qui permet de profiter du haut taux de répétition du laser et d'accumuler facilement des données.

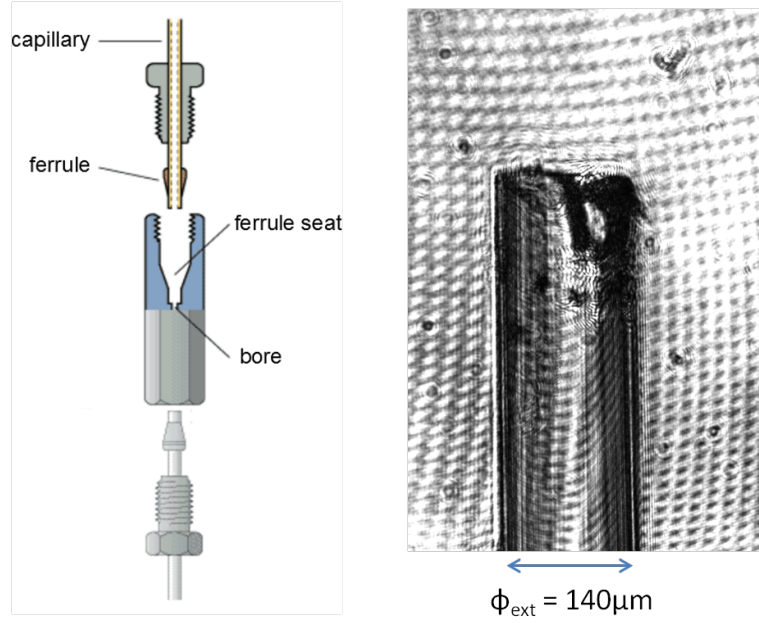


FIGURE 4.4 – Gauche : Schéma du système de fixation du capillaire permettant une utilisation en continu, et image d'un capillaire de diamètre intérieur 100 μm et de diamètre extérieur 140 μm monté dans la chambre d'interaction (droite).

Nous avons vu dans le chapitre précédent qu'il sera nécessaire d'atteindre une densité électronique du plasma de $n_e \sim 8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ pour accélérer des électrons dans le régime de la bulle. Il est important de mesurer la densité atomique en sortie du jet de gaz afin de connaître (i) la pression à appliquer au niveau du détendeur pour atteindre cette densité, et (ii) la quantité de gaz s'écoulant à travers le capillaire afin de dimensionner correctement le système de pompage. Nous allons nous intéresser dans un premier temps à la mesure de la densité atomique. Pour cela, on fait passer un faisceau laser à travers le jet de gaz, et on mesure le déphasage qu'il subit en traversant le gaz. On note z la direction de propagation du laser, et x l'axe du capillaire. Le déphasage mesuré consiste en la projection dans le plan (x,y) de la phase accumulée $\delta\phi(x,y)$. On peut retrouver la densité atomique $N(x,r)$ de l'écoulement, en faisant l'hypothèse d'une symétrie cylindrique autour de l'axe x , grâce à l'inversion d'Abel :

$$N(x, r) = A \int_r^{+\infty} \frac{\frac{\partial \delta\phi(x,y)}{\partial y}}{\sqrt{y^2 - r^2}} dy \quad (4.1)$$

où A est une constante qui dépend de l'espèce atomique. On fait généralement les mesures de densité atomique avec de l'Argon car son indice optique dans le visible est élevé pour un gaz : $n_{Ar} = 1.000281$ dans les conditions normales de température et de pression. La principale difficulté consiste à mesurer le déphasage : le déphasage accumulé lors de la propagation à travers $L = 100 \mu\text{m}$ d'Argon vaut seulement $\delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda} (n_{Ar} - 1)L \approx 0.2 \text{ rad}$ à $\lambda = 800 \text{ nm}$ et pour 1 bar d'Ar. Heureusement, nous avons pu utiliser un senseur de front d'onde : le SID4 de la société Phasics, qui atteint une résolution en phase de l'ordre de la dizaine de milli-radians [6, 7].

J'ai utilisé le programme Neutrino, développé en partie au LOA par Alessandro Flacco, afin de faire le calcul de la densité atomique à partir des interférogrammes. Les cartes de densité mesurées pour les 3 capillaires de diamètres $\Phi = 200, 100$ et $50 \mu\text{m}$ sont représentées sur les figures 4.5 (a)-(c) pour des pressions au niveau du détendeur de 20, 30 et 60 bars respectivement. Nous avons vérifié que la densité atomique évolue linéairement avec la pression. Il est alors plus commode de faire la mesure en appliquant une pression élevée au niveau du détendeur afin d'avoir un bon rapport signal sur bruit, pour ensuite estimer la densité à une pression plus faible. On voit que la densité atomique diminue fortement au-delà d'une hauteur d'environ $\Phi/2$ ce qui implique de focaliser l'impulsion laser près du capillaire, et que le profil transverse proche de la sortie du capillaire a une longueur caractéristique correspondant à Φ .

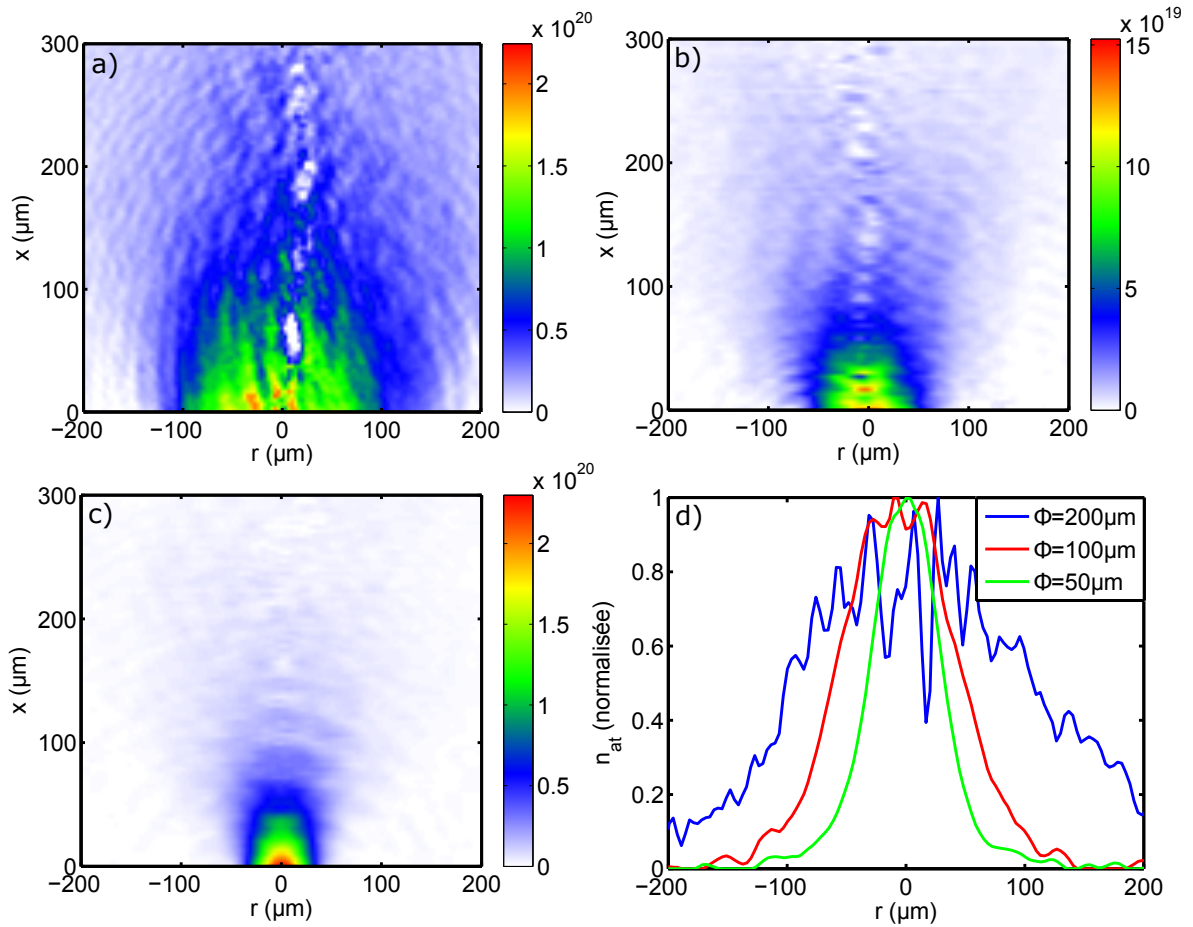


FIGURE 4.5 – Mesure de la densité atomique a) pour une pression de 20 bars dans le capillaire de $200 \mu\text{m}$, b) pour une pression de 30 bars dans le capillaire de $100 \mu\text{m}$, et c) pour une pression de 60 bars dans le capillaire de $50 \mu\text{m}$. Ces mesures ont été faites en utilisant de l'Argon et l'échelle de couleur représente la densité atomique mesurée en m^{-3} . d) Comparaison des profils transverses mesurés avec les 3 capillaires à une hauteur de $40 \mu\text{m}$ au dessus du capillaire.

On représente sur la figure 4.5 (d) le profil transverse de la densité atomique normalisée $40 \mu\text{m}$ au dessus du capillaire. Les gradients pour les capillaires de 50 et $100 \mu\text{m}$ sont assez similaires, le profil étant seulement plus large pour le capillaire de $100 \mu\text{m}$. Par contre les gradients sont moins forts avec le capillaire de $200 \mu\text{m}$. Comme nous allons

focaliser le laser dans le gradient de sortie du jet de gaz, le profil créé par le capillaire $\Phi = 200 \mu\text{m}$ n'est pas adapté car les gradients ne sont pas assez forts et le jet est trop long par rapport à la longueur de Rayleigh. Nous avons choisi de commencer l'expérience avec le capillaire de $100 \mu\text{m}$ plutôt que celui de $50 \mu\text{m}$ car on peut focaliser le laser un peu plus loin du capillaire, diminuant ainsi les risques d'endommagements.

Les gradients du jet de gaz sont également importants si l'on souhaite focaliser le laser au centre du jet, où la densité est plus importante. Dans ce cas, il est important que la longueur du gradient soit courte devant la longueur de Rayleigh du laser $L_g < z_R$, afin que l'impulsion ne soit pas affectée par l'ionisation lorsqu'elle se focalise. Pour l'accélération dans le régime de la bulle, on souhaite avoir un plateau de densité et des gradients raides en entrée et sortie du jet de gaz. Ce type de profil est obtenu avec des buses dont l'écoulement est supersonique, qui peuvent être produites pour de grands diamètres $\phi \geq 500 \mu\text{m}$ et qui ont largement été utilisées pour les expériences d'accélération dans le régime de la bulle. Mais nous devons nous tourner vers des méthodes de perçage non conventionnelles pour les petits diamètres qui nous intéressent, et nous n'avons pas pu utiliser ce type de jet de gaz pour nos expériences.

Nous avons fait ces mesures en utilisant de l'Argon dont l'indice optique est assez fort, mais nous allons utiliser pour les expériences de l'azote car une molécule d'azote libère 10 électrons à ces intensités laser, et il faut donc une densité atomique plus faible comparée à l'Argon (8 électrons) ou à l'Helium (2 électrons) pour atteindre la même densité électronique. En effet, il faut dimensionner le système de pompage pour évacuer le gaz que l'on injecte en continu dans l'enceinte. Si la pression résiduelle est trop élevée, les effets de l'ionisation autour du foyer de l'impulsion laser altèrent la tache focale : (i) le waist sera plus grand et donc l'intensité plus faible, et (ii) la défocalisation induite par l'ionisation déplace longitudinalement le plan focal. Aussi, il est important que l'impulsion laser ne soit pas déformée par la dispersion ni par des effets non-linéaires dus au gaz résiduel lors de la propagation jusqu'au capillaire. Le critère que nous avons retenu pour quantifier ces déformations est le suivant : l'intégrale B accumulée lors des 10 m environ de propagation dans les enceintes "sous-vide" doit être négligeable :

$$B = \frac{2\pi}{\lambda_0} \int n_2 I(z) dz \ll 1 \text{ rad} \quad (4.2)$$

où n_2 est l'indice non-linéaire du gaz à la pression considérée, et I est l'intensité laser. Lorsque ce critère est validé, le déphasage non-linéaire entre les différentes longueurs d'onde de l'impulsion est suffisamment faible pour qu'elle ne soit pas déformée par les effets non-linéaires d'ordre 2. L'indice non-linéaire vaut $n_2 = 2.3 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{TW}$ dans 1 bar d'azote, et il évolue linéairement avec la pression [8]. L'impulsion ayant une taille transverse $W_0 \simeq 1 \text{ cm}$ avant le miroir parabolique, l'intensité laser vaut $I \simeq 88 \text{ GW/cm}^2$. Après 10 m de propagation dans 1 bar d'azote, l'intégrale B vaut donc $B \simeq 1.6 \text{ rad}$.

Pour que notre critère $B \ll 1 \text{ rad}$ soit valide, nous allons dimensionner le système de pompage afin de garantir que la pression dans les enceintes reste inférieure à 10^{-3} mbar .

Nous avons alors calculé le taux de fuite à travers un capillaire de $50 \mu\text{m}$, $100 \mu\text{m}$ ou

200 μm pour nous aider à définir la pompe turbomoléculaire à installer sur l'enceinte. Le calcul détaillé en annexe A montre la dépendance du débit massique $\hat{m}$ avec la pression P^* que l'on applique au niveau du détendeur et le diamètre Φ du capillaire :

$$\hat{m}[\text{kg/s}] = \sqrt{\frac{\gamma}{R}} \frac{P^*}{\sqrt{T_0}} \left(\frac{2}{\gamma + 1} \right)^{\frac{\gamma+1}{2(\gamma-1)}} \pi \Phi^2 \quad (4.3)$$

où $\gamma = 1.406$ est le facteur d'adiabaticité pour l'azote, $R = R_0/M$ est la constante spécifique pour l'azote avec R_0 la constante universelle des gaz parfaits, M la masse molaire de l'azote, et T_0 la température. Comme il est compliqué de prédire théoriquement le profil optimal pour injecter les électrons dans le gradient de sortie du jet de gaz, nous allons dimensionner le système de pompage pour l'accélération dans le régime de la bulle : on souhaite atteindre une densité électronique de $n_e = 8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. En supposant que l'écoulement soit le même pour l'Argon et pour l'Azote, on peut voir sur la figure 4.5 (b) que l'on atteint $n_{at} \sim 8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ avec une pression de 30 bar au niveau du détendeur. Comme une molécule d'azote libère 10 électrons lorsqu'elle est ionisée 5 fois par le champ laser, une pression de 3 bar permettrait donc d'atteindre la densité électronique voulue. Le tableau 4.1 ci-dessous indique les valeurs des débits ainsi que du taux de fuite $T_f[\text{mbarL/s}] = \hat{m}RT_0$:

Atome	P (bar)	Débit massique (kg/s)	Débit volumique (mL/s)	T_f (mbarL/s)
N ₂	3	5.4×10^{-6}	14.6	4.8

TABLEAU 4.1 – Calcul des débits et du taux de fuite pour atteindre $n_{at} \sim 8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ avec un capillaire de diamètre 100 μm .

La capacité de pompage d'une pompe turbomoléculaire à évacuer une fuite est donnée en L/s. Il faudrait alors une pompe ayant un débit de pompage minimum de $\frac{4.8 \text{ mbarL/s}}{10^{-3} \text{ mbar}} = 4800 \text{ L/s}$ pour atteindre une pression résiduelle inférieure à 10^{-3} mbar dans l'enceinte, en supposant que le dégazage des composants dans l'enceinte soit négligeable par rapport à la fuite due au jet de gaz. Des pompes aussi grosses sont particulièrement chères, nous avons acheté deux pompes turbomoléculaires ayant un débit de pompage de 1600 L/s. Nous avons fait nos expériences en utilisant qu'une seule pompe sur l'enceinte d'interaction, la seconde pompait alors l'enceinte de compression. Nous allons nous intéresser dans la suite de ce chapitre aux expériences d'accélération d'électrons que nous avons faites en "Salle Noire" avec un capillaire de diamètre 100 μm .

4.3 Résultats expérimentaux : étude de l'accélération laser-plasma avec le laser de la "Salle Noire"

4.3.1 Objectif de l'expérience

Lorsque nous avons commencé cette expérience, nos collègues de l'université du Michigan avaient déjà publié un article (en collaboration avec le LOA) montrant qu'il est possible d'accélérer des électrons d'énergie 100 keV dans un gradient descendant [9]. Cette expérience avait été réalisée avec un laser à 500 Hz dont la puissance est similaire à celle du laser de la "Salle Noire". Bien que la distribution transverse du faisceau d'électrons soit assez diffuse, ils ont mis en évidence qu'il est possible de la "contrôler" grâce à un miroir déformable placé avant le miroir parabolique. Ils ont ainsi montré que le front d'onde laser avait un effet sur le processus d'accélération [9, 10] sans véritablement donner d'explications physiques. Le besoin de comprendre et de modéliser l'effet du front d'onde était encore présent car les simulations numériques dans ce régime avec des impulsions laser de profil gaussien ne permettaient pas de reproduire les distributions transverses observées expérimentalement. L'objectif de l'expérience que nous avons réalisée était de comprendre le mécanisme d'injection et d'accélération des électrons dans ce régime, ainsi que de mettre en évidence l'effet du front d'onde laser sur l'accélération.

4.3.2 Résultats expérimentaux sur l'accélération d'électrons

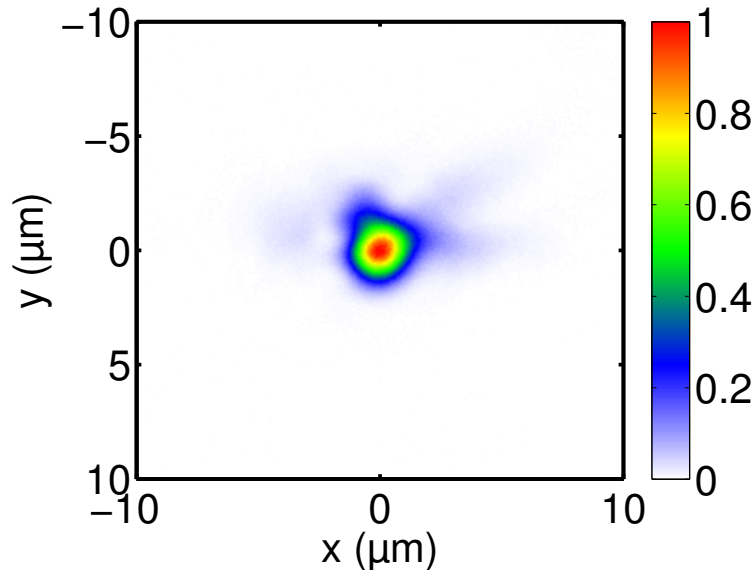


FIGURE 4.6 – Tache focale expérimentale, dont la largeur totale à mi-hauteur vaut $W_0 = 2.2 \mu\text{m}$.

Le montage expérimental est représenté sur la figure 4.3. La durée de l'impulsion laser mesurée au Wizzler [11] est de $\tau_0 = 22 \text{ fs}$ FWHM et l'énergie sur cible vaut $E_L \simeq 2.5 - 3 \text{ mJ}$, ce qui permet d'atteindre au foyer du miroir parabolique une intensité d'environ $I_L \simeq (2.5 - 3) \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$. La densité électronique du plasma créé par l'impulsion laser a été

mesurée interférométriquement, et le profil de densité le long de l'axe optique en vert sur la figure 4.8 (a) montre que la densité pic atteint $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. La figure 4.6 représente la distribution transverse du faisceau laser au foyer mesurée expérimentalement. La largeur totale à mi-hauteur de la tache focale vaut $W_0 = 2.2 \mu\text{m}$. A partir de cette image, nous avons calculé que 70% de l'énergie est contenue dans la région où l'intensité est supérieure à I_{max}/e^2 . Pour comparaison, l'énergie contenue dans un waist pour une gaussienne 2D parfaite vaut 86 %. La tache focale est donc de bonne qualité, et peu d'énergie est perdue dans les pieds.

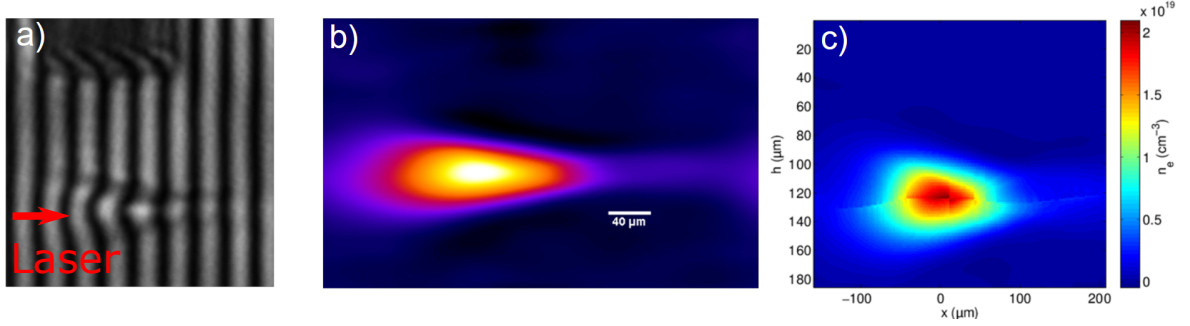


FIGURE 4.7 – a) Interférogramme représentant le déphasage dû au plasma. On voit en haut l'ombre du capillaire b) Carte du déphasage accumulé à travers le plasma c) Carte de la densité électronique du plasma. Ces mesures ont été faites dans de l'azote.

La figure 4.7 (a) représente un interférogramme mesuré lors de l'expérience, sur lequel on peut voir l'ombre du capillaire ainsi que le plasma créé par le laser. Le laser se propage de gauche à droite, et on peut voir que le plan focal est dans le gradient de sortie du jet. Il est beaucoup plus aisé de mesurer interférométriquement le déphasage induit par le plasma plutôt que celui induit par le jet de gaz non ionisé, car la différence d'indice optique par rapport au vide est plus forte. En effet, la différence d'indice par rapport à l'indice du vide vaut $\delta\eta_{\text{Ar}} = 2 \times 10^{-4}$ pour 0.6 bar d'Argon, alors que pour un plasma de densité $n_e = 2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ (ce que l'on obtiendrait avec 0.6 bar d'Argon) on a $\delta\eta_{\text{plasma}} = 1 - \frac{\omega_p^2}{2\omega_0^2} = 6 \times 10^{-3}$. Le panel (b) représente la carte de phase calculée à partir de l'interférogramme précédent. On peut alors mesurer la densité électronique du plasma grâce à une inversion d'Abel, en supposant une symétrie cylindrique par rapport à l'axe optique défini par l'axe de propagation du laser. On représente sur la figure 4.7 (c) la carte de densité électronique du plasma.

Nous avons mesuré l'évolution de la charge électronique accélérée en fonction de la position longitudinale du capillaire, représentée par la courbe bleue sur la figure 4.8 (a), et on observe que des électrons ne sont accélérés que lorsque le laser est focalisé dans le gradient de sortie du jet de gaz. La charge est très sensible à la position du plan focal dans le gradient, et la charge maximale est de l'ordre de 20 fC par tir ce qui correspond à 125 000 électrons arrivant sur le scintillateur. On calcule la charge à partir de l'image du scintillateur sur la caméra grâce aux fonctions de transfert de chaque élément du système de détection, depuis le nombre de photo-électrons générés par le scintillateur qui a été

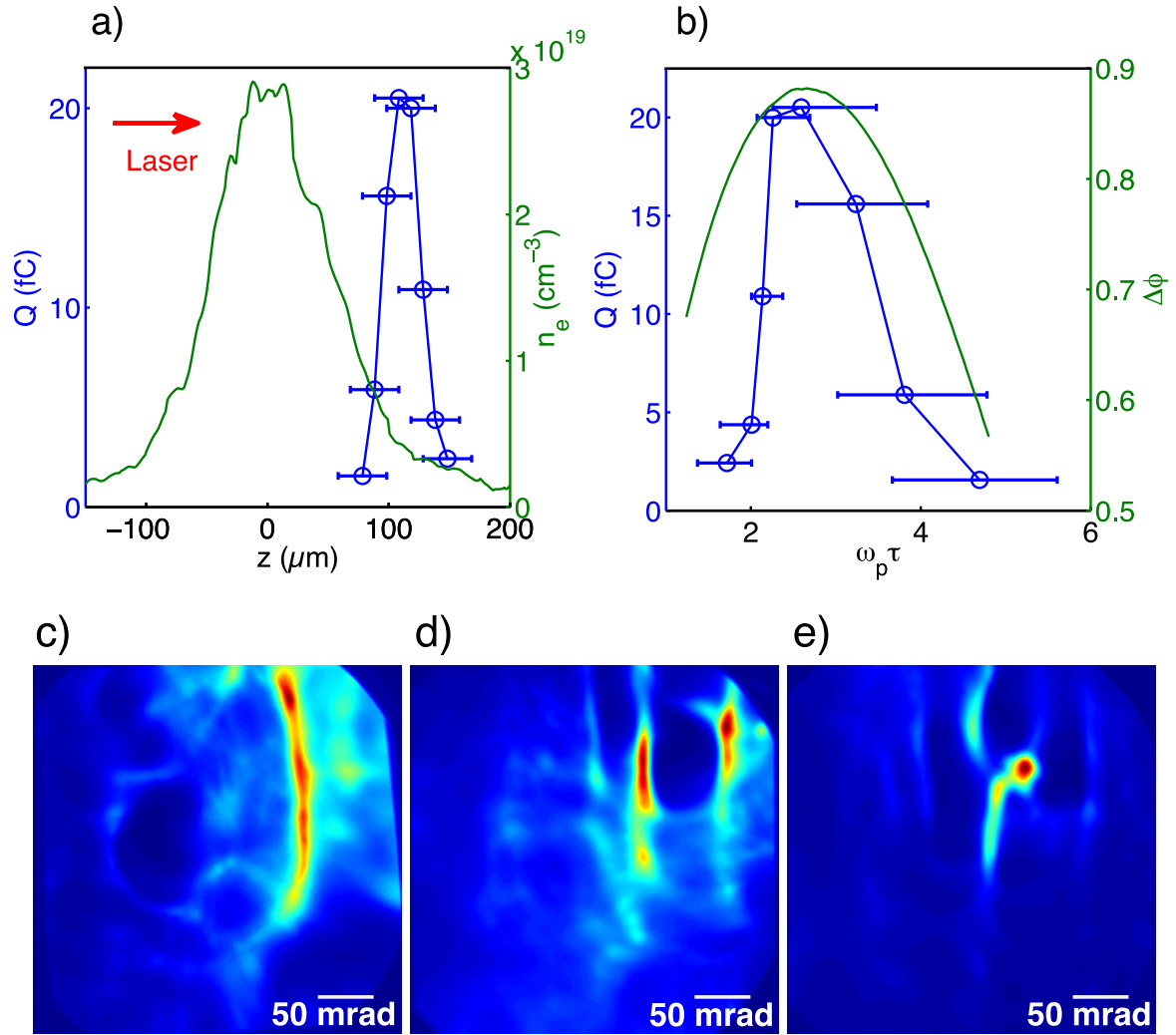


FIGURE 4.8 – Résultats expérimentaux. a) profil de la densité électronique mesuré en vert et charge du faisceau électronique accéléré par tir en fonction de la position du plan focal en bleu. b) Charge par tir en fonction de $\omega_p(z)\tau$, ou $\omega_p(z)$ est calculé à partir de la densité électronique dans le plan focal. La courbe verte correspond à l'amplitude théorique $\Delta\phi$ des ondes plasma. Les barres d'erreur horizontales correspondent à une incertitude de $\pm 20 \mu\text{m}$ sur la position du plan focal. c), d) et e) correspondent à des profils typiques du faisceau d'électrons mesurés un jour différent et intégrés sur 500 à 1000 tirs.

calibré, jusqu'à l'efficacité quantique du capteur CCD de la caméra.

Afin de valider que les électrons sont bien accélérés par les ondes plasma et non par un autre mécanisme, comme directement par le champ laser [12, 13], nous avons résolu l'équation 3.38 pour la génération d'onde plasma non linéaire 1D avec nos paramètres laser en injectant dans les paramètres k_p , β_p et γ_p la valeur de la densité électronique au foyer mesurée sur le profil de la figure 4.8 (a). La figure 4.8 (b) montre qu'il y a une forte corrélation entre l'amplitude des ondes plasma (en vert) et la charge accélérée, c'est-à-dire que les électrons sont accélérés lorsque le laser est focalisé :

- à la densité électronique pour laquelle la condition de résonance pour les ondes plasma est vérifiée.
- dans le gradient descendant du jet de gaz, ce qui facilite l'injection des électrons (cf. section 3.5).

Des profils typiques des distributions électroniques transverses obtenues lors de 3 jours différents sont représentés sur les figures 4.8 (c)-(e). On peut voir que les faisceaux d'électrons présentent des structures complexes : points chauds, structures verticales, trous ... stables au cours de la journée, et que ces structures diffèrent d'un jour à l'autre.

Pour mesurer expérimentalement la distribution en énergie du faisceau d'électrons, on place un pinhole en plomb de diamètre 500 μm afin de réduire à 2 mrad la divergence du faisceau. Les électrons sont ensuite déviés par 2 aimants permanents dont le profil du champ magnétique a été mesuré au laboratoire grâce à une sonde de Hall, et vaut au maximum 20 mT.

On représente sur la figure 4.9 les différentes étapes de la mesure de la distribution en énergie. Dans un premier temps, on mesure la position du faisceau sur le scintillateur lorsque les aimants sont retirés (figure de gauche). Lorsqu'on met en place les aimants, on voit que les électrons sont déviés par le champ magnétique. En connaissant la distance entre les aimants et le scintillateur, et en connaissant le champ magnétique généré par les aimants, on peut alors calculer la position théorique des électrons par rapport à la position sans aimants en fonction de leur énergie. L'énergie des électrons est alors calculée par une déconvolution de l'image du faisceau dévié par la position théorique, en tenant compte de la sensibilité du scintillateur avec l'énergie des électrons. La distribution en énergie des électrons est représentée en bleu sur la figure de droite, et elle est comparée à la distribution obtenue pour une simulation PIC faites avec les paramètres expérimentaux. On peut voir que la simulation reproduit très bien l'énergie des électrons, la coupure basse étant causée par le scintillateur dont la sensibilité chute drastiquement en dessous de 50 keV.

4.3.3 Etude du mécanisme d'injection grâce aux simulations PIC

Le mécanisme d'injection dans le gradient de densité que nous avons étudié théoriquement au chapitre 3 est parfaitement reproduit dans les simulations PIC. On représente sur la figure 4.10 la densité électronique dans le gradient de sortie à différents instants

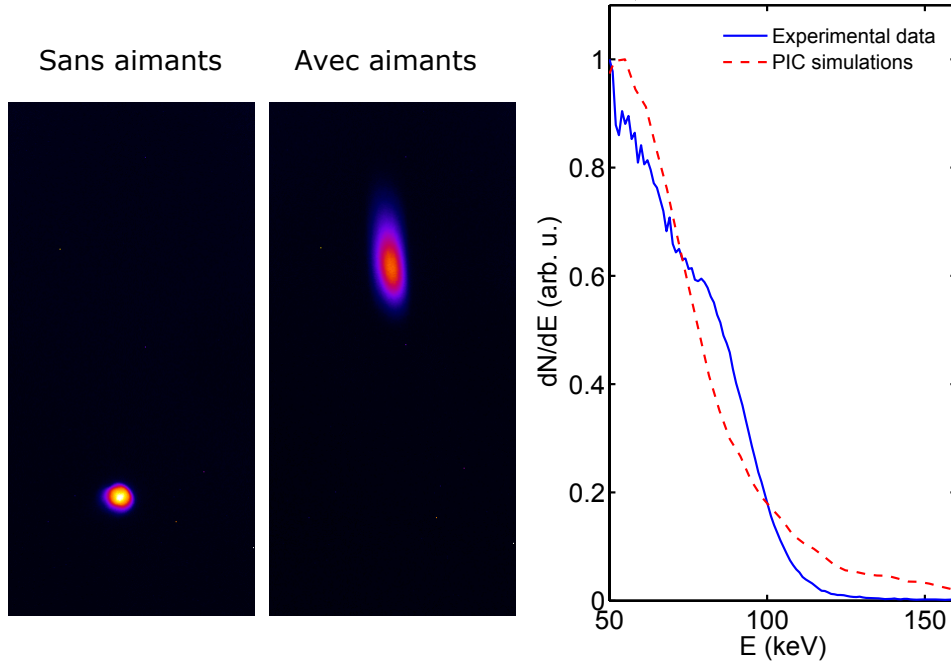


FIGURE 4.9 – Mesure de la distribution en énergie du faisceau d'électrons. A gauche : la position des électrons sur le scintillateur lorsque les aimants sont retirés représente l'axe du faisceau. Au milieu : le faisceau est dévié par les aimants. A droite : La distribution en énergie mesurée en bleu est très similaire à celle obtenue dans les simulations PIC dans les mêmes conditions (rouge pointillé).

pour une simulation PIC faites avec les paramètres laser expérimentaux et avec le profil du jet de gaz provenant de la figure 4.8 (a). La figure 4.10 représente en haut à gauche la densité électronique à l'instant où le laser quitte le jet de gaz. La figure de droite représente la densité électronique dans la même région 110 fs plus tard : on voit que la période de l'onde plasma diminue au cours du temps comme attendu par la théorie. La période continue à diminuer au cours du temps comme le montre les 2 figures du bas, et les simulations montrent que l'injection des électrons commence 220 fs après le passage de l'impulsion laser dans le gradient de sortie. Les électrons sont donc injectés loin derrière l'impulsion laser, et ils n'interagissent jamais avec elle.

On représente sur la figure 4.11 la densité électronique lorsque l'injection débute dans l'espace (x,z) sur le panel (a), ainsi que l'énergie des électrons en fonction de leur position dans le gradient au même instant. On voit que plusieurs paquets d'électrons quittent le jet de gaz : les simulations montrent que l'injection se fait dans plusieurs arches de l'onde plasma, et que le paquet d'électrons a une durée totale d'environ 60 fs lorsque l'injection se termine.

Le mécanisme d'accélération est bien compris grâce aux simulations, mais il reste encore à comprendre pourquoi la distribution transverse varie autant d'un jour à l'autre, comme illustré sur les figures 4.8 (c)-(e). Pour le comprendre, on va s'intéresser à la propagation du laser autour du foyer.

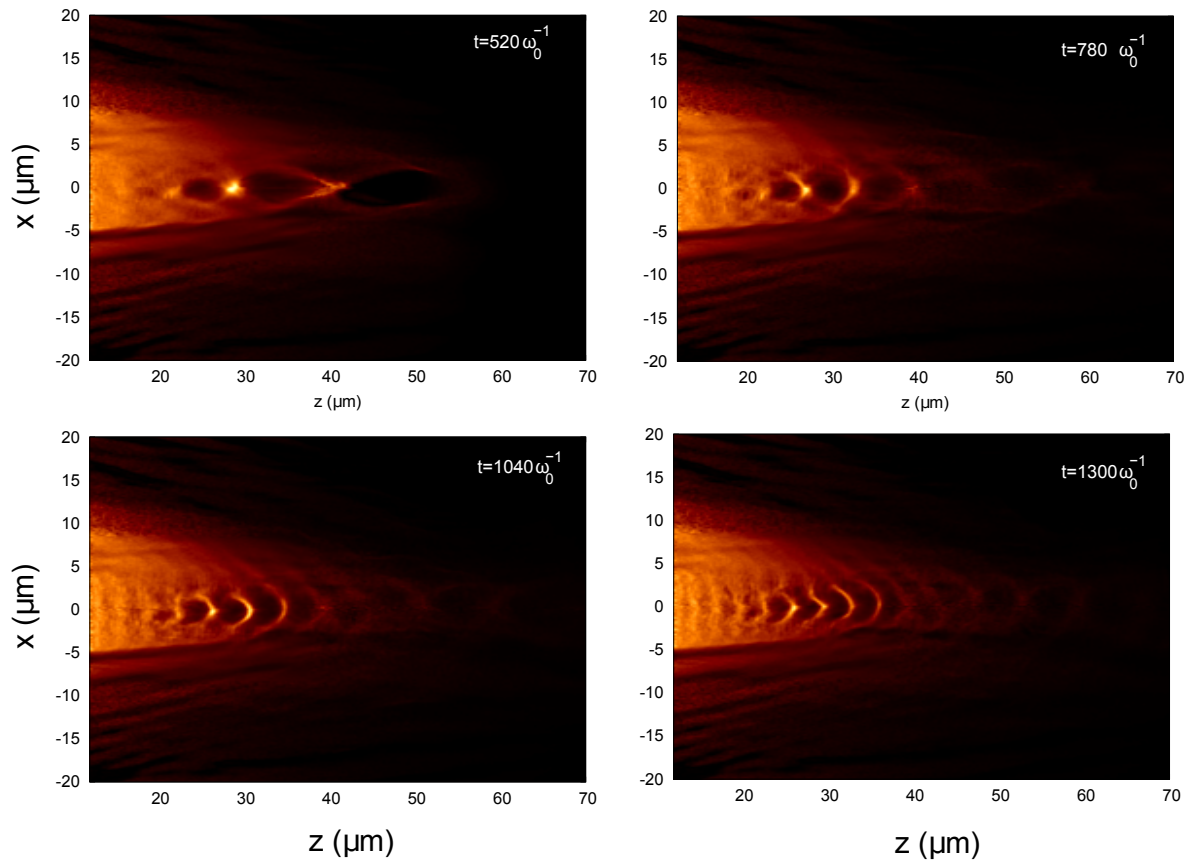


FIGURE 4.10 – Cartes de la densité électronique dans le gradient de sortie à différents instants provenant d'une simulation PIC faites avec des paramètres laser et plasma expérimentaux.

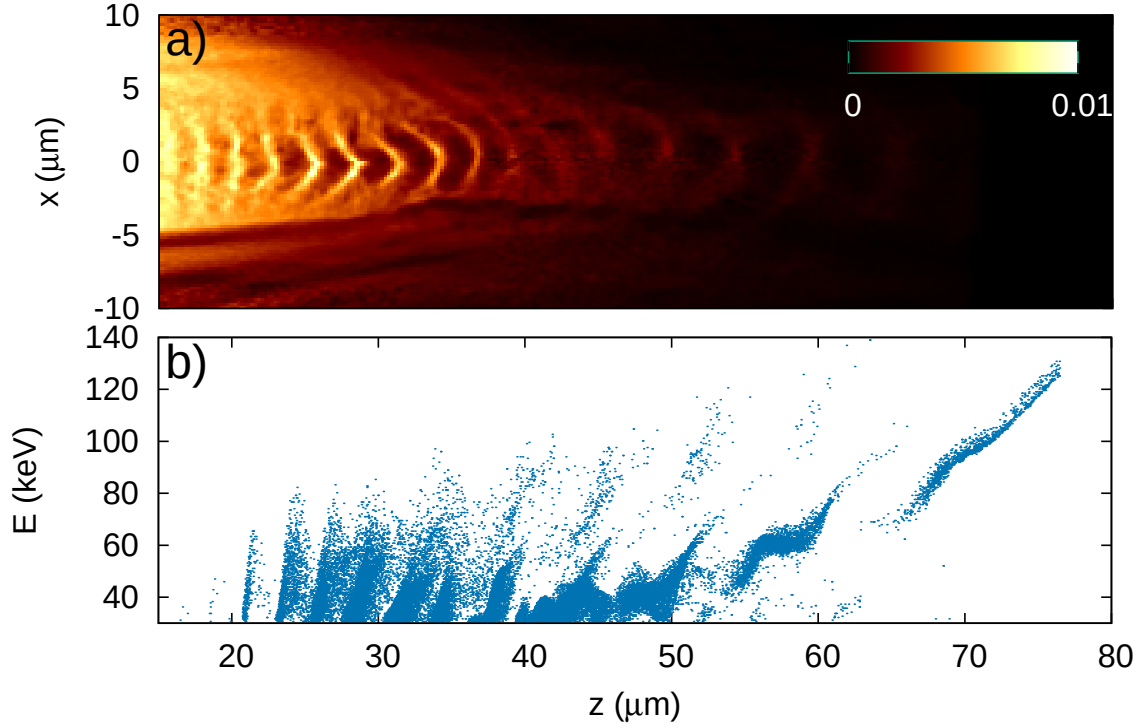


FIGURE 4.11 – a) Carte de la densité électronique dans le gradient de sortie lorsque l'injection des électrons dans l'onde plasma commence. b) Énergie des électrons en fonction de leur position longitudinale au même instant.

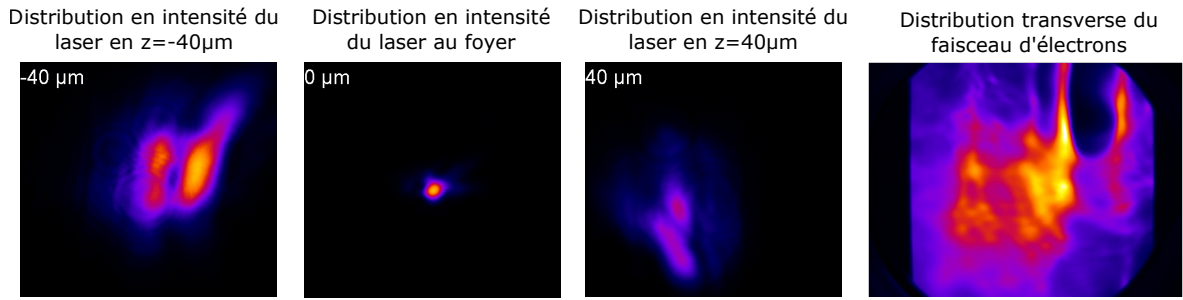
4.3.4 Propagation du laser et mesure du front d'onde

Lorsqu'on alignait le miroir parabolique au quotidien, il était frappant de voir à quel point la distribution transverse de l'intensité laser était différente de jour en jour dans le champ intermédiaire, alors que la tache focale restait similaire avec un waist $W_0 \approx 2 \mu\text{m}$. Cela est représenté sur la figure 4.12 : la répartition de l'énergie dans le champ intermédiaire varie beaucoup d'un jour à l'autre alors que le miroir parabolique était aligné correctement, et la distribution du faisceau d'électrons est également très différente d'un jour à l'autre. Il apparaît également que la distribution de l'intensité laser dans le champ intermédiaire ne suit pas une loi de distribution gaussienne. On souhaitait donc modéliser les inhomogénéités transverses de l'impulsion laser afin de les prendre en compte dans les simulations numériques avec le code PIC Calder-Circ [14], et ainsi étudier leur effet sur l'accélération d'électrons. Ce code quasi-3D basé sur les coordonnées cylindriques (r, z) et sur une décomposition en série de Fourier dans la direction poloïdale nécessite de modéliser le champ laser sous la forme $E_L(r, \theta, z, t)$. On va pouvoir prendre en compte les déformations du front d'onde laser en modifiant l'équation 3.11 :

$$E(r, \theta, z, t) = \sqrt{I_{0, \text{mesuré}}} \frac{w_0}{w(z)} \exp\left(-ik_0 \frac{r^2}{2R(z)}\right) \exp\left(-2 \ln 2 \frac{(z - ct)^2}{c^2 \tau_0^2}\right) \exp(i(k_0 z - \omega_0 t + \phi(r, \theta, z))) \mathbf{u}_x \quad (4.4)$$

On modélise l'impulsion laser par une impulsion dont la distribution temporelle est

Jours 1 :



Jours 2 :

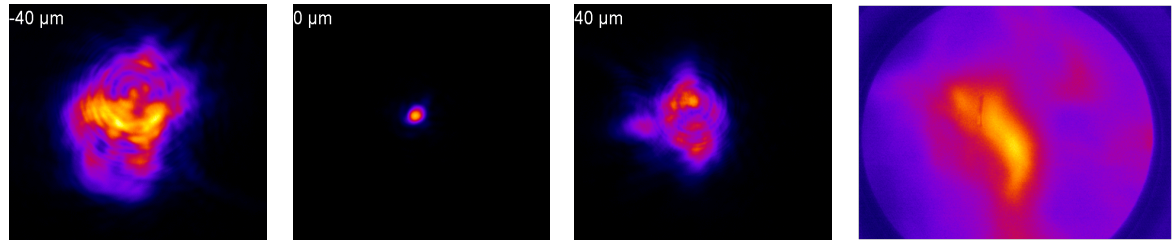


FIGURE 4.12 – Distribution transverse de l'intensité laser mesurée 2 jours différents au foyer et dans le champ intermédiaire à $z = \pm 40 \mu\text{m}$ autour du foyer. A droite sont représentés des profils typiques des faisceaux d'électrons accélérés avec le profil laser correspondant.

gaussienne, le profil d'intensité au foyer est donné par le profil expérimental, et dont les distorsions du front d'onde apparaissent à travers le terme de phase $\phi(r, \theta, z)$. Avec cette représentation, la connaissance du front d'onde $\phi_0(r, \theta, z = 0)$ au foyer permet de calculer le champ laser en tout point de l'espace simplement en propageant numériquement l'impulsion.

Le front d'onde laser expérimental a été retrouvé grâce à un algorithme basé sur l'algorithme de Gercheberg-Saxton [15], qui permet de retrouver le front d'onde à partir de la distribution en intensité dans 2 plans différents. Le principe de cet algorithme itératif développé au LOA par Agustin Lifschitz est présenté sur la figure 4.13. On ajoute à l'intensité mesurée dans le premier plan la phase théorique qu'aurait le faisceau s'il était gaussien. Dans notre cas, la phase serait plate au foyer de la parabole (images de gauche). On calcule ensuite l'intégrale de propagation sur une distance L connue, donnant l'amplitude et la phase dans le second plan dans lequel on a fait une mesure du profil de l'intensité. La propagation numérique repose sur le principe de la décomposition en onde plane, que l'on détaille au chapitre 6. On garde ensuite la phase calculée à laquelle on ajoute l'intensité provenant de la mesure dans le second plan, et on calcule une nouvelle fois l'intégrale de propagation pour revenir dans le plan initial. Gerchberg et Saxton ont montré qu'après plusieurs itérations, la phase converge vers la valeur "réelle" du front d'onde.

La figure 4.14 valide cet algorithme pour la mesure du front d'onde laser. Les 3 profils du haut correspondent au profil d'intensité en $z = -2z_R$ à gauche, au foyer au milieu et en $z = +2z_R$ à droite. On voit que les profils mesurés sont très proches des profils retrouvés représentés en dessous. Les 3 profils du bas montrent le résultat de la propagation pour une impulsion dont la distribution d'intensité au foyer correspond à la distribution mesurée,

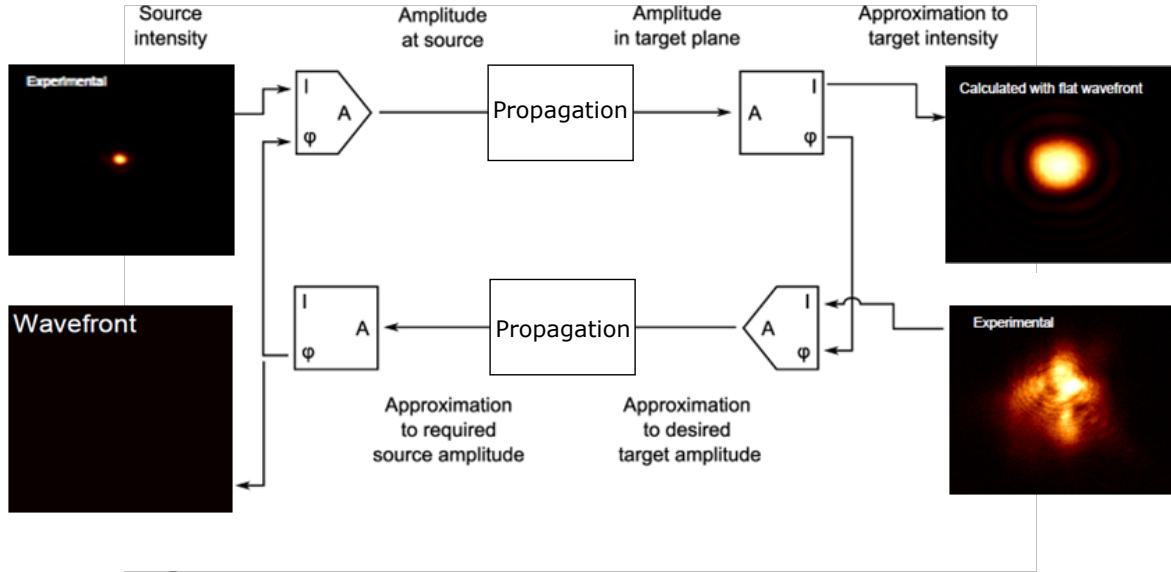


FIGURE 4.13 – Schéma de principe de l'algorithme itératif de Gerchberg-Saxton permettant de retrouver la phase laser à partir des profils d'intensité mesurés dans 2 plans : à gauche au foyer et à droite après 40 μm de propagation.

mais dont le front d'onde dans le plan focal est plat. Avec la phase plate, l'intensité dans le champ intermédiaire est élevée et le profil reste très symétrique, ce qui ne correspond pas aux données expérimentales.

L'algorithme de Gerchberg-Saxton ayant permis de calculer le front d'onde laser, nous sommes maintenant en mesure de réaliser des simulations numériques permettant d'étudier l'effet du front d'onde dans les expériences d'accélération d'électrons.

4.3.5 Effet du front d'onde dans un accélérateur laser-plasma

L'énergie et la durée de l'impulsion laser dans les simulations PIC correspondent aux valeurs expérimentales, l'intensité au foyer atteignant $I_L = 3 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$. Le laser est focalisé dans le gradient de sortie d'un jet d'azote dont le profil correspond à celui de la figure 4.8 lorsque les atomes sont ionisés jusqu'à N^{5+} selon le modèle ADK (Ammosov-Delone-Krainov) [16, 17]. Les effets non-relativistes comme l'effet Kerr ne sont pas pris en compte dans la simulation car le seuil d'ionisation pour le premier électron $I_{N+} = 1.7 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ reste très faible par rapport à l'intensité laser, même à l'entrée du jet de gaz où l'intensité est plus faible. Ainsi, ce sont toujours les pieds de l'impulsion qui vont interagir avec le gaz non ionisé.

La figure 4.15 représente les résultats de 3 simulations qui diffèrent du fait du champ laser implémenté, et on va s'intéresser à l'effet du champ transverse de l'onde plasma $E_{\perp} = \sqrt{E_x^2 + E_y^2}$ sur la distribution du faisceau d'électrons. La simulation incluant le front d'onde laser retrouvé, Fig. 4.15 (a), montre que le champ transverse dans l'onde plasma est très asymétrique et que la distribution du faisceau d'électrons est complexe et similaire aux distributions expérimentales, avec des points chauds et des régions avec peu d'électrons. La simulation avec la même tache focale mais un front d'onde plan 4.15 (b)

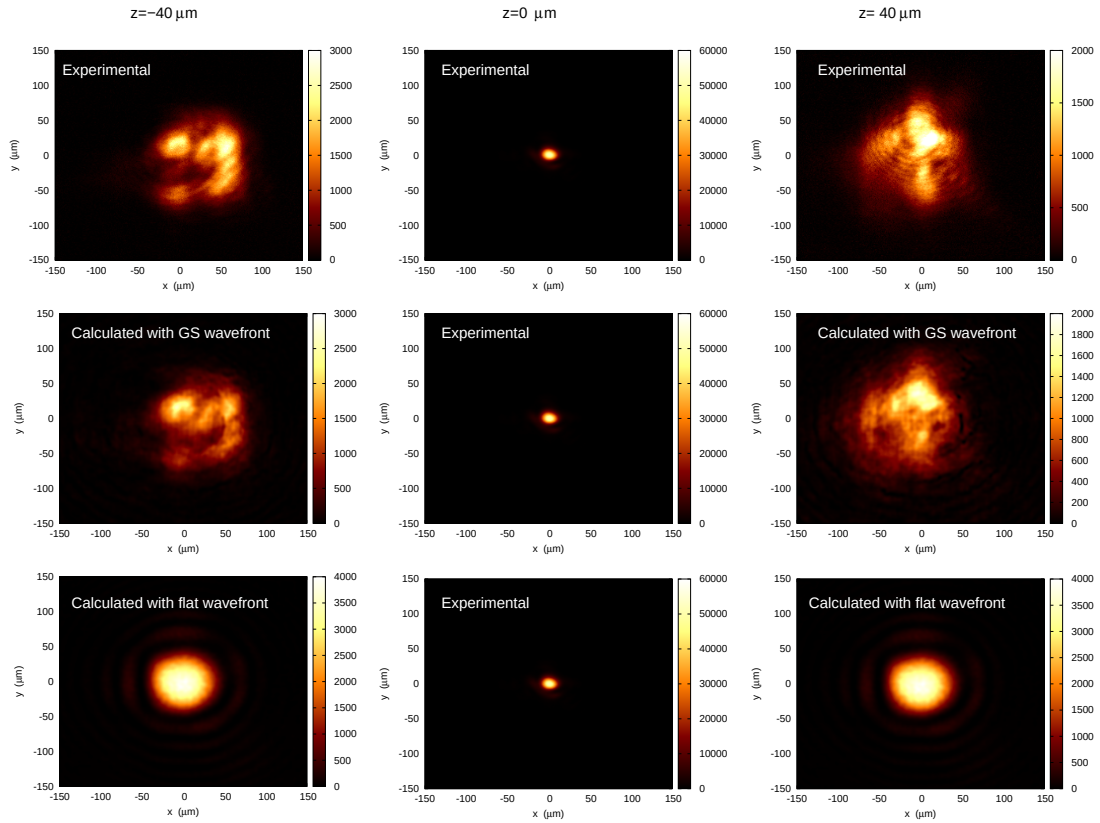
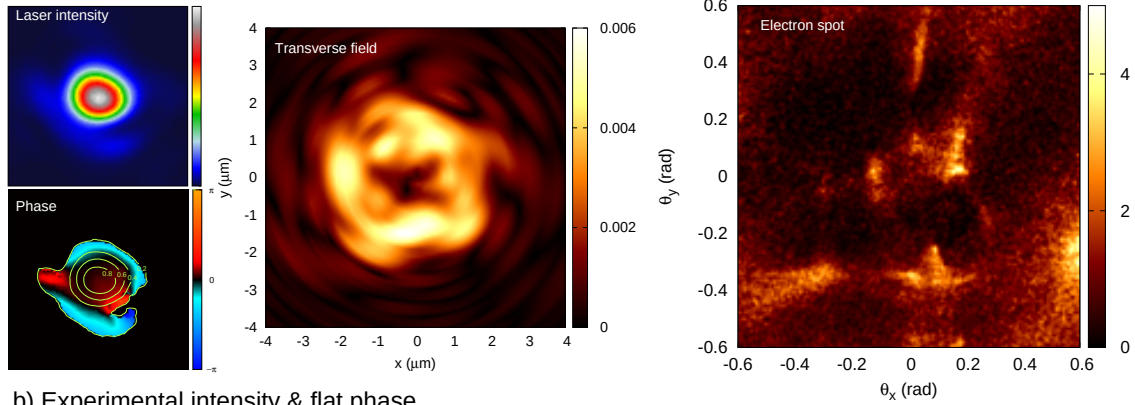
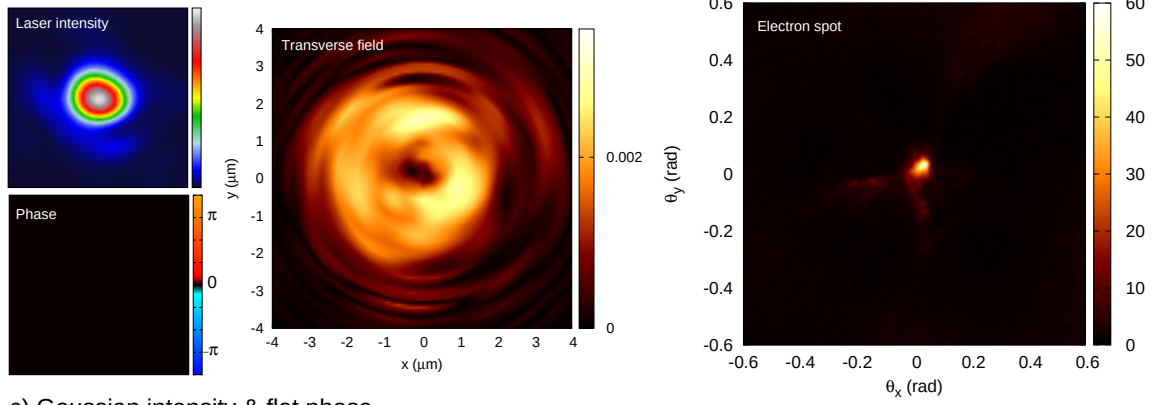


FIGURE 4.14 – Panel du haut : images expérimentales de l'intensité laser en $z = -2z_R$, $z = 0$ et $z = 2z_R$. Panel du milieu : distribution de l'intensité laser reconstruite grâce à l'algorithme de Gerchberg-Saxton appliqué aux images expérimentales. Panel du bas : intensité laser reconstruite à partir de la distribution et foyer et avec une phase plate.

a) Experimental intensity & reconstructed phase



b) Experimental intensity & flat phase



c) Gaussian intensity & flat phase

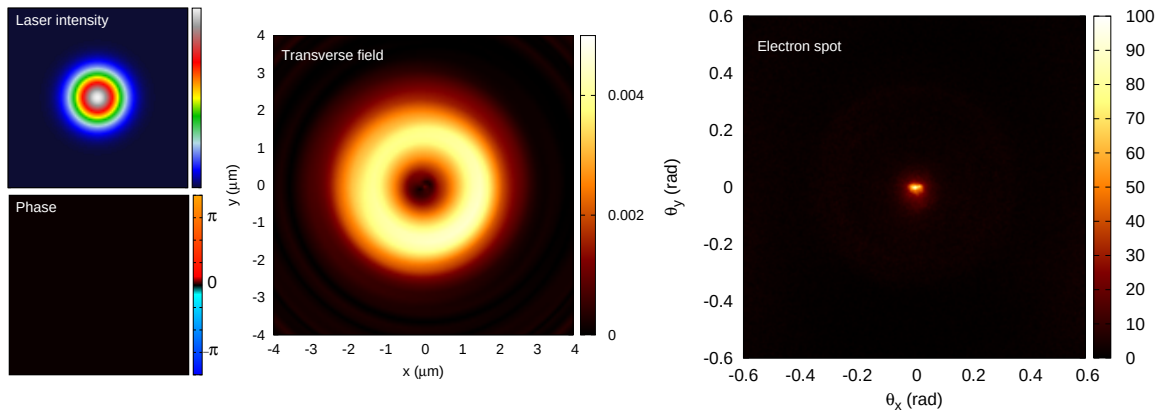


FIGURE 4.15 – Résultats de simulations PIC faites avec différents profils laser : a) tache focale et front d'onde expérimentaux, b) tache focale expérimentale mais front d'onde plan, c) gaussienne parfaite. Colonne de gauche : Intensité et front d'onde au foyer. Colonne du milieu : coupe du champ transverse dans l'onde plasma $E_{\perp}/E_p$ à $t = 0.6\text{ps}$ et pour $z=28\mu\text{m}$. Colonne de droite : Distribution transverse du faisceau d'électrons loin du jet de gaz.

montre que le champ transverse est beaucoup plus symétrique, et par conséquent la distribution d'électrons est assez bien collimatée. Dans le cas d'une impulsion laser parfaitement gaussienne 4.15 (c), le champ transverse est parfaitement symétrique et la distribution d'électrons très bien collimatée. Les 3 simulations donnent des charges électroniques de ~ 40 fC environ, mais la forme de la distribution transverse est profondément différente. Dans le cas du front d'onde plan, le faisceau d'électrons a un angle solide de divergence ≤ 0.05 sr qui est très faible comparé à la simulation avec le front d'onde retrouvé, pour laquelle la divergence du faisceau est de ~ 0.6 sr. Ces simulations indiquent que les champs transverses agissent comment des optiques focalisantes ou défocalisantes pour les électrons, produisant ainsi les distributions complexes que l'on observe expérimentalement. Ces résultats montrent également qu'il est possible d'améliorer significativement la qualité du faisceau d'électrons en contrôlant les inhomogénéités transverses de l'impulsion laser sur la longueur d'accélération, *i.e.* sur quelques longueurs de Rayleigh.

4.3.6 Stabilité de la source

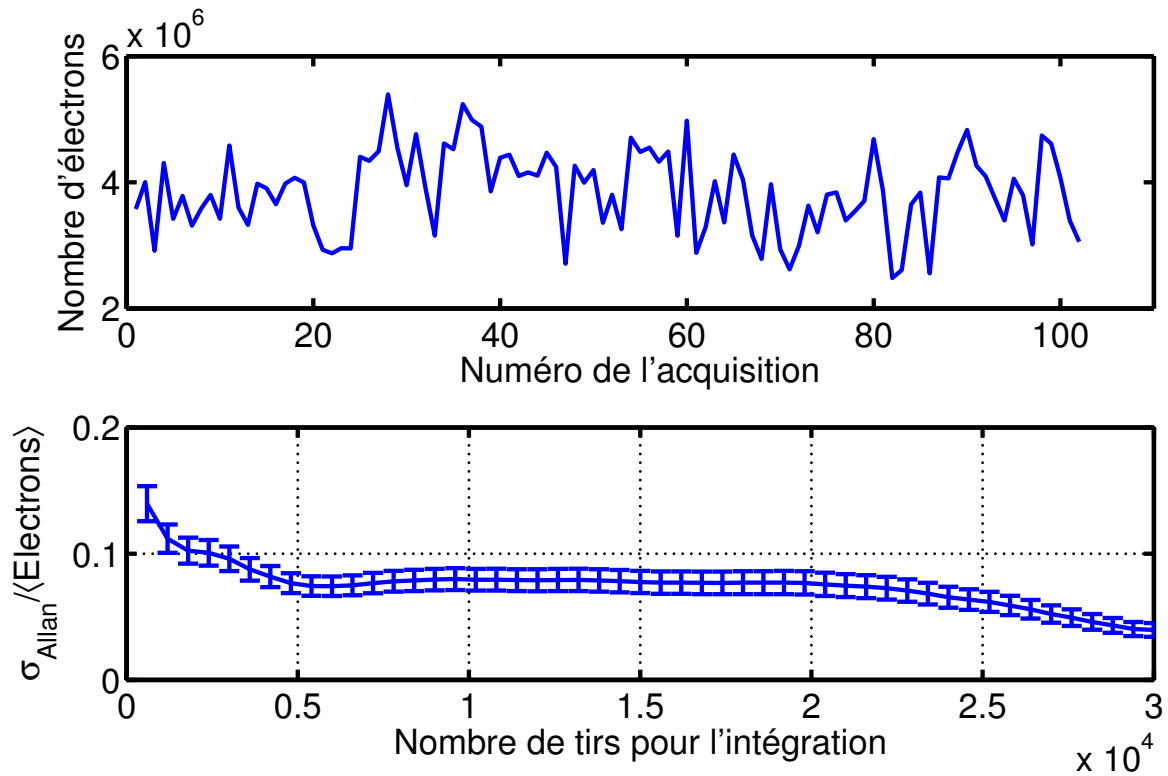


FIGURE 4.16 – Étude de la stabilité de la source.

Nous allons maintenant nous intéresser à la stabilité de cette source d'électrons. Pour cela, nous avons réalisé 102 acquisitions consécutives de la distribution électronique dans les mêmes conditions, chacune étant moyennée sur 600 tirs laser (0.6 s). Lorsque nous avons fait ces mesures, nous avons enlevé la fibre creuse en sortie de la chaîne laser. Nous avons alors plus d'énergie, $E \sim 4$ mJ sur cible, mais le front d'onde était davantage aberrant. En effet, le nombre d'électrons mesuré par acquisition est représenté sur la fi-

gure 4.16 : la charge par tir est d'environ 1 fC seulement contre 20 fC pour les mesures précédentes, et cette différence s'explique probablement par les aberrations du front d'onde laser.

A partir des 102 acquisitions intégrées sur $t_0 = 0.6s$, nous avons calculé la variance d'Allan de cette série, qui consiste à calculer la variance de la distribution pour des durées d'intégration multiples de t_0 . Il est alors possible de quantifier la stabilité de la source à différentes échelles de temps. L'écart-type d'Allan normalisé par le nombre moyen d'électrons est représenté sur la figure 4.16. Il est intéressant de voir que la stabilité en charge de la source passe d'environ 14 % lorsqu'on intègre la distribution électronique sur $t_0 = 0.6s$ à 5 % en intégrant sur $50t_0 = 30s$. On voit aussi que l'écart-type d'Allan diminue lorsqu'on augmente le temps d'intégration, ce qui traduit la stabilité de la source laser à ces échelles de temps.

Pour comparaison, nous avons utilisé en 2012 et 2013 la source laser-plasma du *Center for Ultrafast Optical Science* (CUOS) au Michigan pour une expérience de diffraction d'électrons. Cette source accélère des électrons dans le même régime, et nous avons estimé la stabilité en charge de la source à 14 % rms tir à tir, et ces fluctuations chutaient à 8 % rms en intégrant sur 10 tirs [18]. On peut probablement imputer la moins bonne stabilité de notre source à l'absence de la fibre creuse, sans laquelle on observait que la distribution en intensité du laser "bougeait" légèrement au cours du temps. L'accélération d'électrons étant un processus fortement non-linéaire, de légères fluctuations de l'intensité laser causent de fortes fluctuations sur le paquet d'électrons accélérés.

4.3.7 Expériences d'accélération d'électrons avec 2 jets de gaz

Enfin, nous allons présenter les résultats d'une expérience dont l'objectif était de "réaccélérer" les électrons dans un second jet de gaz. Une expérience similaire a été réalisée dès 2005, lors de laquelle des électrons ont été accélérés dans un premier jet de gaz à 2 MeV par une impulsion laser de 2 TW, puis jusqu'à 20 MeV grâce à une seconde impulsion laser de 10 TW qui générerait une onde plasma dans un deuxième jet de gaz positionné juste derrière le premier [19]. Comme nous ne disposons pas d'une seconde impulsion assez intense pour générer une onde plasma avec le laser de la Salle Noire, nous avons installé un second jet de gaz juste après le premier dans lequel la même impulsion laser va exciter une onde plasma.

La figure 4.17 (a) représente la géométrie de focalisation que nous avons mise en place pour cette expérience. Le montage expérimental est le même que précédemment, nous avons simplement ajouté un second jet de gaz de diamètre 200 μm après le plan focal laser. Les électrons accélérés dans le gradient de sortie du premier jet de gaz $\Phi_1 = 100 \mu m$, pourront alors être accélérés davantage dans l'onde plasma générée dans le second jet $\Phi_2 = 200 \mu m$. Nous avons optimisé dans un premier temps la position et la densité électronique au niveau du premier jet de gaz afin de maximiser la charge injectée. La distribution transverse mesurée pour une densité pic $n_e \simeq 2.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ est représentée sur

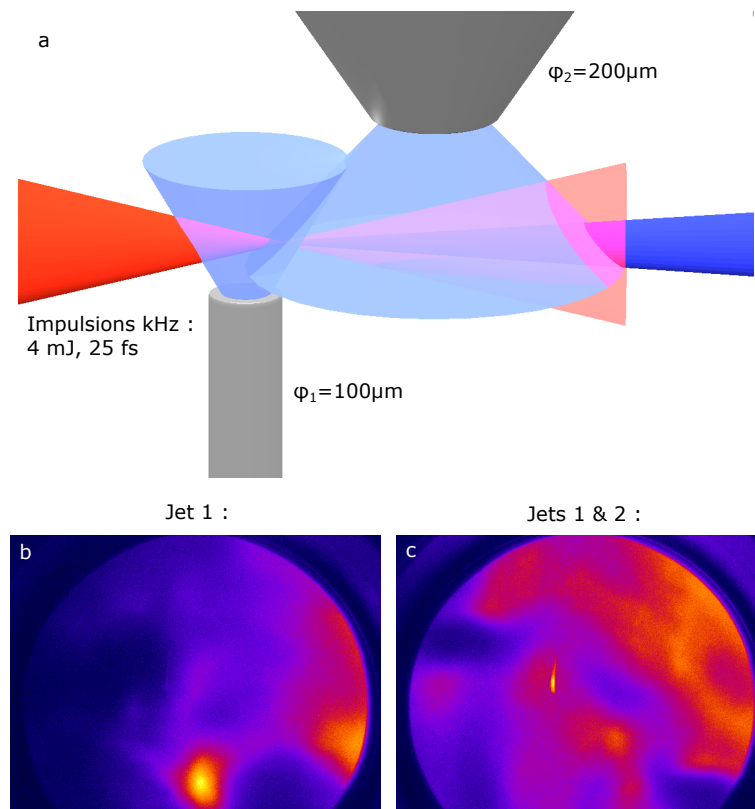


FIGURE 4.17 – a) Installation du second jet de gaz de diamètre $\phi_2 = 200\mu\text{m}$ après le premier capillaire de diamètre $\phi_1 = 100\mu\text{m}$. b) Distribution électronique transverse mesurée avec le premier jet de gaz (Azote) uniquement. c) Distribution électronique transverse mesurée avec les 2 jets de gaz (Azote).

la figure 4.17 (b), et la charge accélérée vaut $Q_1 = 1.2 \text{ fC/tir}$. Nous avons ensuite optimisé la position et la densité au niveau du second jet de gaz afin de maximiser à nouveau la charge électronique.

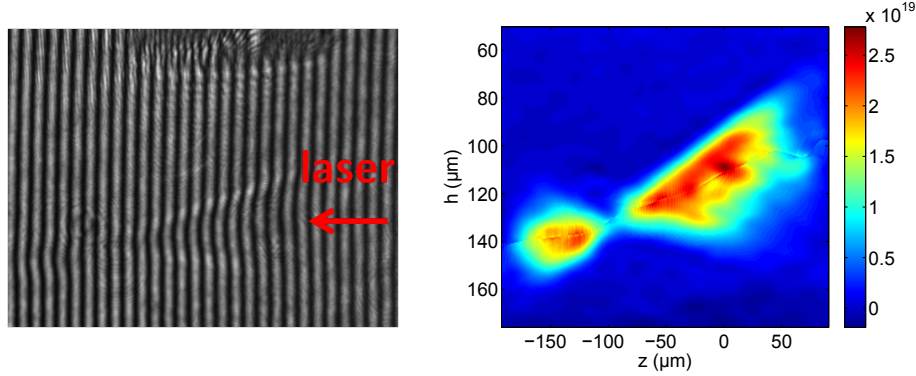


FIGURE 4.18 – Interférogramme et carte de la densité électronique mesurée avec les 2 jets de gaz. On ne peut voir que l'ombre du capillaire sur l'interférogramme (en haut), le second jet de diamètre $\Phi_2 = 200 \mu\text{m}$ étant trop loin par rapport à l'axe de propagation du laser.

La figure 4.18 représente l'interférogramme mesurée lorsqu'on alimente les 2 jets de gaz, ainsi que la carte de densité électronique mesurée à partir de l'interférogramme. On voit nettement 2 plasmas distincts de part et d'autre du plan focal. Les électrons sont accélérés dans le gradient de sortie du premier plasma, à droite sur la figure, puis ils sont accélérés à nouveau dans le second plasma à gauche. La distribution transverse mesurée dans cette nouvelle configuration est représentée sur la figure 4.17 (c), et la charge électronique détectée au niveau du scintillateur vaut $Q_2 = 2.2 \text{ fC}$. De plus, nous ne détectons aucun électron si on alimente uniquement le second jet de gaz. On peut alors supposer que la charge électronique mesurée augmente dans le second jet de gaz car on accélère davantage d'électrons à une énergie supérieure à la limite de détection du scintillateur qui vaut 50 keV .

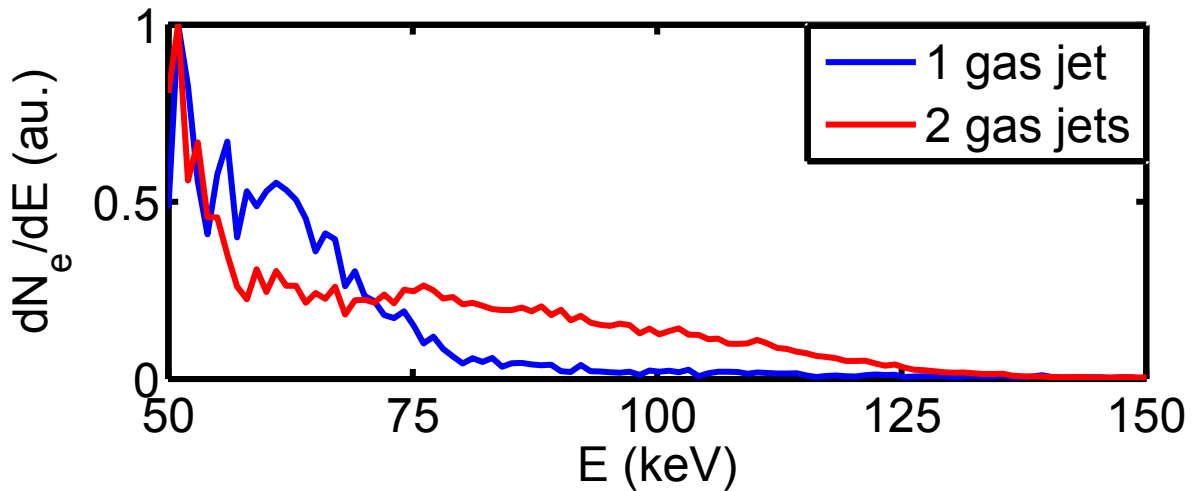


FIGURE 4.19 – Distribution en énergie des électrons accélérés dans le premier jet de gaz uniquement (bleu), et dans les 2 jets de gaz (rouge).

Nous avons mesuré l'énergie des électrons afin de valider qu'ils sont accélérés à plus haute énergie dans le second jet de gaz. Les spectres obtenus sont présentés sur la figure 4.19 : l'énergie maximale des électrons passe de 75 keV environ avec uniquement le premier jet de gaz, à 125 keV avec les deux jets.

Ces résultats, bien que préliminaires, sont encourageants pour la suite car ils peuvent être améliorés : les deux jets de gaz divergent trop ce qui rend très difficile de contrôler le profil global du jet. Il serait donc particulièrement intéressant de savoir contrôler le profil du jet de gaz afin de découpler la partie injection de l'accélération des électrons. Un profil adapté serait formé d'un pic de densité dans lequel les électrons seraient injectés, suivi d'un plateau de densité de longueur comparable à la longueur de Rayleigh du laser. Nous sommes en train d'étudier la possibilité d'usiner des jets de gaz de diamètre $\phi < 100 \mu\text{m}$ dont l'écoulement serait supersonique, ce qui permettrait de séparer l'injection de l'accélération des électrons.

4.4 Conclusion et perspectives

Les expériences que nous avons réalisées ont permis de mettre en évidence l'effet du front d'onde dans les accélérateurs laser-plasma à haut taux de répétition. Ces travaux montrent l'importance d'utiliser des distributions laser réelles dans les simulations afin de reproduire quantitativement les résultats expérimentaux. De plus, ces expériences nous ont permis d'identifier les éléments qu'il faudrait améliorer pour les expériences à venir. En effet, nous envisageons maintenant d'installer un miroir déformable avant le miroir parabolique afin de contrôler le front d'onde laser. Ce composant serait d'autant plus intéressant que, au kHz, il est possible d'optimiser en temps réel la tache focale laser ou même directement la charge électronique avec un algorithme génétique [10]. De plus, il serait intéressant d'étendre l'étude du front d'onde laser à l'accélération d'électrons dans le régime de la bulle. En effet, les inhomogénéités de l'impulsion laser dans le champ intermédiaire peuvent affecter l'accélération d'électrons dès lors que la puissance contenue dans des "points chauds" serait suffisante pour que des sous-parties de l'impulsion s'auto-focalisent indépendamment. Cette hypothèse pourrait être étudiée grâce à la méthode que nous avons établie permettant de prendre en compte les aberrations du front d'onde dans des simulations PIC [20].

Enfin, les résultats préliminaires sur l'accélération avec 2 jets de gaz ont mis en évidence l'importance de contrôler le profil du jet de gaz. Avec des systèmes laser plus énergétiques, pour lesquelles l'accélération a lieu sur une échelle millimétrique, une amélioration significative de la qualité du faisceau d'électrons a été apportée en séparant l'injection de l'accélération [19, 21, 22, 23, 24]. Il serait donc intéressant d'appliquer ces méthodes pour des distances d'accélération inférieures à la centaine de micromètres, mais il reste à fournir un effort pour arriver à contrôler le profil de densité provenant de jets d'aussi petites tailles.

4.5 Références

- [1] J. Faure et al. A laser-plasma accelerator producing monoenergetic electron beams. *Nature*, 431 :541–544, 2004. [57](#)
- [2] D. Strickland et al. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 56(3) :219–221, 1985. [58](#)
- [3] A. Jullien et al. 10^{-10} temporal contrast for femtosecond ultraintense lasers by cross-polarized wave generation. *Optics Letters*, 30(8) :920–922, 2005. [58](#)
- [4] Y. Glinec et al. Absolute calibration for a broad range single shot electron spectrometer. *Rev. Sci. Instrum.*, 77 :103301, 2006. [63](#)
- [5] S. C. Rae. Ionization-induced defocusing of intense laser pulses in high-pressure gases. *Optics Communications*, 97(1) :25–28, 1993. [63](#)
- [6] J. Primot et al. Extended hartmann test based on the pseudoguiding property of a hartmann mask completed by a phase chessboard. *Applied Optics*, 39(31) :5715–5720, 2000. [64](#)
- [7] P. Bon et al. Quadriwave lateral shearing interferometry for quantitative phase microscopy of living cells. *Optics Express*, 17(15), 2009. [64](#)
- [8] V. Lorient et al. Measurement of high order kerr refractive index of major air components. *Optics Express*, 17(16), 2009. [66](#)
- [9] Z. H. He et al. High repetition-rate wakefield electron source generated by few-millijoule, 30 fs laser pulses on a density downramp. *New Journal of Physics*, 15, 2013. [68](#)
- [10] Z. H. He et al. Coherent control of plasma dynamics. *Nature Communications*, 6, 2015. [68](#), [83](#)
- [11] T. Oksenhendler et al. Self-referenced spectral interferometry. *Applied Physics B*, 2010. [68](#)
- [12] G. Malka, E. Lefebvre, and J. L. Miquel. Experimental observation of electrons accelerated in vacuum to relativistic energies by a high-intensity laser. *Phys. Rev. Lett.*, 78 :3314–3317, Apr 1997. [71](#)
- [13] A. Pukhov, Z.-M. Sheng, and J. Meyer-ter Vehn. Particle acceleration in relativistic laser channels. *Physics of Plasmas*, 6(7) :2847–2854, 1999. [71](#)
- [14] A. F. Lifschitz et al. Particle-in-cell modelling of laser–plasma interaction using fourier decomposition. *Journal of Computational Physics*, 228 :1803–1814, 2009. [74](#)

- [15] R. W. Gerchberg et al. A practical algorithm for the determination of phase from image and diffraction plane pictures. *Optik*, 35(2) :237–246, 1972. [75](#)
- [16] M. V. Ammosov et al. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, 64, 1986. [76](#)
- [17] R. Nuter et al. Field ionization model implemented in particle in cell code and applied to laser-accelerated carbon ions. *Physics of Plasmas*, 18, 2011. [76](#)
- [18] Z.-H. He, A. G. R. Thomas, B. Beaurepaire, J. A. Nees, B. Hou, V. Malka, K. Krushelnick, and J. Faure. Electron diffraction using ultrafast electron bunches from a laser-wakefield accelerator at khz repetition rate. *Applied Physics Letters*, 102(6), 2013. [80](#)
- [19] D. Kaganovich, A. C. Ting, D. F. Gordon, T. G. Jones, A. Zigler, R. F. Hubbard, and P. Sprangle. Generation of high-energy electrons in a double gas jet and laser wake-field acceleration. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 33(2) :735–738, April 2005. [80](#), [83](#)
- [20] B. Beaurepaire et al. Effect of the laser wave front in a laser-plasma accelerator. *Phys. Rev. X*, 5, 2015. [83](#)
- [21] C. McGuffey et al. Ionization induced trapping in a laser wakefield accelerator. *Physical Review Letters*, 104, 2010. [83](#)
- [22] A. Pak et al. Injection and trapping of tunnel-ionized electrons into laser-produced wakes. *Physical Review Letters*, 104, 2010. [83](#)
- [23] J. Faure et al. Controlled injection and acceleration of electrons in plasma wakefields by colliding laser pulses. *Nature*, 444, 2006. [83](#)
- [24] C. Rechatin et al. Controlling the phase-space volume of injected electrons in a laser-plasma accelerator. *Physical Review Letters*, 102, 2009. [83](#)

Chapitre 5

Premières expériences de diffraction d'électrons - expériences au CUOS

« »

Auteur

Sommaire

5.1 Montage expérimental et caractérisation du faisceau d'électrons	87
5.2 Preuve de principe : première expérience de diffraction d'électrons sta- tique avec un accélérateur laser-plasma	91
5.3 Principe de l'expérience de diffraction résolue en temps	94
5.3.1 Montage permettant d'améliorer la résolution temporelle	94
5.3.2 Echantillon retenu pour l'expérience	95
5.3.3 Montage expérimental	98
5.4 Résultats et analyse de la stabilité de la source	100
5.4.1 Stabilité de la source d'électrons	100
5.4.2 Superposition temporelle pompe-sonde et calibration temporelle de la source	102
5.4.3 Diffraction d'électrons résolue en temps	104
5.5 Améliorations envisageables de l'expérience	109
5.6 Conclusions	110
5.7 Références	110

La thématique de recherche de nos collègues du *Center for Ultrafast Optical Science* (CUOS) à l'Université du Michigan est assez proche de la nôtre, et pour cette raison nous avons mis en place une collaboration entre les 2 groupes. Ils disposent d'une source d'électrons à 100 keV provenant d'un accélérateur laser-plasma fonctionnant dans un régime identique à celui que nous avons décrit dans le chapitre précédent [1]. Nous aborderons dans ce chapitre les résultats de 2 expériences réalisées au Michigan. La première expérience a permis de montrer que la qualité d'une telle source d'électrons est suffisante pour

les expériences de diffraction d'électrons statique. Il s'agissait d'une preuve de principe qui a validé l'emploi de ce type de source. Nous avons ensuite réalisé une seconde expérience, plus ambitieuse, afin d'explorer les possibilités d'utiliser la source pour des expériences de diffraction d'électrons résolue en temps.

5.1 Montage expérimental et caractérisation du faisceau d'électrons

Le système laser du Michigan, appelé λ^3 , délivre à 500 Hz des impulsions d'énergie $E_L \simeq 7 - 8$ mJ sur cible, et de durée $\tau = 35$ fs. Les impulsions de longueur d'onde centrale $\lambda_0 = 800$ nm sont focalisées sur un waist $W_0 = 2.5$ μ m avec une parabole hors-axe d'ouverture $f/2$ dans un jet de gaz similaire à celui décrit dans le chapitre précédent. La densité électronique du plasma, $n_e \simeq 10^{19}$ cm⁻³ dans les expériences, a été mesurée interférométriquement.

Un miroir déformable est implémenté sur ce système laser, ce qui leur a permis de démontrer expérimentalement que le front d'onde laser a un effet sur l'accélération d'électrons [2]. Un miroir déformable est un miroir dont la surface peut être légèrement déformée par une batterie d'actuateurs placés sur la face arrière. L'optimisation avec un miroir déformable se fait grâce à un algorithme génétique : dans un premier temps il faut définir un signal que l'on souhaite optimiser. Il peut s'agir de l'intensité laser, du nombre de comptes sur la caméra, etc ... On définit ensuite un critère pour donner une note au signal, de sorte que la note soit d'autant plus élevée que le signal est optimisé. On teste ensuite un ensemble de positions sur les actuateurs, appelé une génération, et on associe à chaque configuration (à chaque individu de la génération) une note. Pour chaque individu, on définit un gène comme une position d'un actuateur. On ne garde ensuite que les meilleurs individus de cette génération, qu'on appelle des *parents*. On construit alors une nouvelle génération constituée des parents ainsi que des enfants, dont chacun des gènes provient d'un des parents. Ce type d'algorithme permet d'explorer un grand nombre de configurations possibles pour les actuateurs, et ainsi de converger vers la meilleure configuration (ou du moins vers un maximum local).

Dans [1], He *et al.* montrent les différentes étapes de l'optimisation du faisceau d'électrons au Michigan, voir figure 5.1. La figure (a) représente la distribution transverse du faisceau d'électrons lorsque le miroir est dans la configuration "miroir plan". On reconnaît des structures complexes similaires à celles que nous avons mesurées dans le chapitre précédent. L'intensité laser a été optimisée au foyer de la parabole, en optimisant le signal doublé par un cristal de barium borate (BBO). On voit alors sur la figure (b) que 3 points chauds assez bien collimatés apparaissent sur le faisceau d'électrons. Lorsque l'algorithme génétique est lancé pour optimiser directement le signal électronique, on voit (figure (c)) que les électrons forment un faisceau intense dans une direction bien définie.

Cette optimisation de la charge électronique est très intéressante, car il est important que la charge soit suffisamment élevée pour mesurer les images de diffraction dans un temps raisonnable.

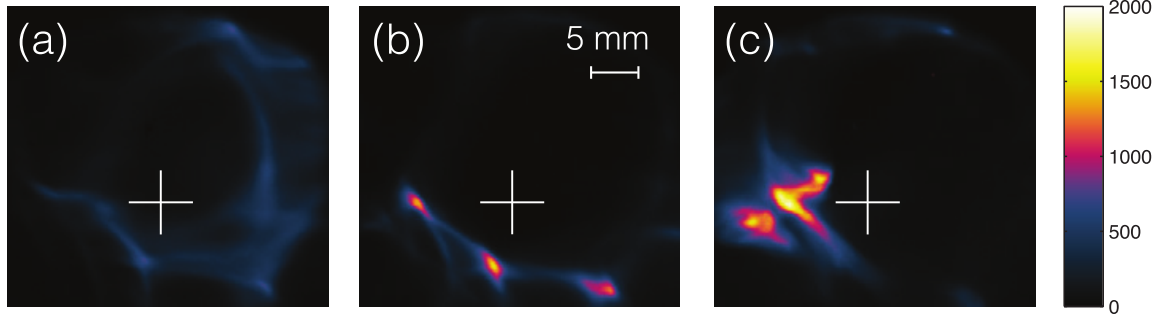


FIGURE 5.1 – Distributions transverses du faisceau électronique obtenues pour différentes configurations du miroir déformable, provenant de [1]. a) Miroir plan (intégrée sur 500 tirs). b) Optimisation de l'intensité laser au foyer (intégrée sur 500 tirs). c) Optimisation de la charge de la distribution électronique (intégrée sur 100 tirs).

La source d'électrons est représentée schématiquement sur la figure 5.2 pour les différentes mesures que nous avons réalisées. A l'aide du solénoïde, il est possible de focaliser le faisceau d'électrons sur le scintillateur, voir la figure 5.2 (a). Le panel (b) montre le dispositif permettant de mesurer l'énergie du faisceau d'électrons. Un trou de diamètre 500 μm est positionné à l'entrée de la lentille magnétique afin de réduire la divergence du faisceau, et ainsi d'améliorer la résolution du spectromètre constitué de 2 aimants permanents. Ce trou permet également de filtrer l'impulsion laser qui accélère les électrons et ainsi d'éviter de brûler l'échantillon. L'axe de ces composants a été aligné de telle sorte que le faisceau d'électrons optimisé (figure 5.1 (c)) passe à travers le trou.

Le faisceau d'électrons ainsi filtré est représenté sur la figure 5.3 (a) lorsque la lentille magnétique n'est pas alimentée, et sur le panel (b) lorsqu'on applique un courant pour focaliser le faisceau sur le scintillateur. Une coupe de la distribution transverse focalisée est représentée sur la figure 5.3 (c), et la largeur à mi-hauteur du faisceau est de $D = 280 \mu\text{m}$. Les mesures de l'énergie du faisceau d'électrons focalisé ou non sont reportées sur la figure 5.3 (d). La courbe verte correspond à la distribution en énergie normalisée du faisceau non focalisé, et la courbe bleue à l'énergie du faisceau focalisé. On voit que le faisceau non focalisé est piqué vers 65 keV alors que, lorsque la lentille magnétique est allumée, la distribution est piquée autour de 95 keV. En effet, la lentille magnétique est un élément chromatique qui ne permet de focaliser qu'une seule tranche d'énergie sur le scintillateur. Comme la sensibilité du scintillateur augmente avec l'énergie dans la région 50-100 keV (fréquence de coupure de 50 keV), on a tendance à focaliser les plus hautes énergies lorsqu'on optimise le nombre de comptes détectés sur la caméra en jouant sur le courant dans la lentille. Les barres d'erreurs correspondent à la résolution du spectromètre, qui est d'autant plus faible que l'énergie des électrons est élevée car les électrons

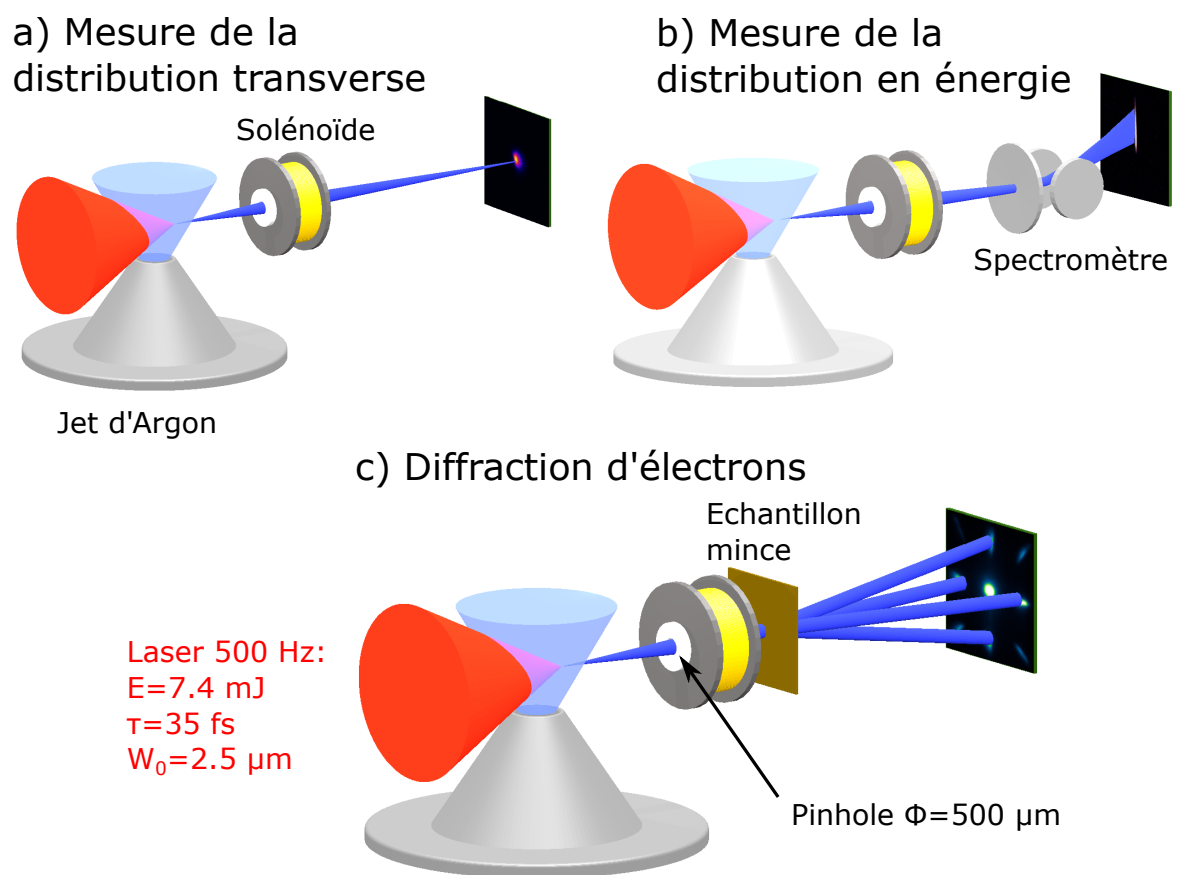


FIGURE 5.2 – Schéma du dispositif expérimental permettant de : a) Mesurer la distribution transverse du faisceau d'électrons au foyer du solénoïde, b) mesurer l'énergie des électrons, et c) faire des expériences de diffraction d'électrons (statique).

très énergétiques sont peu déviés par les aimants permanents.

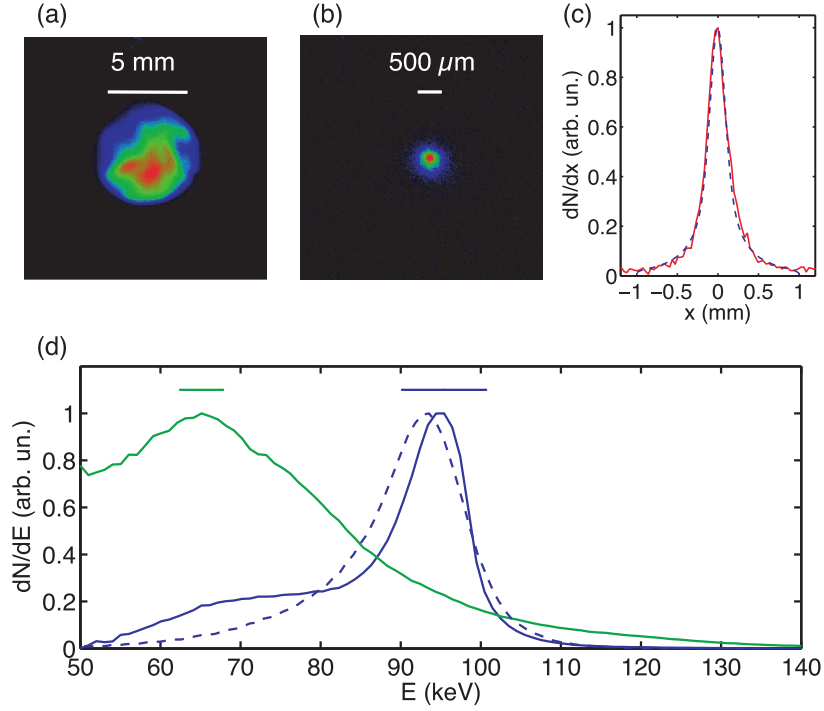


FIGURE 5.3 – Distribution transverse du faisceau d'électrons filtré par le pinhole lorsque le solénoïde est éteint (a) et lorsqu'il est allumé (b). c) En rouge : coupe de la distribution transverse du faisceau focalisé par le solénoïde, en bleu pointillé le résultat d'un fit réalisé avec le code GPT. d) Spectres électroniques lorsque le solénoïde est éteint (vert) et lorsqu'il est allumé (bleu). Le spectre bleu pointillé représente le spectre modélisé avec le code GPT lorsque le faisceau est focalisé par le solénoïde. La résolution en énergie du spectromètre est indiquée par les barres en haut.

La propagation du faisceau d'électrons à travers tous les éléments a été modélisée avec le code "general particle tracer" (GPT), qui permet de simuler le transport de faisceaux d'électrons en tenant compte de champs magnétiques externes, éventuellement de la charge d'espace du faisceau d'électrons, etc [3]... A partir de l'énergie du faisceau d'électrons, sa divergence depuis le jet de gaz jusqu'au trou de filtrage placé avant la lentille magnétique ainsi que du champ magnétique engendré par la lentille, ce code permet d'estimer la taille transverse du faisceau au niveau du plasma qui reproduit au mieux la distribution transverse mesurée sur le scintillateur (figures 5.3 (b)-(c)). La distribution du faisceau peut être reproduite par le code GPT à partir d'une distribution transverse initiale gaussienne de rayon rms $\sigma_r = 15 \mu\text{m}$, ce qui donne une émittance transverse de $\epsilon_N = 2 \times 10^{-2} \text{ mm.mrad}$. Le profil provenant des simulations représenté sur la figure 5.3 (c) en bleu pointillé reproduit très bien la mesure. La distribution en énergie au foyer de la lentille magnétique, représentée en bleu pointillé sur la figure 5.3 (d) est également très bien reproduite.

Des mesures de charge et de stabilité ont permis d'estimer les caractéristiques suivantes pour la source focalisée :

- Energie centrale : $E = 95 \text{ keV}$; dispersion en énergie : $\delta E/E = 7.5 \%$.

- Charge : 3×10^4 électrons/paquet $\equiv 4.5$ fC/paquet (intégrée sur $2\sigma_{rms}$).
- Fluctuations de la charge : 14 % rms tir à tir, 8 % rms lorsque les images sont intégrées sur 10 tirs.
- Stabilité de pointé du faisceau : $< 400 \mu\text{rad}$.
- Emittance transverse normalisée : $\epsilon_N = 2 \times 10^{-2}$ mm.mrad (calculée à partir du rayon $\sigma_r = 15 \mu\text{m}$ retrouvée par le code GPT).
- Longueur de cohérence transverse : $L_{\perp} = \hbar D / m c \epsilon_N = 5$ nm.

Les propriétés de la source, notamment sa longueur de cohérence transverse élevée et sa stabilité semblent être suffisamment bonnes pour des expériences de diffraction.

5.2 Preuve de principe : première expérience de diffraction d'électrons statique avec un accélérateur laser-plasma

La première expérience de diffraction que nous avons réalisée avec cette source a montré qu'il est possible de mettre en évidence des anneaux de diffraction sur un échantillon polycristallin d'Aluminium d'épaisseur 10 nm. Dans un second temps, nous avons montré que les figures de diffraction obtenues avec cette source sur un échantillon d'or monocristallin peuvent être d'une qualité similaire à celles obtenues avec une source conventionnelle. Je n'ai personnellement participé qu'à l'expérience de diffraction sur l'or. La diffraction sur l'Aluminium, dont la structure cristalline est cubique à face centrée, n'est possible que sur les plans dont les indices de Miller h , k et l ont la même parité. Le paramètre de maille vaut $a_0 = 4.04 \text{ \AA}$, et la figure de diffraction attendue comporte alors des pics de diffraction lorsque la condition de Bragg est validée :

$$\sin \theta_B = \frac{\lambda \sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}{2a_0} \quad (5.1)$$

La formule 5.1 ainsi que la règle de parité évoquée précédemment nous indiquent que les angles de diffraction les plus faibles seront sur les plans d'indice de Miller (111), puis sur les plans (200) et ensuite (220)... De plus, l'échantillon étant polycristallin il y a un grand nombre de sous-domaines, localement cristallins, qui vont produire un pic de diffraction à l'angle de Bragg θ_B . Ces sous-domaines étant orientés aléatoirement, leur contribution globale se moyenne en un anneau de diffraction. La figure 5.4 montre 2 images de diffraction intégrées sur quelques dizaines de secondes, sur lesquelles on peut voir les anneaux de diffraction correspondant à la diffraction sur les différents plans. On ne peut pas voir la diffraction sur les plans d'ordres élevés d'une part car le facteur de forme atomique est d'autant plus faible que le vecteur diffraction $\Delta \mathbf{K}$ est grand (voir chapitre 2), mais aussi car nous avons ajusté l'angle θ_B pour optimiser la diffraction sur les ordres faibles.

La figure de gauche montre la sensibilité de l'alignement pour ce type d'expériences. On voit que les anneaux de diffraction sont visibles seulement sur la partie droite de

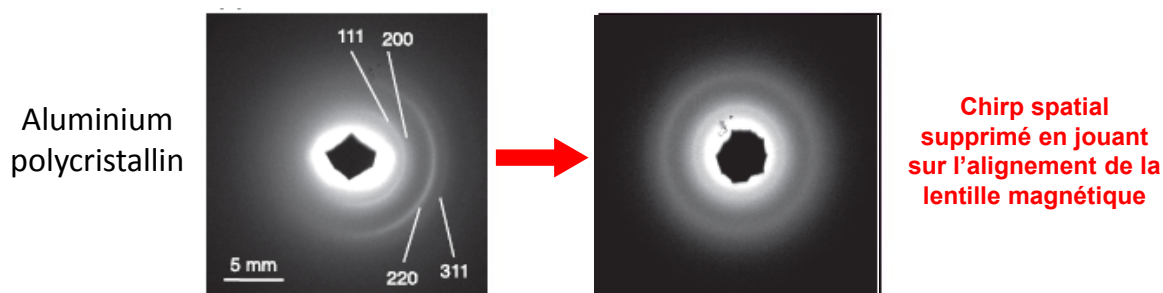
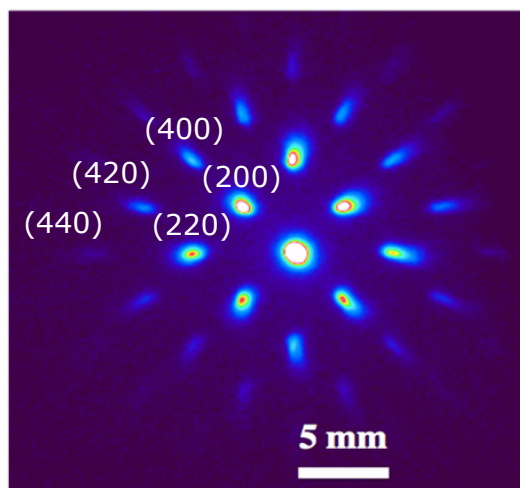


FIGURE 5.4 – Figures de diffraction en statique sur un échantillon polycristallin d'épaisseur 10 nm d'Aluminium.

l'image de diffraction. Cela était dû à un mauvais alignement du solénoïde qui provoquait un chirp spatial sur le faisceau d'électrons, dont l'effet était d'autant plus fort que la dispersion en énergie dans le faisceau est assez importante [4]. La figure de droite montre qu'une image de diffraction symétrique peut être obtenue lorsque le solénoïde est aligné précisément. Notons que ces 2 images de diffraction n'ont pas été prises le même jour, et que la dispersion en énergie était un peu plus grande lorsque l'image de droite a été mesurée. Lorsque la dispersion en énergie est plus importante, il y a une large collection de longueurs d'onde qui diffractent toutes à des angles légèrement différents, ce qui élargit les anneaux de diffraction.

Source laser-plasma à 95 keV



"Electron gun" à 50 keV (LOA)

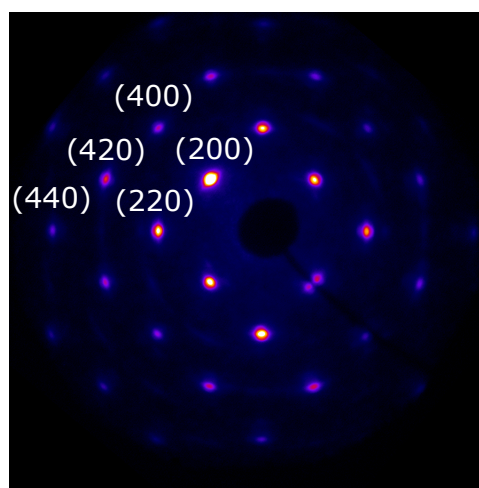


FIGURE 5.5 – Images de diffraction mesurées sur un échantillon d'or monocristallin avec la source laser-plasma à 95 keV à gauche, et avec une source conventionnelle composée d'une photocathode et d'un champ statique de 50 kV à droite. Le temps d'intégration pour ces images était de l'ordre de la seconde.

Pour accroître le rapport signal-sur-bruit, des échantillons monocristallins sont bien mieux adaptés car le signal se concentre en des pics et non pas en anneaux. Nous avons alors réalisé une expérience de diffraction sur un échantillon d'or monocristallin d'épais-

seur 20 nm. Le cristal présente donc une direction particulière selon laquelle il a été découpé, et donc pour laquelle la diffraction est impossible. Ainsi, l'échantillon étant orienté [001], la diffraction n'est possible que sur des plans dont l'indice de Miller $l=0$. La structure cristalline de l'or étant également cubique à faces centrées ($a_0 = 4.08\text{\AA}$), nous allons pouvoir observer les pics de diffraction sur les plans d'indice (200), (220), (400), (440), ... Des raisons évidentes de symétries rendent possibles la diffraction sur les plans pour lesquels les indices h et k sont négatifs et/ou permutés. La figure 5.5 montre à gauche l'image de diffraction que nous avons mesurée avec la source laser-plasma, sur laquelle on peut voir autant d'ordres de diffraction qu'avec un canon à électron à 50 keV dont l'émittance transverse est aussi de 5 nm (figure de droite). La qualité de la figure de diffraction mesurée avec la source laser-plasma est très encourageante pour de futures expériences de diffraction résolue en temps.

Toutefois, on remarque que chaque pic de diffraction avec la source laser-plasma est étiré le long de l'axe passant par le pic et l'ordre 0. Il s'agit là d'un effet de la dispersion en énergie de la source. En effet, le spectre représenté sur la figure 5.3 s'étale pied à pied de $\sim 55\text{ keV}$ à $\sim 105\text{ keV}$, et donc les longueurs d'onde dans le faisceau d'électrons vont de $\lambda_{min} = 3.6\text{ pm}$ à $\lambda_{max} = 5.1\text{ pm}$. La distance entre l'échantillon et le scintillateur étant d'environ $D=220\text{ mm}$, la formule 5.1 nous permet d'estimer que la largeur du pic de Bragg (200) sur le scintillateur due à l'écart entre ces longueurs d'onde vaut $\Delta L_{(200)} = \Delta \lambda D / a_0 \simeq 0.8\text{ mm}$, ce qui correspond assez bien au résultat expérimental. Ainsi, au sein d'un pic de Bragg, les basses longueurs d'onde sont proches de l'ordre 0 et les longueurs d'onde élevées plus loin de l'ordre 0. Nous verrons par la suite comment cette propriété peut être utilisée à notre avantage pour une expérience de diffraction résolue en temps.

Il est intéressant de noter que nous avons pu capturer un changement de structure lors de la campagne d'expérience sur l'échantillon d'or monocristallin. Lorsque nous alignons le solénoïde, une partie de l'impulsion laser qui accélère les électrons s'était accidentellement réfléchi sur l'échantillon qui a partiellement fondu. Les 2 images de diffraction représentées sur la figure 5.6 représentent le passage de la structure monocristalline à gauche à polycristalline sur la figure de droite. Cet accident se révèle être encourageant pour tenter une expérience de diffraction d'électrons résolue en temps avec cette source.

Pour conclure, nous nous sommes attelés à montrer que les sources laser-plasma fournissent des images de diffraction de bonne qualité, mais il faut encore régler le problème de la résolution temporelle de cette source. En effet, bien que les simulations numériques présentées au chapitre précédent indiquent que le paquet d'électrons à une durée d'environ $\tau_0 = 60\text{ fs}$ dans le plasma, la large dispersion en énergie provoque une élongation de la durée totale du paquet. On peut estimer la durée du paquet après une distance d de propagation avec la formule suivante, valable pour des électrons non-relativistes de dispersion en énergie $\delta E/E$:

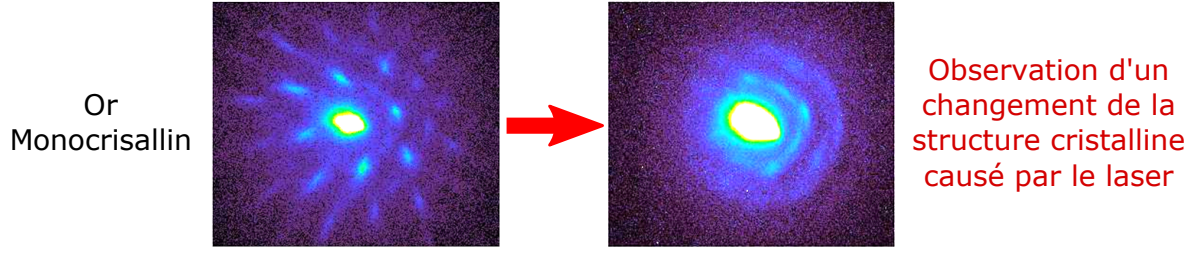


FIGURE 5.6 – Observation d'un changement de la structure cristalline (non résolue en temps). A gauche : image de diffraction obtenue sur l'or monocristallin pendant que nous alignions le solénoïde. A droite : nous avons accidentellement fondu l'échantillon avec le laser. On voit clairement que l'aspect monocristallin est moins bien défini et que des anneaux de diffraction apparaissent à la place des pics de Bragg.

$$\tau_{z=d} = \frac{d}{2v_z} \frac{\delta E}{E} \quad (5.2)$$

où v_z est la vitesse des électrons le long de l'axe z de propagation. Ainsi, la durée du paquet au niveau de l'échantillon vaut environ $\tau_{ech} = 200$ ps. A titre de comparaison, le canon à électrons permet d'accélérer des électrons à 50 keV avec une dispersion en énergie de $\delta E/E \sim 10^{-4} - 10^{-5}$, permettant d'atteindre une durée au niveau de l'échantillon d'environ 300 fs.

5.3 Principe de l'expérience de diffraction résolue en temps

5.3.1 Montage permettant d'améliorer la résolution temporelle

La dispersion importante de la source limite l'intérêt de cette source pour les expériences pompe-sonde en régime stroboscopique, mais des techniques permettant de profiter de la dispersion pour améliorer la résolution temporelle ont été proposées[5, 6]. L'élongation de la durée étant causée par la dispersion en énergie, le faisceau d'électrons présente une forte corrélation temps - énergie au niveau de l'échantillon : les hautes énergies sont à l'avant et les basses énergies à l'arrière du paquet. La durée non-corrélée du paquet créé par la source étant très petite par rapport à la durée au niveau de l'échantillon $\tau_0 = 60$ fs $\ll \tau_{ech} = 200$ ps, on peut considérer que le faisceau présente un chirp linéaire pur lorsqu'il diffracte sur l'échantillon. Par conséquent, la résolution temporelle est contenue le long des pics des Bragg : les hautes énergies sont diffractées aux angles faibles, et les faibles énergies diffractent aux angles forts. Ainsi, la corrélation temps - énergie est convertie en une corrélation angle - temps le long d'un pic de Bragg.

Afin d'améliorer la résolution temporelle sur un pic de Bragg, il est possible de sélectionner le pic avec une fente par exemple, puis de l'étirer davantage avec des aimants permanents, comme représenté sur la figure 5.7. Cette méthode permet en théorie d'enregistrer les 200 ps de dynamique sur un pic de Bragg sur une seule image de diffraction, et d'ajuster la résolution temporelle en étirant plus ou moins les pics de Bragg. En pratique

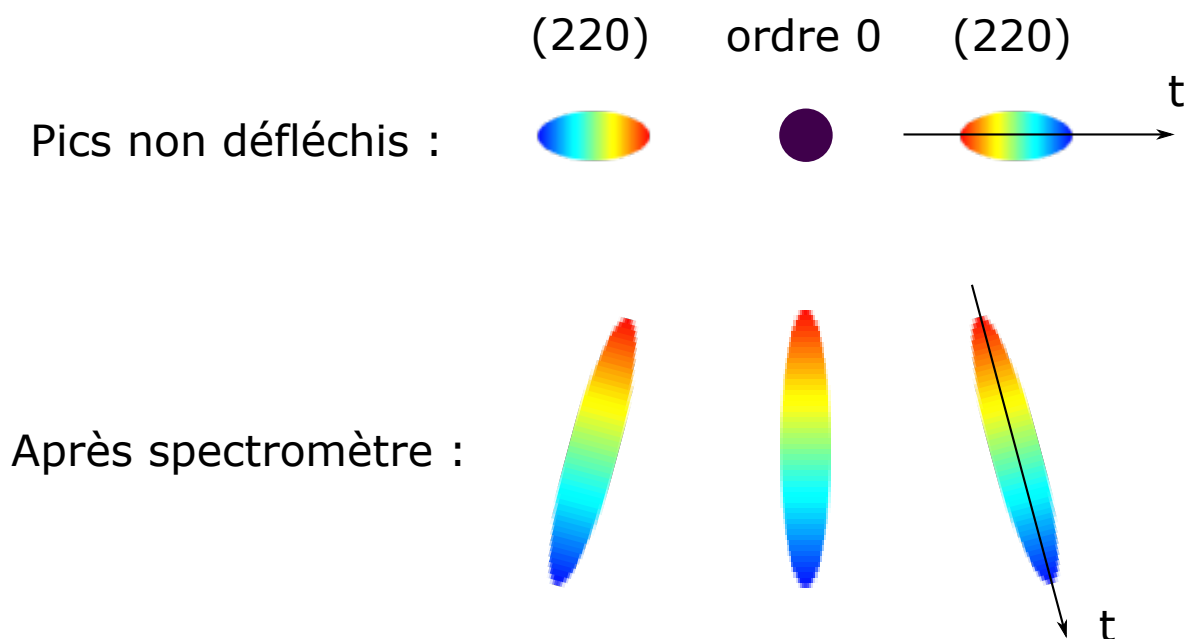


FIGURE 5.7 – Principe du montage pour améliorer la résolution temporelle : en haut, on sélectionne l'ordre 0 et 2 pics (220) grâce à une fente placée entre l'échantillon et le scintillateur. En bas, on représente les pics étirés par le spectromètre, ce qui permet de les étirer davantage et ainsi d'améliorer la résolution temporelle le long des pics.

nous serons limités par la charge contenue dans le paquet d'électrons et il sera nécessaire de moyenner l'image sur un grand nombre de tirs pour améliorer le rapport signal-sur-bruit.

Pour mesurer une dynamique le plus simplement possible, le choix de l'échantillon sur lequel nous allons faire l'expérience de diffraction résolue en temps est crucial.

5.3.2 Échantillon retenu pour l'expérience

Dans [7], Harb *et al.* étudient un échantillon monocristallin de Silicium d'épaisseur 33nm avec un canon à électrons à 55 keV. Ces chercheurs ont mis en évidence une dynamique ultra-rapide qui serait intéressante à étudier avec notre source. Afin d'exciter le cristal, il faut que les photons de l'impulsion pompe puissent être absorbés par les atomes de Si. On représente sur la figure 5.8 la structure de bande du silicium, qui est un semi-conducteur à gap indirect. Le gap indirect est de 1.1 eV et le gap direct d'environ 3 eV. La longueur d'onde de l'impulsion pompe doit alors être inférieure à 400 nm pour qu'un électron de la bande de valence puisse passer dans la bande de conduction (cette transition est représentée par les flèches vertes sur la figure 5.8). En une centaine de femtosecondes, les électrons et les trous se thermalisent à une température supérieure à la température du réseau. Les électrons (trous) de la bande de conduction (valence) relaxent ensuite vers les vallées de la bande de conduction (valence), au point X sur la figure 5.8. Cette relaxation, dont la durée est de l'ordre de la picoseconde, se fait par émission de phonons et donc chauffage du réseau. Ainsi, la température des électrons et des trous

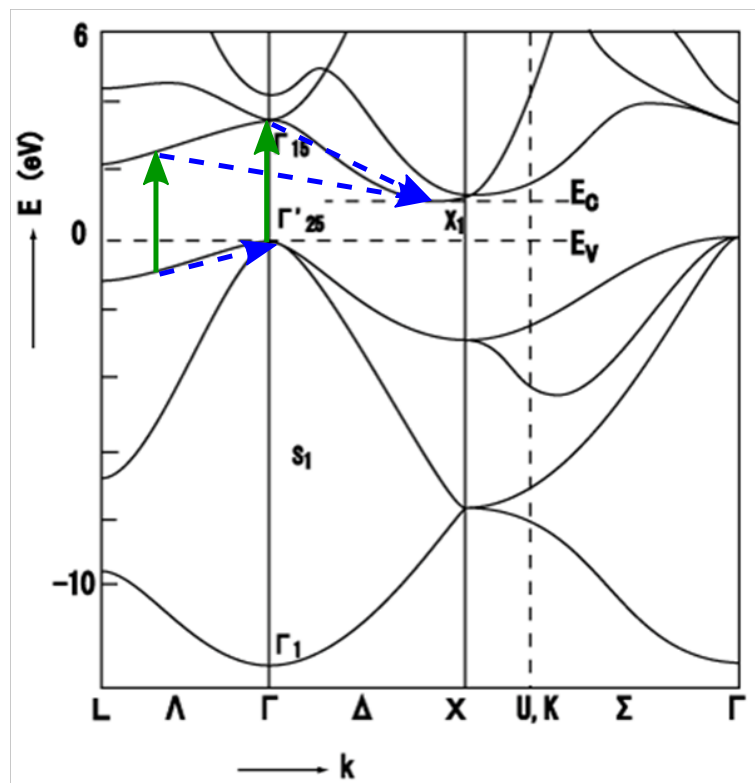


FIGURE 5.8 – Diagramme de bande du Silicium, qui est un semi-conducteur à gap indirect. Pour exciter un électron de la bande de valence vers la bande de conduction, il faut un photon de longueur d'onde inférieure à 400nm (flèches vertes). Les électrons et trous créés se dés excitent vers les minima des bandes de conduction et de valence en émettant un phonon (flèches pointillées bleues).

diminue alors que celle du réseau augmente. La relaxation des électrons et des trous est représentée par les flèches bleues pointillées sur la figure 5.8. Enfin, la recombinaison Auger des électrons et des trous permet au cristal de revenir à l'équilibre, qui est atteint lorsque la température des électrons est égale à celle du réseau.

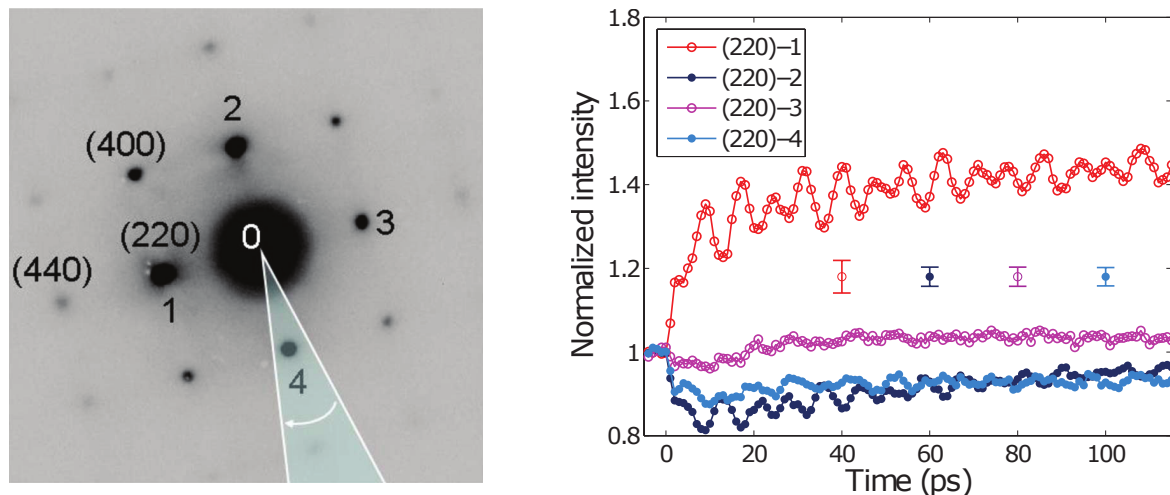


FIGURE 5.9 – A gauche : figure de diffraction sur un échantillon monocristallin de Si d'épaisseur 33 nm. A droite : Evolution de l'intensité des pics de Bragg (220) en fonction du délai entre l'impulsion pompe à 400 nm et le faisceau d'électrons sonde à 55 keV. Ces 2 images provenant de [7] montrent le signal que l'on souhaite mesurer avec la source laser-plasma.

Ainsi, Harb *et al.* observent que l'intensité des pics de Bragg varie brutalement lorsqu'on excite l'échantillon avec une impulsion laser à 400 nm. Cette variation s'accompagne par des oscillations de l'intensité probablement causées par l'excitation de phonons cohérents dans le cristal. La figure 5.9 montre à gauche la figure de diffraction qu'ils ont mesurée, et à droite l'évolution de l'intensité des 4 pics de Bragg (220) en fonction du délai entre la pompe et le faisceau sonde. Il faut plus de 100ps pour que l'intensité des pics de Bragg revienne à sa valeur initiale, le temps nécessaire pour que la recombinaison Auger se produise est donc assez long.

Ce signal est intéressant pour notre expérience pompe-sonde car plusieurs effets ont lieu à différentes échelles de temps. Lorsque l'impulsion pompe arrive sur l'échantillon, elle provoque une variation de l'intensité de type fonction de Heaviside qui dure environ 1 ns. Nous avons donc un signal "lent" à mesurer et dont le temps de montée peut nous apporter des informations sur la résolution temporelle. Ensuite, l'intensité de certains pics oscille avec une période de 7 ps, ce qui constitue un signal "rapide" qui prouvera, si nous arrivons à le mesurer, que notre source a une résolution inférieure à $7/2 = 3.5$ ps.

Nous avons alors pris contact avec le groupe de l'Université du Wisconsin qui avait produit l'échantillon étudié par Harb *et al.*, et ils ont accepté de faire de nouveaux échantillons pour notre expérience de diffraction.

Des photos des échantillons sont présentées sur la figure 5.10. Nos collègues du Wisconsin ont réussi à synthétiser des couches de Si d'épaisseur 30 nm et de largeur 350 μ m,

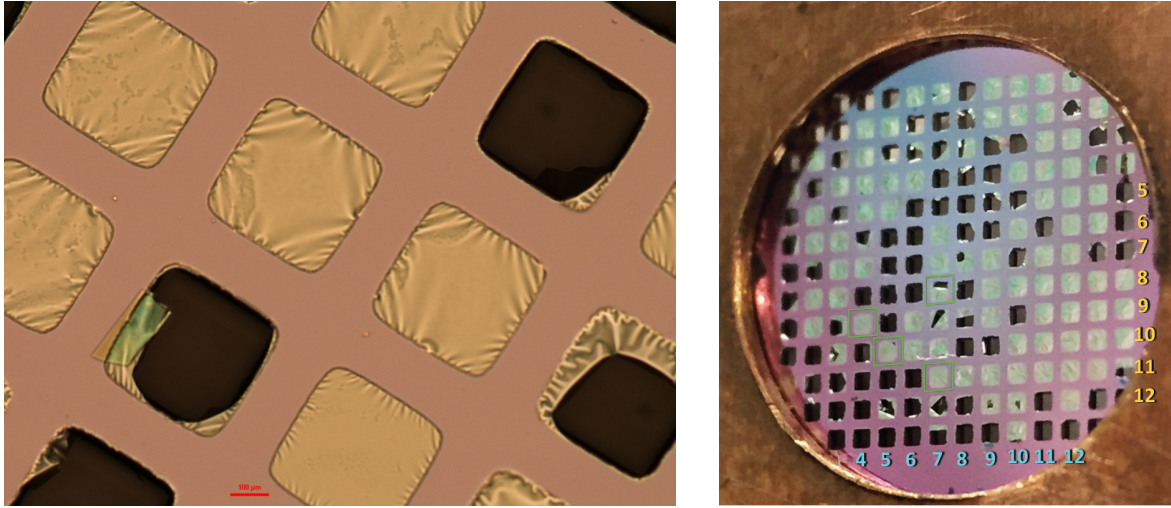


FIGURE 5.10 – A gauche : image au TEM de l'échantillon, montrant une grille de pas 350 μm sur laquelle sont synthétisées des couches de 30 nm de Si. A droite : Photo de l'échantillon dans sa monture, dans l'enceinte expérimentale.

qui sont bien adaptées à la taille du faisceau après le trou de filtrage au niveau du solénoïde qui est d'environ 300 μm . En effet, il est important que le faisceau soit diffracté par un seul échantillon sans que le voisin participe à la diffraction, principalement pour s'assurer que la zone qui diffracte a été excitée par l'impulsion pompe. On peut voir sur la figure 5.10 de gauche que certains échantillons sont très plats alors que d'autres sont légèrement froissés, il faudra donc s'assurer que les électrons soient diffractés par un échantillon de bonne qualité. La figure de droite montre la grille placée dans l'enceinte expérimentale, sur laquelle il y a beaucoup d'échantillons de bonne qualité.

5.3.3 Montage expérimental

Nous sommes ainsi retournés au Michigan dans le cadre de cette expérience de diffraction résolue en temps. L'installation pour la partie accélération d'électrons est la même que celle décrite précédemment, mais nous avons dû modifier la seconde impulsion laser afin de pouvoir à la fois mesurer interférométriquement la densité électronique du plasma et pomper l'échantillon à 400 nm. Un schéma détaillé de l'expérience est représenté sur la figure 5.11.

Nous avons installé dans l'enceinte d'interaction un cristal doubleur (BBO) pour changer la longueur d'onde de l'impulsion pompe de 800 nm à 400 nm. Elle est ensuite séparée avec une pellicule de sorte qu'une partie puisse sonder transversalement le plasma pour la mesure de la densité, tandis que l'autre partie permet de pomper l'échantillon de Si. Nous avons mesuré que l'énergie par impulsion arrivant sur l'échantillon est environ $E_{\text{pompe}} \sim 30 \mu\text{J}$. La fluence de la sonde, exprimée en mJ/cm^2 , permet de caractériser l'état d'excitation du cristal. L'indice optique du cristal à 400 nm vaut $n_{\text{Si}}(\lambda = 400 \text{ nm}) = 5.59$, et donc le coefficient de Fresnel à chacune des faces du cristal $R = \left| \frac{n_{\text{Si}} \cos \theta - 1 \cdot \cos \theta}{n_{\text{Si}} \cos \theta + 1 \cdot \cos \theta} \right|^2 = 0.485$ (avec $\theta = 20^\circ$ l'angle entre l'échantillon et la pompe). Il est alors possible de calculer la

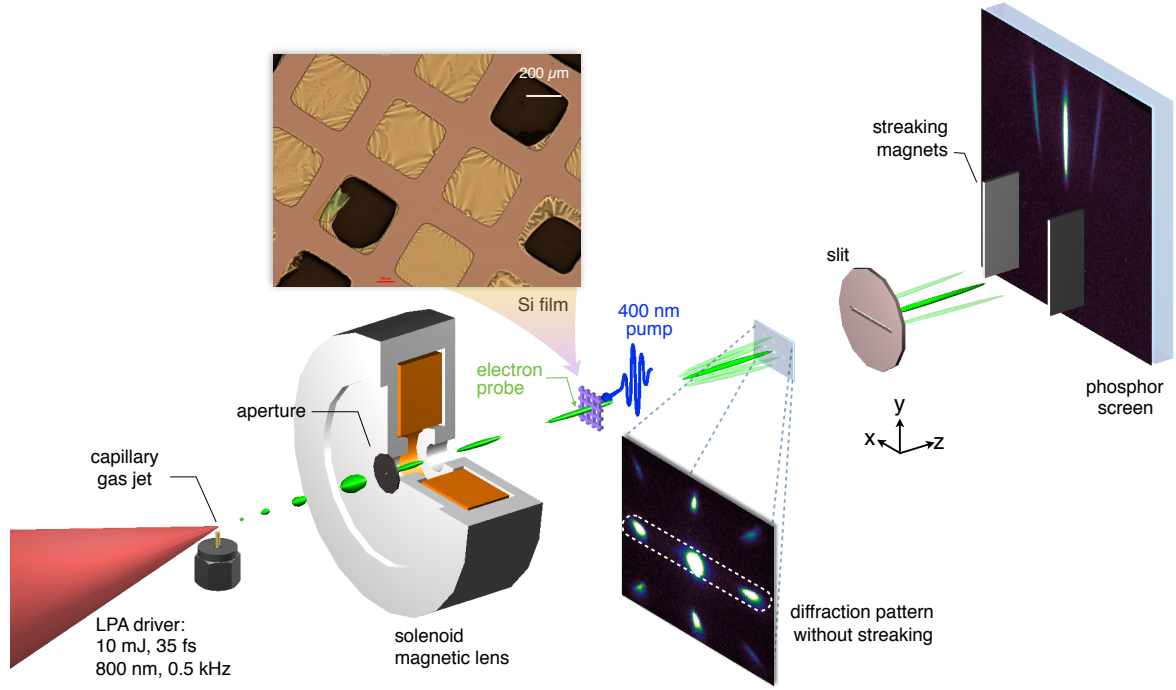


FIGURE 5.11 – Montage expérimental mis en place à l'université du Michigan. Schéma fourni par Zhaohan He.

fluence effectivement absorbée par le cristal grâce au coefficient d'absorption linéique $\alpha_{Si}(\lambda = 400 \text{ nm}) = 9.52 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$:

$$F_{\text{abs}} = F_{\text{incident}}(1 - R)(1 - e^{-\alpha L})(1 + R e^{-\alpha L}) \quad (5.3)$$

où F_{incident} est la fluence au niveau du cristal. Notons que nous ne prenons en compte que les contributions de la partie transmise à la première interface et de la première réflexion sur la seconde interface pour le calcul de F_{abs} . Les réflexions suivantes sont suffisamment faibles pour qu'on les néglige. La fluence absorbée de l'impulsion pompe dans [7] est environ 2 mJ/cm^2 , nous avons alors adapté la taille du faisceau sur l'échantillon avec une lentille pour atteindre une fluence similaire. Dans notre expérience, la fluence absorbée était d'environ $F_{\text{abs}} = 1.3 \text{ mJ/cm}^2$. On peut alors calculer la densité d'électrons excités vers la bande de conduction. La densité volumique de photons absorbée vaut $F_{\text{abs}}/Lh\nu$, avec L l'épaisseur de l'échantillon, h la constante de Planck et ν et fréquence laser de l'impulsion pompe. Pour le Silicium, 4 électrons par atome sont dans la bande de valence, et donc la densité d'électrons dans la bande de valence vaut $n_{\text{val}} = 4 \times n_{\text{at}} = 2 \times 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ (avec $n_{\text{at}} = 5 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ la densité atomique du Si). La fraction η d'électrons excités depuis la bande de valence vers la bande de conduction vaut alors :

$$\eta = \frac{F_{\text{abs}}}{Lh\nu} \frac{1}{n_{\text{val}}} \quad (5.4)$$

Pour cet échantillon d'épaisseur $L = 30 \text{ nm}$, on calcule $\eta = 0.44 \%$, et la densité d'électrons dans la bande de conduction vaut donc $\eta \times n_{\text{val}} = 8.7 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. Pour comparaison, selon la statistique de Fermi-Dirac à une température $T = 300 \text{ K}$, la densité électro-

nique dans la bande de conduction pour le Silicium non dopé vaut $n_i = 1.6 \times 10^{10} \text{ cm}^{-3}$. L'échantillon est donc fortement excité.

Nous avons calculé que la durée du faisceau pompe sur l'échantillon est augmentée de $\tau_0 = 35 \text{ fs}$ à $\tau_{pompe} = 160 \text{ fs}$ à cause de la dispersion accumulée dans toutes les optiques en transmission. La durée de la pompe est acceptable car les phénomènes que l'on souhaite mesurer ont lieu sur des échelles de temps plus de 10 fois plus longues.

Enfin, une ligne à retard sur le faisceau pompe permet de contrôler le délai au niveau de l'échantillon entre l'impulsion pompe et le faisceau d'électrons sonde. La course de la ligne à retard est de $\sim 25 \text{ mm}$, ce qui permet de varier le délai d'environ 160 ps.

5.4 Résultats et analyse de la stabilité de la source

5.4.1 Stabilité de la source d'électrons

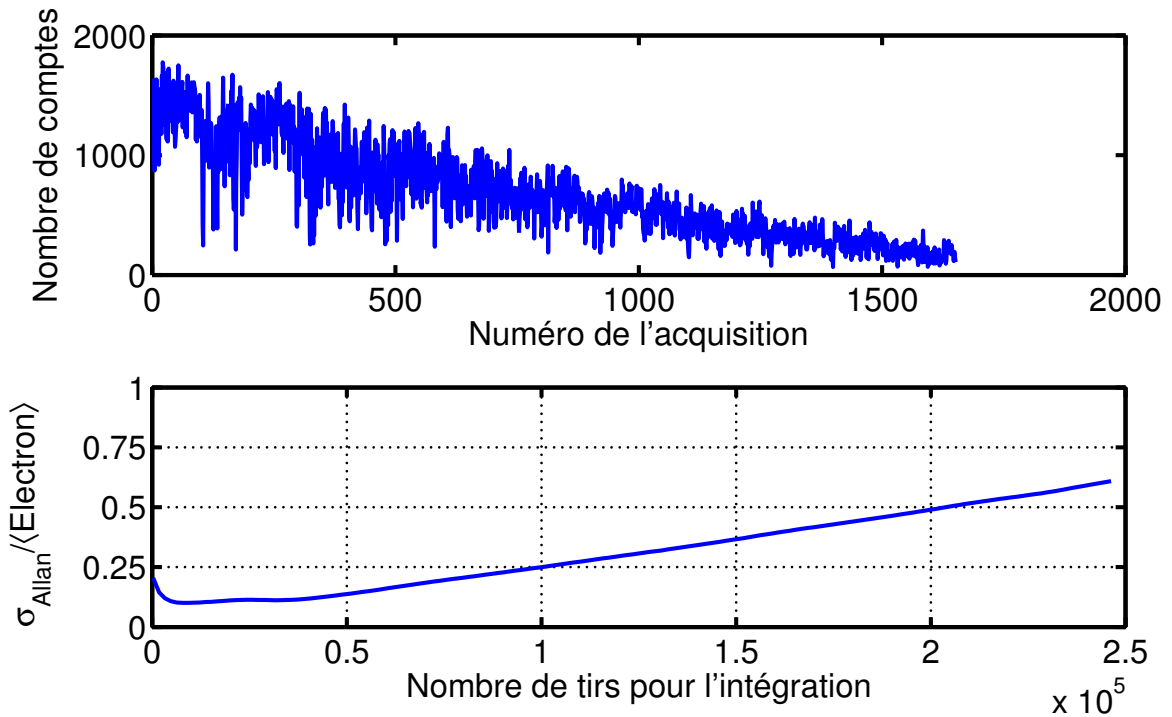


FIGURE 5.12 – Stabilité de la charge lors de 1600 acquisitions de la distribution transverse, de 300 tirs chacune.

La figure 5.12 représente une étude de la stabilité de la charge contenue dans les paquets d'électrons, qui repose sur 1600 acquisitions de 300 tirs chacune, la durée totale de la mesure étant alors de 40 minutes. On peut voir que l'écart-type d'Allan diminue lorsqu'on intègre sur une durée maximale de 40 secondes (20 000 tirs) environ, mais que la stabilité de la source est moins bonne lorsqu'on intègre le signal électronique sur de plus longues durées. En effet, le laser se désaligne légèrement au cours du temps, et le nombre d'électrons accélérés par tir chute d'un facteur 10 environ après 40 minutes.

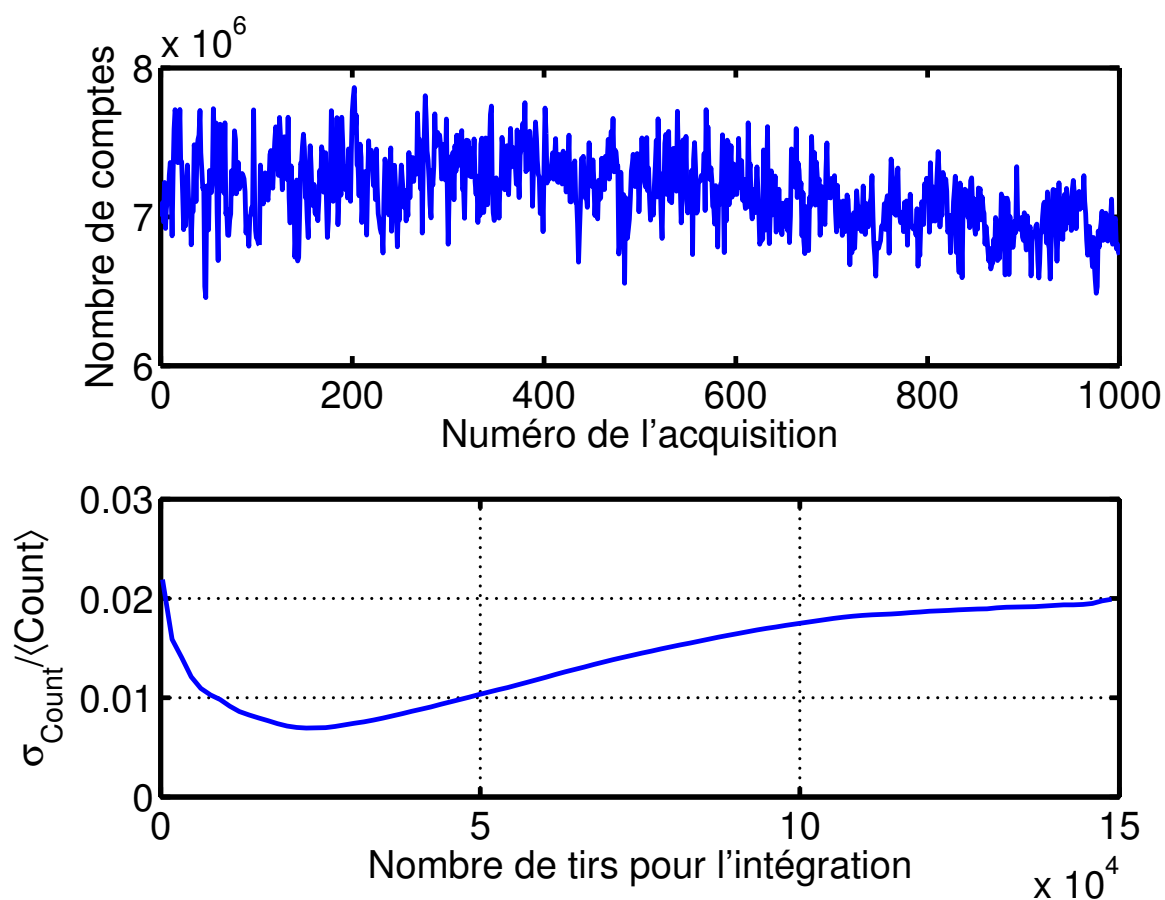


FIGURE 5.13 – Stabilité de la charge contenue dans le pic de Bragg (220) au cours de 1000 acquisitions de 600 ms (300 tirs) chacune. L'analyse de la stabilité qui est représentée repose uniquement sur la série sans excitation par l'impulsion pompe.

Nous allons maintenant nous intéresser à la stabilité des pics de diffraction sur l'échantillon Silicium. La figure 5.13 représente en haut le nombre de comptes contenus dans le pic de diffraction (220) pour 1000 mesures intégrées sur 300 tirs, réalisées sans excitation par l'impulsion pompe. On peut voir sur la figure du bas que la stabilité de la source pour différents temps d'intégration lors de cette mesure est nettement meilleure que pour les mesures présentées sur la figure 5.12, qui ont été effectuées un jour différent. La raison est probablement que ces systèmes laser ultra-intenses sont capricieux, et leur stabilité varie d'un jour à l'autre. Toutefois, nous avons mesuré des fluctuations de la charge typiquement inférieure à 10 % rms.

Lorsque l'on sera amené à mesurer une variation du signal induite par le faisceau pompe, si l'on effectue deux mesures longues sans puis avec excitation par le faisceau pompe, on risque d'observer une diminution du signal lors de la seconde acquisition qui sera uniquement due au désalignement de l'expérience. Ainsi, il sera préférable d'alterner de multiples séquences courtes de mesures du signal (quelques centaines de millisecondes) sans puis avec pompe, afin que la variation lente de l'intensité du signal soit sensiblement la même pour les deux mesures. Typiquement, les données sont prises sur plusieurs centaines de cycles avec/sans pompe. Une acquisition avec un bon rapport signal-sur-bruit prend une dizaine de minutes.

5.4.2 Superposition temporelle pompe-sonde et calibration temporelle de la source

Afin de calibrer temporellement l'expérience, nous avons placé une aiguille à la place de l'échantillon sur laquelle l'impulsion pompe est focalisée, voir figure 5.14 (a). L'objectif était donc de calibrer le délai entre les faisceaux pompe et sonde ainsi que de caractériser la résolution temporelle de la source. L'intensité de l'impulsion pompe est suffisante pour ioniser l'aiguille, et ainsi créer une plume plasma qui va perturber les électrons provenant de la source laser-plasma. La figure 5.14 (b) représente la différence des images mesurées sur le scintillateur dans les cas avec / sans excitation par l'impulsion pompe. Sur cette figure, l'axe y (en pixel) correspond également à l'axe des temps : les électrons qui passent au niveau de l'aiguille avant l'excitation par la pompe ne sont pas déviés, puis la plume plasma perturbe pour une certaine durée le paquet d'électrons. L'évolution du nombre d'électrons (exprimé en comptes) en fonction de l'axe y est représentée sur la figure 5.14 (c). On voit que la plume plasma provoque une diminution brutale du nombre d'électrons en $y_0 = 90$, que l'on caractérise par la largeur $\Delta y = 6 - 7$ pixels pour laquelle la variation passe de 10 % à 90 % de sa valeur maximale.

Nous avons fait la mesure de cette variation du signal électronique pour 6 positions différentes de la ligne à retard. La connaissance du délai que l'on introduit sur l'impulsion pompe qui se propage à la vitesse de la lumière nous permet de tracer le retard optique Δt pour chaque position y_0 de la plume plasma dans le paquet d'électrons, comme représenté sur la figure 5.14 (d). La régression linéaire en rouge donne la calibration du

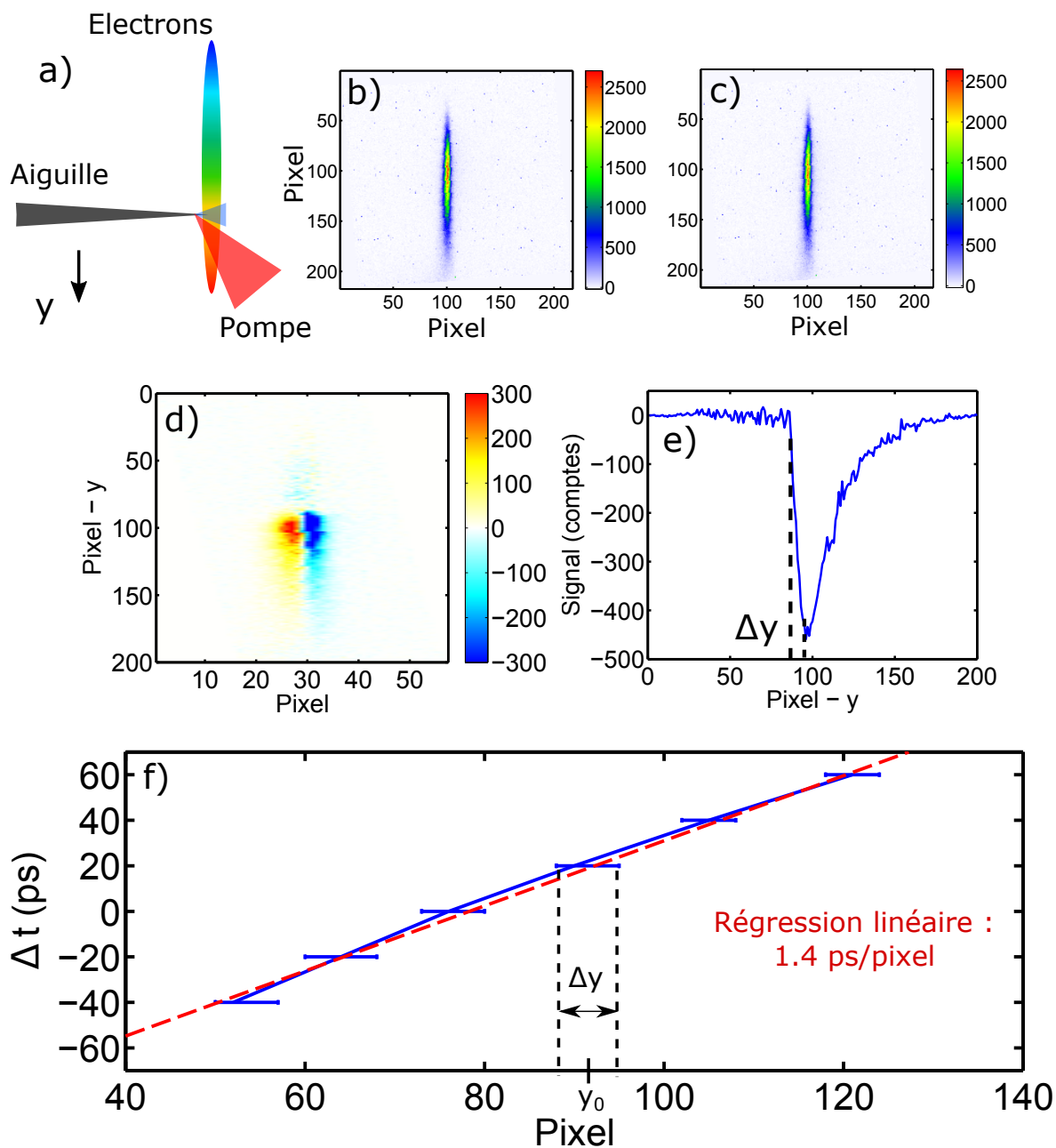


FIGURE 5.14 – a) Schéma du montage pour la calibration pompe-sonde : la plume plasma créée par l'ionisation de l'aiguille perturbe localement le paquet d'électrons. En variant le délai entre le paquet d'électrons et l'impulsion pompe, il est possible de perturber les électrons à différentes positions y . b) Image des électrons défléchis par le spectromètre sans pompe. c) Electrons défléchis par le spectromètre avec pompe. d) Différence des images avec et sans pompe. e) Variation de l'intensité le long de l'axe y permettant de mettre en évidence l'effet de l'impulsion pompe sur l'aiguille. f) Evolution du délai introduit sur la pompe en fonction de la position y pour laquelle le paquet d'électrons est perturbé. Les bars d'erreur représentent la largeur de la transition (en pixels) pour que la variation du signal passe de 10 % à 90 % de la valeur crête.

système de détection : 1.4 ps/pixel. A partir du temps de montée que l'on a estimé sur la figure 5.14 (c), $\Delta y = 6$ pixels, on déduit que la valeur haute de la résolution temporelle pour nos expériences est de $\tau_{res} = 8.5$ ps.

5.4.3 Diffraction d'électrons résolue en temps

Premiers résultats sur les images de diffraction

Nous avons mesuré dans un premier temps une image de diffraction statique sur l'échantillon de Silicium. Grâce à une nouvelle caméra pour imager le scintillateur dont le capteur EMCCD (*Electron Multiplying Charge Coupled Device*) est très sensible, un temps d'intégration de 1 s suffisait pour enregistrer une image de diffraction. La figure 5.15 (a) représente une figure de diffraction statique que nous avons mesuré. Nous avons essayé d'ajuster l'angle de l'échantillon par rapport au faisceau sonde afin que l'intensité des pics de Bragg soit sensiblement la même pour les 4 pics de diffraction (220). Ainsi, aucun de ces pics n'est exactement à l'angle de Bragg.

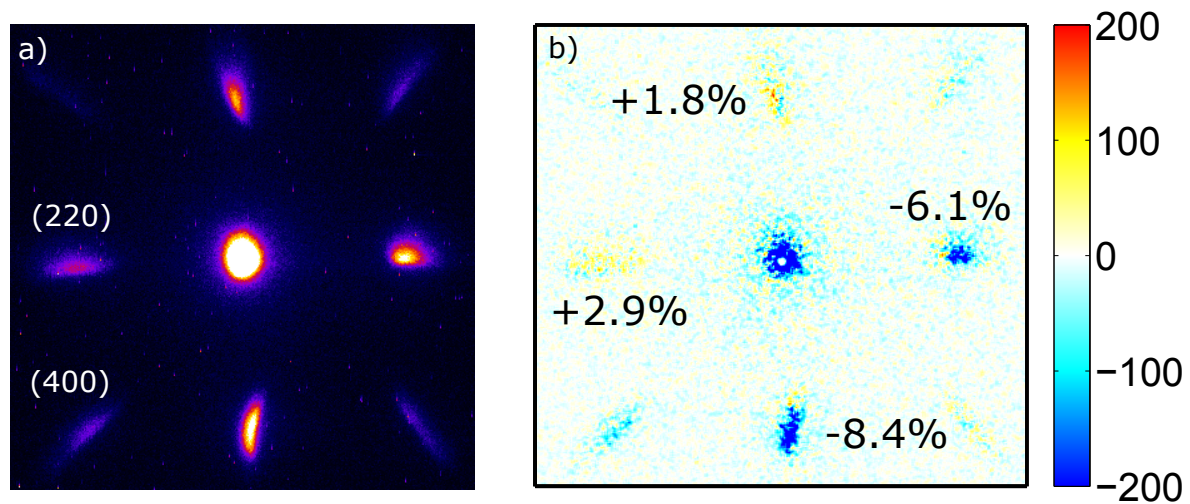


FIGURE 5.15 – a) Figure de diffraction statique sur l'échantillon de Si, et b) signal avec pompe - sans pompe. La variation de l'intensité intégrée sur chacun des pics de Bragg est différente, indiquant que cette variation est causée par le signal de pompe. Le délai pompe-sonde pour cette expérience est d'environ 300 ps.

Nous avons ensuite réalisé 20 mesures consécutives avec et sans pompe, chaque mesure étant exposée sur 600 ms soit 300 tirs laser. On note par la suite I_0 (I_1) l'intensité moyennée sur l'ensemble des mesures sans (avec) excitation par le faisceau pompe. La figure 5.15 (b) représente la différence des intensités moyennées $I_1 - I_0$, sur laquelle on a indiqué la variation de l'intensité des pics de Bragg (220) causée par la pompe. On remarque que l'intensité des pics en bas et à droite diminue alors que leur intensité est la plus forte sur la figure (a), et que l'intensité des deux autres pics, dont l'intensité sans pompe était plus faible, augmente.

Le fait que l'intensité de certains pics de Bragg augmente suite à l'excitation photo-induite ne s'explique pas par le chauffage du réseau et l'effet Debye-Waller, pour lesquels

l'intensité des pics de Bragg ne peut que diminuer. Cette augmentation ne peut pas non plus s'expliquer par une modification de la position des atomes au sein de la maille élémentaire, et donc une modification du facteur de structure. En effet, cette dernière s'exprimerait également par une diminution de l'intensité des pics (220) car l'ensemble des atomes sont initialement positionnés dans la maille de sorte qu'ils interfèrent constructivement. Ainsi, le facteur de structure pour le silicium vaut au maximum $S_{struct} = 8f_{at}$ pour les pics (220), et il ne peut être que plus faible si la position des atomes est modifiée.

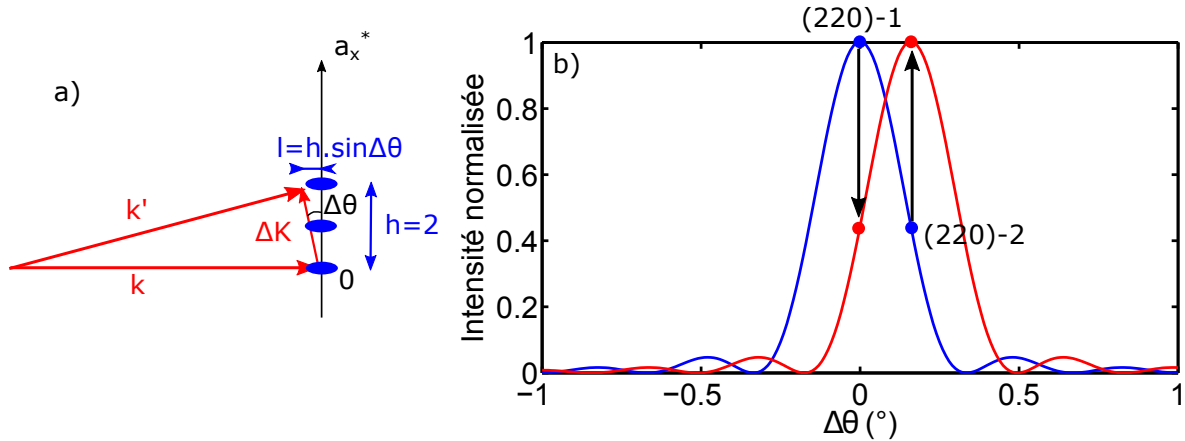


FIGURE 5.16 – a) Géométrie dans l'espace réciproque pour la diffraction à un angle légèrement hors condition de Bragg. b) Effet d'une rotation des plans de Bragg sur l'intensité des pics de diffraction. La courbe bleue représente la position initiale du cristal, telle que le pic (220)-1 soit à l'angle de Bragg et le pic (220)-2 fasse un angle d'environ 0.2° par rapport à l'angle de Bragg. Si on tourne le cristal de 0.2° (courbe rouge), l'intensité du premier pic diminue alors que celle du second pic augmente.

Dans [7], les auteurs suggèrent que l'augmentation de l'intensité des pics de Bragg s'explique par une déformation thermoélastique du cristal à l'échelle macroscopique. Lorsque l'impulsion pompe excite le cristal, le chauffage n'est pas uniforme car il dépend de la distribution transverse de la pompe. Le réseau subirait une déformation plus forte au centre où le chauffage serait plus important alors que la grille qui supporte le cristal de Si empêche les bords du cristal de se déformer, bombant ainsi la surface du cristal. Cette déformation de la surface induirait une rotation des plans de Bragg. Le scénario proposé par Harb *et al.* permet d'expliquer nos observations. Après photo-excitation, les pics initialement proches de la condition de Bragg ne la satisfont plus et leur intensité diminue, alors que les pics qui n'étaient pas à l'angle de Bragg se trouvent dans une configuration telle que leur intensité augmente.

On note $\Delta\theta$ l'écart angulaire par rapport à l'angle de Bragg pour la diffraction sur le pic (220). Le schéma de la figure 5.16 (a) décrit la diffraction dans l'espace réciproque, à un angle légèrement hors de la condition de Bragg. Afin de calculer la variation de l'intensité du pic de diffraction, nous allons développer l'expression du facteur de forme (voir chapitre 2) :

$$|F|^2 = \frac{\sin^2(\frac{N_x}{2} \Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{a}_x)}{\sin^2(\frac{1}{2} \Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{a}_x)} \frac{\sin^2(\frac{N_y}{2} \Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{a}_y)}{\sin^2(\frac{1}{2} \Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{a}_y)} \frac{\sin^2(\frac{N_z}{2} \Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{a}_z)}{\sin^2(\frac{1}{2} \Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{a}_z)} \quad (5.5)$$

où $N_{x,y,z}$ est le nombre d'atomes diffusant dans chacune des directions (xyz) de l'espace. Pour les expériences de diffraction d'électrons, le rayon de la sphère d'Ewald est très grand. Ainsi, au premier ordre, on peut considérer qu'une rotation $\Delta\theta$ de l'échantillon ne modifie pas les composantes du vecteur diffraction $\Delta \mathbf{K}$ selon a_x^* et a_y^* [8]. Pour la diffraction sur les pics (220), on a alors $\Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{a}_x \simeq 2\pi h = 4\pi$ et $\Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{a}_y \simeq 2\pi k = 4\pi$. L'expression 5.5 se réduit alors à :

$$|F|^2 = \frac{\sin^2(\frac{N_z}{2} \Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{a}_z)}{\sin^2(\frac{1}{2} \Delta \mathbf{K} \cdot \mathbf{a}_z)} \quad (5.6)$$

Lorsque la condition de Bragg n'est pas satisfaite, la composante du vecteur diffraction ΔK_z selon $\mathbf{a}_z$ n'est pas nulle et vaut :

$$\Delta K_z = \frac{2\pi}{a_0} \sqrt{h^2 + k^2} \cdot \sin \Delta\theta \quad (5.7)$$

Ainsi, le facteur de forme pour la diffraction sur le pic (220) s'écrit :

$$|F|^2 = \frac{\sin^2(\sqrt{8}\pi N_z \Delta\theta)}{\sin^2(\sqrt{8}\pi \Delta\theta)} \quad (5.8)$$

où l'on a supposé que $\Delta\theta \ll 1$. L'épaisseur de l'échantillon vaut $L = 30$ nm, et le paramètre de maille pour le Silicium vaut $a_0 = 0.543$ nm. Le nombre d'atomes participant à la diffraction vaut $N_z = L/a_0 = 55$. La courbe bleue sur la figure 5.16 représente l'évolution de l'intensité d'un pic de Bragg en fonction de l'angle $\Delta\theta$. L'intensité d'un pic de diffraction est maximale à l'angle de Bragg ($\Delta\theta = 0$), et sa dépendance avec l'angle $\Delta\theta$ est en sinus cardinal. Ce type de courbe s'appelle une *rocking curve*. Le pic de diffraction reste donc fixe en x et en y, mais son intensité varie à cause de la dynamique en z. Les deux points bleus représentent 2 pics de diffraction, noté (220)-1 et (220)-2, le premier étant à l'angle de Bragg alors que le second fait un angle d'environ $\Delta\theta = 0.2^\circ$ par rapport à l'angle de Bragg. La courbe rouge représente l'effet d'une rotation de -0.2° du cristal : l'intensité du pic (220)-1 diminue car il n'est plus à l'angle de Bragg, et l'intensité du pic (220)-2 augmente car il satisfait maintenant la condition de Bragg.

Cependant, la figure 5.16 (b) montre que la largeur angulaire du pic de diffraction est assez faible, environ 0.4° FWHM. Si la surface de longueur $\Phi = 350$ μm subissait une rotation de $\Delta\theta = 0.1^\circ$, alors le cristal serait déplacé de $d = \Phi \Delta\theta \simeq 0.5$ μm , ce qui semble grand. Ce scénario est donc discutable.

Mesure de la dynamique picoseconde

Nous allons maintenant nous intéresser à la dynamique ultra-rapide en étirant les pics de Bragg grâce aux aimants. La figure 5.17 (a) représente une image brute de diffraction

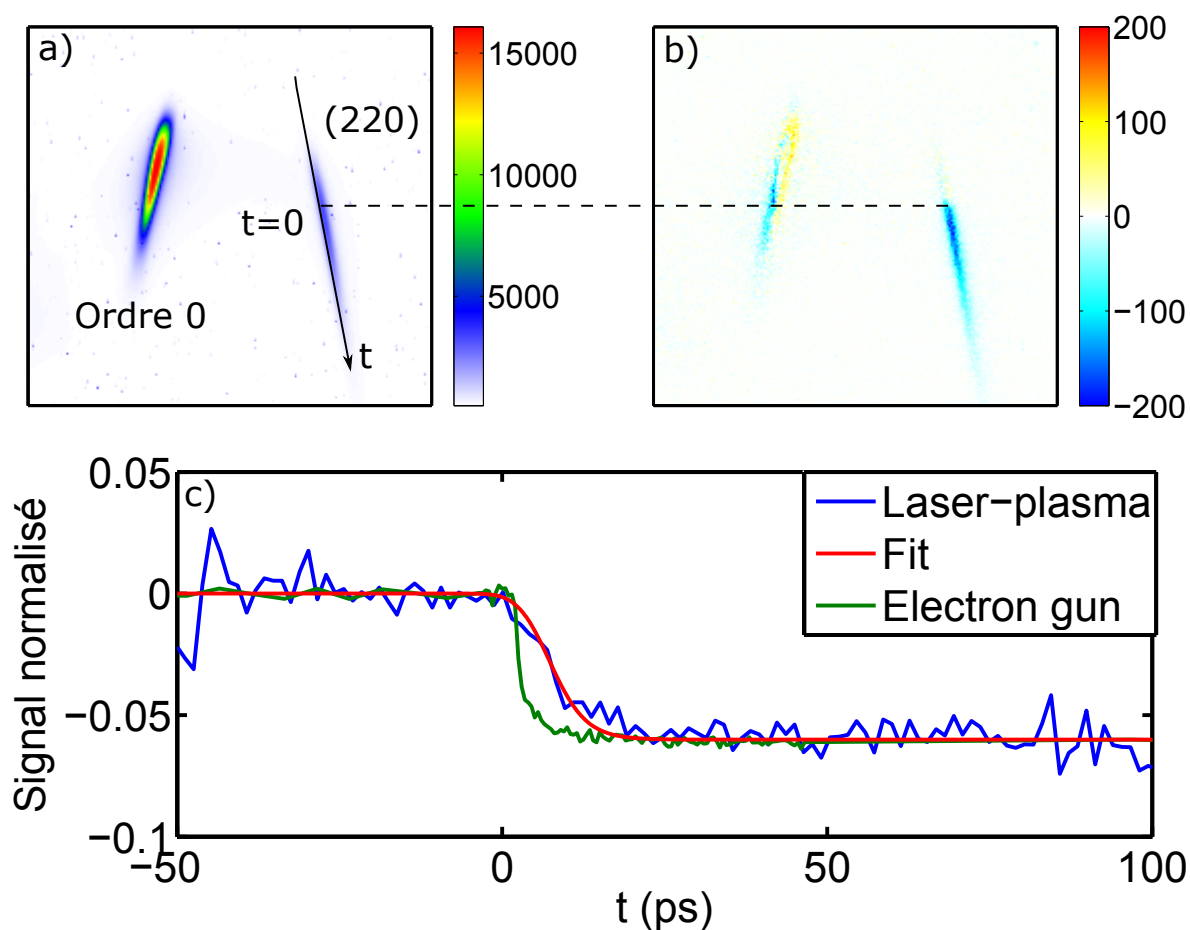


FIGURE 5.17 – a) Images de diffraction statique moyennée sur 10 minutes. b) Signal avec pompe - sans pompe : $I_1 - I_0$. c) Evolution du signal $(I_1 - I_0)/I_0$ le long du pic de diffraction mesuré avec la source laser-plasma en bleu, et avec un canon à électrons en vert. La résolution temporelle avec le canon à électrons était inférieure à 300fs, et le signal varie en $\exp(-t/\tau)$ avec $\tau = 3$ ps pour $t > 0$. La courbe rouge représente le résultat de la corrélation d'une décroissance exponentielle de temps caractéristique 3.1 ps avec une gaussienne de FWHM = 8 ps.

statique, sur laquelle on peut voir l'ordre 0 ainsi qu'un pic de Bragg (220) qui ont été éti-rés par les aimants. Nous avons ensuite réalisé 1000 mesures consécutives avec et sans pompe, chaque mesure étant exposée à nouveau sur 600 ms soit 300 tirs laser. La durée totale de l'ensemble de la mesure est donc de 20 minutes. La figure 5.17 (b) représente la soustraction $I_1 - I_0$, et on va étudier la dynamique le long du pic (220). Pour cela, on trace le signal normalisé $(I_1 - I_0)/I_0$ sur la figure 5.17 (c) en bleu. On peut voir sur les panels (a)-(b) qu'avant l'excitation par le faisceau pompe ($t < 0$), les figures de diffraction I_0 et I_1 sont indentiques, et par conséquent l'intensité du signal normalisé est nulle. Pour $t > 0$, le faisceau pompe provoque une variation de l'intensité du pic diffracté de l'ordre de 6%, comme on peut le voir en bleu sur la figure 5.17 (c). Geoffrey Gallé, post-doctorant dans l'équipe APPLI du LOA, qui réalise des expériences de diffraction avec un canon à élec-trons dont la résolution temporelle est d'environ 300 fs a également mesuré la dynamique d'un pic (220) d'un échantillon similaire de Si, que l'on représente en vert sur cette figure. Le signal mesuré avec la source conventionnelle a été multiplié par un facteur 0.17 afin de mieux pouvoir comparer les dynamiques. La variation de l'intensité du pic de Bragg est donc plus élevée avec le canon à électrons, probablement car la fluence absorbée était plus élevée (3.5 mJ/cm^2). La variation mesurée pour $t > 0$ est de la forme $\exp(-t/\tau)$ avec $\tau = 3 \text{ ps}$.

Il apparait clairement sur la figure 5.17 (c) que la variation de l'intensité du pic (220) est plus rapide avec le canon à électrons qu'avec la source laser-plasma. Toutefois, la mesure avec le canon à électrons dont la résolution temporelle est de 300 fs indique que la dyna-mique a lieu sur une échelle de temps d'environ 3 ps, du même ordre de grandeur que la résolution temporelle de la source laser-plasma. Nous avons alors modélisé le signal me-suré avec la source laser-plasma par une exponentielle décroissante convoluée par une gaussienne de largeur FWHM 8 ps représentant la réponse du système de détection esti-mée avec l'aiguille. Les meilleurs résultats pour le fit sont obtenus pour une décroissance exponentielle de temps caractéristique 3.1 ps, identique à celle mesurée avec la source conventionnelle : le fit représenté en rouge sur la figure 5.17 (c) reproduit fidèlement la mesure.

Enfin, aucune des 2 mesures n'a permis de mettre en évidence les oscillations de l'in-tensité du pic (220) qui ont été observées dans [7]. Il n'est pas surprenant que la source laser-plasma de résolution temporelle 8ps ne l'ait pas permis, mais même les mesures avec la source conventionnelle ne les ont pas mises en exergue. Des mesures complé-mentaires réalisées avec la source conventionnelle semblent indiquer que ces modula-tions dépendent de l'épaisseur ainsi que de l'angle de l'échantillon. Toutefois, ces résul-tats confirment que la source laser-plasma peut être utilisée pour résoudre la dynamique ultra-rapide sur un cristal de Silicium.

5.5 Améliorations envisageables de l'expérience

Nous avons mesuré une résolution temporelle d'environ $\tau_{res} \simeq 8$ ps, que l'on peut estimer théoriquement de la façon suivante :

$$\tau = \sqrt{\tau_{pompe}^2 + \tau_{uncorr}^2 + \tau_{jitter}^2 + \tau_{angle}^2 + \tau_{streak}^2} \quad (5.9)$$

avec $\tau_{pompe} \simeq 150$ fs la durée de l'impulsion pompe, $\tau_{uncorr} < 100$ fs la durée non-corrélée du paquet d'électrons estimée d'après les simulations PIC (voir le chapitre précédent). A priori, les accélérateurs laser-plasma sont exempts de jitter, $\tau_{jitter} = 0$, car l'injection et l'accélération des électrons dans les ondes plasma reposent sur l'évolution déterministe du plasma suite à la propagation de l'impulsion laser. La durée $\tau_{angle} = \Phi \sin \theta / c \simeq 400$ fs correspond à la durée que met l'impulsion pompe pour exciter l'ensemble de l'échantillon dans cette géométrie non colinéaire, avec $\Phi = 350 \mu\text{m}$ la taille de l'échantillon et $\theta = 20^\circ$ l'angle entre l'échantillon et la direction de propagation de l'impulsion pompe. Enfin, τ_{streak} correspond à la résolution temporelle que l'on atteint grâce à la méthode consistant à défléchir les électrons avec des aimants. Sa valeur est limitée par la taille transverse du faisceau d'électrons ainsi que par l'aptitude du spectromètre (aimants + scintillateur) à séparer les différentes énergies. Si on considère des électrons se propageant selon un axe z , d'énergie cinétique E et tels que $v_x, v_y \ll v_z$, alors τ_{streak} est donnée par la relation suivante :

$$\tau_{streak} = \frac{d}{v_z} \frac{m_e^2 c^4}{(E + m_e c^2)(E + 2m_e c^2)} \frac{\delta E}{E} \Big|_{spectro} \quad (5.10)$$

avec d la distance entre la source et l'échantillon, et δE la résolution en énergie du spectromètre autour de l'énergie E . Dans le cadre de cette expérience, la distance entre la source et l'échantillon vaut $d = 13.5$ cm, et les paramètres liés au spectromètre sont les suivants : $\delta E = 1.6$ keV et $E = 90$ keV. Ces valeurs donnent une durée $\tau_{streak} = 6$ ps du même ordre de grandeur que la résolution temporelle τ_{res} que nous avons mesurée expérimentalement.

La résolution temporelle lors de l'expérience était donc limitée par la résolution du spectromètre, et il est possible en théorie de réduire τ_{streak} au même niveau que τ_{uncorr} . Une possibilité serait d'améliorer la résolution δE en utilisant des aimants plus forts, ce qui demanderait d'augmenter le temps d'exposition afin de garder le même rapport signal-sur-bruit. Il est également possible de réduire τ_{streak} en réduisant la distance d entre la source et l'échantillon. Zhaohan He du CUOS a vérifié expérimentalement qu'en réduisant cette distance à $d = 1.9$ cm sans toucher à la résolution du spectromètre, il est possible d'atteindre une résolution temporelle de $\tau_{res} \simeq 1$ ps sur une fenêtre temporelle de 15 ps environ. La formule 5.10 confirme cette mesure : $\tau_{streak} = 0.84$ ps dans cette configuration. Il y a toutefois un risque du point de vue expérimental à réduire autant la distance d car l'impulsion laser qui génère le paquet d'électrons, copropagative avec ce dernier, peut endommager l'échantillon si son intensité est trop élevée lorsqu'elle l'atteint. Enfin,

un autre moyen serait d'augmenter l'énergie E des électrons tout en gardant la résolution du spectromètre identique, bien que ce ne soit pas trivial car cela demande d'opérer dans un régime d'interaction laser-plasma différent. Toutefois, des résultats récents sont encourageants et des sources laser-plasma générant des paquets d'électrons de plus hautes énergies devraient être développées prochainement [9, 10].

5.6 Conclusions

Ces deux campagnes d'expériences que nous avons réalisées en partenariat avec le CUOS de l'Université du Michigan ont démontré que la qualité spatiale des sources laser-plasma est suffisante pour les expériences de diffraction d'électrons. Concernant l'expérience de diffraction résolue en temps, la résolution temporelle de la source est acceptable et nous avons même réussi à mesurer une dynamique ultra-rapide de temps caractéristique 3 ps. Il faut toutefois reconnaître qu'à ce jour, les sources conventionnelles sont toujours les plus adaptées car elles sont beaucoup plus compactes et simples à utiliser, et car leur dispersion en énergie est plus faible ce qui permet d'atteindre une meilleure résolution temporelle pour les expériences résolues en temps. L'astuce consistant à utiliser un spectromètre afin de coder la dynamique temporelle le long du spectre électronique a permis d'atteindre une résolution temporelle de 8 ps avec la source laser-plasma, que l'on pourrait même diminuer jusqu'à 1 ps en plaçant l'échantillon de Si proche du jet de gaz. Avec le montage actuel, il semble être difficile d'atteindre les 200-300 fs de résolution temporelle facilement obtenues avec les sources conventionnelles.

Il faut cependant garder à l'esprit que le régime dans lequel fonctionne cette source laser-plasma n'est pas le plus favorable pour l'accélération d'électrons. Nous avons vu que dans le régime de la bulle, il serait possible d'accélérer les électrons à des énergies de l'ordre du MeV, et que les paquets d'électrons peuvent potentiellement être extrêmement courts et avec une dispersion en énergie de l'ordre du pourcent [11]. Dans le but d'améliorer significativement la résolution temporelle, la prochaine étape est donc de générer des impulsions laser d'énergie quelques millijoules et de durée 5 fs environ afin d'accélérer des électrons dans le régime de la bulle.

5.7 Références

- [1] Z. H. He et al. High repetition-rate wakefield electron source generated by few-millijoule, 30 fs laser pulses on a density downramp. *New Journal of Physics*, 15, 2013. [viii](#), [86](#), [87](#), [88](#)
- [2] Z. H. He et al. Coherent control of plasma dynamics. *Nature Communications*, 6, 2015. [87](#)
- [3] G. Poplau, U. van Rienen, B. van der Geer, and M. de Loos. Multigrid algorithms for

- the fast calculation of space-charge effects in accelerator design. *IEEE Transactions on Magnetics*, 40(2) :714–717, March 2004. [90](#)
- [4] E. E. Fill et al. Diffraction of laser plasma generated electron pulses. *Applied Physics B*, 81 :155–157, 2005. [92](#)
- [5] Gerard Mourou and Steve Williamson. Picosecond electron diffraction. *Applied Physics Letters*, 41(1) :44–45, 1982. [94](#)
- [6] M. Eichberger, N. Erasmus, K. Haupt, G. Kassier, A. von Flotow, J. Demsar, and H. Schwöerer. Femtosecond streaking of electron diffraction patterns to study structural dynamics in crystalline matter. *Applied Physics Letters*, 102(12), 2013. [94](#)
- [7] M. Harb et al. Excitation of longitudinal and transverse coherent acoustic phonons in nanometer free-standing films of (001) si. *Physical Review B*, 79, 2009. [ix](#), [95](#), [97](#), [99](#), [105](#), [108](#)
- [8] J. Howe B. Fultz. Transmission electron microscopy and diffractometry of materials, fourth edition. *Springer*, 2013. [106](#)
- [9] B. Beaurepaire et al. Electron acceleration in sub-relativistic wakefields driven by few-cycle laser pulses. *New Journal of Physics*, 16, 2014. [110](#)
- [10] A. J. Goers, G. A. Hine, L. Feder, B. Miao, F. Salehi, J. K. Wahlstrand, and H. M. Milchberg. Multi-mev electron acceleration by subterawatt laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 115 :194802, Nov 2015. [110](#)
- [11] O. Lundh et al. Few femtosecond, few kiloampere electron bunch produced by a laser–plasma accelerator. *Nature Physics*, 7 :219–222, 2011. [110](#)

Chapitre 6

Autocompression d'impulsions laser induite par ionisation

« »

Auteur

Sommaire

6.1 Introduction sur les méthodes de post-compression d'impulsions femtosecondes	113
6.2 Introduction sur les couplages spatio-temporels	114
6.3 Montage expérimental	116
6.4 Résultats expérimentaux : auto-compression de l'impulsion à 12 fs . . .	119
6.4.1 Auto-compression temporelle de l'impulsion	119
6.4.2 Homogénéité des impulsions auto-comprimées	120
6.5 Simulations PIC	124
6.5.1 Modélisation de l'interaction laser-plasma	124
6.5.2 Etude du mécanisme d'auto-compression par ionisation	125
6.5.3 Etude numérique de l'homogénéité de l'auto-compression par ionisation	127
6.5.4 Interprétation physique des résultats	128
6.6 Etude des couplages spatio-temporels.	129
6.6.1 Mise en évidence des couplages spatio-temporels	129
6.6.2 Effets des couplages spatio-temporels sur l'impulsion	131
6.7 Conclusion	132
6.8 Références	132

6.1 Introduction sur les méthodes de post-compression d'impulsions femtosecondes

Le développement d'une source laser produisant des impulsions de durée de quelques cycles optiques et atteignant des intensités relativistes permettrait d'étudier de nouveaux régimes d'interaction dans lesquels la dynamique collective des électrons serait déterminée par le cycle optique [1, 2] et non pas par l'enveloppe. Aussi, en diminuant la durée de l'impulsion à moins de 10 fs tout en conservant une énergie de quelques mJ, on pourrait atteindre le régime de la bulle, favorable pour l'accélération d'électrons. La très grande majorité des expériences impliquant des intensités laser relativistes ont été rendues possibles grâce à l'amplification d'impulsions "chirpées" (CPA) [3] dans des cristaux de Ti :Sa, mais le retrécissement spectral par le gain limite la durée des impulsions amplifiées à $\tau_0 \geq 20 \text{ fs}$ [4]. Le parc des lasers d'ultra-hautes intensités dans le monde étant maintenant constitué de lasers construits selon cette architecture, des chercheurs ont mis au point des techniques de post-compression, c'est-à-dire des systèmes permettant de raccourcir la durée en sortie de la chaîne laser. Ces techniques sont nécessairement basées sur la génération de nouvelles fréquences dans un milieu, afin de réduire la durée en limite de transformée de Fourier. Une variation rapide de l'indice de réfraction $n(r, t, z)$ du milieu provoque une variation de la fréquence instantanée $\delta\omega(r, t)$, et génère ainsi de nouvelles fréquences :

$$\delta\omega(r, t) = -\frac{\omega_0}{c} \int \frac{\partial n(r, t, z)}{\partial t} dz \quad (6.1)$$

Cette variation rapide de l'indice optique est causée par des effets non-linéaires comme l'effet Kerr[5], l'ionisation d'un gaz [6, 7], ou encore des non-linéarités relativistes dans les plasmas [8, 9]. Comme ces non-linéarités dépendent de la distribution en intensité laser, l'élargissement spectral et la compression sont à priori inhomogènes. Ainsi, les techniques de post-compression sont généralement réalisées dans une structure guidante qui permet de nettoyer les inhomogénéités et de garantir une compression homogène. La génération d'impulsions de durée sub-10 fs a été démontrée en focalisant modérément le laser dans une fibre creuse remplie de gaz dont la longueur est de l'ordre du mètre. Lorsque l'intensité laser reste sous le seuil d'ionisation du gaz, les nouvelles fréquences sont générées par auto-modulation de phase [10, 11, 12]. Des impulsions de durée 10 fs ont également été démontrées grâce à la variation d'indice induite par l'ionisation du gaz dans la fibre [13, 14]. La fibre garantit l'homogénéité de la compression, mais l'inconvénient majeur est que la transmission est typiquement inférieure à 50 % à cause d'un couplage imparfait à travers la fibre. On peut noter qu'une autre technologie laser basée sur l'amplification paramétrique est en train d'émerger. Cette technique d'amplification, appelée OPCPA pour *Optical Parametric Chirped-pulse Amplification*, présente l'avantage de transférer l'énergie d'une impulsion *pompe* directement vers une impulsion *sonde*

sans stocker d'énergie dans le cristal. Elle est prometteuse pour la génération d'impulsion ultra-courte et intense, et à ce jour un laser délivrant des impulsions de 7.9 fs, 130 mJ à 10 Hz a été construit [15]. Toutefois, ce type de laser n'est pas encore stable et il a très peu été utilisé pour des expériences portant sur l'interaction laser-plasma.

Récemment, He et al. (PRL) ont montré qu'il est possible de comprimer des impulsions laser ionisant un jet de gaz de 36 à 16 fs, sans guidage externe, et avec une transmission de l'ordre de 90 % [16]. Cette méthode de compression n'avait été que très peu étudiée car il a toujours été admis que le taux d'ionisation étant très dépendant de l'intensité laser : en l'absence de guidage, les gradients d'intensité doivent engendrer une inhomogénéité dans le processus d'auto-compression. Comme la question de l'homogénéité n'est que très brièvement mentionnée dans l'article qui a été publié, nous avons étudié en détail l'homogénéité du processus d'auto-compression dans ce régime afin de déterminer si cette méthode serait viable.

Ce chapitre est organisé de la façon suivante :

- Dans un premier temps, nous définirons ce qu'est un couplage spatio-temporel, et nous étudierons des exemples de couplages que nous avons mis en évidence lors des expériences.
- Nous présenterons ensuite l'expérience de post-compression par ionisation que nous avons mise en place au laboratoire. Nous présenterons les mesures d'homogénéité et de compression temporelle que nous avons faites : des mesures dans le champ proche indiquent que l'homogénéité de la compression dépend fortement de la position du plan focal dans le jet de gaz, mais qu'il est possible de comprimer les impulsions de 25 fs à 12 fs de façon homogène.
- Nous avons réalisé des simulations numériques afin de comprendre précisément le processus d'auto-compression. Lorsque l'on propage le champ laser provenant des simulations jusque dans le champ proche, les résultats expérimentaux sont très bien reproduits et confirment l'auto-compression à 12 fs dans le champ proche.
- Pour terminer, nous présenterons les résultats de la propagation numérique du champ laser jusque dans le champ lointain. Les simulations mettent alors en évidence les limites de cette technique de post-compression dues à des couplages spatio-temporels : la durée de l'impulsion passe de 12 fs dans le champ proche à 25 fs lorsqu'elle est focalisée.

6.2 Introduction sur les couplages spatio-temporels

Les effets des couplages spatio-temporels ne sont pas évidents à saisir car ils peuvent n'être visible qu'après propagation de l'impulsion laser. On considère un champ électrique sous sa forme complexe : $E(x, y, t) = |E(x, y, t)| \exp(i\phi(x, y, t))$. Des couplages spatio-temporels peuvent alors se manifester sous la forme de couplages en amplitude ou en phase [17, 18]. Un couplage en amplitude se traduit par le fait que les variables d'espace

et de temps ne peuvent pas être factorisées dans l'expression de l'amplitude du champ : $|E(x, y, t)| \neq f(x, y) \cdot g(t)$. C'est le cas sur la figure 6.1 (a), qui représente le spectre résolu spatialement (x correspond à la dimension transverse) pour une impulsion dont le spectre serait plus large au centre que sur les bords. Le panel (b) représente l'enveloppe de l'impulsion en limite de transformée de Fourier dans l'espace (x, t) . Ainsi, la durée de l'impulsion est plus courte au centre malgré que la phase spectrale soit plate.

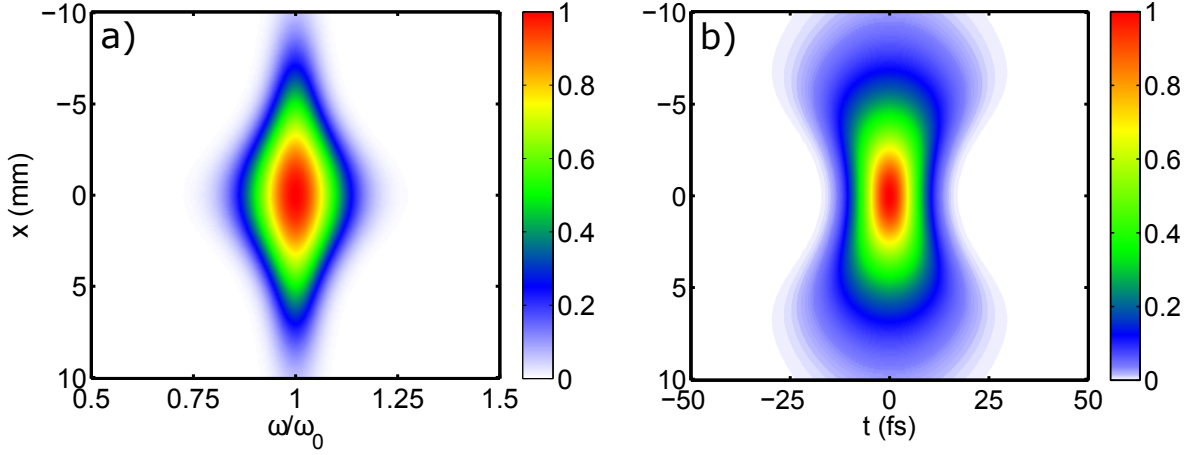


FIGURE 6.1 – Représentation d'un couplage en amplitude pour une impulsion dont le spectre est plus large au centre que sur les bords (a). Du point de vue temporel, cela correspond à une impulsion qui serait plus courte au centre, sous l'hypothèse d'une phase spectrale plate.

Dans le cas d'un couplage en phase, on ne peut plus écrire la phase sous la forme suivante : $\phi(x, y, t) \neq \phi_1(x, y) + \phi_2(t)$, ou de façon équivalente dans le domaine fréquentiel : $\phi(x, y, \omega) \neq \phi_1(x, y) + \phi_2(\omega)$. Nous allons illustrer ce type de couplage avec un couplage appelé "pulse front curvature" (courbure de front d'onde) sur lequel nous reviendrons plus loin dans ce chapitre. La courbure de front d'onde correspond à une phase spatio-spectrale que l'on peut écrire sous la forme $\phi(x, y, \omega) = \alpha(x^2 + y^2)(\omega - \omega_0)$. Le champ laser pour une impulsion gaussienne fait intervenir le terme de phase $\phi_g(x, y, z) = \frac{\omega_0}{c} \frac{x^2 + y^2}{2R(z)}$ qui traduit la courbure du front d'onde, et qui indique ainsi la position à laquelle se focalise l'impulsion. La courbure de front d'onde se traduit donc par le fait que chaque longueur d'onde présente un rayon de courbure différent, et se focalise donc à une position différente : il s'agit d'une conséquence spatio-temporelle de l'aberration chromatique.

On représente l'effet d'un tel couplage sur la figure 6.2 pour laquelle on considère une impulsion dont le spectre en intensité est similaire au spectre élargi que nous avons mesuré expérimentalement dans le champ proche (voir section 6.4.1). Nous avons alors multiplié ce spectre par un terme de phase $e^{i\alpha(x^2 + y^2)(\omega - \omega_0)}$ traduisant le couplage de "pulse front curvature", puis nous avons calculé l'enveloppe temporelle en appliquant une transformée de Fourier inverse. Dans le champ proche, cela se traduit par une courbure du front d'énergie [19] comme l'indique le panel (a). Bien que le front d'énergie soit courbé, la durée locale de l'impulsion représentée sur la figure 6.2 (a) est de $\tau = 7$ fs, proche de la durée en limite de transformée de Fourier. Lorsqu'on propage cette impulsion jusque dans le champ lointain grâce au calcul de l'intégrale de Fresnel, ce couplage provoque

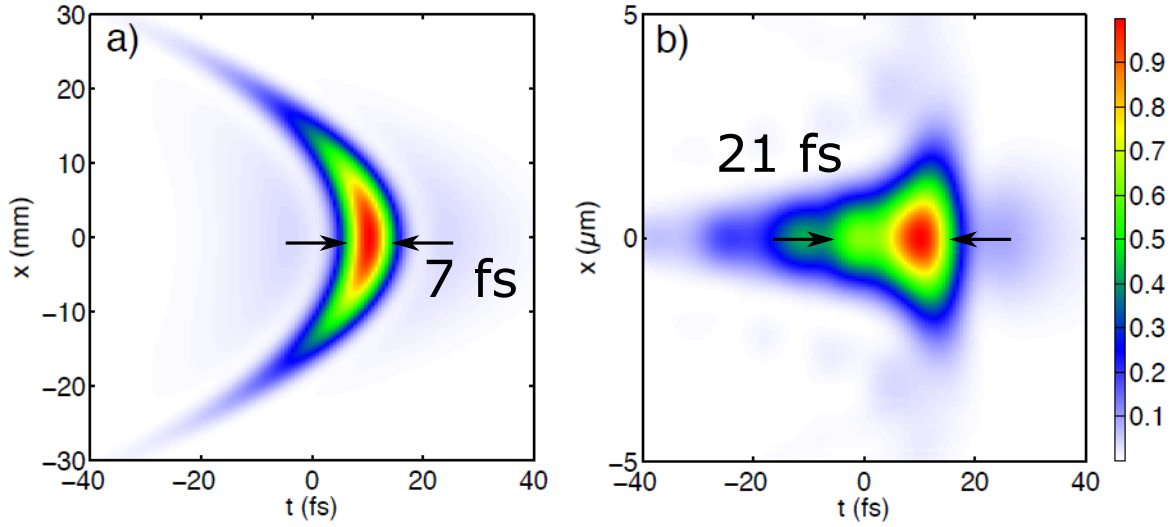


FIGURE 6.2 – Représentation de l'effet du couplage spatio-temporel $\phi(x, y, \omega) = \alpha(x^2 + y^2)(\omega - \omega_0)$. a) Intensité $I(x, t)$ d'une impulsion dont le spectre en intensité correspond au type de spectre mesuré expérimentalement après élargissement spectral, et dont la phase spectrale représente ce couplage appelé "pulse front curvature". b) Résultat de la propagation de l'impulsion jusque dans le champ lointain : la durée de l'impulsion augmente de 7 fs FWHM dans le champ proche à 21 fs FWHM au foyer.

une élongation de la durée de l'impulsion à $\tau = 21$ fs et d'une diminution de l'intensité pic [20]. En effet, l'intensité spectrale des composantes défocalisées étant plus faible, la largeur spectrale au foyer est réduite, et donc la durée de l'impulsion est plus longue.

6.3 Montage expérimental

Le montage expérimental que nous avons mis en place au LOA est représenté sur la figure 6.3. Les impulsions laser d'énergie 4 mJ et de durée 25 fs sont focalisées avec une parabole hors-axe de focale 120 mm sur un waist $W_0 \simeq 4 \mu\text{m}$, permettant d'atteindre une intensité de $I_L \simeq 9 \times 10^{17} \text{W/cm}^2$ dans le plan focal. Un jet de gaz de diamètre 100 μm au travers duquel s'écoule de l'azote en continu est placé au foyer de la parabole. A partir de mesures de la distribution transverse de l'intensité laser autour du foyer, nous avons estimé la longueur de Rayleigh à $z_R = 33 \mu\text{m}$. On peut noter que la longueur de Rayleigh d'un faisceau gaussien à $\lambda_0 = 800 \text{nm}$ et de waist $W_0 \simeq 4 \mu\text{m}$ est $z_{R, \text{gauss}} = \pi W_0^2 / \lambda_0 = 63 \mu\text{m}$. L'écart entre la mesure et la théorie pour un faisceau gaussien montre encore l'effet du front d'onde laser sur la propagation, et pour cette raison nous prendrons en compte les aberrations du front d'onde dans les simulations.

Après l'interaction avec le jet de gaz, les impulsions laser sont collimatées avec une parabole d'hors-axe 90° et d'ouverture $f/2$, puis envoyées hors de l'enceinte sous vide vers différents diagnostics comme représenté sur la figure 6.3. L'homogénéité de la distribution transverse en intensité dans le champ proche est mesurée en imageant la lumière transmise par un diffuseur de diamètre 50 mm. L'homogénéité spectrale et temporelle a

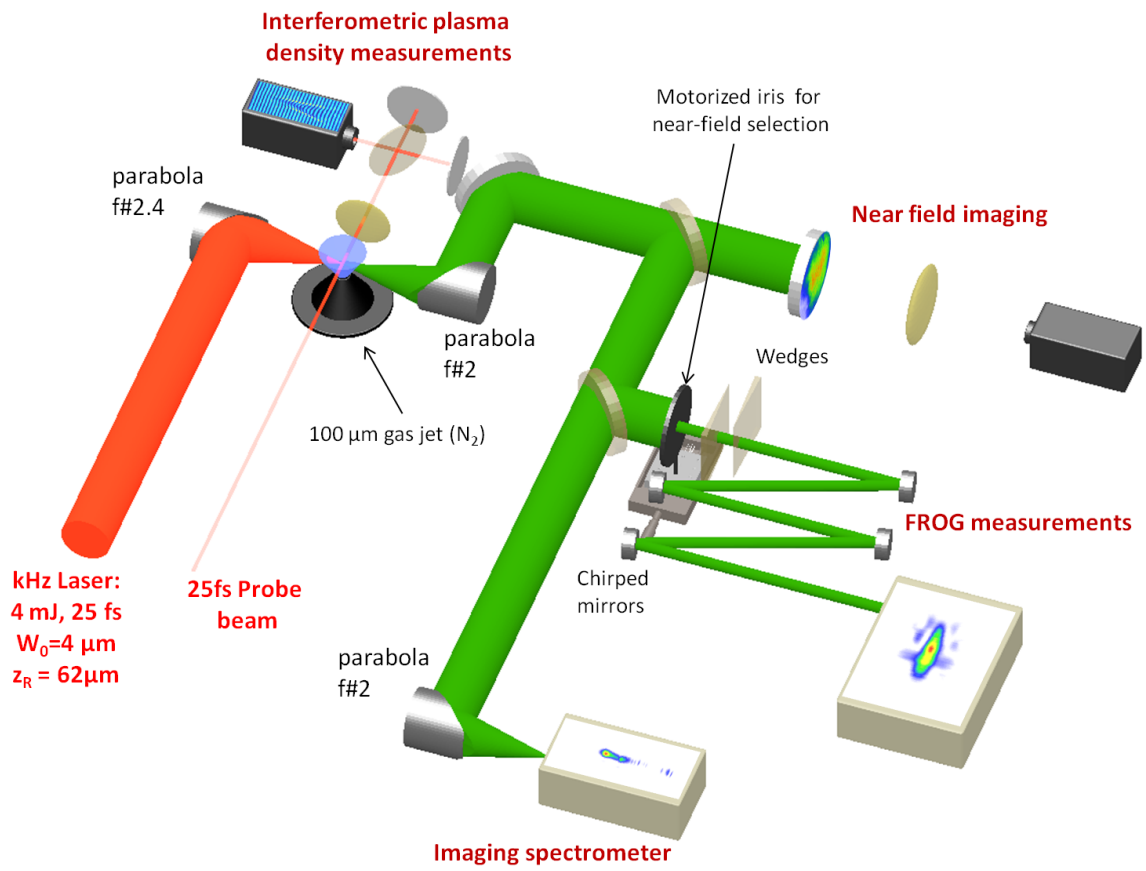


FIGURE 6.3 – Montage expérimental pour l'expérience de compression temporelle induite par ionisation.

été étudiée en réalisant des mesures tous les 4 mm dans le champ proche. Le profil temporel dans le champ proche est mesuré avec un *second harmonic generation frequency-resolved optical gating* (SHG-FROG) [21]. Afin de compenser la dispersion accumulée par la propagation à travers le hublot de sortie de l'enceinte ainsi que lors de la propagation à l'air, nous avons ajusté la compression de l'impulsion laser avec des miroirs chirpés et 2 wedges lorsqu'on n'injecte pas de gaz dans le jet (voir Fig. 6.3). Le spectre de chacune des parties de l'impulsion envoyée dans le FROG est mesuré grâce à un spectromètre fibré. De plus, un spectromètre imageur permet de résoudre spectralement la tache focale de l'impulsion laser refocalisée par une parabole hors-axe d'ouverture $f/2$. Enfin, la densité électronique du plasma est mesurée interférométriquement, et les résultats présentés par la suite ont été obtenus avec un profil plasma gaussien de largeur FWHM $\sim 120 \mu\text{m}$.

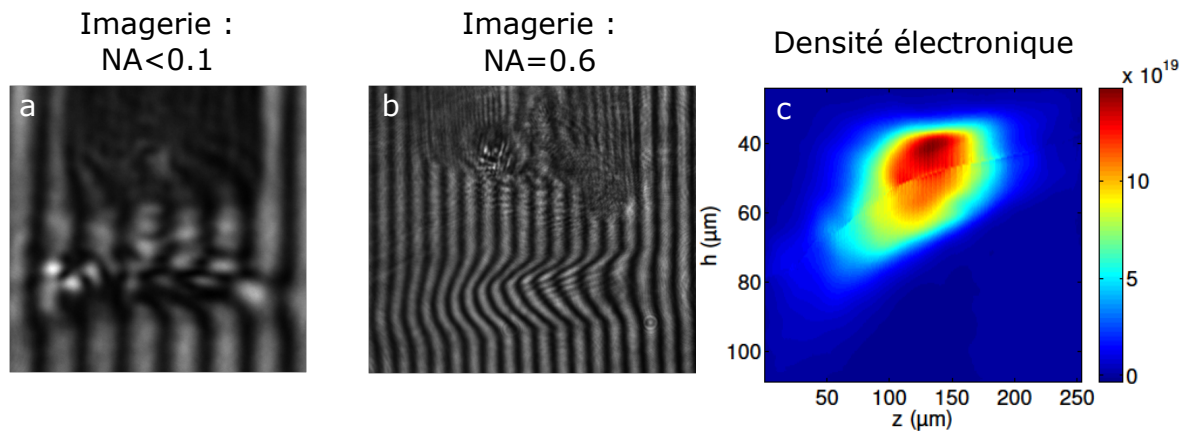


FIGURE 6.4 – Exemples d’interférogrammes obtenus pour la mesure d’une haute densité électronique du plasma avec a) l’ancien système d’imagerie dont l’ouverture numérique est inférieure à 0.1, et b) le nouveau système d’imagerie d’ouverture numérique $\text{NA} = 0.6$. c) Carte de densité électronique validant le nouveau système d’imagerie pour la mesure de haute densité, ici $n_e \simeq 1.5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$.

Nous avons dû modifier le système d’imagerie du plasma pour être capable de mesurer la densité électronique. Lorsque nous créons un plasma de petite taille ($W_0 \simeq 4 \mu\text{m}$) et de haute densité ($n_e \sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$), les gradients défocalisants que subit le faisceau sonde sont extrêmement forts. Si l’ouverture numérique du système d’imagerie est trop faible, nous ne collectons pas les rayons qui divergent le plus, et par conséquent nous perdons de l’information. Le nouveau système d’imagerie du plasma est composé de 2 couples de lentilles. Le premier couple agrandit peu la taille du plasma mais permet de faire l’image en dehors de la chambre d’interaction. Le second couple conjugue l’image intermédiaire sur un capteur CCD avec un grandissement $\times 8$. Grâce à ce fort grandissement, nous avons suffisamment de place entre la dernière lentille et le capteur CCD pour faire la mesure interférométrique du déphasage introduit par le plasma. La figure 6.4 (a) représente un interférogramme obtenu avec l’ancien système d’imagerie : les franges d’interférences sont brouillées et il n’est pas possible de retrouver le déphasage à partir de cette mesure. Sur le panel (b), on peut voir qu’une grande ouverture numérique ($\text{NA} = 0.6$) permet de collecter tous les photons, il n’y a pas de zones d’ombres sur l’interférogramme, et on peut donc

retrouver le déphasage introduit par le plasma sur le faisceau sonde. Le panel (c) montre que l'on est capable de mesurer des densités électroniques élevées : $n_e > 10^{20} \text{ cm}^{-3}$.

6.4 Résultats expérimentaux : auto-compression de l'impulsion à 12 fs

6.4.1 Auto-compression temporelle de l'impulsion

Dans un premier temps, l'élargissement spectral et l'auto-compression ont été optimisés en faisant varier la densité du jet de gaz et sa position par rapport au plan focal de l'impulsion laser, et les meilleurs résultats ont été obtenus pour une densité électronique maximale de $n_e = 8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. On représente sur la figure 6.5 des traces FROG brutes obtenues sans gaz sur le panel (a)), et avec gaz sur le panel (b)).

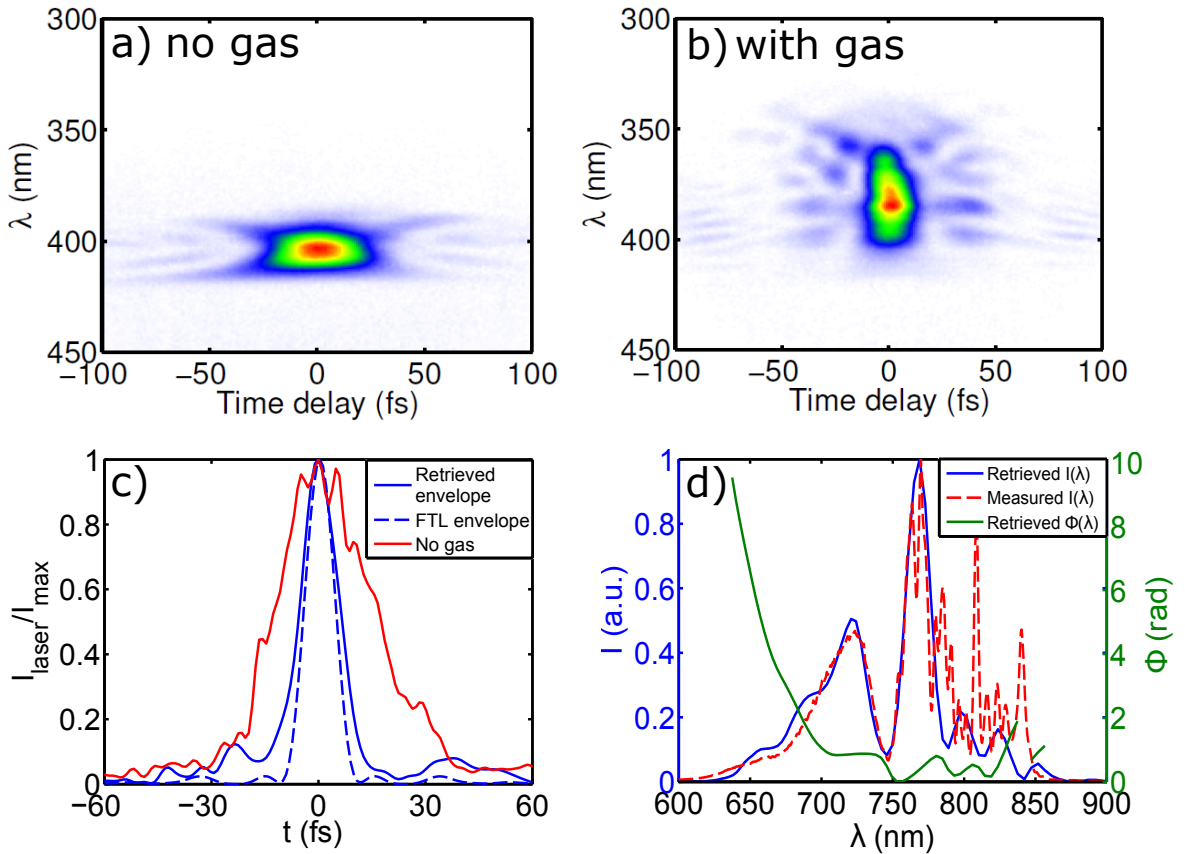


FIGURE 6.5 – Auto-compression temporelle de l'impulsion laser. a-b) Traces FROG brutes mesurées avec et sans gaz respectivement. c) Enveloppe temporelle retrouvée par l'algorithme FROG pour l'impulsion initiale (rouge), après auto-compression (bleu) et en limite de transformée de Fourier (pointillés bleus). d) Courbe pleine : amplitude et phase spectrale retrouvée par l'algorithme FROG. courbe pointillée : spectre laser mesuré avec le spectromètre.

Ces traces FROG montrent que l'élargissement spectral ne se fait que vers les basses longueurs d'onde, comme attendu pour l'élargissement induit par ionisation [7, 22]. L'algorithme de reconstruction que j'ai utilisé avait été développé au LOA par Frederik Böhle.

Il permet de retrouver l'enveloppe et la phase laser à partir d'une trace FROG. La figure 6.5 (c) montre que l'enveloppe temporelle est comprimée de 25 fs initialement à 12 fs après ionisation (courbes rouge et bleue). Le panel (d) représente le spectre de l'impulsion retrouvée par l'algorithme FROG en bleu, qui est similaire à celui mesuré avec le spectromètre en rouge. La limite en transformée de Fourier de l'impulsion élargie est de 8 fs indiquant que l'impulsion n'est pas parfaitement comprimée, ce qui est confirmé par la phase spectrale retrouvée par le FROG (courbe verte sur le panel (d)). Cette phase spectrale est en accord avec le mécanisme d'élargissement spectral : le front d'ionisation crée une variation rapide de l'indice optique à l'avant de l'impulsion, et par conséquent les composantes bleues sont situées à l'avant alors que les composantes rouges restent à l'arrière. De plus, l'avant de l'impulsion subit une large dispersion de la vitesse de groupe (GVD) due au fort gradient d'indice car l'avant de l'impulsion se propage dans un gaz alors que l'arrière se propage dans un plasma. Ces deux effets expliquent donc pourquoi la durée de l'impulsion n'est pas en limite de transformée de Fourier. Nous avons retrouvé jusqu'ici des résultats similaires à ceux obtenus dans [16], nous allons maintenant nous intéresser à la question de l'homogénéité du mécanisme d'auto-compression.

6.4.2 Homogénéité des impulsions auto-comprimées

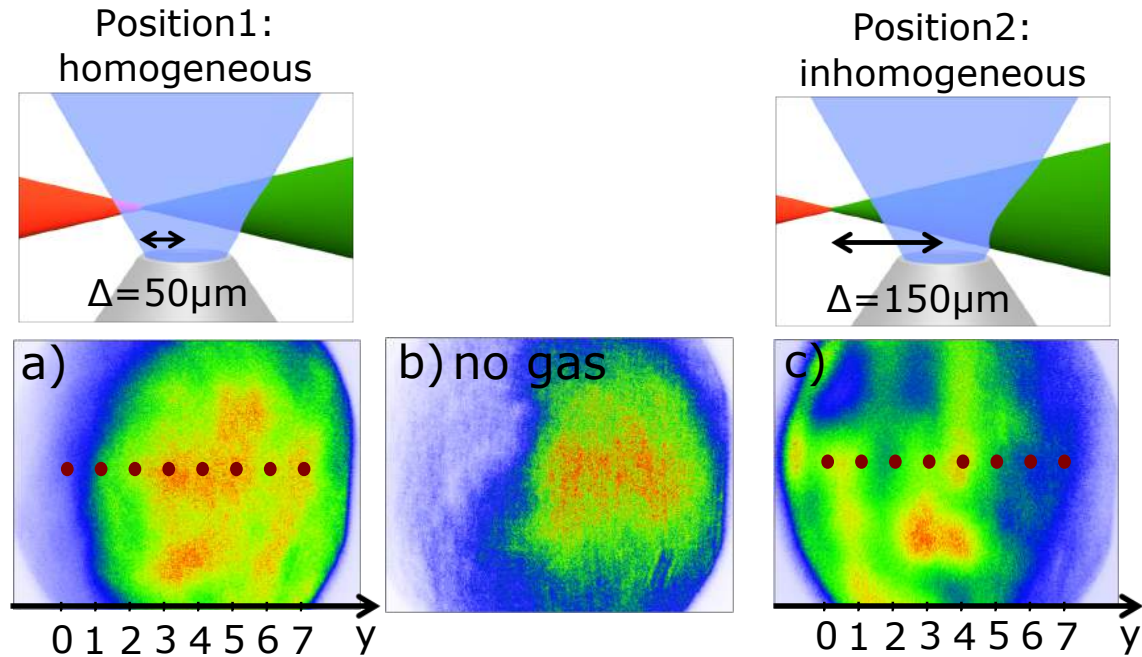


FIGURE 6.6 – Homogénéité spatiale pour 2 positions du plan focal dans le jet de gaz. Image brute dans le champ proche de la distribution laser en intensité : a) à la position 1 $z_{foc} = -50 \mu\text{m}$ par rapport au centre du jet de gaz, b) sans interaction avec gaz et c) à la position 2 $z_{foc} = -150 \mu\text{m}$. Les points rouges représentent les 8 positions auxquelles les mesures spectrales et temporelles ont été faites.

Les résultats expérimentaux indiquent que l'homogénéité spatiale et spectrale dépend fortement de la position du plan focal laser dans le jet de gaz, et que l'auto-compression

n'est homogène que dans une zone très limitée. On représente sur la figure 6.6 la distribution de l'intensité laser dans le champ proche pour deux positions différentes du plan focal dans le jet de gaz. La position 1 représente la distribution de l'intensité laser lorsque le plan focal est en $z_{foc} = -50 \mu\text{m}$ par rapport au centre du jet de gaz, et la position 2 montre la distribution de l'intensité laser pour $z_{foc} = -150 \mu\text{m}$ (focalisé avant le jet de gaz). On peut voir que le profil laser pour la position 1 est assez homogène et comparable au profil laser sans gaz (représenté au milieu de la figure 6.6), alors que le profil laser pour la position 2 est beaucoup moins homogène et présente des points chauds.

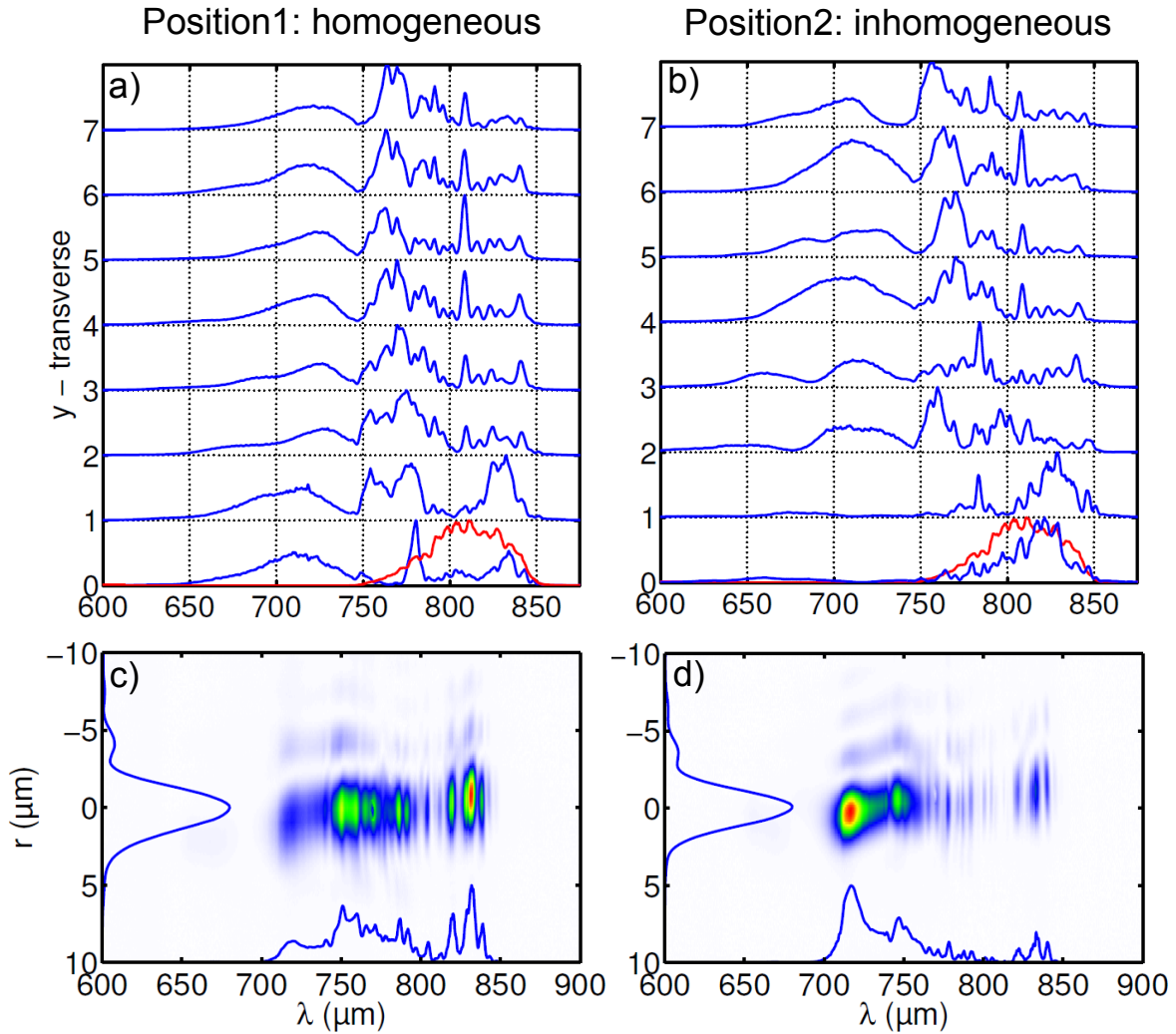


FIGURE 6.7 – Résultats sur l'homogénéité spectrale. a-b) Spectre laser élargi aux 8 positions le long du champ proche pour les positions 1 (homogène) et 2 (inhomogène). La courbe rouge représente le spectre laser initial. c-d) Tache focale (dans le champ lointain) résolue spectralement.

Nous avons également observé que la position du plan focal impacte fortement l'homogénéité spectrale. Les figures 6.7 (a)-(b) montrent les spectres laser mesurés à 8 positions dans le champ proche (représentées par les points rouges sur les figures 6.6 (a)-(c)) pour des positions du plan focal correspondant aux positions 1 et 2 respectivement. Après le jet de gaz, les spectres sont élargis par l'ionisation vers le bleu jusqu'à 600-650 nm. Il apparaît clairement sur le panel 6.7(a) que l'élargissement spectral est homogène le long

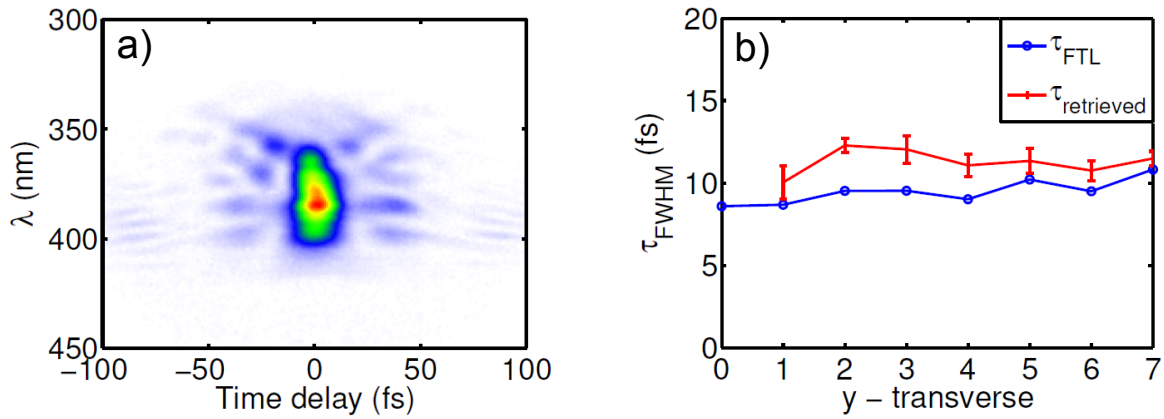
du profil laser, alors que pour la position 2 représentée sur le panel 6.7(b), les spectres sont très inhomogènes. L'homogénéité de l'élargissement est très sensible à la position du plan focal dans le jet de gaz, et il suffit de la décaler d'une longueur de Rayleigh pour que l'élargissement devienne inhomogène.

Les figures 6.7(c)-(d) représentent les taches focales résolues spectralement après élargissement pour les positions 1 et 2 respectivement. On peut voir que les faisceaux élargis peuvent être refocalisés correctement, la largeur totale à mi-hauteur étant d'environ $3\text{ }\mu\text{m}$ sur ces images. Toutefois, deux éléments semblent indiquer la présence de couplages qui affectent la propagation de l'impulsion. D'une part, on voit que l'homogénéité spatiale des spectres représentés sur les panels (c) et (d) n'est pas parfaite, ce qui traduit la présence de couplages spatio-spectraux. Il semble d'ailleurs que cet effet soit plus prononcé pour la position 2. D'autre part, on remarque que la largeur spectrale dans le champ lointain est moins large que dans le champ proche, ce qui peut être la signature de couplages spatio-temporels comme nous le verrons plus loin.

Enfin, nous avons mesuré l'homogénéité temporelle en enregistrant des traces FROG à différentes positions selon y dans le champ proche le long du profil laser. Les résultats des mesures obtenues pour la position 1 sont résumés sur la figure 6.8 (a)-(b). En $z_{foc} = -50\text{ }\mu\text{m}$, les traces FROG sont symétriques, voir panel (a), ce qui nous a permis de retrouver les enveloppes temporelles avec une erreur FROG inférieure à 1 % (qui correspond à l'écart rms entre la trace mesurée et la trace retrouvée). La courbe rouge sur la figure 6.8 (b) montre que la durée en intensité de l'impulsion retrouvée est assez homogène le long du champ proche avec des variations de l'ordre de $\pm 1\text{ fs}$. La courbe bleue montre que la durée en limite de transformée de Fourier est également homogène et que l'impulsion est légèrement chirpée, comme nous l'avons vu précédemment. Les mesures faites pour la position 2 sont représentées sur les figures 6.8 (c)-(d). L'asymétrie des traces FROG mesurées est un signe de l'inhomogénéité de la distribution en intensité du laser [21], et par conséquent l'amplitude et la phase laser retrouvées par l'algorithme FROG ne sont pas fiables. Nous n'avons donc pas pu mesurer la durée de l'impulsion laser pour la position 2, mais le panel 6.8 (d) montre que la durée en limite de transformée de Fourier n'est pas homogène le long du faisceau : elle passe de 8 fs au centre du faisceau à environ 13 fs sur les bords.

Pour conclure sur cette partie expérimentale, nos mesures confirment les données provenant de [16] et indiquent que l'on peut comprimer de façon homogène la durée de l'impulsion d'un facteur 2 dans le champ proche. Toutefois, nous nuancions ces propos car l'homogénéité dépend très fortement de la position du plan focal dans le jet de gaz. Plus important encore, les mesures dans le champ lointain montrent que, bien que la qualité spatiale de l'impulsion focalisée soit bonne, des couplages spatio-temporels pourraient affecter le profil temporel. N'ayant pas pu faire de mesures temporelles en champ lointain, nous allons étudier cet aspect grâce à des simulations numériques.

Position1: Homogeneous



Position2: Inhomogeneous

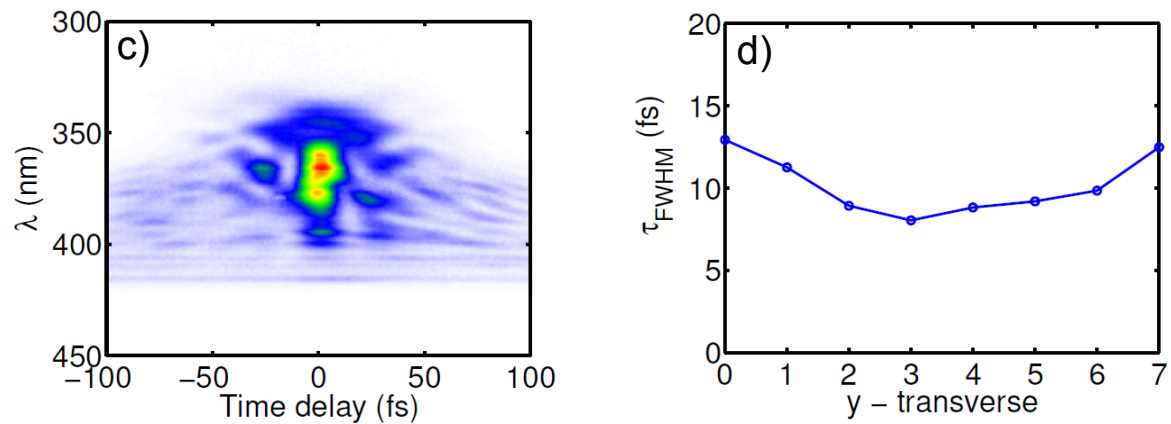


FIGURE 6.8 – Etude de l'homogénéité temporelle. a) Exemple de trace FROG obtenue à la position 1, pour laquelle l'élargissement spectral était homogène. b) Evolution de la durée le long de l'impulsion. Durée FWHM retrouvée à partir des mesures FROG en rouge, et durée en limite de transformée de Fourier en bleu. c) Trace FROG obtenue à la position 2. d) Durée FWHM en limite de transformée de Fourier, les traces FROG n'étant pas suffisamment homogènes pour le calcul de la durée avec l'algorithme FROG.

6.5 Simulations PIC

6.5.1 Modélisation de l'interaction laser-plasma

Nous avons modélisé l'ionisation et l'interaction laser-plasma avec le code quasi-3D Calder-Circ [23], le même code que nous avons utilisé dans le chapitre 4 pour étudier l'effet du front d'onde sur l'accélération d'électrons. Les équations de Maxwell, l'ionisation des molécules d'azote via le modèle ADK [24, 25], et les équations du mouvement pour les électrons sont résolues dans une fenêtre glissante de taille $\Delta z \times \Delta r = 61 \times 84 \mu\text{m}^2$. Cette fenêtre glissante est échantillonnée avec des cellules de taille $\delta z = 0.15/k_0$ et $\delta r = 1/k_0$ (où $k_0 = 2\pi/\lambda_0$) pour les 5 premiers modes de Fourier. Chaque cellule contient 10 macro-particules représentant les atomes d'azote neutres. Au cours de la simulation, les atomes sont ionisés jusqu'à 5 fois, et les cellules contiennent alors 50 macro-électrons et 10 ions azote. Les effets non-relativistes comme l'effet Kerr ou l'auto-modulation de phase n'ont pas besoin d'être inclus dans le code car à ces intensités laser, l'avant de l'impulsion ionise très rapidement les premiers électrons de sorte qu'une quantité négligeable d'énergie interagit avec le gaz non ionisé.

Afin de reproduire au mieux les résultats expérimentaux, nous avons inclus dans les simulations le profil de la densité de gaz mesuré ainsi que les paramètres laser de l'expérience. Les résultats des simulations étant sensibles au mode laser, nous avons également inclus dans les simulations le mode laser au foyer ainsi que la phase spatiale en suivant la même démarche pour retrouver le front d'onde que celle utilisée au chapitre 4 [26]. De plus, les codes PIC étant très gourmands en temps de calcul, on laisse tourner le code jusqu'à ce que l'impulsion laser quitte le jet de gaz mais il n'est pas possible de la propager sur quelques millimètres jusqu'au champ proche. Nous avons alors utilisé un second code basé sur la décomposition en ondes planes afin de propager la sortie de la simulation PIC jusqu'en champ proche ou en champ lointain. On peut noter que la forte divergence de l'impulsion ne satisfait pas l'hypothèse paraxiale : $k_z = \sqrt{k^2 - k_x^2 - k_y^2} \neq k \left(1 - \frac{k_x^2}{2k^2} - \frac{k_y^2}{2k^2}\right)$ nécessaire au calcul de l'intégrale de Fresnel pour la propagation du champ laser. L'équation d'onde peut toutefois être résolue sans approximations dans l'espace de Fourier de la façon suivante : on note $E_i(x, y, t, z=0)$ le champ électrique en $z=0$ que l'on veut propager sur une distance z . Le champ $E(x, y, t, z)$ vérifie l'équation d'onde pour la propagation dans le vide :

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} \quad (6.2)$$

En effectuant la transformée de Fourier 3D de l'équation 6.2 selon les variables (x,y,t) on en déduit :

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2} \tilde{E}(k_x, k_y, \omega, z) = \left(\frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2 - k_y^2 \right) \tilde{E}(k_x, k_y, \omega, z) \quad (6.3)$$

Que l'on peut résoudre pour obtenir le champ en z dans l'espace (x,y, ω) :

$$E(x, y, \omega, z) = \text{TF}_{(k_x, k_y)}^{-1} \left[\tilde{E}(k_x, k_y, \omega, z=0) e^{-ik_z z} \right] \quad (6.4)$$

où $k_z = \sqrt{\frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2 - k_y^2}$. Pour calculer l'impulsion dans le champ lointain, il suffit donc de rétro-propager l'impulsion jusqu'au foyer puis d'effectuer la transformée de Fourier inverse sur ω . Pour modéliser le laser dans le champ proche après une optique de collimation comme un miroir parabolique, on ajoute simplement un terme de phase quadratique qui correspond à la phase introduite par une optique de collimation :

$$E_{chp\ proche}(x, y, t, z) = \text{TF}_{\omega}^{-1} \left[E(x, y, \omega, z) e^{ik \frac{x^2+y^2}{2z}} \right] \quad (6.5)$$

où $k = \omega/c$ est le vecteur d'onde pour la propagation dans le vide.

6.5.2 Etude du mécanisme d'auto-compression par ionisation

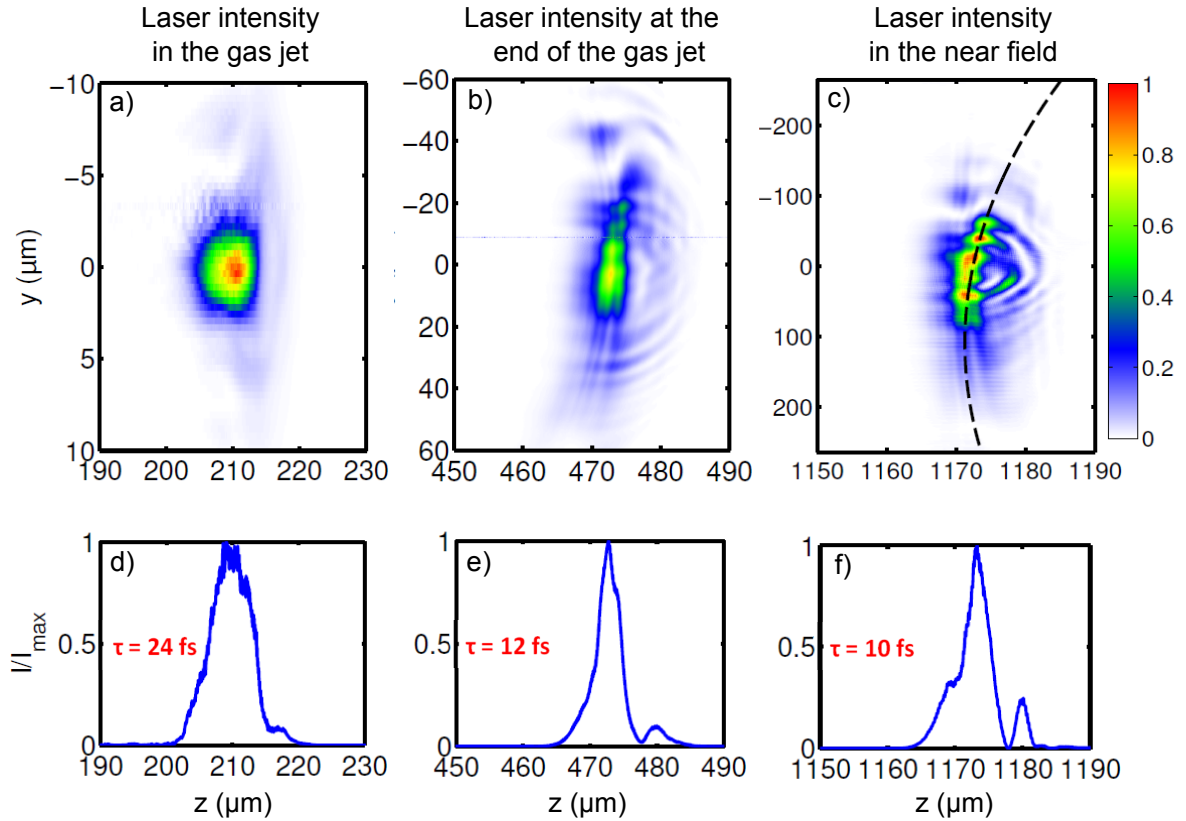


FIGURE 6.9 – Résultat de simulation PIC illustrant le mécanisme d'auto-compression de l'impulsion par ionisation. En haut est représentée l'enveloppe de l'intensité laser à différents instants au cours de la propagation : a) au centre du jet de gaz, b) en sortie du jet de gaz et c) après propagation en champ proche. En bas : coupe temporelle du profil de l'intensité sur l'axe de propagation.

La figure 6.9 montre l'évolution de l'intensité laser au cours de la propagation dans le plasma puis en champ proche pour une géométrie de focalisation correspondant à la position 1 (focalisation en $z_{foc} = -50 \mu\text{m}$). Les figures 6.9 (a)-(c) représentent l'évolution de l'enveloppe de l'intensité laser au cours de la propagation, et les figures 6.9 (d)-(f)

montrent les enveloppes temporelles correspondantes sur l'axe. Dans cette simulation, le pic de densité est à la position $z = 200 \mu\text{m}$ et le plan focal laser en $z = 150 \mu\text{m}$. Les figures 6.9 (a) et (b), représentant l'intensité laser au milieu et à la sortie du jet de gaz respectivement, montrent que l'avant de l'impulsion est progressivement érodée par la défocalisation induite par l'ionisation [22], réduisant ainsi la durée de l'impulsion à 12 fs en sortie du jet de gaz (panels b-e). La figure 6.9 (c) représente l'intensité laser dans le champ proche après propagation sur $z = 1 \text{ mm} \gg z_R = 33 \mu\text{m}$. La durée de l'impulsion fait alors 10 fs et l'homogénéité temporelle le long de l'impulsion est assez bonne. Il est surprenant de remarquer que le front d'énergie est courbe, comme l'indique la ligne en pointillés, alors que les fronts de phase sont plans (pas représentés ici). Il s'agit là encore d'une signature des couplages spatio-temporels dont nous étudierons les conséquences par la suite.

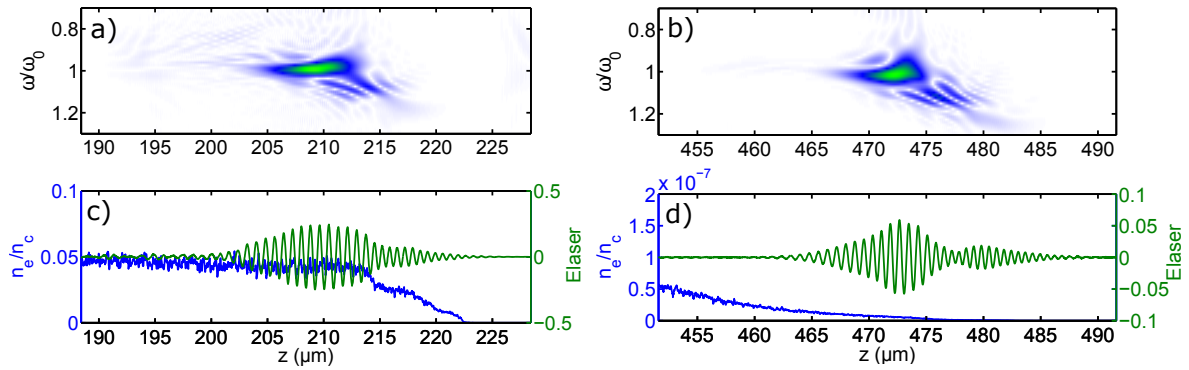


FIGURE 6.10 – Analyse temps-fréquence de l'impulsion laser à différentes positions dans le jet de gaz. a-b) Transformée de Wigner du champ laser sur l'axe respectivement au milieu et en sortie du jet de gaz, permettant de mettre en évidence la position des fréquences au sein de l'impulsion. c-d) Vert : champ laser sur l'axe. Bleu : densité électronique sur l'axe.

De plus, les simulations montrent que les composantes bleues sont générées à l'avant de l'impulsion et que la GVD due au fort gradient d'indice crée un chirp à l'avant de l'impulsion. La figure 6.10 (a) représente la transformée de Wigner-Ville du champ laser au milieu du jet de gaz. Ce type de transformation donne le spectre *localement* le long de l'impulsion, en convertissant un signal $E(t)$ à une dimension en une carte 2D $E(t, \omega)$. Le résultat de la transformée de Wigner-Ville représenté sur la figure 6.10 (a) montre clairement que le bleu est à l'avant et que le rouge est à l'arrière de l'impulsion, et ce jusqu'en sortie du jet de gaz (voir figure 6.10 (b)). La figure 6.10 (c) représente le champ électrique au milieu du jet de gaz ainsi que la densité électronique sur l'axe. Il apparaît que l'ionisation n'a lieu qu'à l'avant de l'impulsion alors que la partie centrale et l'arrière sont épargnés.

La figure 6.11 permet de comparer les mesures temporelles au FROG de l'auto-compression avec les résultats de la simulation PIC dans des conditions similaires, qui ont été propagés jusqu'au champ proche. La largeur spectrale 6.11 (a) et l'enveloppe temporelle 6.11 (c) sont très bien reproduites par les simulations, et la phase spectrale mesurée est remarquablement proche de celle calculée numériquement : 6.11 (b). Ces résultats valident l'utilisation du code PIC pour capturer la physique 3D de l'auto-compression dans le plasma.

Position 1: on-axis intensity and phase in the near field

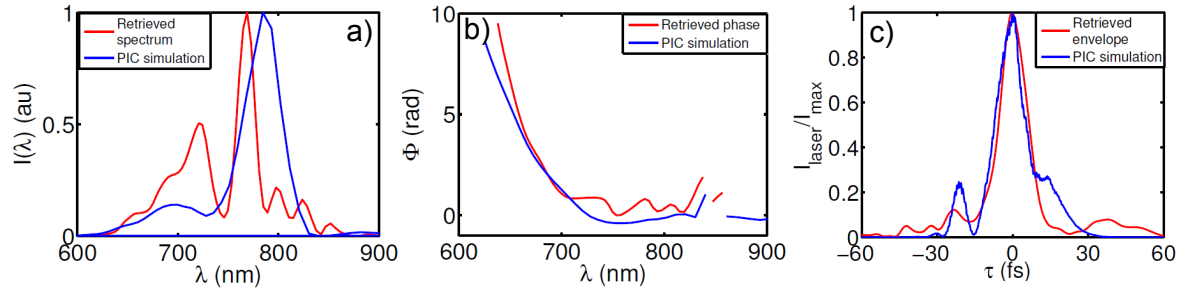
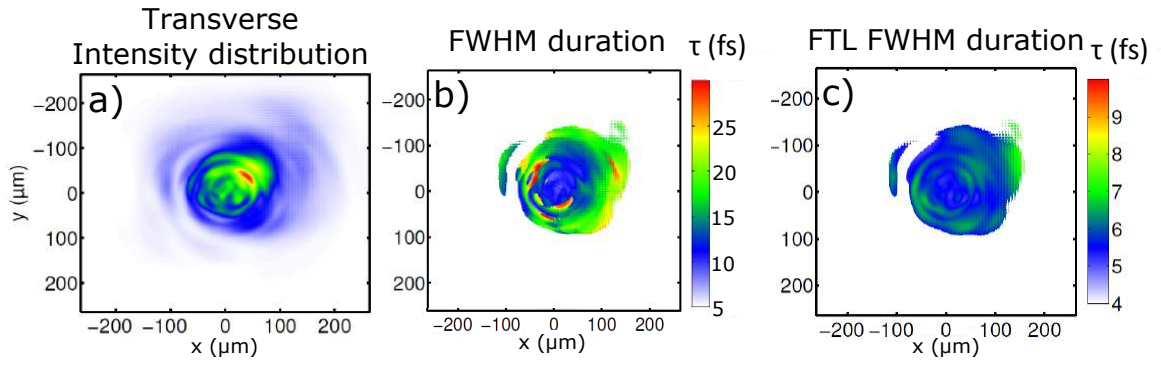


FIGURE 6.11 – Comparaison de l'impulsion provenant de la simulation PIC en bleu avec le champ retrouvé par l'algorithme FROG, en rouge.

6.5.3 Etude numérique de l'homogénéité de l'auto-compression par ionisation

Position1: homogeneous



Position2: inhomogeneous

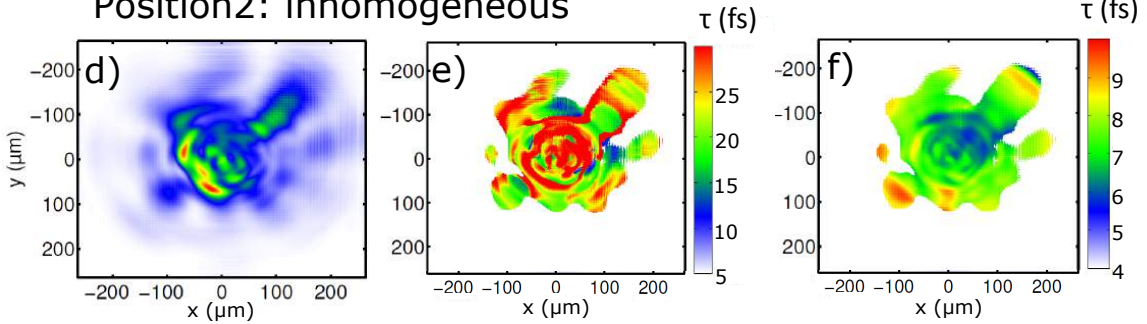


FIGURE 6.12 – Résultats des simulations PIC en champ proche pour les positions 1 et 2, qui correspondent aux 2 positions du plan focal laser dans le jet de gaz pour lesquelles nous avons fait ces mesures.

Les simulations PIC nous ont permis de reproduire les résultats expérimentaux concernant l'homogénéité spatiale et temporelle de l'auto-compression. Les figures 6.12 (a)-(c) représentent la distribution transverse en intensité ainsi que la durée locale dans l'impulsion pour la simulation dans laquelle le laser est focalisé 50 μm avant le pic de densité (position 1). La distribution transverse en intensité dans le champ proche est assez homogène, et la durée FWHM est de l'ordre de 10-12 fs dans les zones où l'intensité est la

plus élevée. La figure 6.12 (c) indique que la durée en limite de transformée de Fourier est également homogène et vaut 5-6 fs le long de l'impulsion. Par contre, les mêmes diagnostics pour la simulation dans laquelle le laser est focalisé 150 μm avant le pic de densité (position 2) montrent des résultats très différents : on peut voir sur les panels 6.12 (d)-(f) que la distribution transverse, la durée de l'impulsion ainsi que la durée en limite de transformée de Fourier sont très inhomogènes. Le panel (e) montre l'effet catastrophique de l'interaction laser-plasma sur la durée de l'impulsion dans cette configuration : l'impulsion n'est pas auto-comprimée et la durée FWHM est par endroits supérieure à 30 fs. L'ensemble des résultats expérimentaux sont très bien reproduits numériquement et soulignent l'importance de la position du plan focal dans le jet de gaz pour que l'auto-compression soit homogène.

6.5.4 Interprétation physique des résultats

L'ensemble des résultats expérimentaux et numériques montrent que plusieurs conditions doivent être remplies pour que l'auto-compression de l'impulsion soit homogène à environ 10 fs. D'une part, il faut que la longueur du jet de gaz soit comparable à la longueur de Rayleigh afin que l'intensité laser varie peu tout au long de la propagation dans le jet de gaz. En effet, les résultats les plus homogènes ont été obtenus lorsque la longueur du jet $L_{jet} = 120 \mu\text{m}$ est du même ordre de grandeur que la longueur de Rayleigh $z_R = 33 \mu\text{m}$. Nous avons essayé expérimentalement d'auto-comprimer les impulsions en utilisant comme jet de gaz un capillaire de diamètre $\Phi = 200 \mu\text{m}$: les impulsions étaient très fortement élargies spectralement, mais de façon inhomogène. Nous avons également essayé de focaliser les impulsions laser avec une parabole d'ouverture f/1 permettant d'atteindre une intensité au foyer de $I_L \sim 3 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ et une longueur de Rayleigh de $z_R \sim 15 \mu\text{m}$. L'élargissement spectral n'était pas plus fort et les impulsions obtenues étaient moins homogènes qu'avec la parabole d'ouverture f/2.4.

D'autre part, il faut que l'intensité laser soit seulement légèrement au-dessus du seuil d'ionisation du dernier niveau pour que l'auto-compression soit possible. Si l'intensité laser est trop élevée $I_L \gg I_{N^{5+}}$, alors l'élargissement ne sera pas visible car une partie négligeable de l'impulsion contribuera à l'ionisation. À l'inverse si l'intensité est trop proche du seuil d'ionisation $I_L \leq I_{N^{5+}}$, alors la partie centrale de l'impulsion subira l'effet de l'ionisation. Dans ce cas, le gradient d'indice dû à l'ionisation couvre l'ensemble de l'impulsion, et la GVD associée à ce gradient a pour effet d'étaler temporellement l'enveloppe.

Ces considérations expliquent pourquoi l'homogénéité du processus d'auto-compression est autant sensible à la position du plan focal dans le jet de gaz. L'auto-compression est homogène lorsque l'intensité laser reste suffisamment élevée lors de la propagation à travers le jet de gaz. Seul l'avant subit les effets dus à l'ionisation qui tendent à éroder l'énergie située dans cette zone. L'arrière de l'impulsion est ainsi préservé, ce qui permet l'homogénéité du processus d'auto-compression. Toutefois, si le jet de gaz est trop long, l'ionisation va progressivement affecter l'ensemble de l'impulsion et ainsi augmenter la

durée FWHM en sortie du jet de gaz.

6.6 Etude des couplages spatio-temporels.

Pour nos applications, l'auto-compression n'a d'intérêt que si elle permet de conserver ou augmenter l'intensité laser des impulsions refocalisées. Les simulations montrent que la transmission à travers le plasma est élevée, typiquement $> 80\%$ car le volume de gaz à ioniser est faible, et les résultats expérimentaux et numériques indiquent que l'on peut réduire la durée des impulsions d'un facteur 2 en champ proche. Il serait donc possible, en théorie, de presque doubler l'intensité laser en refocalisant ces impulsions. Toutefois, cela implique que l'ionisation n'introduise pas de couplages spatio-temporels qui pourraient alors dégrader la qualité des impulsions au foyer. Les mesures expérimentales semblent indiquer la présence de tels couplages, *cf.* les différences de largeurs spectrales en champ proche et en champ lointain sur la figure 6.7. Mais nous ne disposons pas des outils expérimentaux nécessaires pour faire une mesure complète, ni en champ proche ni en champ lointain [27], de l'amplitude et de la phase laser. On peut noter que les mesures FROG donnent l'amplitude et la phase localement dans le champ proche, mais nous ne pouvons en tirer aucune conclusion quant aux couplages spatio-temporels car nous n'avons pas accès à la phase relative entre les positions pour lesquelles les mesures ont été faites. Nous nous reposons donc sur les simulations numériques pour l'étude des couplages spatio-temporels et leurs effets.

6.6.1 Mise en évidence des couplages spatio-temporels

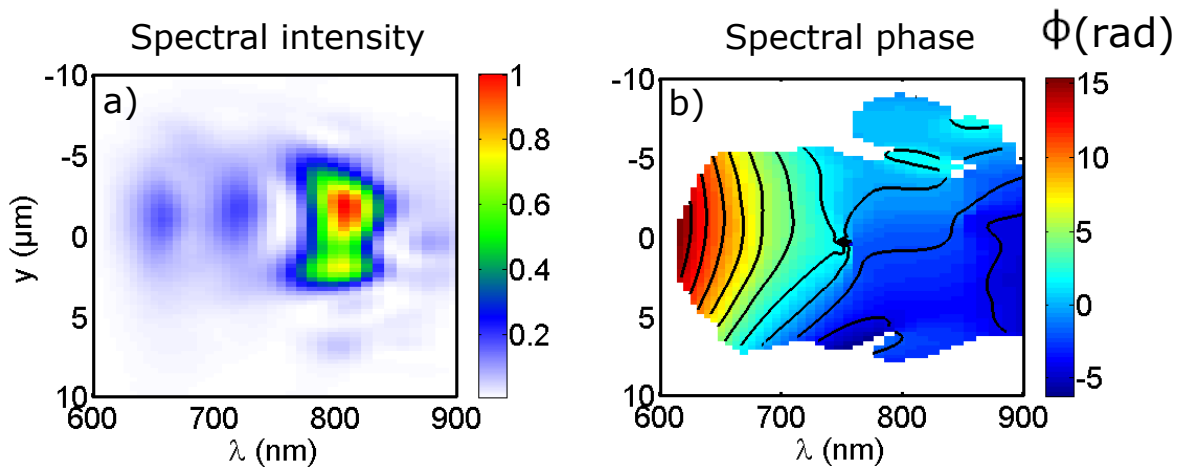


FIGURE 6.13 – Intensité et phase spectrale dans le champ lointain pour la simulation à la position 1 ($z_{foc} = -50 \mu\text{m}$).

La figure 6.13 représente le spectre en intensité ainsi que la phase spectrale dans l'espace (y, λ) en champ lointain, défini comme la position longitudinale pour laquelle l'intensité laser est la plus élevée. Il apparaît sur la figure 6.13 (b) que les composantes bleues

ont un rayon de courbure, alors que la phase spectrale est assez plate pour les composantes rouges (les lignes noires correspondent à des lignes isophases). Cela s'explique par le fait qu'au début de l'interaction, les gradients causés par l'ionisation agissent comme une lentille défocalisante pour l'avant de l'impulsion où les composantes bleues sont créées, alors que l'arrière de l'impulsion est davantage préservé. L'avant est ensuite progressivement érodé comme représenté sur les figures 6.9 et 6.10, et la durée de l'impulsion diminue. Au fur et à mesure que le front d'ionisation recule, une dynamique complexe de l'ionisation provoque une dépendance du rayon de courbure avec les longueurs d'onde.

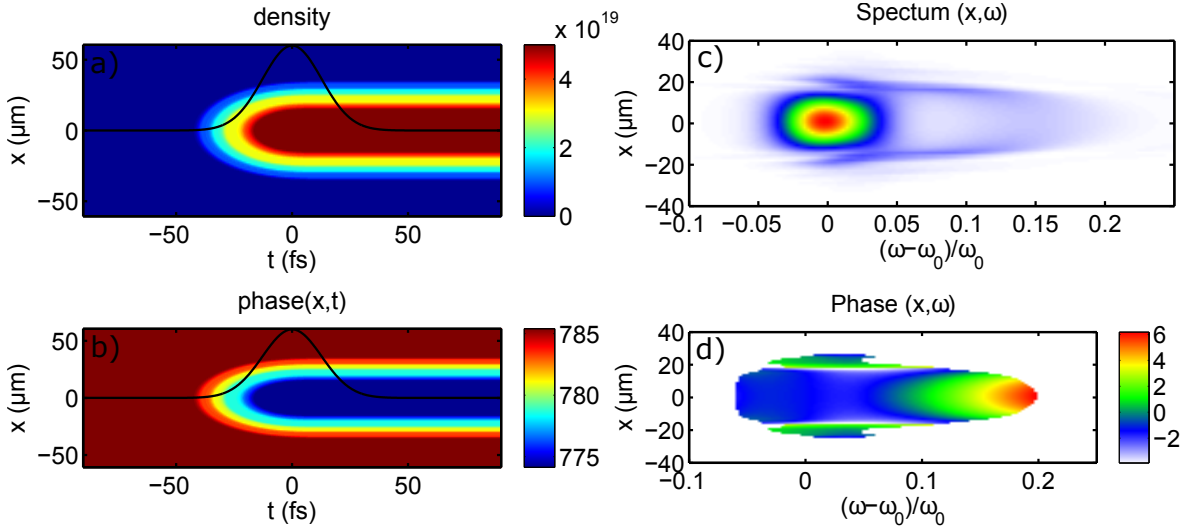


FIGURE 6.14 – Résultat d'un modèle permettant de mettre en évidence les couplages spatio-spectraux dus à l'ionisation. a) Carte de la densité électronique due à l'ionisation d'atomes d'azote à la densité $n_{at} = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ par une impulsion laser d'intensité crête $I_L = 10^{17} \text{ W/cm}^2$ et de durée 25 fs. b) Phase accumulée par l'impulsion laser après l'ionisation du gaz sur $100 \mu\text{m}$. c) Intensité spectrale après $100 \mu\text{m}$ de propagation. d) Phase spectrale après $100 \mu\text{m}$ de propagation.

Un modèle assez simple nous permet de montrer que cette différence de courbure est bien causée par le front d'ionisation. On modélise le jet de gaz par un milieu de densité atomique constante $n_{at} = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et de longueur $L = 100 \mu\text{m}$. L'impulsion laser n'étant pas focalisée au niveau du pic de densité, on considère que le waist laser dans le jet vaut $W_0 = 20 \mu\text{m}$ et l'intensité laser vaut alors $I_L = 10^{17} \text{ W/cm}^2$. La figure 6.14 (a) représente la carte de densité électronique obtenue par l'ionisation des atomes d'azote par le modèle ADK, à laquelle on a superposé le profil de l'intensité laser en noir. Cette carte montre que l'avant de l'impulsion (à gauche sur l'image) voit dans un gradient "courbé" dans l'espace (x,t) , à l'origine de la corrélation spatio-temporelle. On représente sur la figure 6.14 (b) la phase accumulée par l'impulsion laser dans le jet de gaz : $\phi(x, t) = \eta(x, t)\omega_0 L/c$ avec l'indice optique du milieu $\eta(x, t) = 1 - n_e/2n_c$. Ce modèle n'a pour objectif que de calculer la phase spatio-spectrale due à l'ionisation, nous supposons ainsi que l'enveloppe temporelle n'est pas modifiée par les gradients d'indice. Toutefois, la phase temporelle variant très rapidement sous l'impulsion, le spectre et la phase après le plasma sont modifiés. Pour mettre en évidence les couplages spatio-spectraux, nous calculons le champ

$E(x, \omega) = \text{TF}_t [E_0(x, t) \exp(i\phi(x, t))]$ où E_0 (E) est le champ laser avant (après) ionisation. On représente sur les figures 6.14 (c)-(d) le spectre en intensité et la phase spectrale dans l'espace (x, ω) . Le spectre en intensité montre que l'impulsion est élargie vers le bleu, ce que nous avons déjà observé. De plus, la phase spectrale met clairement en évidence le fait que les composantes bleues acquièrent une courbure, alors que la phase pour les composantes rouges est beaucoup plus plate. Ce modèle confirme bien les observations faites sur la figure 6.13 (b).

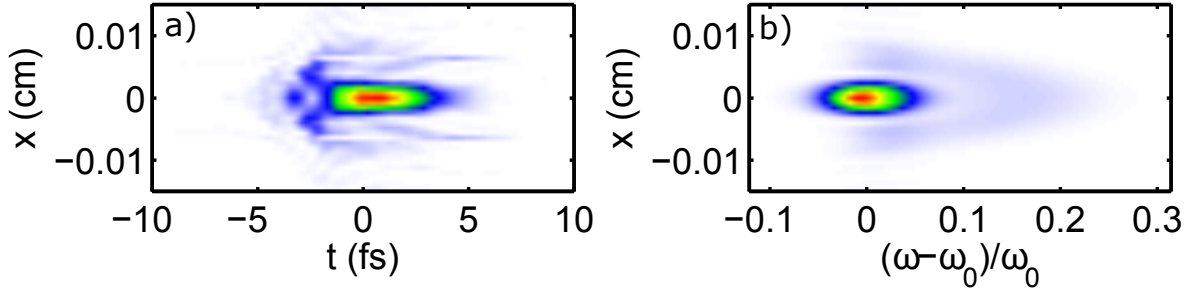


FIGURE 6.15 – Enveloppes temporelle (a) et spectrale (b) de l'impulsion obtenues après propagation jusqu'en champ proche du spectre et de la phase provenant du modèle pour l'ionisation.

Nous avons ensuite propagé l'impulsion définie par l'amplitude et la phase spectrale représentées sur les figures 6.14 (c) et (d). La figure 6.15 représente l'enveloppe temporelle ainsi que le spectre dans le champ proche, après $z = 1.2$ mm de propagation. La durée FWHM de l'impulsion est passée de 25 fs en champ lointain à environ 5 fs en champ proche. L'effet de la phase spectrale induite par l'ionisation dans ce modèle est similaire à celui du couplage spatio-temporel appelé courbure de front d'onde que nous avons présenté en début de chapitre et sur la figure 6.14 (c)-(d).

6.6.2 Effets des couplages spatio-temporels sur l'impulsion

La phase spatio-spectrale que nous avons mise en évidence a un effet dramatique sur l'impulsion refocalisée. La figure 6.16 représente la distribution en intensité et la durée de l'impulsion FWHM de la simulation PIC à la position 1 ($z_{foc} = -50 \mu\text{m}$) propagée jusqu'au champ lointain. Bien que le waist au foyer soit petit $W_0 \simeq 2.5 \mu\text{m}$, l'intensité laser $I_L \sim 6 \times 10^{17} \text{ W/cm}^2$ est plus faible que l'intensité initiale du laser. En effet, à cause des couplages spatio-temporels, la durée de l'impulsion passe de $\tau_0 \sim 10$ fs dans le champ proche à $\tau_0 \sim 22$ fs au foyer, comme représenté sur la figure 6.16 (b).

Position 1 in the far field

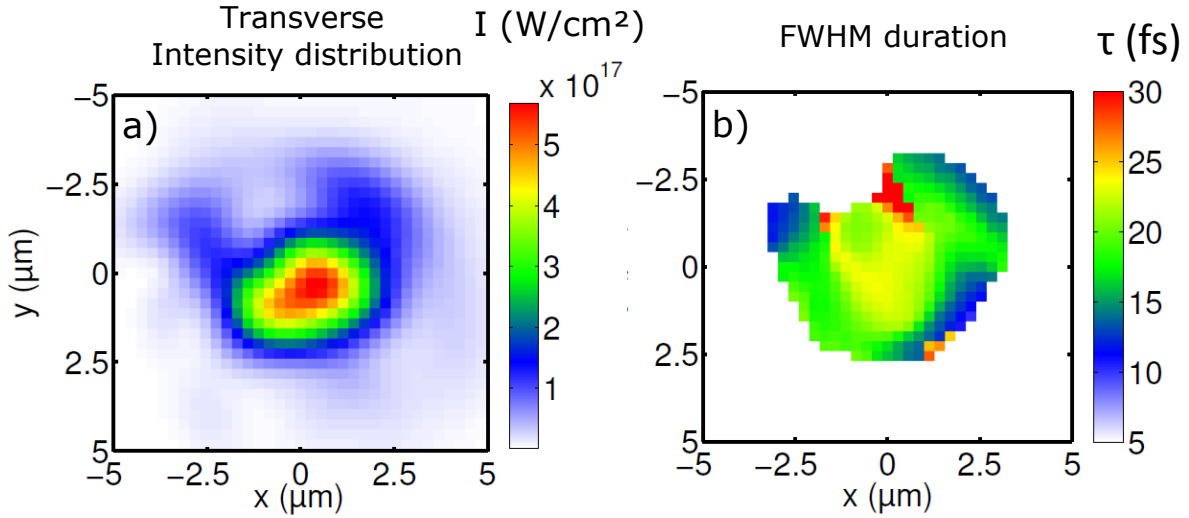


FIGURE 6.16 – Résultat de la propagation dans le champ lointain de la simulation PIC à la position 1. a) Distribution transverse de l'intensité au foyer. b) Durée FWHM dans la tache focale.

6.7 Conclusion

Nos résultats montrent que l'on peut comprimer des impulsions laser de 25 fs jusqu'à 12 fs avec une transmission supérieure à 80% avec l'auto-compression induite par ionisation, en laissant focalisant les impulsions dans un jet d'Azote. Nous avons mesuré expérimentalement une compression homogène dans le champ proche dès lors que la géométrie de focalisation est adaptée. Cependant, les simulations numériques indiquent que des couplages spatio-temporels augmentent la durée et diminuent l'intensité de l'impulsion au foyer, ce qui compromet l'emploi de cette technique de post-compression pour nos applications. Il serait toutefois intéressant de réaliser expérimentalement une caractérisation spatio-temporelle pour confirmer les résultats numériques, un diagnostic permettant de mesurer l'amplitude et la phase spatio-spectrales au foyer ayant été démontré récemment [27].

6.8 Références

- [1] A. Lifschitz et al. Optical phase effects in electron wakefield acceleration using few-cycle laser pulses. *New Journal of Physics*, 14, 2012. [113](#)
- [2] A. Borot et al. Attosecond control of collective electron motion in plasmas. *Nature Physics*, 8 :416–421, 2012. [113](#)
- [3] D. Strickland et al. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 56(3) :219–221, 1985. [113](#)
- [4] C. Le Blanc, P. Curley, and F. Salin. Gain-narrowing and gain-shifting of ultra-short

- pulses in ti : sapphire amplifiers. *Optics Communications*, 131(4–6) :391 – 398, 1996. [113](#)
- [5] M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto. Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique. *Applied Physics Letters*, 68(20) :2793–2795, 1996. [113](#)
- [6] S. C. Wilks, J. M. Dawson, and W. B. Mori. Frequency up-conversion of electromagnetic radiation with use of an overdense plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 61 :337–340, Jul 1988. [113](#)
- [7] Wm. M. Wood, C. W. Siders, and M. C. Downer. Measurement of femtosecond ionization dynamics of atmospheric density gases by spectral blueshifting. *Phys. Rev. Lett.*, 67 :3523–3526, Dec 1991. [113](#), [119](#)
- [8] F. S. Tsung et al. Generation of ultra-intense single-cycle laser pulses by using photon deceleration. *Proc. Nat. Acad. Science*, 99(29), 2002. [113](#)
- [9] J. Faure, Y. Glinec, J. J. Santos, F. Ewald, J.-P. Rousseau, S. Kiselev, A. Pukhov, T. Hosokai, and V. Malka. Observation of laser-pulse shortening in nonlinear plasma waves. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :205003, Nov 2005. [113](#)
- [10] J. Park et al. Generation of 1.5 cycle 0.3 tw laser pulses using a hollow-fiber pulse compressor. *Optics Letters*, 34(15) :2342–2344, 2009. [113](#)
- [11] Xiaowei Chen, Aurélie Jullien, Arnaud Malvache, Lorenzo Canova, Antonin Borot, Alexandre Trisorio, Charles G. Durfee, and Rodrigo Lopez-Martens. Generation of 4.3 fs, 1 mj laser pulses via compression of circularly polarized pulses in a gas-filled hollow-core fiber. *Opt. Lett.*, 34(10) :1588–1590, May 2009. [113](#)
- [12] F. Bohle et al. Compression of cep-stable multi-mj laser pulses down to 4 fs in long hollow fibers. *Laser Physics Letters*, 11, 2014. [113](#)
- [13] Nicholas L. Wagner, Emily A. Gibson, Tenio Popmintchev, Ivan P. Christov, Margaret M. Murnane, and Henry C. Kapteyn. Self-compression of ultrashort pulses through ionization-induced spatiotemporal reshaping. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :173902, Oct 2004. [113](#)
- [14] C. Fourcade Dutin, A. Dubrouil, S. Petit, E. Mével, E. Constant, and D. Descamps. Post-compression of high-energy femtosecond pulses using gas ionization. *Opt. Lett.*, 35(2) :253–255, Jan 2010. [113](#)
- [15] Daniel Herrmann, Laszlo Veisz, Raphael Tautz, Franz Tavella, Karl Schmid, Vladimir Pervak, and Ferenc Krausz. Generation of sub-three-cycle, 16 tw light pulses by using noncollinear optical parametric chirped-pulse amplification. *Opt. Lett.*, 34(16) :2459–2461, Aug 2009. [114](#)

- [16] Z.-H. He, J. A. Nees, B. Hou, K. Krushelnick, and A. G. R. Thomas. Ionization-induced self-compression of tightly focused femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 113 :263904, Dec 2014. [114](#), [120](#), [122](#)
- [17] C. Bourassin-Bouchet, M. Stephens, S. de Rossi, F. Delmotte, and P. Chavel. Duration of ultrashort pulses in the presence of spatio-temporal coupling. *Opt. Express*, 19(18) :17357–17371, Aug 2011. [114](#)
- [18] S. Akturk, X. Gu, P. Bown, and R. Trebino. REVIEW ARTICLE : Spatio-temporal couplings in ultrashort laser pulses. *Journal of Optics*, 12(9) :093001, September 2010. [114](#)
- [19] Zsolt Bor, Zoltan Gogolak, and Gabor Szabo. Femtosecond-resolution pulse-front distortion measurement by time-of-flight interferometry. *Opt. Lett.*, 14(16) :862–864, Aug 1989. [115](#)
- [20] Thomas A. Planchon, Serge Ferré, Guy Hamoniaux, Gilles Chériaux, and Jean-Paul Chambaret. Experimental evidence of 25-fs laser pulse distortion in singlet beam expanders. *Opt. Lett.*, 29(19) :2300–2302, Oct 2004. [116](#)
- [21] Selcuk Akturk, Ciro D'Amico, and Andre Mysyrowicz. Measuring ultrashort pulses in the single-cycle regime using frequency-resolved optical gating. *J. Opt. Soc. Am. B*, 25(6) :A63–A69, Jun 2008. [118](#), [122](#)
- [22] 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 :552–555, Jan 1999. [119](#), [126](#)
- [23] A. F. Lifschitz et al. Particle-in-cell modelling of laser–plasma interaction using fourier decomposition. *Journal of Computational Physics*, 228 :1803–1814, 2009. [124](#)
- [24] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and atomic ions by an alternating electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, 64 :1191–1194, 1986. [124](#)
- [25] R. Nuter, L. Gremillet, E. Lefebvre, A. Lévy, T. Ceccotti, and P. Martin. Field ionization model implemented in particle in cell code and applied to laser-accelerated carbon ions. *Physics of Plasmas*, 18(3), 2011. [124](#)
- [26] B. Beaurepaire et al. Effect of the laser wave front in a laser-plasma accelerator. *Phys. Rev. X*, 5, 2015. [124](#)
- [27] Benjamín Alonso, Miguel Miranda, Í nigo J. Sola, and Helder Crespo. Spatiotemporal characterization of few-cycle laser pulses. *Opt. Express*, 20(16) :17880–17893, Jul 2012. [129](#), [132](#)

Chapitre 7

Etude numérique de la génération de faisceaux d'électrons à 5 MeV

« »

Auteur

Sommaire

7.1 Etude préliminaire : effet de la dispersion spectrale et des effets non linéaires sur des impulsions ultra-courtes	136
7.2 Propagation d'une impulsion de durée 5 fs dans un plasma sous-dense	139
7.3 Accélération d'électrons à 5 MeV	142
7.3.1 Evolution des ondes plasma au cours de la propagation	142
7.3.2 Injection d'électrons dans les ondes plasma	144
7.3.3 Propriétés du paquet d'électrons	147
7.4 Optimisation du faisceau d'électrons	149
7.4.1 Effet du chirp initial de l'impulsion laser	149
7.4.2 Effet de la CEP	153
7.5 Conclusions et perspectives	154
7.6 Références	155

Nous allons présenter les résultats de simulations numériques portant sur l'accélération d'électrons avec des impulsions laser ultra-brèves. Les codes PIC permettant de reproduire l'interaction laser-plasma de façon réaliste, ils sont parfaitement adaptés à l'étude préliminaire d'un nouveau régime d'interaction dans le but de dimensionner une expérience. L'objectif de ce chapitre est donc de justifier que la post-compression du système laser de la "Salle Noire" permettra de produire des faisceaux de qualité suffisante pour les expériences de diffraction ultra-rapide d'électrons.

L'originalité de cette étude réside dans le fait que le spectre des impulsions de durée 5 fs est particulièrement large. On représente sur la figure 7.1 un spectre mesuré en Salle Noire pour une impulsion de durée $\tau_0 = 25$ fs en rouge, et un spectre correspondant à une

durée de $\tau = 4$ fs en bleu, mesuré en Salle Noire également lors des premiers essais de compression dans la fibre remplie de gaz.

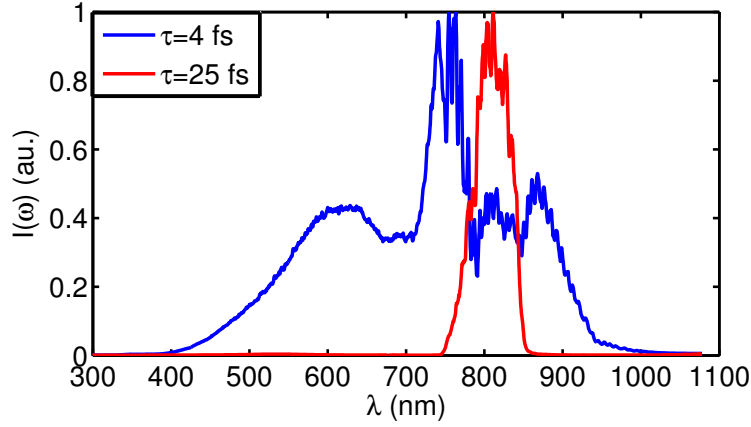


FIGURE 7.1 – Comparaison de la largeur spectrale pour des impulsions de durée en limite de transformée de Fourier 4 fs en bleu et 25 fs en rouge.

Les simulations PIC ont montré que la dispersion spectrale dans le plasma joue un rôle dominant pour l'accélération d'électrons avec des impulsions aussi courtes, provoquant un ralentissement très important de l'onde plasma dont la vitesse de phase devient sous-relativiste. Des électrons sont alors massivement injectés dans l'onde-plasma puis accélérés jusqu'à 5-10 MeV. Nous allons présenter ces résultats de la façon suivante :

- Nous commencerons par une analyse théorique des effets linéaires et non-linéaires pouvant affecter la propagation d'une impulsion laser dans un plasma. Cette partie met en évidence le rôle de la dispersion sur une impulsion aussi large spectralement.
- Nous détaillerons ensuite les mécanismes permettant l'injection des électrons dans l'onde plasma. Les simulations montrent que l'injection a lieu en 2 étapes, la première correspondant à l'auto-injection dans le régime de la bulle, et la seconde est due au ralentissement de l'onde plasma.
- Pour terminer, nous étudierons le rôle du chirp laser. Dans ce régime dominé par la dispersion spectrale, les simulations montrent qu'il est possible de contrôler l'injection dans une certaine mesure en chirpant l'impulsion laser.

7.1 Etude préliminaire : effet de la dispersion spectrale et des effets non linéaires sur des impulsions ultra-courtes

Tout d'abord, nous allons introduire les mécanismes affectant la propagation d'une impulsion dans un plasma en nous basant sur l'étude proposée dans [1]. L'indice de refraction d'un plasma sous-dense ($\omega_p^2/\omega_0^2 \ll 1$) dans lequel se propage une impulsion laser polarisée linéairement s'écrit :

$$\eta = 1 - \frac{1}{2} \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} \left(1 + \frac{\delta n_e}{n_e} - \frac{\langle a^2 \rangle}{2} - 2 \frac{\delta \omega}{\omega_0} \right) \quad (7.1)$$

où l'on rappelle que ω_0 est la fréquence centrale du laser, ω_p la fréquence plasma, a est le vecteur potentiel normalisé, et n_e représente la densité électronique. Il faut noter que cette formule implique certaines approximations : on suppose un régime faiblement relativiste ($a^2 \ll 1$), et que l'enveloppe est lentement variable ($\omega_0 \tau \gg 1$). Elle n'est donc pas valide pour des impulsions de quelques cycles optiques, mais elle nous sert de point de départ pour la compréhension des phénomènes physiques en jeu dans les simulations.

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, les modulations de l'indice optique modifient localement le spectre laser : $\delta \omega_0 / \omega_0 \propto \partial \eta / \partial t$ dans l'approximation faiblement relativiste. L'équation 7.1 contient les effets physiques qui vont nous intéresser par la suite :

- $-\frac{\langle a^2 \rangle}{2}$ auto-modulation de phase relativiste :

Effets longitudinaux :

L'auto-modulation de phase dans un plasma provoque un élargissement symétrique du spectre par les gradients longitudinaux de l'enveloppe laser. L'avant de l'impulsion est ainsi décalé vers le rouge et l'arrière est décalé vers le bleu, comme représenté sur la figure 7.2.

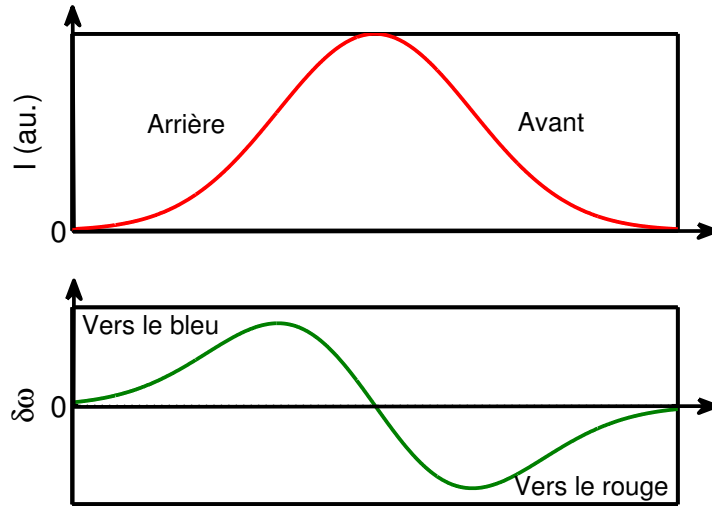


FIGURE 7.2 – Elargissement spectral causé par l'auto-modulation de phase relativiste.

Effets transverses :

A haute intensité, les gradients transverses permettent de guider l'impulsion laser dans le plasma car l'intensité laser est plus forte au centre que sur les bords. Dès lors que la puissance laser est suffisante, $P > P_c [\text{GW}] = 17.4 n_c / n_e$, la courbure du front d'onde induite par les gradients d'intensité compense la courbure due à la diffraction naturelle, et l'impulsion entre alors dans un régime d'auto-focalisation. Cet effet d'auto-focalisation dans un plasma est appelé l'auto-focalisation relativiste [2, 3].

- $\frac{\delta n_e}{n_e}$ génération de nouvelles fréquences par l'onde plasma :

Les variations rapides longitudinales de la densité électronique peuvent générer de nouvelles fréquences. On représente sur la partie supérieure de la figure 7.3 une impulsion laser en rouge, ainsi qu'une onde plasma créée par le laser en bleue. L'élargissement causé par ces gradients de densité est très asymétrique lorsque l'impulsion laser est courte devant la longueur d'onde plasma. L'impulsion laser se trouve alors globalement décalée vers le rouge, comme le représente la partie inférieure de la figure 7.3.

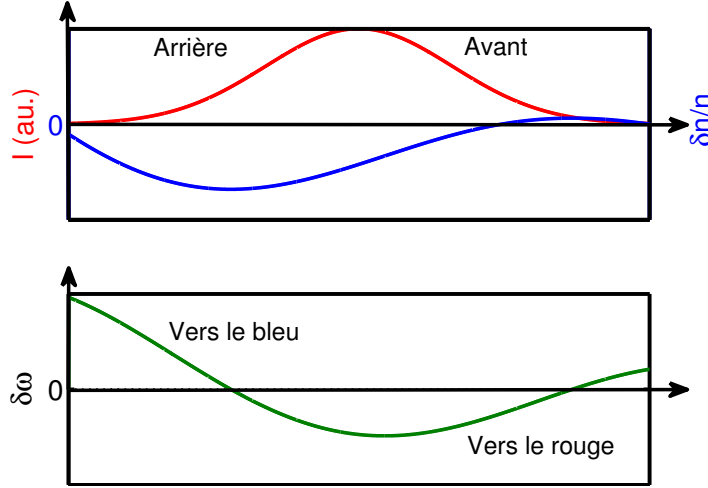


FIGURE 7.3 – Elargissement spectral causé par l'onde plasma.

- $-2\frac{\delta\omega}{\omega_0}$ dispersion de la vitesse de groupe :

Afin d'estimer l'effet de la dispersion de vitesse de groupe lors de la propagation de l'impulsion dans le plasma, nous avons calculé l'évolution de la durée au cours de la propagation en faisant l'hypothèse que l'on est dans un régime linéaire, c'est-à-dire en supposant $a_0^2 \ll 1$ et $\delta n_e/n_e \ll 1$. L'indice de réfraction s'écrit alors :

$$\eta_{\text{lin}}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{2\omega^2} \quad (7.2)$$

La durée de l'impulsion se propageant selon l'axe x est donnée par $\Delta t^2(x) = \langle t^2 \rangle$, où $\langle \cdot \rangle$ représente la moyenne sur la distribution en intensité, où l'origine des temps a été choisie telle que $\langle t \rangle^2 = 0$. Soit $E(\omega) = |E(\omega)| \exp[i\phi(\omega)]$ le champ électrique laser dans le domaine des fréquences et $\phi(\omega) = \frac{\omega}{c} \int_0^x \eta \, dx$ la phase spectrale. On peut alors développer le terme $\langle t^2 \rangle$:

$$\begin{aligned} \langle t^2 \rangle &= A \int_{-\infty}^{+\infty} t^2 |E(t)|^2 \, dt = A \int_{-\infty}^{+\infty} \left| \frac{dE(\omega)}{d\omega} \right|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \\ &= A \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d|E(\omega)|^2}{d\omega} \frac{d\omega}{2\pi} + A \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{d\phi}{d\omega} \right)^2 |E(\omega)|^2 \frac{d\omega}{2\pi} \\ &= \langle t^2 \rangle_{\phi=0} + \left\langle \left(\frac{d\phi}{d\omega} \right)^2 \right\rangle \end{aligned}$$

avec $A = 1 / \int_{-\infty}^{+\infty} |E(t)|^2 dt$ un facteur de normalisation. L'évolution de la durée de l'impulsion s'écrit alors sous la forme suivante : $\Delta t^2(x) = \sqrt{\Delta t_0^2 + \Delta \tau_g^2(x)}$. Le premier terme $\Delta t_0 = \langle t^2 \rangle_{\phi=0}$ correspond à la durée en limite de transformée de Fourier, et le second $\tau_g = d\phi/d\omega$ correspond au délai de groupe. En prenant compte de l'expression de l'indice de réfraction dans le régime linéaire, on peut alors calculer le délai de groupe $\tau_g = \frac{x}{c} \left(1 + \frac{\omega_p^2}{2\omega^2} \right)$ et ainsi développer l'évolution de la durée : $\Delta t(x) = \Delta t_0 \sqrt{1 + x^2/L_p^2}$ avec :

$$L_p = \frac{2c\Delta t_0}{\omega_p^2} \left\langle \left(\frac{1}{\omega^2} - \left\langle \frac{1}{\omega^2} \right\rangle \right)^2 \right\rangle^{-1/2} \quad (7.3)$$

Cette expression ne nécessite que l'hypothèse du régime linéaire, nous n'avons eu à faire aucune hypothèse sur la largeur spectrale de l'impulsion. On peut simplifier cette expression en supposant que la largeur spectrale de l'impulsion est étroite $\delta\omega \ll \omega_0$ pour arriver à l'expression ci-dessous :

$$L_p \simeq 2c\sigma t_0^2 \frac{\omega_0^3}{\omega_p^2} \quad (7.4)$$

Cette formule montre que la dispersion de vitesse de groupe est d'autant plus forte que la largeur spectrale est grande $L_p \propto \sigma t_0^2$ (durée rms), que la densité électronique est élevée $L_p \propto 1/n_e$, et que la fréquence centrale du laser est faible. Cette étude analytique nous indique que la durée d'une impulsion de durée $\Delta t_0 = 5$ fs FWHM augmente d'un facteur $\sqrt{2}$ après seulement 110 μm de propagation dans un plasma de densité électronique $8.7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Comme nous l'avons déjà vu, l'impulsion devient chirpée négativement après propagation dans le plasma, avec les hautes fréquences à l'avant et les basses fréquences à l'arrière de l'impulsion.

Dans la section suivante, nous allons étudier la propagation d'une impulsion de quelques cycles optiques dans un plasma à l'aide de simulations PIC.

7.2 Propagation d'une impulsion de durée 5 fs dans un plasma sous-dense

Nous avons modélisé l'interaction laser-plasma en utilisant le code PIC Calder-Circ [4] avec 2 modes de Fourier, c'est-à-dire en supposant une symétrie cylindrique. Les paramètres laser que nous avons utilisés dans les simulations correspondent aux paramètres attendus après compression dans la fibre : des impulsions de durée $\tau_0 = 5$ fs FWHM en intensité, centrées autour de $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$, et d'énergie $E_L = 4.1 \text{ mJ}$. L'impulsion laser se propage dans un plasma déjà ionisé dont le profil de densité longitudinale est formé d'un plateau de longueur 203 μm précédé et suivi d'une rampe de 63 μm . La densité électronique au niveau du plateau vaut $n_e = 0.05 n_c = 8.7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. L'impulsion laser est focalisée au début du plateau sur un waist de $W_0 = 4.3 \mu\text{m}$, permettant d'atteindre une

intensité de $I_L = 2.6 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$, soit $a_0 = 1.1$ au foyer. Avec ces paramètres, la puissance laser $P = 0.76 \text{ TW}$ est supérieure à la puissance seuil pour l'auto-focalisation relativiste $P_c = 0.35 \text{ TW}$. Ces paramètres laser et plasma permettent donc d'atteindre le régime d'auto-focalisation qui est favorable à l'accélération d'électrons. Les équations de Maxwell et les équations du mouvement pour les électrons sont calculées dans une fenêtre glissante qui se déplace à la vitesse de groupe du laser $v_g = 0.97c$ dans le plateau de densité. La fenêtre est composée de 1500×200 cellules, de taille longitudinale $\Delta x = 0.125 c/\omega_0$ et de taille radiale $\Delta r = 0.628 c/\omega_0$, et contenant chacune 220 particules.

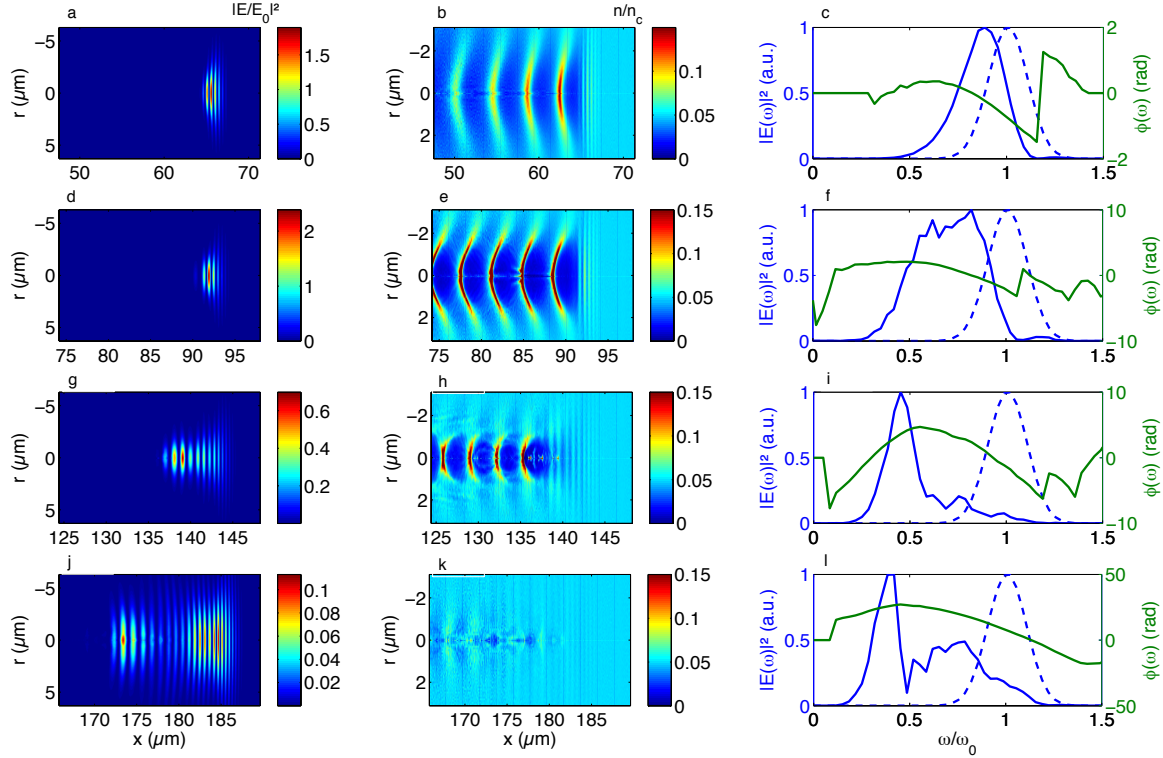


FIGURE 7.4 – Propagation d'une impulsion de durée 5 fs dans un plasma de densité $n/n_c = 5\%$: a-j) Carte de l'intensité laser $|E/E_0|^2$ à différentes positions lors de la propagation. b-k) Carte de la densité électronique n/n_c montrant les ondes plasmas générées par l'impulsion. c-l) Spectre laser sur l'axe (en bleu) et phase spectrale (en vert). La courbe bleue pointillée représente le spectre laser initial.

Nous nous sommes intéressés dans un premier temps à la propagation d'une impulsion laser en limite de transformée de Fourier. La figure 7.4 représente l'intensité laser $|E/E_0|^2$ (avec $E_0 = m_e c \omega_0 / e$), l'intensité et la phase spectrale sur l'axe, ainsi que la carte de densité électronique à différents instants dans la simulation. On peut voir sur les panels (a) et (d) que l'impulsion est focalisée au début de la propagation dans le plateau. En même temps que l'impulsion se focalise, des ondes plasma intenses sont générées et forment des cavités ioniques derrière le laser (panels (b) et (e)), et le spectre laser est fortement élargi et décalé vers le rouge par les effets non linéaires dans l'onde plasma. De plus, le profil quadratique de la phase spectrale $\phi(\omega)$ indique que l'impulsion est chirpée négativement dès qu'elle arrive dans le plateau, à la position $x = 65 \mu\text{m}$. L'effet de la

dispersion est particulièrement fort pour des impulsions aussi larges spectralement, et on peut très clairement voir à la position $x = 140 \mu\text{m}$ sur la figure 7.4 (g) que l'impulsion est étirée temporellement, avec les basses fréquences qui sont focalisées à l'arrière et les hautes fréquences qui diffractent à l'avant de l'impulsion. A cette position, la fréquence centrale a été décalée à $\omega_0/2$, et par conséquent la vitesse de groupe du laser est passée de $v_g(\omega_0) = 0.97$ à $v_g(\omega_0/2) = 0.9$. Ce décalage de la fréquence centrale est la signature de l'excitation d'ondes plasma intenses. Le ralentissement de l'onde plasma qui accompagne le décalage de la fréquence centrale vers les basses fréquences est visible sur les panels (e)-(h), où on rappelle que les grandeurs sont calculées dans une fenêtre glissante, qui se déplace à la vitesse de groupe du laser. A la sortie du plateau, l'impulsion laser n'est plus capable de maintenir l'auto-focalisation, et elle diffracte pendant que la dispersion continue à étirer la durée de l'impulsion (voir figures 7.4 (j)-(l)).

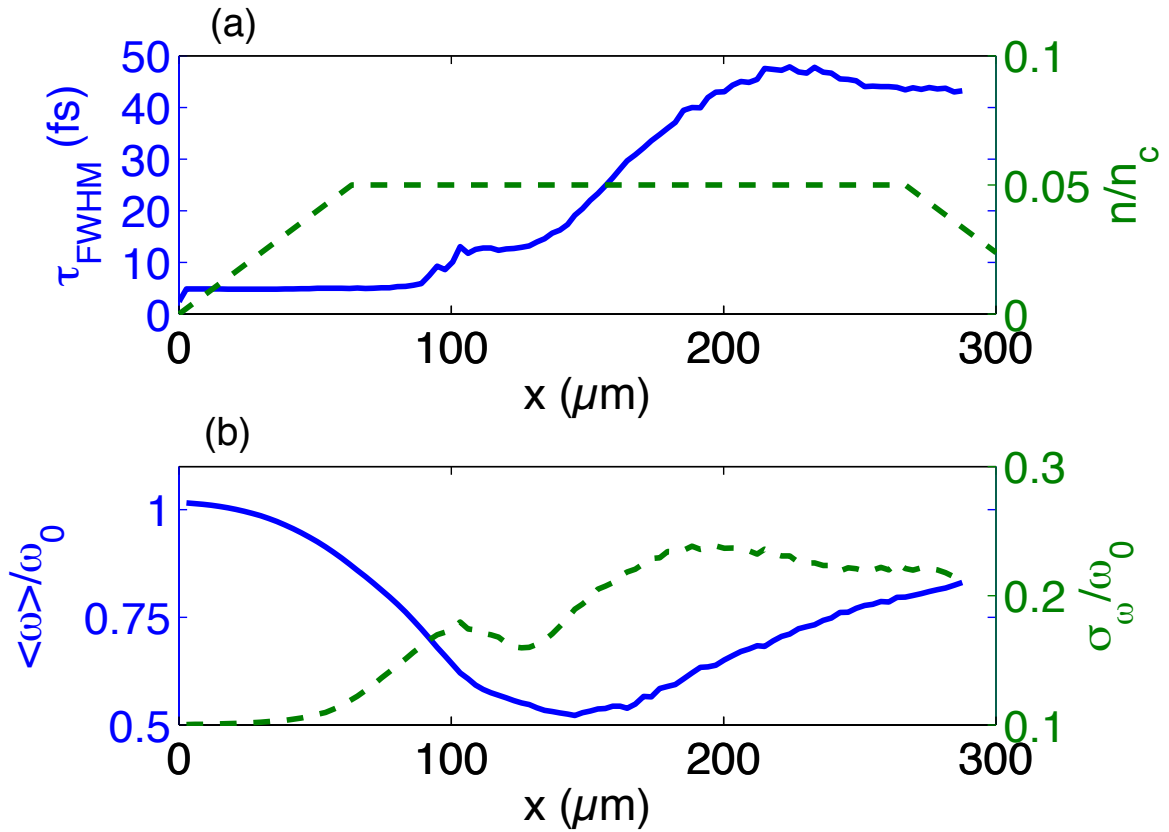


FIGURE 7.5 – Evolution de la durée et du spectre laser lors de la propagation. a) Vert pointillé : profil de la densité électronique. Bleue : évolution de la durée FWHM de l'impulsion en intensité et sur l'axe au cours de la propagation. b) Bleue : fréquence centrale laser sur l'axe. Vert pointillé : largeur spectrale rms de l'impulsion au cours de la propagation.

Pour étudier quantitativement l'évolution de l'impulsion laser au cours de la propagation, on représente sur la figure 7.5 (a) l'évolution de la durée FWHM de l'impulsion sur l'axe en fonction de sa position dans le plasma, et sur la figure 7.5 (b) l'évolution de la fréquence centrale $\langle \omega \rangle / \omega_0$ ainsi que l'évolution de la largeur spectrale rms σ_ω / ω_0 . Cette figure nous indique qu'au niveau de la rampe de densité, la dispersion spectrale par le

plasma n'a pas d'effet, en accord avec la théorie linéaire que nous avons présentée précédemment. Par contre, lors de la propagation de l'impulsion dans le plateau de densité ($x > 70 \mu\text{m}$) les effets non-linéaires sont très forts : la largeur spectrale augmente jusqu'à être multipliée par un facteur 2, et la fréquence centrale de l'impulsion est divisée par 2 au milieu du plateau. Ces effets non-linéaires expliquent pourquoi dans cette région, la durée de l'impulsion augmente très fortement et ne suit pas la loi prédite par la théorie linéaire : $\Delta t^2(x) = \Delta t_0^2 \sqrt{1 + x^2/L_p^2}$ avec $L_p = 110 \mu\text{m}$. En effet, si l'on prend simplement en compte le fait que la fréquence centrale a été divisée par 2, alors la formule 7.4 donne $L_p(\omega_0/2) = L_p(\omega_0)/8 = 14 \mu\text{m}$. Dans ce cas, la théorie linéaire prédit que la durée de l'impulsion est multipliée par un facteur 6.5 après $100 \mu\text{m}$ de propagation ce qui est proche du comportement observé sur la figure 7.5 (a).

L'évolution de l'impulsion laser est profondément différente dans ce régime par rapport à ce qui a été étudié jusqu'à maintenant, à plus faible densité et avec des impulsion plus longues, où le rôle de la dispersion spectrale est alors négligeable. Il a été montré que dans le régime de la bulle, l'arrière de l'impulsion se propage dans une cavité ionique où la densité est faible, alors que l'avant génère l'onde plasma et se propage donc dans un milieu de densité plus élevé. Ainsi, la différence de vitesse de groupe entre l'avant et l'arrière permet l'auto-compression de l'impulsion [5, 6, 7].

Au contraire, dans le régime que nous étudions ici, la dispersion domine la propagation du laser. Son effet est accentué par les effets non-linéaires, qui tendent à (i) élargir le spectre de l'impulsion, et (ii) décaler le spectre vers les basses longueurs d'onde pour lesquelles la dispersion est d'autant plus forte. Bien que l'impulsion s'auto-focalise et atteigne $a_0 \geq 1.6$, l'onde plasma qu'elle génère dans son sillage n'est pas assez intense pour que l'arrière de l'impulsion reste confiné dans la première cavité ionique et la durée de l'impulsion explose. Nous allons maintenant nous intéresser aux conséquences des effets non-linéaires et de la dispersion de vitesse de groupe sur les ondes plasma.

7.3 Accélération d'électrons à 5 MeV

7.3.1 Evolution des ondes plasma au cours de la propagation

L'évolution brutale de l'impulsion laser a des conséquences fortes sur les ondes plasma qui se propagent à la vitesse de groupe du laser. Ainsi, les ondes plasma ralentissent au fur et à mesure que le spectre laser est décalé vers le rouge :

$$\nu_g \simeq c \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} \right) \quad (7.5)$$

On représente sur la figure 7.6 une analyse quantitative de l'évolution de l'onde plasma au cours de la propagation du laser. La courbe bleue correspond à la position de l'arrière de la première arche de l'onde plasma par rapport à l'avant de la fenêtre glissante, et la courbe verte représente la taille longitudinale de cette arche. Dans le gradient d'entrée

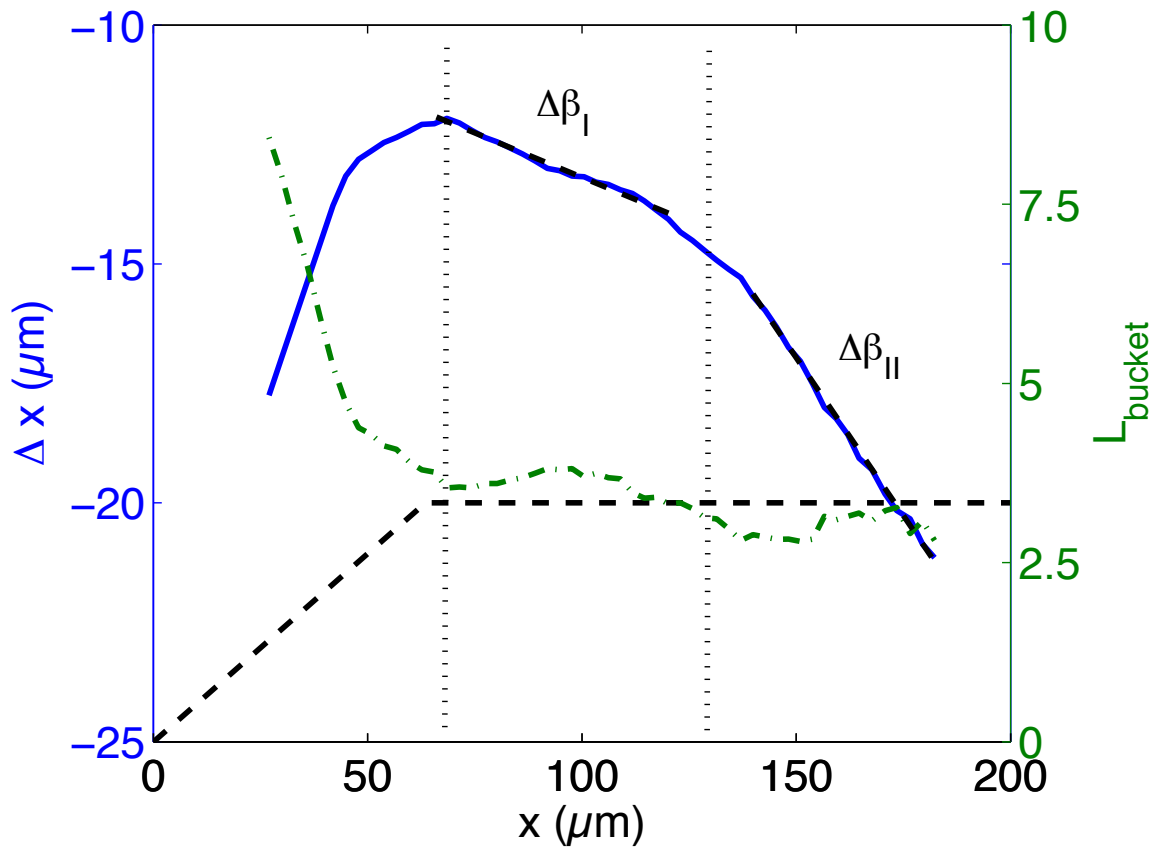


FIGURE 7.6 – Courbe bleue : évolution de la position de l'arrière de la première arche de l'onde plasma (Δx) par rapport à l'avant de la fenêtre glissante. Courbe verte pointillée : évolution de la taille longitudinale de la première arche de l'onde plasma (L_{bucket}). Courbe noire pointillée : profil de la densité électronique.

du plasma, pour $x < 60 \mu\text{m}$, la densité électronique augmente linéairement avec x et cette augmentation provoque une contraction de l'onde plasma. C'est pourquoi la bulle avance et sa taille longitudinale diminue. En revanche, la dynamique de la bulle dans le plateau est beaucoup plus complexe. Dans la première partie du plateau pour $x = 70 - 100 \mu\text{m}$, une légère dilatation de l'onde plasma est causée par l'auto-focalisation de l'impulsion laser, puis elle se contracte légèrement pour $x > 100 \mu\text{m}$. Toutefois, la longueur de l'arche de l'onde plasma varie assez peu au cours de la propagation. La courbe bleue sur la figure 7.6 montre qu'une décélération de la vitesse de phase s'effectue en 2 étapes au cours de la propagation. Dans la région $x = 70 - 110 \mu\text{m}$, la vitesse de phase vaut $\beta_{p1} = v_{p1}/c = 0.9$ ce qui correspond à un facteur relativiste $\gamma_{p1} = 2.3$. Pour $x > 110 \mu\text{m}$, la fréquence centrale de l'impulsion est très fortement décalée vers le rouge, ce qui provoque une décélération brutale de l'onde plasma. Sa vitesse de phase vaut alors $\beta_{p2} = 0.727$, i.e. $\gamma_{p2} = 1.45$. L'onde plasma a tellement ralenti qu'elle devient sous-relativiste dans la seconde région du plasma. La vitesse de groupe de l'impulsion laser dans cette région $\beta_g(\omega_0/2) = 0.89$ est supérieure à la vitesse de phase de l'onde plasma, possiblement car l'avant de l'impulsion recule au fur et à mesure qu'elle perd de l'énergie en générant l'onde plasma [8, 9]. Comme nous l'avons vu sur la figure 3.5, ce ralentissement permet de réduire l'énergie seuil pour l'injection des électrons dans l'onde plasma.

7.3.2 Injection d'électrons dans les ondes plasma

Afin de comprendre les conséquences des modifications du spectre laser sur l'injection des électrons, on représente sur la figure 7.7 l'évolution au cours de la propagation du laser du nombre d'électrons dont le facteur de lorentz $\gamma > 6$, i.e. d'énergie $E_e > 3 \text{ MeV}$. On représente en bleu sur la même figure l'évolution du vecteur potentiel normalisé au cours de la propagation de l'impulsion. On rappelle que le vecteur potentiel normalisé au foyer vaut $a_0 = 1.1$. On voit donc que l'impulsion s'auto-focalise au début du plateau de densité, dans la région $x = 70 - 100 \mu\text{m}$, jusqu'à atteindre $a_0 \simeq 1.6$. Lorsque l'impulsion s'auto-focalise, la bulle se dilate légèrement longitudinalement au fur et à mesure que l'intensité augmente, permettant ainsi un léger ralentissement de l'arrière de la bulle. Une première injection d'électrons a alors lieu.

Les simulations montrent qu'une seconde injection se produit vers $x = 130 - 150 \mu\text{m}$, où le vecteur potentiel normalisé atteint $a_0 \simeq 1.1$. Dans les simulations $a_0 = 8.5 \times 10^{-10} \lambda I^{1/2}$ est calculé pour une longueur d'onde de $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$. Comme la longueur d'onde centrale a été divisée par 2 dans la région $x = 130 - 150 \mu\text{m}$, l'intensité laser est élevée et elle excite des ondes plasma intenses. Une seconde injection a alors lieu, qui est d'autant plus forte que les ondes plasma ont fortement ralenti dans cette région : $\gamma_{p2} = 1.45$. La charge accélérée dans la première région vaut environ 5 pC, et un paquet d'électrons d'énergie $E > 3 \text{ MeV}$ et de charge totale 14 pC est accéléré lorsque la seconde injection se termine.

Afin de mieux comprendre comment les électrons sont injectés puis accélérés dans l'onde plasma, on représente sur la figure 7.8 le paquet d'électrons dans l'espace des

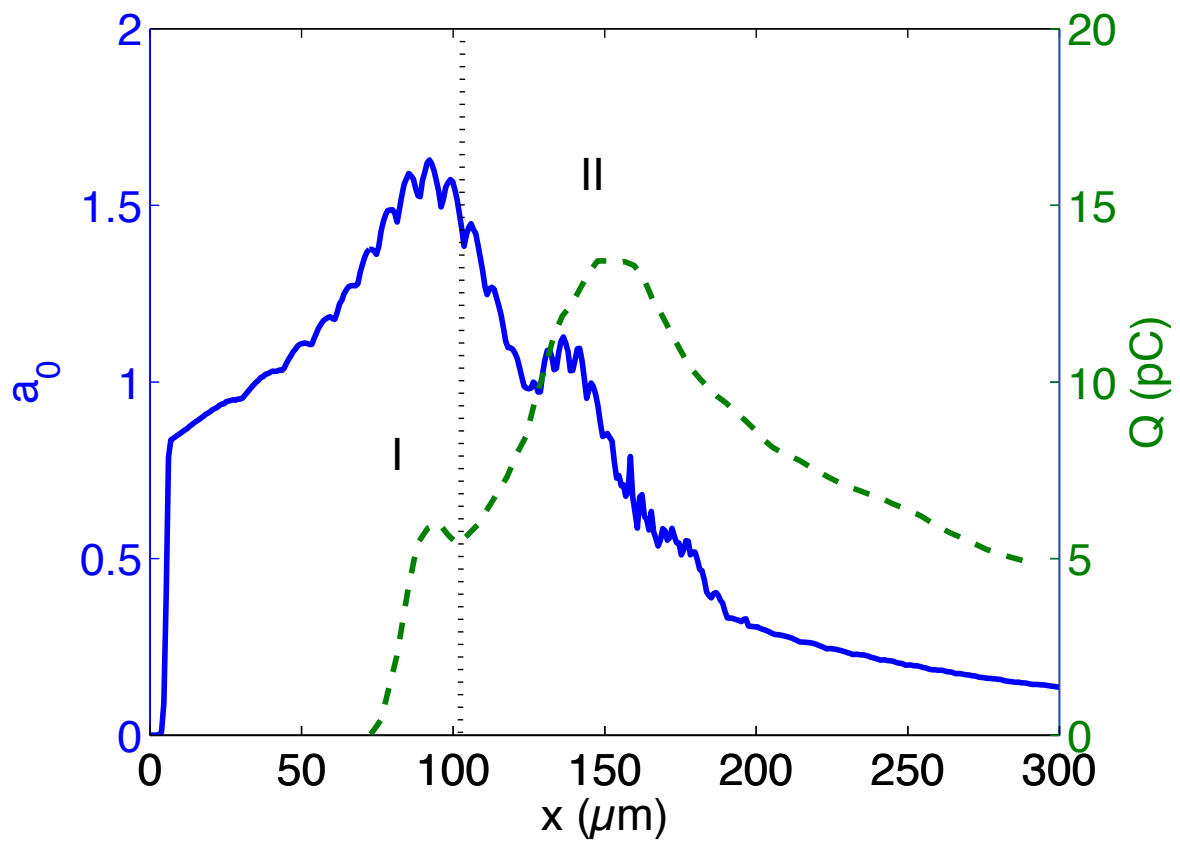


FIGURE 7.7 – Courbe bleue : évolution du potentiel vecteur normalisé a_0 au cours de la propagation. Courbe verte pointillée : évolution de la charge électronique pour les électrons d'énergie $E > 3 \text{ MeV}$ et situés à moins de $2.5 \mu\text{m}$ de l'axe.

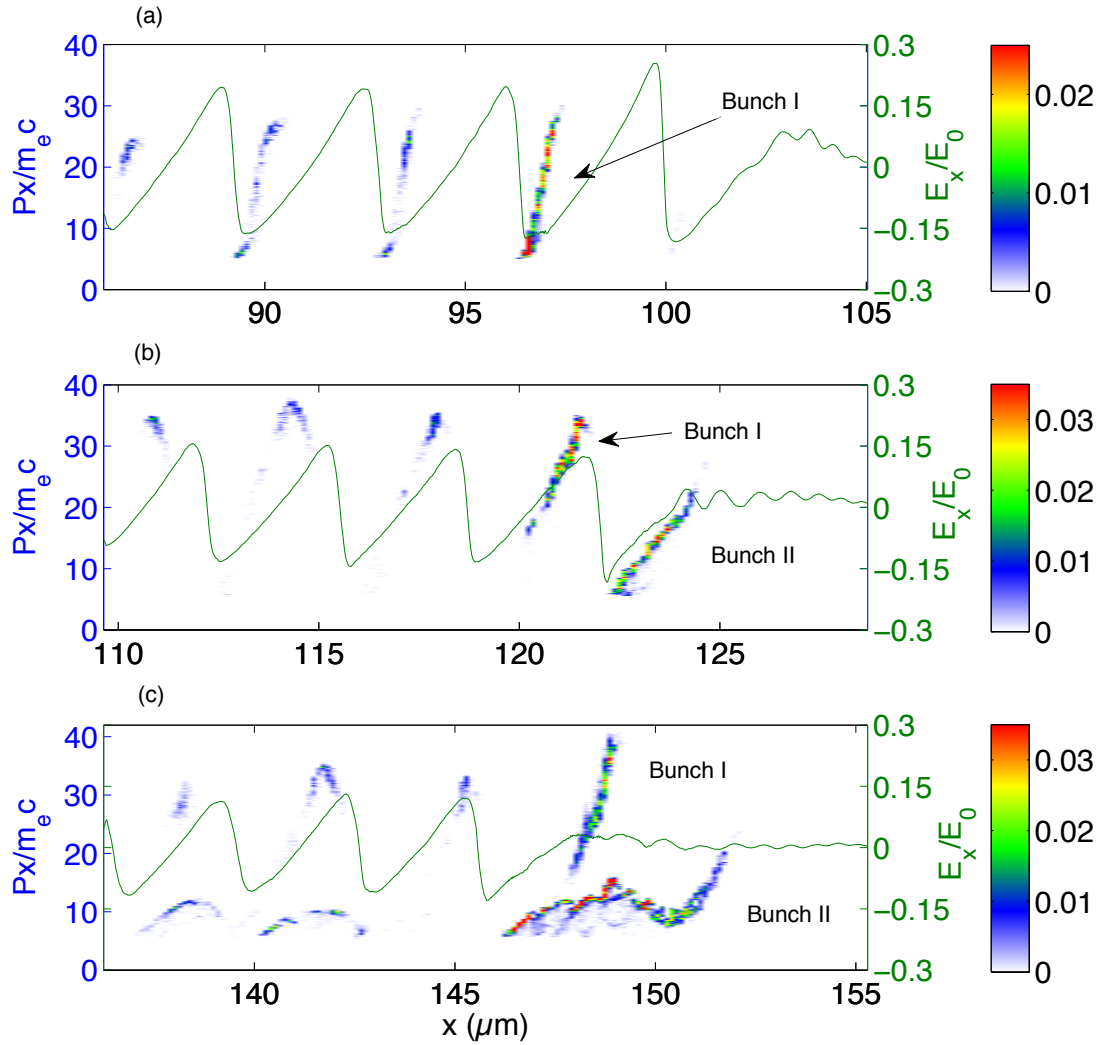


FIGURE 7.8 – Carte de la densité électronique dans l'espace des phases $(x, p_x/mc)$ à 3 positions différentes dans le plasma. Courbe verte : Champ électrique longitudinal sur l'axe associé à l'onde plasma.

phases $(x, p_x/mc)$ à 3 moments représentatifs de l'injection dans ce régime. Le panel (a) montre que lors de la première injection, lorsque le laser est à la position $x = 100 \mu\text{m}$, la majorité de la charge est injectée dans la seconde arche de l'onde plasma. La charge de ce paquet d'électrons, appelé "Bunch I" sur la figure 7.8, vaut 3.7 pC ce qui correspond à environ 70 % de la charge d'électrons d'énergie supérieure à 3 MeV injectée à cet instant. Sur le panel (b), l'impulsion laser est à la position $x = 125 \mu\text{m}$ et l'onde plasma commence à ralentir fortement. L'injection d'un nouveau paquet d'électrons, noté "Bunch II" sur la figure, commence alors dans la première arche. On voit également que les ondes plasma ont tellement ralenti que le Bunch I entre dans la partie décélétratrice. Enfin, lorsque l'impulsion laser arrive en $x = 150 \mu\text{m}$ les 2 paquets d'électrons ont dépassé l'onde plasma et ils se propagent ballistiquement. En effet, comme nous l'avons montré sur la figure 7.4, l'impulsion laser est défocalisée et les ondes plasma sont très faibles. Les électrons du premier paquet ont alors atteint une énergie supérieure à 10 MeV, et l'énergie des électrons formant le second paquet est autour de 5 MeV. Les électrons du Bunch II étant injectés dans une onde plasma beaucoup plus lente, il est normal qu'ils atteignent une énergie plus faible. Afin d'estimer cet effet, on peut calculer le gain d'énergie maximal $\Delta\gamma$ que peuvent avoir des électrons injectés dans une onde plasma linéaire se propageant à la vitesse de phase β_p : $\Delta\gamma = 4\gamma_p^2(E/E_0)\omega_0/\omega_p$. Ce modèle nous indique que le rapport d'énergie gagnée entre les 2 paquets d'électrons vaut $\gamma_{p1}^2/\gamma_{p2}^2 \simeq 2.5$, en accord avec les résultats des simulations PIC. De plus, au cours de la première injection, les simulations indiquent que $E/E_0 \simeq 0.2$, $\gamma_{p,1} = 2.3$, ce qui donne $\Delta\gamma_1 = 19$. Selon ce modèle, les premiers électrons injectés gagnent 9.5 MeV dans les ondes plasma, en accord avec les résultats de la simulation. L'énergie atteinte par les électrons du second paquet est alors adaptée pour les expériences de diffraction.

7.3.3 Propriétés du paquet d'électrons

Nous allons maintenant analyser les propriétés du paquet d'électrons accélérés dans les simulations afin de pouvoir les comparer en fin de chapitre aux paramètres requis pour des expériences de diffraction d'électrons résolues en temps. La figure 7.9 (a) représente la distribution en énergie des électrons accélérés lorsque l'impulsion laser est en $x = 123 \mu\text{m}$ en bleu. La distribution est plate et s'étend de 3 jusqu'à environ 20 MeV. Lorsque l'impulsion est en $x = 137 \mu\text{m}$, le second paquet d'électrons a été injecté et la distribution est alors piquée vers $E_e \sim 7 \text{ MeV}$. Ce pic dans la distribution en énergie contient une charge d'environ 8.5 pC avec une dispersion en énergie de $\Delta E_e/E_e = 12.6\%$.

On représente l'ensemble des électrons accélérés en $x = 137 \mu\text{m}$ dans l'espace des phases transverses (p_y, p_z) sur la figure 7.9 (b). On voit que la divergence du faisceau est plus grande dans la direction y qui correspond à la direction de polarisation du laser. En effet, les électrons se déphasent rapidement dans les ondes plasma jusqu'à subir le champ laser de la partie de l'impulsion à la fréquence $\omega_0/2$ et dont la vitesse de groupe est faible. La divergence FWHM de la distribution électronique vaut 12 (90) mrad dans la

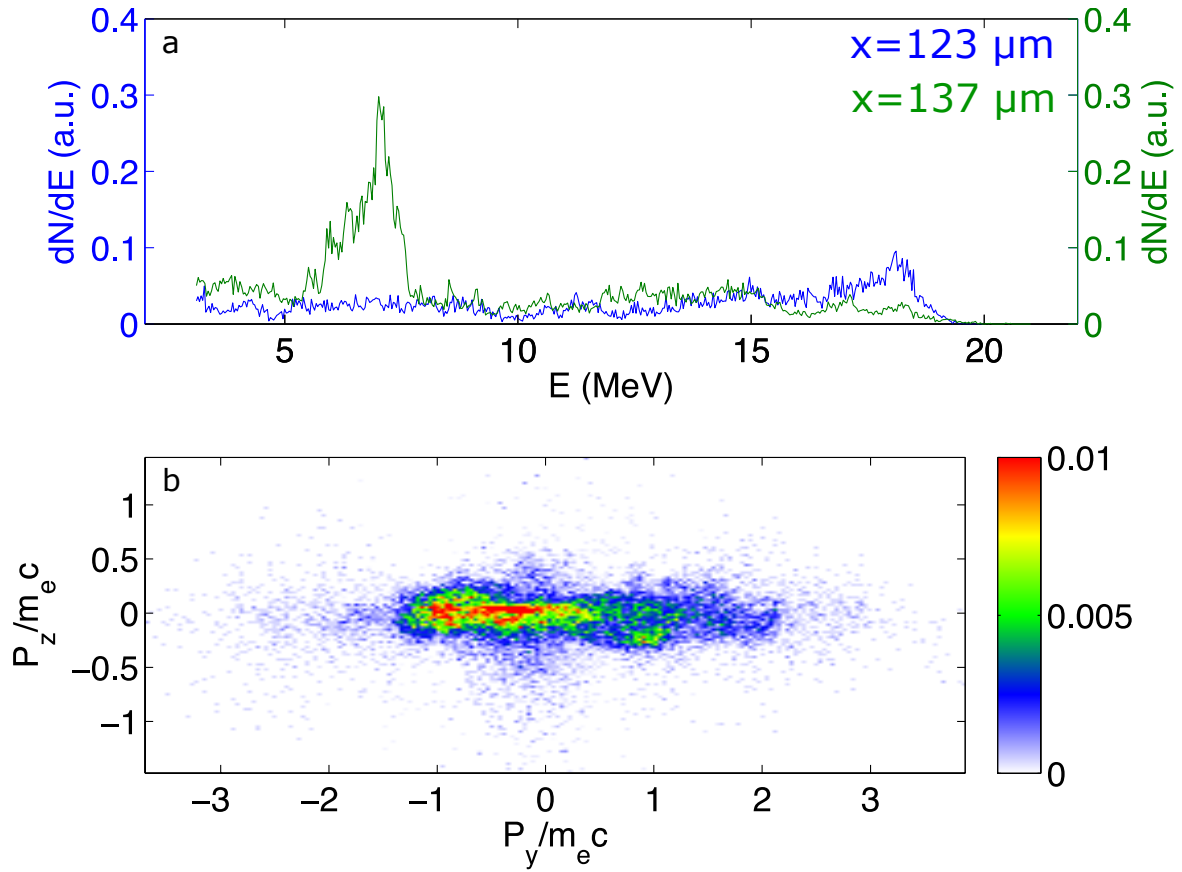


FIGURE 7.9 – a) Distribution en énergie des l'ensemble des électrons à la fin de la première ($x = 125 \mu\text{m}$) et de la seconde ($x = 137 \mu\text{m}$) injection en bleu et vert respectivement. b) Densité électronique des électrons dans l'espace des phases transverses $(p_y/m_e c, p_z/m_e c)$, où y correspond à la direction de polarisation du laser.

direction perpendiculaire (parallèle) à la direction de polarisation du laser. Afin de calculer l'émittance normalisée du paquet d'électrons, nous avons appliqué un filtre dans l'espace des phases pour ne retenir que 50% de la charge totale, ce qui revient donc à filtrer les électrons qui divergent le plus. Nous avons alors calculé une émittance normalisée de $\epsilon_n = 6 \times 10^{-3}$ mm.mrad (0.2 mm.mrad) dans la direction perpendiculaire (parallèle) à la direction de polarisation.

7.4 Optimisation du faisceau d'électrons

7.4.1 Effet du chirp initial de l'impulsion laser

Les simulations mettant en évidence le rôle crucial de la dispersion lors de l'accélération des électrons, il est naturel de vouloir introduire un chirp positif dans l'impulsion laser afin de pré-compenser la dispersion linéaire causée par le plasma. Des études récentes se sont intéressées à l'effet du chirp sur l'accélération d'électrons dans le régime de la bulle [10, 11]. Dans [10], les auteurs montrent que l'application d'un chirp négatif sur des impulsions de durée 5 fs et d'énergie 0.33 J permet de ralentir l'évolution non-linéaire de l'impulsion laser dans le plasma car la partie avant de l'impulsion, qui contient donc initialement les composantes bleues, se retrouve décalée vers le rouge. A l'inverse un chirp positif provoquera une évolution encore plus brutale du spectre laser [11].

Dans les simulations PIC, nous avons introduit du chirp spectral sous la forme $\Phi = \omega t + bt^2$, où b correspond au paramètre du chirp défini de la façon suivante :

$$b = \pm \frac{1}{4\Delta t^2} \sqrt{\frac{\Delta t^2}{\Delta t_0^2} - 1} \quad (7.6)$$

avec Δt_0 et Δt les durées rms des impulsions en limite de transformée de Fourier et chirpée respectivement. Le signe + (-) permet d'introduire un chirp positif (négatif), pour lequel les basses (hautes) fréquences sont à l'avant de l'impulsion. Nous avons conservé la largeur spectrale et l'énergie de l'impulsion laser dans les simulations. L'introduction du chirp revient ainsi à multiplier l'intensité laser par un facteur $\Delta t_0 / \Delta t < 1$.

La figure 7.10, qui représente le potentiel vecteur normalisé au cours de la propagation, montre qu'un chirp positif permet de contrôler la position à laquelle l'impulsion est comprimée dans le plasma. Les impulsions initialement chirpées à une durée de 7 et 9 fs atteignent $a_0 > 2$, ce qui est nettement supérieur à l'intensité maximale pour l'impulsion non chirpée : $a_0 = 1.6$. On voit aussi que la position pour laquelle l'intensité maximale est atteinte est d'autant plus profonde dans le plasma que l'impulsion est chirpée positivement. Il faut noter qu'une augmentation de l'intensité laser due aux effets de la dispersion de vitesse de groupe (GVD) n'avait pas été observée pour des impulsions plus longues dans des plasmas de plus faible densité. Il est donc nécessaire que l'impulsion soit extrêmement large spectralement pour qu'un effet significatif de la GVD soit visible.

Toutefois, l'augmentation de a_0 peut être causée par une diminution de la durée de

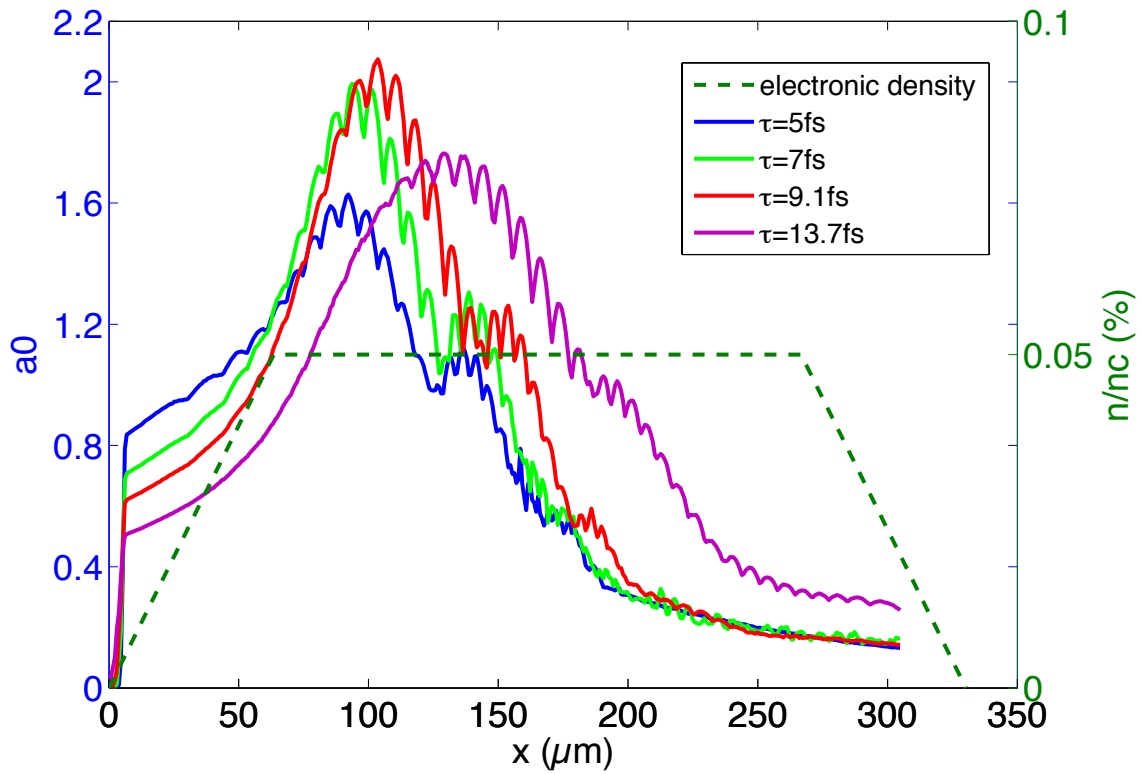


FIGURE 7.10 – Evolution du potentiel vecteur normalisé a_0 au cours de la propagation pour différentes valeurs du chirp. Courbe bleue : impulsion non chirpée. Les courbes verte, rouge et violette : impulsions chirpées à 7, 9 et 13.7 fs respectivement. Courbe verte pointillée : profil de la densité électronique.

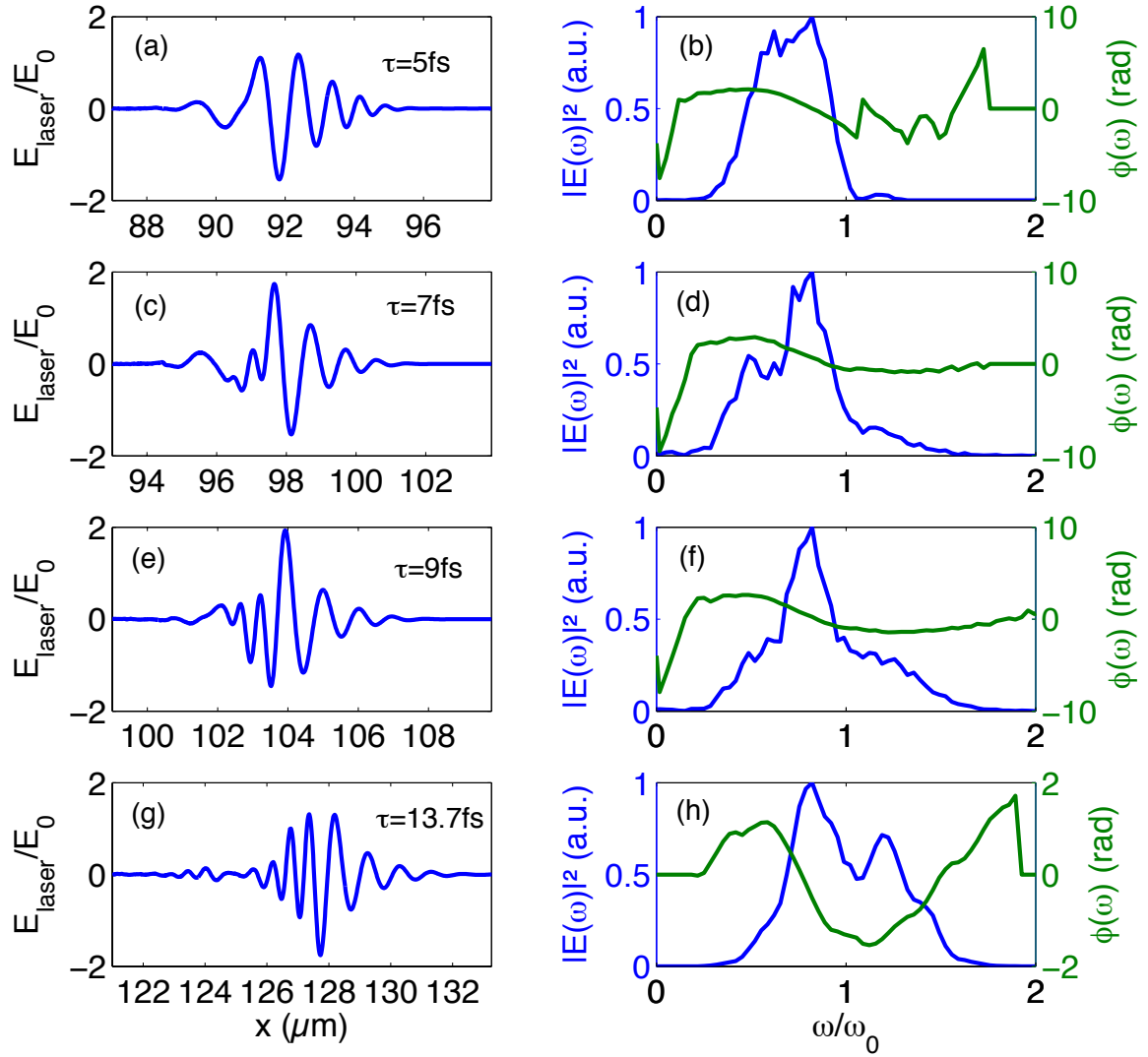


FIGURE 7.11 – Représentation du champ laser (gauche), et de l'intensité (droite, bleu) et de la phase spectrale (droite, gauche) à la position où l'intensité laser est maximale, pour les simulations : sans chirp initial (a-b), chirpée positivement à $\tau = 7\text{fs}$ (c-d), $\tau = 9\text{fs}$ (e-f), et $\tau = 13.7\text{fs}$ (g-h).

l'impulsion ou de son waist. Afin de confirmer qu'il s'agisse bien d'un effet temporel, on représente sur la figure 7.11 le profil temporel de l'impulsion à la position où a_0 est maximal pour chaque valeur du chirp étudié précédemment. On voit que l'impulsion initialement non chirpée n'est plus comprimée temporellement lorsque son intensité est maximale, comme l'indique la phase quadratique visible sur la figure 7.11 (b). Par contre, les impulsions chirpées positivement à 7 et 9 fs sont devenues mono-cycle, ce qui confirme qu'il est possible de pré-compenser la GVD introduite par le plasma grâce au chirp. Concernant l'impulsion chirpée à 13.7 fs, on voit sur les panels (g) et (h) qu'elle est encore chirpée positivement, et par conséquent elle atteint une valeur de a_0 plus faible que pour les impulsions chirpées à 7 et 9 fs.

Les figures 7.11 (b)-(d)-(f)-(h) représentent les spectres lasers lorsque a_0 est maximal. Il apparaît que le chirp a également un effet sur l'évolution non-linéaire de l'impulsion : la fréquence centrale est davantage décalée vers le rouge pour les impulsions courtes, et les spectres sont d'autant plus élargis vers le bleu que les impulsions sont longues. Cela s'explique bien par l'analyse que nous avons faite en début de chapitre. Si l'impulsion est courte, elle ne verra que l'avant de l'onde plasma et sera par conséquent principalement élargie vers les basses fréquences. Par contre, si l'impulsion est longue elle verra également les gradients positifs d'indice optique situés à l'arrière de l'onde plasma, qui ont pour effet d'élargir le spectre vers les hautes fréquences. Dans ce cas, le spectre est élargi vers le rouge à l'avant et vers le bleu à l'arrière, permettant ainsi un élargissement spectral plus symétrique comme on peut le voir sur le panel (h).

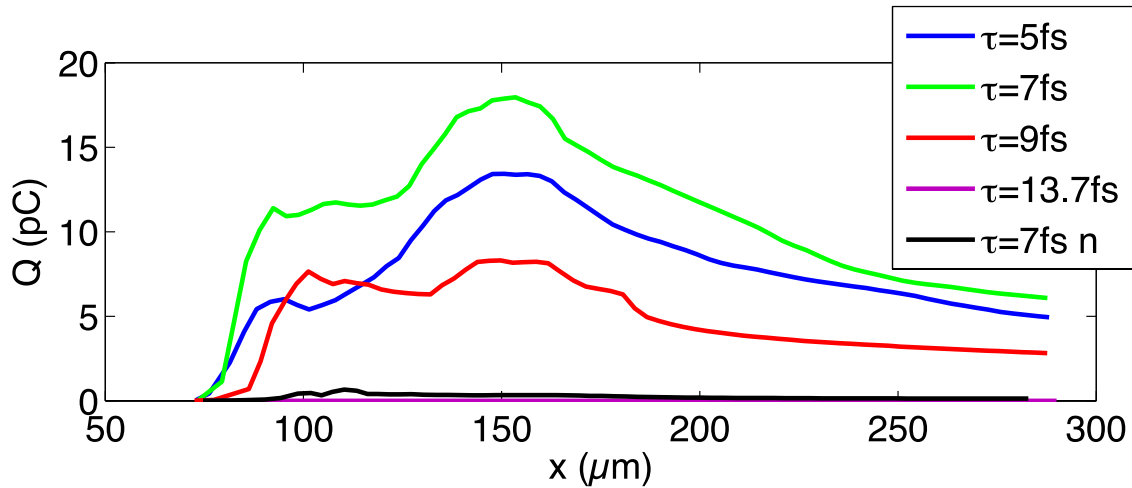


FIGURE 7.12 – Evolution de la charge électronique au cours de la propagation de l'impulsion pour les électrons d'énergie $E > 3$ MeV et situés à moins de $2.5 \mu\text{m}$ de l'axe. Courbe bleue : impulsion initialement non chirpée. Courbes verte, rouge et violette : impulsions chirpées à 7, 9 et 13.7 fs respectivement. La courbe noire correspond à une impulsion initialement chirpée négativement à 7 fs.

La figure 7.12 montre l'effet du chirp sur la charge injectée. Il apparaît que l'introduction d'un chirp positif permet d'augmenter la charge injectée dans le premier paquet d'électrons, mais réduit la charge injectée par le second mécanisme. Pour l'impul-

sion chirpée à 7 fs, la charge injectée dans le premier paquet est multipliée par un facteur deux par rapport à l'impulsion non chirpée, et la charge totale augmente d'environ 30 %. Le chirp permet d'augmenter significativement l'intensité de l'impulsion lorsqu'elle s'auto-focalise, et de générer ainsi des ondes plasma beaucoup plus intenses. C'est pour cette raison que la charge auto-injectée dans le premier paquet d'électrons est beaucoup plus importante. Ensuite, le chirp positif limite le décalage de la fréquence centrale vers le rouge, ce qui fait que le ralentissement des ondes plasma est moins fort, et par conséquent la charge injectée dans le second paquet d'électrons est plus faible. On voit également que lorsque le chirp est trop important, aucun électron d'énergie $E_e > 3$ MeV n'est injecté (courbe violette). Nous avons également étudié l'injection avec une impulsion chirpée négativement à 7 fs (courbe noire) : dans ce cas, la dispersion réduit fortement l'intensité laser au foyer ce qui empêche l'injection d'électrons.

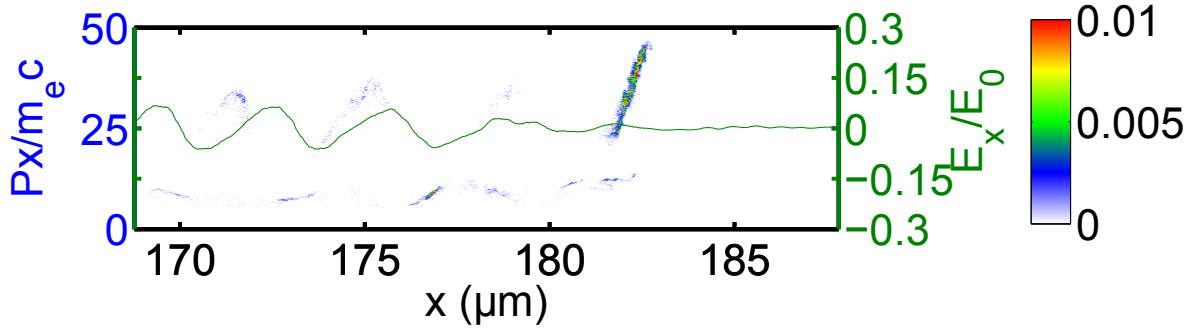


FIGURE 7.13 – Distribution électronique dans l'espace des phases en sortie du jet de gaz pour la simulation avec une impulsion initialement chirpée positivement à 9 fs.

La figure 7.13 représente la distribution électronique dans l'espace $(x, p_x/m_e c)$ lorsque l'impulsion atteint la sortie du jet de gaz, dans le cas de l'impulsion initialement chirpée positivement à 9 fs. On peut voir que la majorité de la charge est maintenant contenue dans le premier paquet d'électrons, car l'introduction du chirp a limité le ralentissement de l'onde plasma. Par contre, la dispersion en énergie du paquet est large, similaire à celle représentée en bleu sur la figure 7.9 (a).

7.4.2 Effet de la CEP

Dans [12], les auteurs étudient le mécanisme d'injection d'électrons par ionisation dans un gaz d'azote avec des impulsions laser de 5 fs et 5 mJ. L'injection a lieu sur une distance très courte où l'intensité laser est maximale, et ils observent que la phase relative entre la porteuse et l'enveloppe (CEP pour "Carrier-Envelope Phase") de l'impulsion laser a un effet notable sur la distribution finale en énergie des électrons. En effet, une impulsion de durée 5 fs à $\lambda_0 = 800$ nm étant quasiment mono-cycle, la CEP peut modifier significativement l'amplitude crête du champ. Nous avons également étudié l'influence de la CEP dans le cas d'une impulsion non chirpée initialement, mais les simulations ont montré qu'elle n'a aucun effet sur la distribution en énergie ou sur la charge. Cela s'explique bien à partir de la figure 7.10 représentant a_0 au cours de la propagation. a_0 est

calculé lors de la simulation à partir de la valeur maximale du champ laser, et les oscillations que l'on voit sur les courbes sont dues au fait que les vitesses de phase et de groupe de l'impulsion laser sont différentes dans le plasma. On voit que la CEP se déphase de plusieurs cycles optiques pendant que l'impulsion reste auto-focalisée. En effet, on rappelle l'expression des vitesses de groupe et de phase laser dans le régime faiblement relativiste ($a_0^2 \ll 1$), et pour un plasma sous-dense ($\omega_p^2/\omega_0^2 \ll 1$) :

$$\nu_g \simeq c \left(1 - \frac{1}{2} \frac{n_e}{n_c} \right) \quad (7.7)$$

$$\nu_\phi \simeq c \left(1 + \frac{1}{2} \frac{n_e}{n_c} \right) \quad (7.8)$$

Ainsi, la différence entre la vitesse de groupe et la vitesse de phase vaut $\Delta\nu = \nu_\phi - \nu_g = cn_e/n_c$. La phase se décale alors de 2π après une distance $L_{2\pi}$:

$$L_{2\pi} = \lambda_0 \frac{n_c}{n_e} = 20\lambda_0 \quad (7.9)$$

où on rappelle que la densité du plasma dans les simulations vaut $n_e = 0.05n_c$.

Par conséquent, la CEP initiale n'a pas d'importance dans ce régime d'interaction car son effet est moyenné sur plusieurs périodes au cours de l'injection des électrons. Il faut également préciser que les travaux publiés dans [12] ne portent pas atteinte à la validité de nos simulations dans lesquelles on considère un plasma initialement ionisé. Nos simulations sont valides pour des expériences d'accélération d'électrons dans un gaz qui serait complètement ionisé à intensité modérée, dans de l'Hydrogène ou de l'Hélium par exemple.

7.5 Conclusions et perspectives

Nous avons exploré à l'aide de simulations numériques l'interaction d'une impulsion laser de durée 5 fs et d'énergie 4 mJ avec un plasma sous-dense à la densité résonnante $n_e/n_c = 5\%$ (de sorte que l'impulsion laser soit résonnante dans les ondes plasma). Il apparaît que la dispersion joue un rôle crucial dans ce régime qui n'a été que très peu exploré. De plus, des effets liés à l'onde plasma provoquent un très fort décalage de la fréquence centrale vers le rouge, conduisant à une baisse de la vitesse de groupe du laser et donc de la vitesse de phase des ondes plasma. Des électrons peuvent alors être accélérés jusqu'à 5-10 MeV dans ces ondes plasma sous-relativistes. Des expériences vont bientôt être réalisées au LOA et permettront d'explorer ce régime d'interaction. Parmi l'ensemble des paramètres expérimentaux qui peuvent être étudiés, il y en a deux qui, à mon avis, peuvent être particulièrement intéressants :

- L'espèce gazeuse utilisée peut grandement influencer sur l'accélération des électrons. L'injection par ionisation proposée dans [12] est très localisée et permettrait donc de produire des paquets d'électrons très courts, mais l'inconvénient est que la charge accélérée est assez faible (environ 150 fC dans les simulations). A l'inverse, il semble

que la méthode que nous avons étudiée permette d'accélérer un paquet avec une forte charge (environ 15 pC), mais de plus longue durée [13].

- La longueur du jet de gaz utilisé dans l'expérience permettrait aussi de contrôler l'énergie des électrons, en stoppant plus ou moins tôt l'accélération dans les ondes plasma. Toutefois, il n'est pas simple de contrôler le profil du jet de gaz sur une courte distance, et la construction d'un jet de gaz avec des gradients très courts et un plateau inférieur à la centaine de micromètres demande un certain investissement.

Enfin, bien que l'énergie des électrons soit adaptée aux expériences de diffraction d'électrons, nos simulations indiquent que la qualité spatiale et plus particulièrement l'émittance de la source doit être améliorée. Nous nous sommes basés sur ces résultats de simulations pour proposer un design de ligne pour le transport et le filtrage du faisceau d'électrons [14]. En filtrant astucieusement les paquets d'électrons, il est possible de produire une source de durée inférieure à 5 fs, de charge 1.5 fC et de cohérence transverse supérieure à 2 nm. Nous avons donc étudié la construction de la source d'électrons pour des expériences de diffraction résolue en temps à l'aide de simulations numériques, et les expériences sont maintenant en cours.

7.6 Références

- [1] W. B. Mori. The physics of the nonlinear optics of plasmas at relativistic intensities for short-pulse lasers. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 33(11) :1942–1953, 1997. 136
- [2] G.-Z. Sun et al. Self-focusing of short intense pulses in plasmas. *Physics of Fluids*, 30, 1987. 137
- [3] A. B. et al. Borisov. Relativistic and charge-displacement self-channeling of intense ultrashort laser pulses in plasmas. *Phys. Rev. A*, 45 :5830–5845, 1992. 137
- [4] A. F. Lifschitz et al. Particle-in-cell modelling of laser-plasma interaction using fourier decomposition. *Journal of Computational Physics*, 228 :1803–1814, 2009. 139
- [5] C. Ren, B. J. Duda, R. G. Hemker, W. B. Mori, T. Katsouleas, T. M. Antonsen, and P. Mora. Compressing and focusing a short laser pulse by a thin plasma lens. *Phys. Rev. E*, 63 :026411, Jan 2001. 142
- [6] J. Faure, Y. Glinec, J. J. Santos, F. Ewald, J.-P. Rousseau, S. Kiselev, A. Pukhov, T. Hosokai, and V. Malka. Observation of laser-pulse shortening in nonlinear plasma waves. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :205003, Nov 2005. 142
- [7] J. Schreiber, C. Bellei, S. P. D. Mangles, C. Kamperidis, S. Kneip, S. R. Nagel, C. A. J. Palmer, P. P. Rajeev, M. J. V. Streeter, and Z. Najmudin. Complete temporal charac-

- terization of asymmetric pulse compression in a laser wakefield. *Phys. Rev. Lett.*, 105 :235003, Dec 2010. [142](#)
- [8] C. D. Decker and W. B. Mori. Group velocity of large amplitude electromagnetic waves in a plasma. *Phys. Rev. Lett.*, 72 :490–493, Jan 1994. [144](#)
- [9] W. Lu et al. Generating multi-gev electron bunches using single stage laser wakefield acceleration in a 3d nonlinear regime. *PHYSICAL REVIEW SPECIAL TOPICS - ACCELERATORS AND BEAMS*, 10, 2007. [144](#)
- [10] S Y Kalmykov, A Beck, X Davoine, E Lefebvre, and B A Shadwick. Laser plasma acceleration with a negatively chirped pulse : all-optical control over dark current in the blowout regime. *New Journal of Physics*, 14(3) :033025, 2012. [149](#)
- [11] V B Pathak, J Vieira, R A Fonseca, and L O Silva. Effect of the frequency chirp on laser wakefield acceleration. *New Journal of Physics*, 14(2) :023057, 2012. [149](#)
- [12] A. Lifschitz et al. Optical phase effects in electron wakefield acceleration using few-cycle laser pulses. *New Journal of Physics*, 14, 2012. [153](#), [154](#)
- [13] B. Beaurepaire et al. Electron acceleration in sub-relativistic wakefields driven by few-cycle laser pulses. *New Journal of Physics*, 16, 2014. [155](#)
- [14] J. Faure et al. Concept of a laser-plasma-based electron source for sub-10-fs electron diffraction. *PHYSICAL REVIEW ACCELERATORS AND BEAMS*, 19, 2016. [155](#)

Chapitre 8

Conclusion et perspectives

« »

Auteur

Conclusion

Nous avons étudié expérimentalement et numériquement la possibilité d'utiliser un accélérateur laser-plasma à haut taux de répétition pour des expériences de diffraction d'électrons. Pour résumer ces travaux, nous pouvons retenir les points suivants :

D'une part, nous avons mis en évidence l'effet du front d'onde laser dans un accélérateur laser-plasma fonctionnant dans un régime où l'auto-focalisation relativiste de l'impulsion dans le plasma n'a pas lieu. La source que nous avons développée génère des faisceaux d'électrons stables, au kHz, et d'énergie environ 100 keV, mais dont la distribution transverse est très sensible au front d'onde laser. Ces résultats nous ont convaincus de la nécessité de contrôler le front d'onde, avec un miroir déformable par exemple, afin d'optimiser la charge ainsi que de réduire la divergence de la source.

Nous avons également réalisé au Michigan, en collaboration avec nos collègues du CUOS, les premières expériences de diffraction d'électrons avec une source laser-plasma similaire à celle que nous avons construite. En 2012-2013, la première expérience de diffraction statique a montré que la qualité spatiale du faisceau d'électrons est suffisante pour obtenir de belles images de diffraction. Il y a toutefois une différence flagrante entre ces images et celles obtenues avec une source conventionnelle : les pics de Bragg sont étirés à cause de la grande dispersion en énergie de la source, $\Delta E/E \sim 10 - 15\%$. A la suite de ces résultats, nous avons réalisé en 2015 une seconde campagne d'expériences afin d'explorer les limites de cette source du point de vue temporel. Alors que la durée du paquet d'électrons s'étire sur plusieurs centaines de picosecondes après seulement quelques centimètres de propagation, la dynamique temporelle est retranscrite le long des pics de Bragg : les électrons les plus rapides arrivants avant les plus lents sur l'échantillon. Nous avons démontré expérimentalement que la résolution temporelle de

la source est accordable dans une certaine mesure, nous pouvons atteindre une résolution de 14 ps en explorant une fenêtre temporelle de 200 ps, ou encore environ 1 ps de résolution sur une fenêtre de 15 ps. Toutefois, cette source présente certaines limites, notamment lorsque l'on souhaite atteindre une résolution temporelle inférieure à la picoseconde, mais cette expérience constitue une preuve de principe pour l'utilisation des sources laser-plasma pour la diffraction d'électrons résolue en temps. Pour le moment, les sources conventionnelles permettent encore de sonder la matière avec une meilleure résolution temporelle (environ 300 fs), mais les acquisitions sont très longues et peuvent prendre plusieurs heures au kHz. En revanche, sous réserve que la charge soit suffisante, la technique que nous avons mise en oeuvre avec la source laser-plasma permet d'enregistrer très rapidement la dynamique pompe-sonde. En théorie seulement 2 acquisitions sont nécessaires pour enregistrer toute la dynamique, ce qui rend cette source particulièrement intéressante pour étudier des transitions irréversibles.

Afin de résoudre des phénomènes de durée inférieure à la centaine de femtosecondes, il semble nécessaire de travailler dans le régime stroboscopique avec une source d'électrons d'énergie 5 MeV environ. Pour accélérer efficacement des électrons à ces énergies avec une source laser-plasma, il faut utiliser des impulsions laser de durée 5 fs environ. Dans cet esprit, nous avons réalisé une expérience de compression de l'impulsion laser par ionisation dans un jet de gaz. Nous avons montré qu'il est possible de diviser la durée de l'impulsion laser dans le champ proche d'un facteur 2 grâce à cette technique, mais une étude numérique poussée a mis en évidence des couplages spatio-temporels qui limitent les applications. Lorsqu'on focalise l'impulsion qui a été comprimée, sa durée augmente jusqu'à atteindre au foyer la même durée qu'avant compression.

Enfin, nous avons exploré, à l'aide de simulations numériques, un régime d'interaction laser-plasma permettant d'accélérer des paquets d'électrons ultra-courts à une énergie de 5 MeV. Les simulations ont montré qu'une impulsion laser de 5 fs et 5 mJ permettrait de produire un paquet d'électrons d'énergie 5-7 MeV et de dispersion en énergie environ 12%. Ces résultats sont encourageants pour le développement de la source, mais des améliorations resteront à apporter afin que la résolution temporelle de cette source dépasse d'un ordre de grandeur celle des sources conventionnelles.

Perspectives pour les expériences de diffraction ultra-rapide d'électrons

Le développement d'une source d'électrons de durée inférieure à 10 fs demeure donc à ce jour un défi, et il reste un effort à fournir sur la source laser-plasma pour y parvenir. Les travaux que nous avons effectués au cours de ces dernières années nous ont permis d'identifier certaines pistes à explorer une fois que nous disposerons d'impulsions laser de durée 5 fs et d'énergie 5 mJ. Un point important à considérer est la durée non-corrélée

de la source : il est nécessaire que l'injection soit localisée pour que l'on puisse espérer atteindre une résolution temporelle sub-10 fs. Les résultats des simulations numériques que nous avons présentées montrent que l'auto-injection des électrons dans le régime de la bulle a lieu dans plusieurs arches de l'onde plasma, augmentant la durée non-corrélée de la source. En effet, 2 paquets d'électrons séparés d'une longueur d'onde plasma à la densité résonante sont temporellement espacés de $\lambda_p/c \simeq 12$ fs dans les simulations. Il y a donc un travail à fournir afin de localiser l'injection des électrons.

- Contrôle de l'injection des électrons dans l'onde plasma :

Des techniques permettant de contrôler l'injection ont été démontrées avec de plus gros systèmes laser. Il paraît donc naturel de vouloir les transposer pour notre application reposant sur la génération de paquets d'électrons ultra-courts. Certaines techniques comme l'injection optique avec 2 impulsions laser contre-propagatives sont élégantes car très ajustables, mais difficilement réalisables sur notre système laser pour lequel l'énergie est limitée. D'autres méthodes comme l'injection dans un gradient de densité permettraient de délimiter dans l'espace la zone d'injection. Un profil adapté du jet de gaz serait alors formé d'un gradient descendant fort suivi d'un plateau, où la densité plasma serait résonante avec l'impulsion laser. Toutefois, le plateau de densité devrait être particulièrement court (quelques dizaines de micromètres seulement) afin d'accélérer les électrons à une énergie d'environ 5 MeV, et les gradients d'entrée et de sortie du jet de gaz doivent également être courts pour ne pas altérer la propagation du laser. On se heurte alors à des difficultés techniques car il n'est pas évident de contrôler le profil du jet de gaz sur de faibles distances. En effet, les techniques conventionnelles d'usinage ne permettent pas de produire des jets de gaz aussi petit. Il est important de continuer à étudier la possibilité de produire de tels jets de gaz grâce à des techniques d'usinage non conventionnelles, comme l'usinage laser ou l'électro-érosion par exemple.

Dans [1], Lifschitz *et al.* étudient, à l'aide de simulations numériques, l'injection par ionisation avec des paramètres laser identiques à ceux que l'on espère atteindre. Ces travaux montrent qu'il est possible d'accélérer des électrons autour de 10 MeV par ce mécanisme, avec une dispersion en énergie autour de 3 %.

Toutefois il semble être compliqué de produire des paquets d'électrons avec une dispersion en énergie inférieure au pourcent dans ce régime d'interaction où l'évolution non-linéaire de l'impulsion dans le plasma est particulièrement brutale. Ainsi, la gestion de la dispersion grâce à un filtrage, et même la recompression temporelle des paquets d'électrons, s'avèrent nécessaires afin de produire une source de durée sub-10 fs pour sonder la matière.

- Mise en forme du paquet d'électrons :

D'après les simulations que nous avons réalisées, il faudra combattre l'effet de la dispersion en énergie dans le paquet d'électrons pour atteindre des durées ultra-courtes. En effet, la durée d'un paquet d'électrons d'énergie 5 MeV et de dispersion en énergie

10% augmente de 300 fs après seulement 10 cm de propagation. Dans le but d'atteindre une résolution temporelle sub-10 fs, on peut alors envisager d'améliorer les propriétés du faisceau d'électrons en filtrant dans l'espace de phases, afin de réduire la dispersion en énergie et d'améliorer l'émittance transverse. Ces améliorations nous encouragent à nous tourner vers la communauté des accélérateurs conventionnels, qui développe un savoir-faire sur le transport de paquets d'électrons depuis plusieurs décennies. Nous avons alors lancé en 2013 une collaboration avec Bas Van der Geer de l'université de Eindhoven qui a développé le code *Global Particle Tracer* afin de proposer un concept de source d'électrons permettant d'atteindre une résolution temporelle sub-10 fs à partir du paquet d'électrons provenant de simulations numériques que nous avons réalisées, en couplant un accélérateur laser-plasma avec une ligne de transport adaptée. On représente sur la figure 8.1 (a) le dispositif que nous avons proposé dans la référence [2].

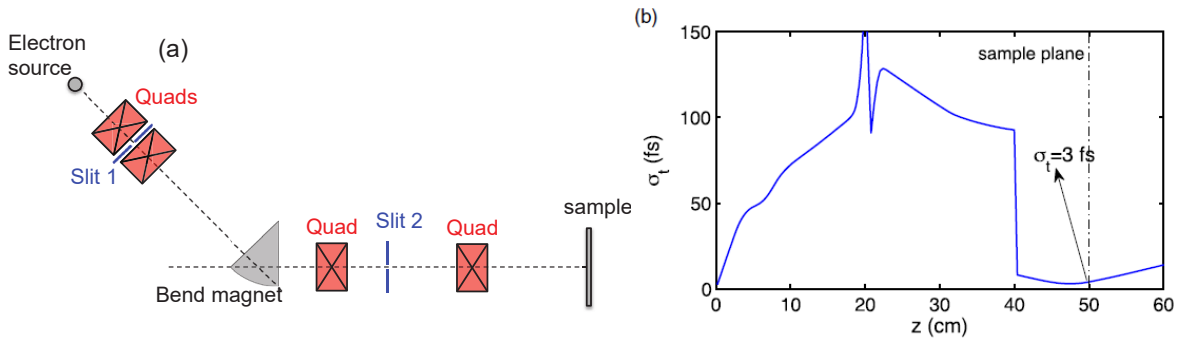


FIGURE 8.1 – a) Ligne de transport pour comprimer le paquet d'électrons à une durée de 2 fs. b) Evolution de la durée rms du paquet d'électrons lors de la propagation à travers la ligne de transport.

Les 2 paires de quadrupoles permettent de contrôler spatialement le faisceau d'électrons, et le *bend magnet* assure quant à lui la compression du paquet d'électrons au niveau de l'échantillon. A l'intérieur de cet élément, les énergies du paquet d'électrons sont séparées angulairement. Ainsi, en introduisant une fente, il est possible d'ajuster de manière absolue l'énergie finale des électrons tout en filtrant la dispersion en énergie. Les autres fentes sur le schéma permettent de filtrer les électrons angulairement et spatialement. En ajustant le champ magnétique induit par chacun des composants, nous avons montré qu'il serait possible de comprimer le paquet d'électrons à moins de 5 fs sur l'échantillon. La figure 8.1 (b) représente l'évolution de la durée du paquet d'électrons le long de la ligne de transport. On peut voir deux positions auxquelles la durée de l'impulsion varie fortement : (i) en $z = 20$ cm le *bend magnet* sur-compense le chirp accumulé par la propagation du paquet d'électron ce qui permet de le comprimer au niveau de l'échantillon, et (ii) en $z = 40$ cm, la seconde fente permet de filtrer les électrons qui divergent le plus et qui sont hors axe. Dans cette simulation, la charge au niveau de l'échantillon est d'environ 5 fC (contre 15 pC initialement), et la longueur de cohérence transverse du faisceau d'électrons vaut $L_T > 2$ nm. Une telle ligne de transport n'a jamais été associée à une source laser-plasma, mais il semble évident que la communauté des accélérateurs

conventionnels a beaucoup à nous apporter pour améliorer la qualité de la source. En couplant la source laser-plasma avec des éléments magnétiques largement utilisés dans le milieu des sources conventionnels, nous pourrions produire une source prometteuse pour des applications à la diffraction ultra-rapide d'électrons.

Résultats préliminaires : accélération d'électrons avec des impulsions de durée sub-5 fs

Les expériences d'accélération d'électrons avec des impulsions d'énergie 2.3 mJ et de durée environ 4 fs ont débuté il y a peu au LOA, et des résultats préliminaires ont été obtenus par Diego Guenot, Aline Vernier et Dominykas Gustas. Avec ces paramètres laser, il est alors possible d'atteindre le régime de la bulle.

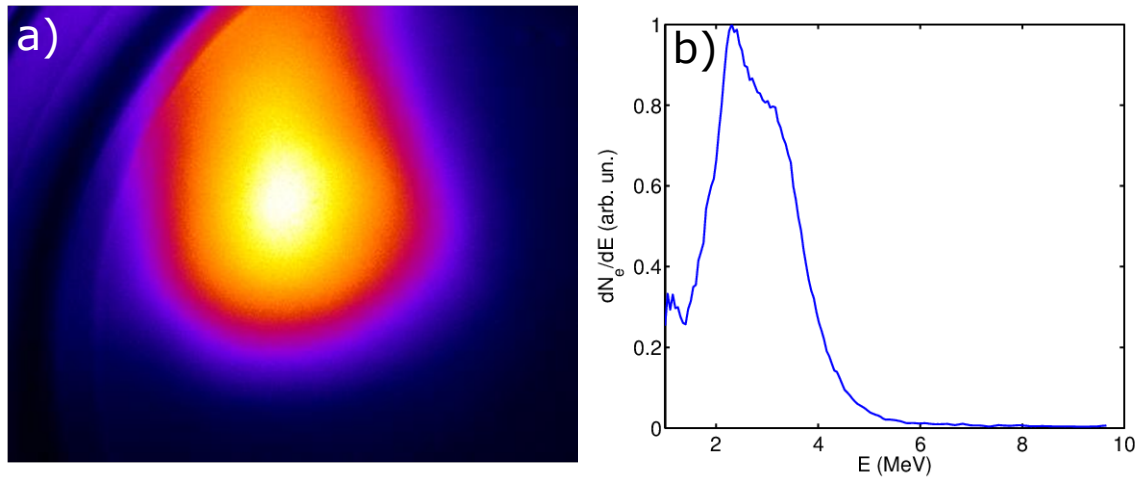


FIGURE 8.2 – a) Distribution transverse du faisceau d'électrons mesurée dans de l'Azote avec un capillaire de diamètre 100 μm . La divergence du faisceau est d'environ 40 mrad FWHM. b) Distribution en énergie des électrons.

On représente sur la figure 8.2 les résultats obtenus en focalisant le laser dans un jet d'azote de haute densité ($n_e > 10^{20} \text{ cm}^{-3}$). La figure 8.2 (a) représente la distribution transverse du paquet d'électrons mesurée en Salle Noire. Le faisceau est assez bien collimaté : sa divergence à mi-hauteur est d'environ 40 mrad, ce qui est proche du résultat des simulations PIC dans le régime de la bulle [3]. De plus, on estime que la charge est d'environ 15 fC/tir. La figure 8.2 (b) représente la distribution en énergie de ces électrons, sur laquelle on peut voir un pic dans la distribution autour de 3 MeV ! L'expérience se poursuit afin de définir proprement le régime d'interaction. Ces premiers résultats se révèlent être très encourageants.

Un cahier des charges de la source d'électrons avait été établie en début de manuscrit. La source fonctionne à haut taux de répétition, car les électrons sont accélérés par un laser kHz. De plus, la post-compression récente des impulsions laser a permis d'accé-

lérer des électrons à 3 MeV, une énergie bien adaptée pour les expériences de diffraction ultra-rapide. Nous avons montré que les critères sur la dispersion en énergie de la source ainsi que sur l'émittance transverse peuvent être remplis grâce à un filtrage approprié du paquet d'électrons [2]. Il reste alors à adresser le point crucial de la durée de la source, par une mesure directe basée sur le rayonnement cohérent de transition par exemple [4], ainsi qu'à développer la ligne de transport pour recomprimer les paquets d'électrons.

Le développement de cette source d'électrons est à la hauteur des perspectives qu'elle offre : ambitieux. Tous les éléments de la source représentent l'état de l'art de ce que l'on sait faire : le développement de systèmes lasers ultra-intenses mono-cycles en est à ses débuts, l'usinage de jets de gaz micro-structurés est particulièrement complexe, et la compression ainsi que la mesure de la durée des paquets d'électrons sera un challenge. L'accumulation d'éléments complexes rend le développement de la source ardu mais c'est une étape nécessaire pour améliorer sensiblement la résolution temporelle dans les expériences de diffraction ultra-rapide d'électrons, permettant alors de sonder la matière avec une résolution inégalée.

8.1 Références

- [1] A. Lifschitz et al. Optical phase effects in electron wakefield acceleration using few-cycle laser pulses. *New Journal of Physics*, 14, 2012. [159](#)
- [2] J. Faure et al. Concept of a laser-plasma-based electron source for sub-10-fs electron diffraction. *PHYSICAL REVIEW ACCELERATORS AND BEAMS*, 19, 2016. [160](#), [162](#)
- [3] B. Beaurepaire et al. Electron acceleration in sub-relativistic wakefields driven by few-cycle laser pulses. *New Journal of Physics*, 16, 2014. [161](#)
- [4] O. Lundh et al. Few femtosecond, few kiloampere electron bunch produced by a laser-plasma accelerator. *Nature Physics*, 7 :219–222, 2011. [162](#)

Annexe A

Calcul du taux de fuite à travers un capillaire.

Dans cette annexe, nous allons établir les équations permettant de calculer le taux de fuite et le débit massique d'un gaz s'écoulant à travers un capillaire de diamètre Φ .

A.1 Hypothèses

Les hypothèses que nous faisons pour le calcul sont les suivantes :

- Gaz parfait :

On considère que le gaz se comporte comme un gaz parfait. Il satisfait ainsi l'équation d'état des gaz parfaits :

$$P = \rho RT \quad (\text{A.1})$$

avec $P[\text{Pa}]$ la pression, $\rho[\text{kg.m}^{-3}]$ la masse volumique, et $T[\text{K}]$ la température du gaz. $R[\text{J/kg/K}] = R_0/M$ est la constante spécifique du gaz, avec R_0 la constante universelle des gaz parfaits et M la masse molaire du gaz en question.

- Fluide parfaitement compressible : on suppose que la viscosité du fluide est nulle.
- Écoulement unidirectionnel : l'écoulement s'effectue uniquement selon la direction x du capillaire, $\frac{\partial v}{\partial x} \gg \frac{\partial v}{\partial y}$.

L'écoulement satisfait également les équations suivantes :

1/ Conservation de la masse :

$$d(\rho v S) = 0 \Rightarrow \frac{d\rho}{\rho} + \frac{dv}{v} + \frac{dS}{S} = 0 \quad (\text{A.2})$$

Où S correspond à la section du capillaire.

2/ Conservation de la quantité de mouvement :

$$-dP.S = (S\rho v)dv \quad (\text{A.3})$$

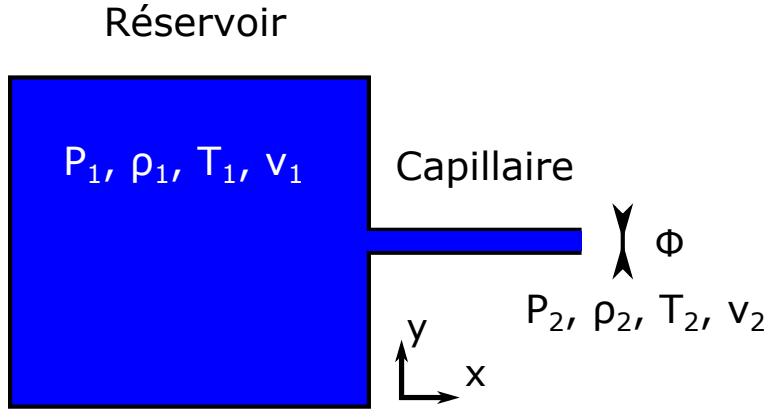


FIGURE A.1 – Schéma de principe : on souhaite calculer les paramètres P , ρ , T et v en sortie du capillaire.

3/ Transformation isentropique :

$$\frac{P}{\rho^\gamma} = \text{cste} \Rightarrow \frac{dP}{d\rho} = \gamma RT = a^2 \quad (\text{A.4})$$

avec $\gamma = c_p/c_v$ le coefficient de transformation adiabatique, et a la vitesse du son dans le fluide. c_p et c_v correspondent respectivement à la chaleur spécifique à pression constante et à la chaleur spécifique à volume constant.

En effet, si le processus est adiabatique, alors la variation de l'énergie interne du système dU vaut :

$$dU = -PdV \quad (\text{A.5})$$

De plus, la variation de l'enthalpie du système ($H=U+PV$) vaut :

$$dH = VdP \quad (\text{A.6})$$

Selon la loi de Joule Gay-Lussac et la loi de Joule-Thomson, on a également :

$$dU = c_v dT \quad (\text{A.7})$$

$$dH = c_p dT \quad (\text{A.8})$$

Les 4 équations précédentes permettent d'écrire la relation $\gamma \frac{dV}{V} = -\frac{dP}{P}$. En l'intégrant entre 2 états (P_1, V_1, T_1) et (P_2, V_2, T_2), on arrive finalement à :

$$P_1 V_1^\gamma = P_2 V_2^\gamma \quad (\text{A.9})$$

4/ Conservation de l'énergie :

$$c_p T + \frac{v^2}{2} = \text{cste} \quad (\text{A.10})$$

Soit :

$$\frac{dT}{T} = -\frac{v^2}{c_p T} \frac{dv}{v} = \frac{v^2}{c_p a^2} \gamma R \frac{dv}{v} = (1 - \gamma) M^2 \frac{dv}{v} \quad (\text{A.11})$$

Remarque sur l'équation de conservation de la quantité de mouvement

Les équations A.3 et A.4 permettent d'écrire :

$$\frac{d\rho}{\rho} = -M^2 \frac{dv}{v} \quad (\text{A.12})$$

En injectant l'équation A.2, on peut réécrire l'équation précédente sous la forme :

$$\frac{dS}{S} = (M^2 - 1) \frac{dv}{v} \quad (\text{A.13})$$

A l'aide de l'équation A.11 ainsi que de la relation $\frac{da}{a} = \frac{dv}{v} - \frac{dM}{M}$, on peut écrire l'équation A.13 sous la forme suivante :

$$\frac{dS}{S} = \frac{M^2 - 1}{1 + \frac{\gamma-1}{2} M^2} \frac{dM}{M} \quad (\text{A.14})$$

Cette équation nous indique qu'un capillaire de section constante comme celui que nous avons utilisé ($dS = 0$) ne change pas la vitesse du gaz. Pour qu'un jet permette d'accélérer le gaz ($dM > 0$) et d'atteindre des écoulements supersoniques ($M > 1$), il faut que l'ouverture augmente ($dS > 0$). Pour accélérer un gaz subsonique jusqu'à une vitesse supersonique, on utilise des jets de gaz dont le profil est convergent puis divergent. Le gaz est accéléré dans la première partie du jet ($dS < 0$ et $M < 1$), jusqu'à atteindre une vitesse sonique au niveau de la gorge ($dS = 0$). Le gaz est ensuite accéléré à une vitesse supersonique dans la seconde partie, où le jet s'ouvre ($dS > 0$).

A.2 Calcul du débit massique.

A.2.1 Calculs préliminaires

Pour un flux de gaz s'écoulant du réservoir jusqu'à la sortie du capillaire de section S , la conservation de l'énergie A.10 permet d'écrire :

$$c_p T_1 + \frac{v_1^2}{2} = c_p T_2 + \frac{v_2^2}{2} \quad (\text{A.15})$$

$$\frac{T_2}{T_1} = \frac{1 + \frac{v_1^2}{2c_p T_1}}{1 + \frac{v_2^2}{2c_p T_2}} \quad (\text{A.16})$$

A l'aide de la formule A.4, ainsi que des définitions $M = v/a$ le nombre de Mach du flux, $\gamma = c_p/c_v$ et $R = c_p - c_v$, on peut montrer que $\frac{v^2}{2c_p T} = \frac{\gamma-1}{2} M^2$. La relation A.16 se réduit alors à :

$$\frac{T_2}{T_1} = \frac{2 + (\gamma - 1)M_1^2}{2 + (\gamma - 1)M_2^2} \quad (\text{A.17})$$

Dans le cas d'une détente isentropique, en utilisant l'équation d'état des gaz parfaits, on montre que :

$$\frac{\rho_2}{\rho_1} = \left(\frac{T_2}{T_1} \right)^{\frac{1}{\gamma-1}} = \left(\frac{2 + (\gamma-1)M_1^2}{2 + (\gamma-1)M_2^2} \right)^{\frac{1}{\gamma-1}} \quad (\text{A.18})$$

et :

$$\frac{P_2}{P_1} = \left(\frac{2 + (\gamma-1)M_1^2}{2 + (\gamma-1)M_2^2} \right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} \quad (\text{A.19})$$

A.2.2 Calcul du débit massique à travers un capillaire

On note $\dot{m}$ [kg/s] le débit massique, et v [m/s] la vitesse du gaz. Le débit massique du gaz s'écoulant à travers le capillaire de section $S = \pi \frac{\phi^2}{4}$ vaut :

$$\dot{m} = \rho v S \quad (\text{A.20})$$

On va calculer dans un premier temps la masse volumique ρ du gaz à la sortie du capillaire. Dans le cas qui nous intéresse, la région 1 correspond au réservoir, dans lequel la vitesse moyenne du gaz est nulle. Par conséquent, $M_1 = 0$. Pour un capillaire de section constante, on peut montrer que $M_2 = 1$ (écoulement sonique), et les deux équations précédentes se simplifient :

$$\frac{\rho_2}{\rho_1} = \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{1}{\gamma-1}} \quad (\text{A.21})$$

$$\frac{P_2}{P_1} = \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} \quad (\text{A.22})$$

En utilisant l'équation d'état $P = \rho RT$, on trouve :

$$\rho_2 = \frac{P_2}{RT_2} = \frac{P_1}{RT_2} \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} \quad (\text{A.23})$$

Pour une section de diamètre constant, l'écoulement est sonique, et la vitesse du gaz dans le capillaire vaut :

$$v_2 = \sqrt{\gamma RT_2} \quad (\text{A.24})$$

D'où la formule du débit massique à travers le capillaire :

$$\dot{m} = \sqrt{\frac{\gamma}{RT_2}} P_1 \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{\gamma}{\gamma-1}} S \quad (\text{A.25})$$

En développant l'équation A.17, on obtient : $T_2 = \frac{2}{\gamma+1} T_1$

On trouve finalement une formule pour le débit massique qui ne dépend que de la température T_1 et de la pression P_1 au niveau du réservoir, ainsi que du diamètre ϕ du capillaire :

$$\dot{m} = \sqrt{\frac{\gamma}{RT_1}} P_1 \left(\frac{2}{\gamma+1} \right)^{\frac{\gamma+1}{2(\gamma-1)}} \pi \left(\frac{\phi}{2} \right)^2 \quad (\text{A.26})$$

Titre : Développement d'un accélérateur laser-plasma à haut taux de répétition pour des applications à la diffraction ultra-rapide d'électrons

Mots clés : laser femtoseconde, plasma, électrons

Résumé : La microscopie électronique et la diffraction d'électrons ont permis de comprendre l'organisation des atomes au sein de la matière. En utilisant une source courte temporellement, il devient possible de mesurer les déplacements atomiques ou les modifications de la distribution électronique dans des matériaux. A ce jour, les sources ultra-brèves pour les expériences de diffraction d'électrons ne permettent pas d'atteindre une résolution temporelle inférieure à la centaine de femtosecondes (fs). Les accélérateurs laser-plasma sont de bons candidats pour atteindre une résolution temporelle de l'ordre de la femtoseconde. Ce type d'accélérateurs fonctionnaient jusqu'alors à faible taux de répétition, il était alors nécessaire d'en développer un à haut taux de répétition afin d'accumuler un grand nombre de données.

Dans cette thèse, un accélérateur laser-plasma fonctionnant au kHz a été développé et construit. Les électrons sont accélérés à une énergie de 100 keV environ à partir d'impulsions laser d'énergie 3 mJ et de durée 25 fs. La physique de l'accélération a été étudiée, démontrant entre autres l'effet du front d'onde laser sur la distribution transverse des électrons.

Title : Development of a high repetition rate laser-plasma accelerator for ultra-fast electron diffraction experiments

Keywords : femtosecond lasers, plasmas, electrons

Abstract : Electronic microscopy and electron diffraction allowed the understanding of the organization of atoms in matter. Using a temporally short source, one can measure atomic displacements or modifications of the electronic distribution in matter. To date, the best temporal resolution for time resolved diffraction experiments is of the order of a hundred femtoseconds (fs). Laser-plasma accelerators are good candidates to reach the femtosecond temporal resolution in electron diffraction experiments. Such accelerators used to work at a low repetition rate, so that it was necessary to develop a new one operating at a high repetition rate in order to accumulate a large amount of data.

In this thesis, a laser-plasma accelerator operating at the kHz repetition rate was developed and built. This source generates electron bunches at 100 keV from 3 mJ and 25 fs laser pulses. The physics of the acceleration has been studied, and the effect of the laser wavefront on the electron transverse distribution has been demonstrated.