

Université du Québec  
Institut National de la Recherche Scientifique  
Centre Énergie, Matériaux et Télécommunications

# Génération d'harmoniques d'ordres élevés à haut flux dans un plasma d'ablation de carbone : mécanismes et applications

Par

Yoann Pertot

Mémoire de thèse présenté pour l'obtention du grade de  
Philosophiae doctor (Ph. D.)  
en Sciences de l'Énergie et des Matériaux

## Jury d'évaluation

Président du jury et  
examineur interne

François Légaré  
INRS-EMT

Examineur externe

Dr. Eric Constant  
Université de Bordeaux,  
CEA, CNRS, CELIA

Examineur externe

Pr. Michel Piché  
Université Laval  
Centre d'optique, photonique et laser

Directeur de recherche

Tsuneyuki Ozaki  
INRS-EMT



# Remerciements

Ce travail de thèse présente une vue d'ensemble de la génération d'harmonique d'ordres élevés à partir d'un plasma de carbone au laboratoire ALLS de l'Institut National de la Recherche Scientifique. Je tiens à remercier le directeur général de l'Institut National de la Recherche Scientifique, Daniel Coderre, ainsi que le directeur du centre Énergie, Matériaux et Télécommunication, actuellement Federico Rosei, Jean-Claude Kieffer lorsque je suis arrivé, de m'avoir permis de réaliser mon doctorat à L'INRS-EMT. Je remercie également le directeur actuel du laboratoire ALLS ( « Advanced Laser Light Source »), François Légaré, pour m'avoir accueilli au sein du laboratoire ALLS. Je remercie mon directeur de thèse et ancien directeur du laboratoire ALLS, Tsuneyuki Ozaki, de m'avoir supporté durant ces 5 années de travail de thèse ainsi que pour la liberté de travail et de choix dans mes sujets de recherche qu'il m'a accordé .

Je remercie le jury de thèse, composé de François Légaré, Eric Constant et Michel Piché, pour avoir accepté d'évaluer ce travail.

Un très grand merci revient à toute l'équipe scientifique et technique du laboratoire ALLS, Antoine, François, Philippe, Joël, Pierre-Luc, Marc-Olivier, Eric pour m'avoir apporté de précieux conseils et soutien technique et moral durant les longues semaines de temps de faisceau. En particulier, je remercie Antoine Laramée qui, par sa très grande connaissance technique des systèmes lasers femtosecondes ainsi que son efficacité, m'a beaucoup appris et a contribué fortement à la réalisation des expériences.

Je remercie également Bruno, Nicolas, Samuel qui, même si nous n'étions pas dans la

même équipe de recherche, nous partageons souvent le même temps de faisceau. Ils m'ont apporté de précieux conseils scientifiques, mais aussi des moments de discussion autour d'un café ou d'une bière (bien sûr en dehors des heures de travail).

Je remercie aussi toute l'équipe de l'atelier, Guy, Carol, Leo, Claude pour avoir su réaliser toutes les pièces et chambres d'expériences à partir de plans qui ressemblaient plus à des brouillons d'idées que de réelles instructions.

Je tiens à remercier toutes les personnes avec qui nous avons collaboré, Zhengu Chang, Andrew Ng ainsi que leurs étudiants notamment Sabih D. Khan et Zhijiang Chen avec qui nous avons réalisé ces expériences parfois très ambitieuses.

Je remercie tous les membres de l'administration, notamment Hélène Sabourin, Louise Hudon, Natalie Graveline, Natalie Metras pour leur efficacité et leur professionnalisme.

Finalement, je remercie particulièrement Charleyne Bachrati d'avoir relu et corrigé une grande partie de cette thèse. Je remercie mes amis et ma famille qui m'ont apporté un soutien moral qui a été essentiel à l'achèvement de ce travail.



# Résumé

La génération d'harmoniques d'ordres élevés par plasma d'ablation consiste à utiliser comme milieu non linéaire, non pas un gaz noble, mais un plasma issu de l'ablation par une impulsion laser d'une cible solide. Cette technique a été motivée par l'éventail de choix de milieux de génération qu'elle offre, mais aussi par la présence d'ions. Elle consiste en l'ablation par une impulsion de faible intensité d'une cible solide puis, après un certain délai, la focalisation d'une impulsion courte dans le milieu en expansion. L'interaction non linéaire de cette impulsion courte avec le plasma consiste en l'ionisation des particules du milieu et, lorsque les électrons ionisés recombinent vers l'ion parent, un photon dans le domaine ultraviolet extrême est généré. Expérimentalement, un grand nombre d'atomes émettent un photon à chaque demi-cycle optique de l'impulsion fondamentale. L'addition cohérente de ces photons résulte en la production d'harmoniques impaires de la longueur d'onde d'origine du laser.

Depuis 2003, la génération d'harmoniques d'ordres élevés par plasma d'ablation a montré des caractéristiques intéressantes. Parmi les plus notables, certaines cibles métalliques comme l'indium ont montré des phénomènes de résonances augmentant de plusieurs ordres de grandeur l'efficacité de génération pour une longueur d'onde particulière. Ce phénomène serait lié premièrement à une amélioration des conditions d'accord de phase du à la proximité d'une transition, mais aussi, l'ajout d'une étape intermédiaire entre la propagation et la recombinaison dans le modèle microscopique. Elle consiste au « piégeage » de l'électron par le niveau auto-ionisant avec la recombinaison vers le niveau fondamental. Un temps de vie

élevé et une force d'oscillateur importante d'un tel niveau expliquent la forte augmentation de l'efficacité de génération. Enfin, la cible de manganèse a permis de générer le 101<sup>ème</sup> ordre d'un faisceau à 800 nm. C'était, au moment de sa génération, l'énergie de photon la plus élevée obtenue en utilisant des plasmas d'ablation.

Les cibles de nanoparticules ont ensuite montré des efficacités de génération très élevées ( $10^{-4}$ ). Elles ont cependant un désavantage qui est leur ablation rapide, induisant une disparition des conditions adéquates à la génération après seulement quelques tirs. Cela se traduit expérimentalement par une difficulté durant l'alignement et l'impossibilité d'utiliser cette technique pour un grand nombre d'applications. Nous avons pu montrer que la cible solide de graphite associait des efficacités de génération équivalentes à celle des nanoparticules tout en alliant les avantages d'une cible solide. Ces avantages sont une ablation de la cible beaucoup plus lente, donc un signal plus stable et beaucoup plus facile à optimiser. Étant donné les propriétés évidemment intéressantes de cette cible, il a été décidé de concentrer ce travail de thèse sur la compréhension des mécanismes de génération à partir du graphite ainsi que le développement des premières applications exploitant la très forte efficacité de génération.

Nous montrons dans le troisième chapitre, par une revue de la littérature couplée à des expériences de spectroscopie, que la composition du plasma au moment de la génération des harmoniques d'ordres élevés est essentiellement composée de petites molécules  $C_2$ ,  $C_3$  ainsi que d'atomes de carbone et d'ions. La faible fluence d'ablation favorise un milieu quasiment neutre, mais également la présence des molécules plutôt que des atomes. Il est en effet thermodynamiquement plus efficace de les extraire du solide. Cela a permis de restreindre fortement le choix des candidats responsables du processus d'émission ultraviolet extrême.

Ensuite, plusieurs observations ont permis d'obtenir des informations quant au mécanisme de génération. En effet, nous avons tout d'abord observé un fort décalage vers le rouge lors de l'augmentation de l'intensité du faisceau infrarouge. Ce phénomène inattendu, car un décalage vers le bleu est généralement attendu dans ce cas, a tout d'abord été interprété comme dû à la présence possible d'une résonance dans l'étape d'ionisation. Cependant, une

série d'expériences n'a pas permis de corroborer cette hypothèse. Ensuite, la contribution du mouvement interatomique en cas de génération à partir d'une molécule a été considérée. Il explique théoriquement le décalage vers le rouge du signal harmonique. De plus, une augmentation de l'efficacité de génération lors de l'allongement temporel de l'impulsion suggère un phénomène « d'ionisation augmentée » pour une distance interatomique précise. Un projet expérimental est suggéré afin de vérifier cette hypothèse.

L'utilisation d'une impulsion fondamentale de longueur d'onde plus élevée ( $1.8 \mu m$  dans ce travail) permet l'augmentation du « cutoff ». Les spectres obtenus beaucoup plus larges permettent une meilleure extraction de l'information sur les mécanismes de génération. Notamment, nous montrons que la structure des spectres est très proche de la section efficace de photo-ionisation des molécules de  $C_2$ . Également, un minimum d'intensité est observé à une énergie proche de 33 eV. Il coïncide avec une extinction due possiblement à des interférences destructives à deux centres dans une molécule de  $C_2$ . C'est un phénomène qui a été observé auparavant pour d'autres molécules diatomiques comme  $O_2$  ou  $N_2$ . Cela pose cependant la question d'un alignement partiel des molécules du plasma, condition nécessaire à l'observation d'un minimum de génération. L'ensemble de ces résultats suggère fortement le rôle des molécules de carbone diatomique comme prépondérant dans le processus d'émission des harmoniques d'ordres élevés.

Finalement, le dernier chapitre est consacré à la présentation des applications de la génération d'harmoniques et plus particulièrement, celles exploitant la forte efficacité de génération de la méthode par plasma d'ablation. Tout d'abord, nous exposons la première démonstration de l'émission d'un continuum d'harmonique par la méthode « Double Optical Gating (DOG) » avec une impulsion fondamentale centrée à 800 nm. Cette étude est couplée à une comparaison de l'efficacité de génération dans l'argon et le plasma de carbone. Il en résulte que, en dépit des conditions expérimentales défavorables à la méthode plasma, celle-ci montre une efficacité un ordre de grandeur supérieure. Nous démontrons ensuite la génération d'un tel continuum dans le laboratoire « Advanced Laser Light Source (ALLS) »

grâce à l'utilisation d'une impulsion à  $1.8 \mu m$  associée à une porte de polarisation. Nous considérons ce résultat encourageant malgré un signal obtenu faible, car il consiste en une mesure à tir unique. La dernière application décrite dans ce mémoire de thèse est la mesure de l'opacité XUV d'un état de la matière intermédiaire entre le solide et le plasma, appelé « Warm Dense Matter (WDM) ». Ce projet n'a pas mené à l'obtention de résultats publiables. Cependant, nous considérons qu'il était intéressant de le décrire et d'en exposer les développements envisagés.

# Table des matières

Remerciements	iii
Résumé	v
Liste des tableaux	xiii
Table des figures	xxv
Liste de abréviations	xxvii
<b>INTRODUCTION ET PROBLÉMATIQUE</b>	<b>1</b>
<b>1 DESCRIPTION GÉNÉRALE DE LA GÉNÉRATION D’HARMONIQUES D’ORDRES ÉLEVÉS DANS LES PLASMAS D’ABLATION</b>	<b>7</b>
1.1 introduction . . . . .	7
1.2 La génération d’harmoniques d’ordres élevés . . . . .	8
1.2.1 Définition . . . . .	8
1.2.2 Un premier modèle microscopique : le modèle semi-classique . . . . .	10
1.2.3 La génération d’harmoniques dans le cadre du modèle de Lewenstein	23
1.2.4 Aspect macroscopique : notion d’accord de phase . . . . .	26
1.3 Le plasma comme milieu non linéaire : généralités et revue des résultats pré- cédents . . . . .	34
1.3.1 Motivation . . . . .	34

1.3.2	Mise en œuvre expérimentale et ordres de grandeur . . . . .	35
1.3.3	Principaux résultats obtenus précédemment . . . . .	40
1.4	Intérêt des cibles carbonées et objectifs de recherche . . . . .	50
1.5	Résumé du premier chapitre . . . . .	52
	Références du premier chapitre . . . . .	53
<b>2</b>	<b>LES LASERS À TECHNOLOGIE TITANE : SAPHIR</b>	<b>59</b>
2.1	Introduction . . . . .	59
2.2	Fonctionnement général des lasers . . . . .	60
2.3	Cas des lasers à technologie Titane : Saphir . . . . .	61
2.3.1	Principe général de fonctionnement . . . . .	61
2.3.2	La méthode d'amplification par dérive de fréquence . . . . .	64
2.4	Méthodes de caractérisation des impulsions ultra-courtes . . . . .	67
2.4.1	Que doit-on mesurer pour caractériser une impulsion courte . . . . .	67
2.4.2	Caractéristiques spatiales de l'impulsion laser . . . . .	67
2.4.3	La méthode de mesure de durée d'impulsion Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction (SPIDER) . . . . .	72
2.4.4	La méthode de mesure de durée d'impulsion Frequency Resolved Optical Gating (FROG) . . . . .	75
2.5	Résumé du deuxième chapitre . . . . .	79
	Références du deuxième chapitre . . . . .	81
<b>3</b>	<b>DESCRIPTION DU PLASMA D'ABLATION DU GRAPHITE ET OPTIMISATION DU PROCESSUS DE GÉNÉRATION</b>	<b>83</b>
3.1	Introduction . . . . .	83
3.2	Influence du type de cibles carbonées . . . . .	84
3.2.1	Description des différentes cibles carbonées testées . . . . .	84
3.2.2	Résultats expérimentaux . . . . .	88

3.3	Description du plasma issu d'une cible carbonée appliqué à la génération d'harmoniques d'ordres élevés . . . . .	97
3.3.1	Ablation d'une cible carbonée . . . . .	97
3.3.2	Spectroscopie résolue en temps et en espace du plasma d'ablation d'une cible de graphite . . . . .	108
3.4	Optimisation des paramètres de l'impulsion principale de génération . . . . .	112
3.4.1	Changements opérés dans les conditions de génération et présentation des résultats . . . . .	112
3.4.2	Analyse de nouveaux paramètres . . . . .	115
3.5	Résumé du troisième chapitre . . . . .	119
	Références du troisième chapitre . . . . .	121
<b>4</b>	<b>IDENTIFICATION DES MÉCANISMES DE GÉNÉRATION</b>	<b>125</b>
4.1	Introduction . . . . .	125
4.2	Décalage vers le rouge : signature d'un mécanisme de génération complexe .	126
4.2.1	Observation expérimentale . . . . .	126
4.2.2	Investigation d'une résonance . . . . .	128
4.2.3	Considération du mouvement intramoléculaire . . . . .	144
4.3	Génération grâce à une impulsion fondamentale à 1,8 micron de longueur d'onde	150
4.3.1	Amplification optique paramétrique : principe de génération d'impulsions ultra-courtes dans le domaine infrarouge . . . . .	150
4.3.2	résultats expérimentaux . . . . .	154
4.3.3	Remarques et interprétation . . . . .	158
4.4	Résumé du quatrième chapitre . . . . .	168
	Références du quatrième chapitre . . . . .	170
<b>5</b>	<b>APPLICATIONS DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS</b>	<b>175</b>

5.1	Introduction . . . . .	175
5.2	Génération d'un continuum d'harmoniques d'ordres élevés par la méthode « Double Optical Gating » (DOG) . . . . .	176
5.2.1	Méthode DOG : principe et réalisation . . . . .	176
5.2.2	Montage expérimental . . . . .	179
5.2.3	Résultats . . . . .	182
5.3	Première tentative de génération d'un continuum à 1.8 $\mu m$ dans le plasma de carbone . . . . .	188
5.3.1	Montage expérimental . . . . .	188
5.3.2	Résultats expérimentaux . . . . .	190
5.4	Mesure de l'opacité XUV de la « Warm Dense Matter » . . . . .	193
5.4.1	But de l'expérience et motivations du choix de la source harmonique par plasma de carbone . . . . .	194
5.4.2	Première campagne expérimentale . . . . .	195
5.4.3	Deuxième campagne expérimentale . . . . .	200
5.4.4	Perspectives du projet . . . . .	204
5.5	Résumé du cinquième chapitre . . . . .	210
	Références du cinquième chapitre . . . . .	211
	<b>CONCLUSION</b>	<b>215</b>
<b>6</b>	<b>ANNEXES</b>	<b>217</b>
6.1	Détails du calcul du moment dipolaire dans le cadre du modèle de Lewenstein dans le cas d'une résonance . . . . .	217
6.2	Élargissement spectral dans un système à fibre creuse . . . . .	220
6.2.1	Ordres de grandeurs : choix rapide des paramètres de l'expérience . . . . .	220
6.2.2	Résolution exacte de l'équation de propagation . . . . .	225
6.3	Modelage d'une impulsion dans son plan de Fourier, montage dit "4f" . . . . .	229



6.3.1	Principe du montage . . . . .	229
6.3.2	Mise en oeuvre dans le laboratoire . . . . .	230
6.3.3	Modélisation numérique . . . . .	232
	Références des annexes . . . . .	235



# Liste des tableaux

1.1	Tableau récapitulatif des densités électroniques calculées avec le code HYADES pour différentes cibles et une préimpulsion d'intensité $2.10^{10} W.cm^{-2}$ . . . . .	42
3.1	Définition des paramètres lasers de la préimpulsion adéquats pour l'ablation d'une cible de graphite solide appliquée à la génération d'harmoniques d'ordres élevés . . . . .	98
4.1	Valeurs caractéristiques des coefficients non linéaires dans les solides. . . . .	152
4.2	Tableau récapitulatif des valeurs de $\sigma_{ph}$ et $\beta$ pour l'atome de carbone et la molécule de dicarbone. Valeurs extraites de [28, 29]. . . . .	161
5.1	Tableau des différentes grandeurs associées à l'équation 5.6 . . . . .	184
6.1	Tableau des indices non linéaires $n_2$ de trois gaz nobles à pression atmosphérique	221
6.2	Tableau des pressions maximales admises dans la fibre en fonction du type de gaz dans les paramètres de l'expérience. . . . .	222
6.3	Tableau des rayons minimum de la fibre en fonction du type de gaz dans les paramètres de l'expérience. . . . .	223
6.4	Tableau des facteurs d'élargissement spectral en fonction du type de gaz dans les paramètres de l'expérience. . . . .	224
6.5	Paramètres utilisés pour la résolution numérique de l'équation 6.20 . . . . .	228



# Table des figures

1.1	Exemple typique de spectre d'harmoniques d'ordres élevés . . . . .	9
1.2	Illustration du modèle à trois étapes expliquant les mécanismes de générations des harmoniques d'ordre élevés. Image extraite de ?? . . . . .	10
1.3	Représentation de la trajectoire des électrons lors de la propagation dans le champ électrique laser dans le référentiel de « Kramers-Henneberg » . . . . .	12
1.4	Représentation de l'énergie cinétique de l'électron au moment de la recombinaison en fonction de la phase d'émission ( $\omega_0 t'$ ). Figure extraite de [8]. . . . .	13
1.5	(a) Cas $\gamma \gg 1$ , le régime d'ionisation par absorption multi photonique est privilégié. (b) Cas $\gamma \ll 1$ , le régime d'ionisation par effet tunnel est prépondérant. . . . .	20
1.6	Flux de photons XUV en fonction de la longueur du milieu pour différentes longueurs de cohérences. La figure est extraite de [18]. . . . .	30
1.7	Illustration du phénomène d'interférences constructives ou destructives selon les conditions d'accord de phase . . . . .	31
1.8	Montage expérimental associé à la génération d'harmoniques d'ordres élevés à partir d'un plasma d'ablation . . . . .	37
1.9	Taux de réflexion du silicium en fonction de la longueur d'onde pour un angle d'incidence égal à l'angle de brewster à 800 nm de longueur d'onde ( $75^\circ$ ) . . . . .	39
1.10	Image d'un spectre d'harmoniques d'ordres élevés enregistré grâce à l'enregistrement de l'émission de l'écran de phosphore de la Micro Channel Plate (MCP) . . . . .	40

1.11	Spectre d'harmoniques d'ordres élevés généré dans un plasma de manganèse avec une impulsion de longueur d'onde égale à 800 nm. Figure extraite de [29].	41
1.12	Spectre d'harmoniques d'ordres élevés généré dans un plasma d'indium avec présence d'une forte résonance de la 13 <sup>ème</sup> harmonique. Figure extraite de [30].	43
1.13	(a) Parties imaginaires et réelles du terme de déphasage. (b) Intensité de l'harmonique associée au terme de déphasage de la 13 <sup>ème</sup> harmonique. Figure extraite de [30].	45
1.14	Illustration du modèle à 4 étapes : 1) l'électron est ionisé depuis le niveau fondamental 2) Propagation dans le continuum 3) Piégage dans le niveau autoionisé ou 3*) Recombinaison vers le niveau fondamental 4) Désexcitation vers le niveau fondamental. Figure extraite de [34].	47
1.15	Comparaison des valeurs numériques et expérimentales obtenues pour l'augmentation d'intensité des harmoniques résonantes de plusieurs ions. Figure extraite de [34].	48
1.16	Comparaison du signal harmonique issu d'un cible solide d'indium (trait épais) et d'une cible d'oxyde d'indium In <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (traits fin). La figure représente également le montage expérimental permettant l'obtention de ces spectres. Figure extraite de [36].	49
1.17	Comparaison du signal harmonique issu d'une cible de carbone solide (graphite) (courbe noire) et d'une cible de nanoparticules de C <sub>60</sub> /C <sub>70</sub> . Figure réalisée à partir des données publiées dans [40].	51
2.1	Modèle à 3 niveaux : bilan de population appliqué au laser	61
2.2	Schéma du système laser installé dans le laboratoire ALLS. Les systèmes 10 Hz et 100 Hz partagent le même amplificateur régénératif. Le travail relatif à cette thèse a été mené sur la partie 10 Hz du système laser.	63

2.3	Illustration du principe d'amplification par dérive de fréquence. L'impulsion en sortie de l'oscillateur est d'abord étirée temporellement, puis amplifiée dans l'amplificateur de puissance et enfin compressée afin de retrouver une durée d'impulsion la plus proche possible de celle en sortie de l'oscillateur. Figure extraite de [2]. . . . .	65
2.4	Illustration des différentes quantités caractérisant un faisceau gaussien. . . . .	68
2.5	Principe de fonctionnement d'un filtre spatial. L'impulsion de départ est de type super gaussienne puis après filtrage spatial, son profil se rapproche d'une gaussienne. . . . .	69
2.6	Incidence de l'inhomogénéité du front de phase sur la focalisation d'un faisceau laser. Plus le front de phase sera distordu, plus il sera difficile de focaliser le faisceau. . . . .	70
2.7	Détecteur de front de phase Shack-Hartman. La déviation des différents points focaux des micros lentilles est reliée à l'orientation du front de phase à chacune des micros lentilles. Auteur : B.M. Levine, Jet Propulsion Laboratory. . . . .	71
2.8	Principe de mesure de la durée d'impulsion par la méthode SPIDER. . . . .	75
2.9	Montage expérimental associé à la mesure de durée d'impulsion par la méthode Polarisation Gating (PG)-FROG. Figure extraite de [9]. . . . .	76
2.10	Illustration de l'effet de l'angle entre l'impulsion de référence et le signal à mesurer. Le délai entre les deux impulsions est alors fonction de la position sur la ligne focale. . . . .	77
2.11	Diagramme expliquant les différentes étapes de l'algorithme itératif permettant de remonter aux caractéristiques de l'impulsion à mesurer à partir de la trace FROG . . . . .	79
3.1	Courbe XRD (XRay diffraction) obtenue pour le graphite commercial et une mine de crayon . . . . .	86

3.2	Résultats de la composition des cibles solides de graphite commercial et de mine de crayon obtenues par le test EDX («Energy-dispersive X-ray spectroscopy») . . . . .	87
3.3	(gauche) Spectres d’harmoniques d’ordres élevés générés à partir d’une cible de nanoparticules C <sub>60</sub> /C <sub>70</sub> (rouge) et Carbone activé de type 3 (AC3) (noir) ; (droite) Spectres d’harmoniques d’ordres élevés générés à partir d’une mine de crayon (rouge) et de graphite commercial pur (noir) . . . . .	90
3.4	Spectres d’harmoniques d’ordres élevés générés à partir d’un plasma d’ablation d’une cible de crayon (rouge) et de Polyéthylène haute densité (PEHD) (noir)	93
3.5	Courbe représentant l’évolution temporelle de l’intensité du signal XUV généré à partir d’un plasma issu d’une cible de diamant. La position de la cible n’est pas modifiée lors de l’acquisition. . . . .	95
3.6	Longueur d’absorption en m du gaz argon à une pression égale 10 <sup>-1</sup> Torr. La gamme d’énergie des photons se situe entre 20 eV et 50 eV, ce qui constitue la gamme pertinente pour les harmoniques d’ordres élevés générés dans le carbone.	99
3.7	Hypothèse de la distribution des phases du carbone durant l’ablation par une impulsion laser . . . . .	103
3.8	Illustration des simulations de dynamique moléculaire lors de l’ablation d’une cible de graphite à basse fluence (a) ainsi qu’à haute fluence (b). . . . .	104
3.9	(Gauche) Diamètre du cratère en fonction de la fluence d’une impulsion dont la tache focale a un diamètre de 30 $\mu m$ pour le graphite et de 7.5 $\mu m$ pour le diamant. (Droite) Profondeur d’ablation en fonction de la fluence de l’impulsion d’ablation pour le graphite et le silicium. $F_m = 0.13 \text{ J/cm}^2$ [15] . . . . .	105
3.10	Illustration du processus de rupture des liaisons C-C dans le cas de l’ablation d’une cible de graphite par une impulsion laser. Figure extraite de [13]. . . . .	107



3.11 Montage expérimental pour la mesure du spectre d'émission du plasma d'ablation du graphite résolu spatio temporellement. Cette illustration est extraite d'un rapport interne écrit par Muhammad Ashiq Fareed. . . . .	109
3.12 Spectre d'émission du plasma de carbone dans le domaine du visible environ 30 ns après sa création. La signature de la présence de carbone diatomique est claire du à la présence de bandes de Swan [18] . . . . .	110
3.13 Spectre d'émission du plasma de carbone dans le domaine du visible environ 30 ns après sa création. Le continuum d'émission est attribué à la présence de carbone triatomique [19]. . . . .	111
3.14 Influence sur l'intensité du signal harmonique de la position du point focal de l'impulsion principale par rapport au plasma dans le cas des plasmas issus de cibles métalliques. Figure extraite du mémoire de thèse de L. B. Elouga Bom. . . . .	113
3.15 Spectre harmonique à tir unique obtenu à partir d'un plasma d'ablation de carbone avec une impulsion principale dont les paramètres sont identiques à ceux des plasmas métalliques. Le spectre représente les harmoniques basses, commençant avec la 9 <sup>ème</sup> à gauche de l'image. . . . .	113
3.16 Influence sur l'intensité du signal harmonique de la position du point focal de l'impulsion principale par rapport au plasma dans le cas du plasma de carbone. Le trait vertical représente la position du foyer dans le plasma. La courbe indique une efficacité de génération plus élevée pour un foyer avant le plasma. . . . .	114
3.17 Spectre harmonique obtenu à partir d'un plasma d'ablation de carbone avec une impulsion principale optimisée. Le spectre représente les harmoniques basses, commençant par la 9 <sup>ème</sup> à gauche de l'image. . . . .	115
3.18 Intensité du signal XUV en fonction de la dimension du plasma d'ablation de l'argent. Résultats issus du travail de thèse de L. B. Elouga Bom. . . . .	116

3.19	Spectre d'harmoniques d'ordres élevés générés à travers un plasma de carbone de deux longueurs différentes : (noir) 1mm et (rouge) 200 $\mu\text{m}$ . . . . .	117
4.1	Illustration de l'observation du décalage vers le rouge. L'image représente les spectres d'harmoniques d'ordres élevés à basse intensité (haut) et haute intensité (bas). Les échelles horizontales de longueurs d'onde sont les mêmes pour les deux images. . . . .	127
4.2	Montage expérimental utilisé lors de l'observation du décalage vers le rouge par augmentation de l'intensité de l'impulsion de génération. Le faisceau XUV est ensuite détecté au moyen d'un spectromètre XUV. . . . .	128
4.3	Valeur relative du décalage en longueur d'onde en fonction de l'intensité de l'impulsion de génération. Le zéro est défini par rapport à la longueur des harmoniques pour un faisceau de génération peu intense. . . . .	129
4.4	Spectres obtenus numériquement par (noir) le calcul dans l'approximation du modèle de Lewenstein (rouge) la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps. . . . .	133
4.5	Montage expérimental utilisé pour l'investigation d'une résonance lors de la génération des harmoniques d'ordres élevés dans un plasma de carbone. . . .	135
4.6	Images des spectres harmoniques obtenus dans le cas (haut) d'une impulsion longue chirpée (bas) d'une impulsion courte . . . . .	139
4.7	Intensité du signal total harmonique en fonction de la valeur absolue du «chirp». Ce comportement montre une asymétrie claire en fonction du signe de celui-ci. . . . .	140
4.8	Comparaison des spectres obtenus expérimentalement (rouge) et numériquement (noir). . . . .	140
4.9	Profil temporel de l'intensité d'une impulsion pour deux valeurs positives différentes du «chirp». . . . .	142

4.10	Profil temporel de l'intensité d'une impulsion pour deux valeurs négatives différentes du «chirp».	142
4.11	Courbe représentant le délai entre les deux pics présents dans l'impulsion dans les cas d'un «chirp» positif (bleu) et négatif (vert). Le cas de la courbe bleu ne représente pas une réelle valeur de ce délai, car la double structure n'y est pas présente.	143
4.12	Évolution temporelle de la distance inter-atomique entre les deux atomes d'hydrogène pendant le processus de génération d'harmoniques à partir de l'ion $H_2^+$ .	145
4.13	Signal harmonique calculé numériquement par la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps incluant l'effet de dissociation moléculaire de $H_2^+$ .	146
4.14	Figure illustrant le principe de rotation du front d'onde induit grâce à l'introduction d'un prisme sur le trajet du faisceau.	148
4.15	Champ lointain obtenu dans le cas de la génération d'harmoniques d'ordres élevés avec une impulsion à front d'onde rotationnel. Les autres paramètres de l'impulsion sont une longueur d'onde centrale de 800 nm, une durée de 50 fs, une intensité de $3 \cdot 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ .	149
4.16	Schéma expliquant la génération d'une différence de fréquence. (a) Faisceau d'entrée et de sortie du milieu non linéaire. (b) Schéma des niveaux entrant en jeu durant le processus de différence de fréquence.	153
4.17	Schéma du montage expérimental permettant la génération d'harmonique issu d'un plasma d'ablation avec un faisceau de longueurs d'onde centrées à 1.8 $\mu\text{m}$ . La sortie du dispositif High energy Travelling wave Optical Parametric Amplifier of Superfluorescence (He-TOPAS) pouvait être directement envoyée dans la chambre d'expérience ou élargie spectralement par passage dans une fibre creuse remplie d'argon.	155

4.18	Images obtenues lors de l'acquisition des spectres pour (haut) une impulsion centrée à $1.8 \mu m$ directement sortie du He-TOPAS et (bas) centrée à $1.8 \mu m$ élargie spectralement. . . . .	157
4.19	Spectres expérimentaux représentant l'intensité normalisée en fonction de l'énergie des photons émis. . . . .	158
4.20	Profil d'intensité du signal harmonique en fonction de la position de focalisation du faisceau principal par rapport à la surface de la cible pour un délai entre la préimpulsion et l'impulsion principale égal à 25 ns. . . . .	160
4.21	Comparaison du spectre expérimental et des sections efficaces de photo-ionisation du carbone diatomique et de deux fois le carbone atomique. Les sections efficaces moléculaires sont moyennées sur toutes les possible orientations de la molécule. . . . .	163
4.22	Schéma de Lewis des molécules de carbone diatomique(gauche) et triatomique (droite). . . . .	164
4.23	Spectre calculé numériquement pour la molécule de $C_2$ alignée par rapport à la polarisation du champ laser. La distance interatomique $R_0$ a été optimisée pour avoir un minimum proche de celui observé expérimentalement . . . . .	165
4.24	Spectre calculé numériquement pour la molécule de $C_3$ . La distance interatomique $R_0$ a été définie égale à la valeur obtenue pour le calcul ab initio. L'orientation a été optimisée pour avoir un minimum proche de celui observé expérimentalement . . . . .	167
5.1	Schéma du montage expérimental permettant la production d'une porte de polarisation par l'association d'une lame de quartz biréfringente à une lame quart d'onde. Figure extraite de ?? . . . . .	178
5.2	Schéma du montage expérimental utilisé lors de la génération des harmoniques à partir de l'argon et du plasma de carbone dans le laboratoire MARS laser. . . . .	180

5.3	Spectres expérimentaux obtenus pour l'argon (rouge) et le plasma de carbone (noir) pour une impulsion de durée égale à 8 fs (gauche) et 30 fs (droite). . .	186
5.4	Images des spectres issus du plasma de carbone. (haut) Génération à partir d'une impulsion de 8 fs conduisant à un spectre discret. (bas) Génération par la méthode DOG résultant en un continuum XUV. . . . .	188
5.5	Montage expérimental relatif à la génération d'harmoniques d'ordres élevés par une impulsion de 1.8 $\mu m$ de longueur d'onde centrale élargie par automodulation de phase dans une fibre creuse. . . . .	191
5.6	Comparaison des différentes images de spectres obtenus avec a) une impulsion infrarouge longue avant passage dans la fibre creuse (moyenne sur 50 images), b) une impulsion compressée par l'élargissement spectral et compensation de la dispersion (moyenne sur 50 images) c) une impulsion courte associée à une porte de polarisation (image d'un tir unique). . . . .	193
5.7	a) Spectre d'harmoniques d'ordres élevés sans la cible, b) Spectre d'harmoniques d'ordres élevés en présence de la cible à la même sensibilité de mesure que pour a), c) Spectre d'harmoniques d'ordres élevés en présence de la cible avec augmentation du gain de la MCP . . . . .	197
5.8	Schéma du montage de la première campagne expérimentale relative à la mesure pompe-sonde-sonde (800nm-400nm-XUV) de la conductivité de la WDM	199
5.9	Taux de transmission d'une feuille d'or d'épaisseur 20 nm pour la gamme d'énergie considérée dans l'expérience. Graphique généré par le site <a href="http://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html">http://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html</a> . . . . .	201
5.10	Schéma du montage de la deuxième campagne expérimentale relative à la mesure pompe-sonde (800nm-XUV) de la conductivité de la WDM . . . . .	202

5.11	Spectre harmonique obtenu lors de la deuxième campagne expérimentale. Le spectre supérieur provient de la partie focalisée sur la cible d'or. La partie inférieure est la perte sur le premier miroir KirkPatrick et Baez (KB). La perte est également bloquée en partie par le support de cible. . . . .	204
5.12	Taux de transmission d'une feuille de carbone d'épaisseur 20 nm pour la gamme d'énergie considérée dans l'expérience. Graphique généré par le site <a href="http://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html">http://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html</a> . . . . .	205
5.13	Résultat obtenu à partir du logiciel de tracé de rayon « XOP » pour la focalisation du faisceau harmonique par un miroir toroidal avec les caractéristiques décrites. . . . .	206
5.14	Taux de réflexion du silicium et du carbure de silicium en fonction de l'énergie de photon. Le spectre d'harmoniques du carbone est représenté pour indication.	208
5.15	Projet de montage expérimental pour la mesure pompe-sonde (XUV-optique) de la WDM créée à partir d'une feuille de diamant . . . . .	209
6.1	Illustration de l'algorithme appelé « Split Step Fourier ». . . . .	227
6.2	(haut) Amplitude et phase spectrale de l'impulsion après propagation (bas) Amplitude et phase temporelle de l'impulsion en sortie de fibre . . . . .	228
6.3	Schéma de principe d'un montage 4f. Le masque spectral est appliqué dans le plan de Fourier. . . . .	230
6.4	Vue de dessus du montage 4f. Plus le faisceau est foncé et opaque plus celui-ci est proche de l'observateur placé au-dessus. . . . .	231
6.5	Reconstruction de l'impulsion dans le domaine temporel après modelage dans le montage 4f. (a) fenêtre spectrale centrée sur 700 nm de largeur 50 nm, (b) fenêtre spectrale centrée sur 800 nm de largeur 50 nm, (c) fenêtre spectrale centrée sur 900 nm de largeur 50 nm . . . . .	233

6.6 Schéma du dispositif He-TOPAS. Il est composé d'un cristal BBO pour les 5 premiers étages puis un deuxième cristal BBO plus grand dédié au 6<sup>ème</sup> et dernier étage d'amplification. Les trois premiers passages dans le premier cristal servent à la génération et l'auto-amplification du signal. . . . . 234





# Liste des abréviations

**ALLS** Advanced Laser Light Source

**FROG** Frequency Resolved Optical Gating

**SPIDER** Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction

**PG** Polarisation Gating

**TG** Transient Grating

**MCP** Micro Channel Plate

**PLD** Pulsed Laser Deposition

**XRD** X Ray Diffraction

**EDX** Energy Dispersive X-ray microscopy

**XPS** spectroscopie photoélectronique-X

**PEHD** Polyéthylène haute densité

**AC3** Carbone activé de type 3

**BBO** Barium borate

**He-TOPAS** High energy Travelling wave Optical Parametric Amplifier of Superfluorescence

**QRS** Quantitative Rescattering Theory

**HOMO** Highest Occupied Molecular Orbital

**GAMESS** General Atomic and Molecular Electronic Structure System

**DOG** Double Optical Gating

**WDM** Warm Dense Matter

**FEL** Free Electron Laser

**KB** KirkPatrick et Baez

**DLC** Diamond Like Carbon

**FWHM** Largeur totale à mi-hauteur

# INTRODUCTION ET PROBLÉMATIQUE

En 1986, les lasers à technologie Titane : Saphir ont été introduits. Ils permettent la génération d'impulsions très courtes dans le domaine proche infrarouge (typiquement 800 nm de longueur d'onde) grâce à une courbe de gain très large et une technique d'amplification innovante. Ils ont peu à peu remplacé les lasers à colorant et ont permis l'accès à l'étude de phénomènes dont le temps caractéristique est extrêmement court, de l'ordre de la dizaine de femtosecondes ( $10^{-15}$  s). C'est notamment grâce à cette technologie qu'en 1999, le prix Nobel de chimie a été décerné au professeur Ahmed H. Zewail du « California Institute of Technology » (Pasadena, Etats-Unis) pour ses travaux portant sur l'étude du mouvement des atomes d'une molécule durant une réaction chimique. En effet, le temps caractéristique de vibration au sein d'une molécule lors d'une réaction chimique est de l'ordre d'une à quelques dizaines de femtosecondes.

Dans le cadre de cette thèse, les propriétés des lasers à technologie Titane : Saphir (Ti : Sa) sont utilisées pour induire des effets hautement non linéaires dans des atomes, ions ou molécules afin de générer des harmoniques impairs d'ordres élevés de la fréquence du laser fondamental. Lors de la propagation d'une impulsion ultra intense dans un milieu comme un gaz, le champ électrique extrêmement fort associé à l'impulsion laser aura pour effet d'ioniser les atomes ou molécules du milieu. L'électron ainsi libéré de l'ion qui lui a donné naissance, l'ion parent, va ensuite osciller sous l'effet de ce même champ électrique. Il va pouvoir gagner de l'énergie cinétique. Enfin, dans certains cas à faible probabilité, l'électron va recombiner vers l'ion parent à l'issue de la propagation. Au moment de la recombinaison vers le niveau

fondamental, dont cet électron avait été ionisé, celui-ci libérera son excédent d'énergie, d'une part due à son ionisation et d'autre part gagnée durant la propagation, sous forme d'un photon.

Les propriétés de ce rayonnement ont deux avantages principaux. Premièrement, il est possible de générer des longueurs d'onde très courtes, typiquement dans le domaine ultraviolet extrême, et idéalement, un rayonnement dans le domaine dit de « la fenêtre de l'eau », compris entre 2,3 et 4,4 nm de longueur d'onde. En effet, dans cette gamme spectrale, l'eau absorbe beaucoup moins que les éléments carbone, oxygène et azote, composants essentiels des tissus biologiques. Il est alors possible de réaliser de la microscopie par contraste d'intensité par exemple. Deuxièmement, le mécanisme de génération d'harmoniques d'ordres élevés implique un temps d'émission extrêmement court. En effet, à chaque demi-cycle optique de l'impulsion fondamentale infrarouge, une impulsion XUV de l'ordre de la centaine d'attosecondes ( $10^{-18}$  s) est générée, on parle alors de train d'impulsions. Il existe cependant des techniques pour isoler une de ces impulsions, certaines seront décrites dans le cadre de cette thèse. Pour résumer, la génération d'harmoniques d'ordres élevés permet l'émission d'un rayonnement dans le domaine ultraviolet extrême, idéal pour la spectroscopie de milieu biologique par exemple, avec une résolution temporelle extrêmement courte de l'ordre de la centaine d'attosecondes. Cela permet théoriquement d'accéder cette fois-ci, non pas à la dynamique des atomes d'une molécule lors d'une réaction chimique, mais au comportement des électrons. En effet, celui-ci évolue avec un temps caractéristique égal à 150 attosecondes, correspondant à la période de révolution autour de l'atome à une distance égale au rayon de bohr.

Néanmoins, la génération d'harmoniques d'ordres élevés par interaction d'un champ électrique ultra intense et un milieu non linéaire a un sérieux inconvénient. En effet, le processus de génération est très peu efficace. Dans la plupart des conditions expérimentales, l'efficacité de génération ne dépasse que rarement  $10^{-6}$ , ce qui ne permet guère de générer des impulsions d'une énergie supérieure à quelques nanojoules. Ceci peut rendre impossible la réalisation

d'expériences par exemple, nécessitant des mesures à un seul tir ou d'induire des effets non linéaires à l'échelle de temps attoseconde. Il est possible, dans le cas de montages expérimentaux complexes, de générer des impulsions plus énergétiques. L'efficacité de génération reste la même, mais le volume d'interaction est augmenté afin d'obtenir plus d'émetteurs. Ce type de conditions implique dans la plupart des cas l'accès à des infrastructures laser de type térawatt et à une extension spatiale du dispositif expérimental augmentée par rapport à des montages habituels.

Depuis 2004, T. Ozaki et son équipe ont travaillé à l'INRS sur une modification du milieu non linéaire couramment utilisé. En effet, celui-ci est en général un gaz noble, mais, dans le cas présent, il est remplacé par un plasma sous-dense issu de l'ablation d'une cible solide. Ce type de milieu peut avoir plusieurs avantages. Premièrement, alors que dans le cas des gaz nobles le choix était limité, il y a accès à un très grand nombre de cibles, la majeure partie du tableau périodique ainsi que tous les alliages possibles. Cela peut permettre de trouver des cibles induisant par exemple des effets de résonance lors du processus d'émission, menant à une augmentation significative de l'efficacité de génération. Également, puisque le milieu non linéaire est créé à partir d'une impulsion laser, il est très facile de faire varier ses propriétés en ajustant les paramètres de l'impulsion laser d'ablation. Ainsi, la taille, la densité ou le degré d'ionisation du plasma sont facilement modifiables. Ceci est très important, comme nous le verrons ultérieurement, pour optimiser les conditions d'accord de phase dans le milieu, c'est-à-dire faire en sorte que toutes les particules du milieu émettent de manière constructive. Une dernière propriété du plasma comme milieu générateur est le fait, suivant les paramètres de création, qu'il est peuplé d'ions. Ils ont un potentiel d'ionisation supérieur à l'espèce neutre. Nous verrons que cela peut permettre d'augmenter la valeur de l'énergie maximale des photons générés. Nous parlerons d'énergie de coupure.

En 2008, les cibles composées de nanoparticules de carbone (fullerènes, nanotubes) ont suscité un intérêt important du fait de leur très forte efficacité de génération. En effet, il avait été démontré auparavant que dans le cas de la cible d'indium, un effet de résonance pouvait

accroître l'efficacité de génération de deux ordres de grandeur pour la treizième harmonique. Or dans le cas des cibles de nanoparticules de carbone, des efficacités de génération supérieures à celle de l'indium ont été reportées pour toute une gamme d'énergie, typiquement de 15 eV à 40 eV. Peu après, nous avons constaté que pour une certaine gamme de paramètres, les cibles solides de type graphite montraient les mêmes propriétés en terme d'efficacité de génération tout en conservant les avantages liés au caractère solide de la cible. Ces avantages étant une meilleure stabilité du signal et une décroissance beaucoup plus lente de l'intensité des harmoniques à position d'ablation constante. Il nous est donc apparu primordial de comprendre les mécanismes de générations afin de pouvoir les optimiser ou les adapter à de nouveaux besoins.

Ce travail de thèse sera donc organisé comme suit. Tout d'abord, il conviendra de décrire le sujet de l'ionisation en champ fort puis, cas particulier impliquant une recombinaison ultérieure avec l'ion parent de l'électron ionisé, la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Ce chapitre permettra d'introduire les modèles principaux expliquant l'interaction entre une particule et un champ électrique ultra intense, notamment les modèles semi-classiques et de Lewenstein décrivant le processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés. Un bref rappel des résultats obtenus précédemment à ce travail de thèse nous mènera à l'exposé de la problématique de recherche.

Ensuite, il conviendra de décrire l'outil principal permettant l'étude de la génération d'harmoniques, le laser à technologies titane : saphir. Ce deuxième chapitre sera décrit avec le point de vue d'un utilisateur qui tout en n'étant pas un expert des systèmes lasers, a besoin de comprendre en profondeur les mécanismes de fonctionnement de son outil de travail.

Le troisième chapitre portera sur l'optimisation et la compréhension des mécanismes de génération d'harmoniques d'ordres élevés dans un plasma d'ablation d'une cible graphitique. Nous décrirons le processus d'ablation de la cible afin d'identifier l'impact réel de la variation des paramètres du laser d'ablation sur les propriétés du plasma. Le parallèle entre les propriétés supposées du plasma d'ablation et le signal harmonique enregistré nous permettra

de fournir une proposition d'explication de la haute efficacité de génération.

Enfin, il nous est apparu qu'une application de la source harmonique basée sur l'utilisation d'un plasma d'ablation de graphite était d'ores et déjà possible et, également, une occasion d'identifier les atouts et inconvénients de notre méthode de génération. Il est indéniable que c'est une source de rayonnement XUV très intéressante en terme de flux généré, mais par exemple, la résolution des problèmes de stabilité du signal sera un enjeu dans le futur.





# Chapitre 1

## DESCRIPTION GÉNÉRALE DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS DANS LES PLASMAS D'ABLATION

### 1.1 introduction

Ce chapitre a pour objet l'introduction des principaux modèles décrivant l'interaction entre une onde électromagnétique ultra intense et une particule. En effet, sous l'action d'un champ électrique très intense, une particule (atome, ion ou molécule) pourra être ionisée. Alors que précédemment, toutes les théories quantiques d'ionisation traitaient le champ comme une perturbation, ici, le caractère très intense de celui-ci empêche cette approximation. De nouvelles approches sont donc nécessaires et certaines seront exposées ici.

Également, après avoir été ionisé, l'électron est toujours soumis à l'action du champ électromagnétique de l'onde. Il aura alors une certaine probabilité de recombiner avec l'ion lui ayant donné naissance lors de l'inversion du champ. Si ce mécanisme de recombinaison

a bien lieu, il y aura génération d'un photon, généralement dans le domaine XUV. C'est ce que l'on appelle génération d'harmoniques d'ordres élevés.

À travers l'exposé des différentes théories relatives à l'ionisation en champ fort ainsi qu'à la génération d'harmoniques d'ordres élevés, ce chapitre nous permettra de réaliser une revue de la bibliographie du domaine d'étude relatif à ce travail de thèse. Nous exposerons également l'état des résultats dans le domaine de la génération d'harmoniques d'ordres élevés par la méthode plasma au commencement de ce travail de thèse. Tout cela nous mènera enfin à l'exposé de la problématique que nous nous sommes proposé d'étudier.

## 1.2 La génération d'harmoniques d'ordres élevés

### 1.2.1 Définition

Nous appellerons génération d'harmoniques d'ordres élevés, le phénomène consistant en la génération d'harmoniques élevées de la fréquence de l'impulsion fondamentale par interaction non linéaire entre un milieu et cette impulsion laser ultra-intense. À ce jour, essentiellement deux méthodes distinctes existent.

La première méthode implique la réflexion de l'onde initiale sur un miroir oscillant. Cela est réalisé expérimentalement par focalisation d'une impulsion laser sur une cible solide [1, 2]. Les ondes plasmoniques à la surface du plasma permettent la conversion de la fréquence initiale du laser en harmoniques élevées paires et impaires lors de la réflexion sur la surface oscillante. Nous ne détaillerons pas plus cette méthode, car elle n'est pas celle utilisée dans le cadre de cette thèse.

La deuxième méthode consiste à focaliser une impulsion laser (habituellement dans le domaine infrarouge) dans un milieu non linéaire. Les milieux les plus couramment utilisés sont les gaz nobles. Au cours de la propagation dans le milieu, l'interaction entre l'onde fondamentale et les atomes du gaz vont induire la génération d'harmoniques élevées impaires de la fréquence d'origine du laser [3, 4]. Les spectres obtenus ont alors une allure typique

en fonction de l'énergie des photons générés. Comme décrit dans la figure 1.1, on note tout d'abord une rapide décroissance en intensité, suivi d'une zone d'intensité constante appelée «plateau» puis une rapide décroissance appelée «cutoff» ou coupure.

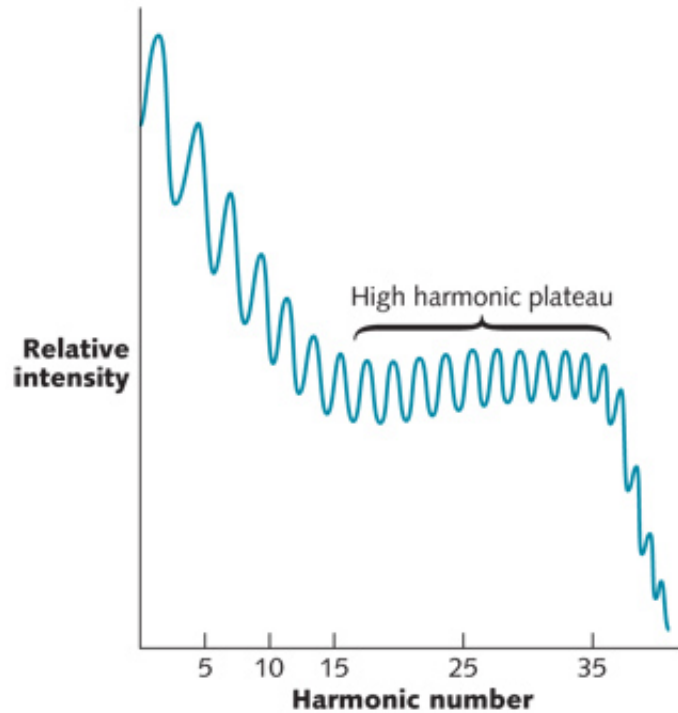


FIGURE 1.1 – Exemple typique de spectre d'harmoniques d'ordres élevés

L'étude de ce phénomène a nécessité la production de champs électriques ultra-intenses disponibles seulement depuis peu. C'est en particulier avec l'apparition de la technologie d'amplification par dérive de fréquence et ensuite, grâce à la génération d'impulsions femtosecondes dans les cristaux de saphir dopés au titane que la génération d'harmoniques d'ordres élevés a réellement vu le jour. Ce champ de recherche est donc assez «jeune» expérimentalement. Une introduction aux principales théories actuellement disponibles pour la description mathématique du processus de génération est donnée dans les parties suivantes. Il convient de séparer en deux parties ce traitement. Premièrement, une description des principaux modèles microscopiques sera traitée. Cela nous permettra de comprendre les mécanismes de génération à partir d'une particule. Ensuite, la réalité expérimentale impose un processus

collectif de génération au sein d'un milieu composé d'un grand nombre de particules. Nous introduirons alors la notion d'accord de phase entre le faisceau principal de génération et le champ harmonique.

### 1.2.2 Un premier modèle microscopique : le modèle semi-classique

En 1993, une interprétation semi-classique du phénomène de génération d'harmoniques d'ordres élevés, plus connue sous le nom de « modèle à 3 étapes », a été donnée de manière indépendante par K. Kulander et al. [5] et P. Corkum [6]. Ce modèle décrit la génération d'harmoniques par les étapes suivantes (voir figure 1.2) :

- Ionisation de l'électron depuis un atome du gaz par effet tunnel (a)
- Accélération de l'électron dans le champ électrique du laser (b et c)
- Recombinaison de l'électron avec l'atome lui ayant donné naissance au niveau fondamental et génération du photon X-UV. (d)

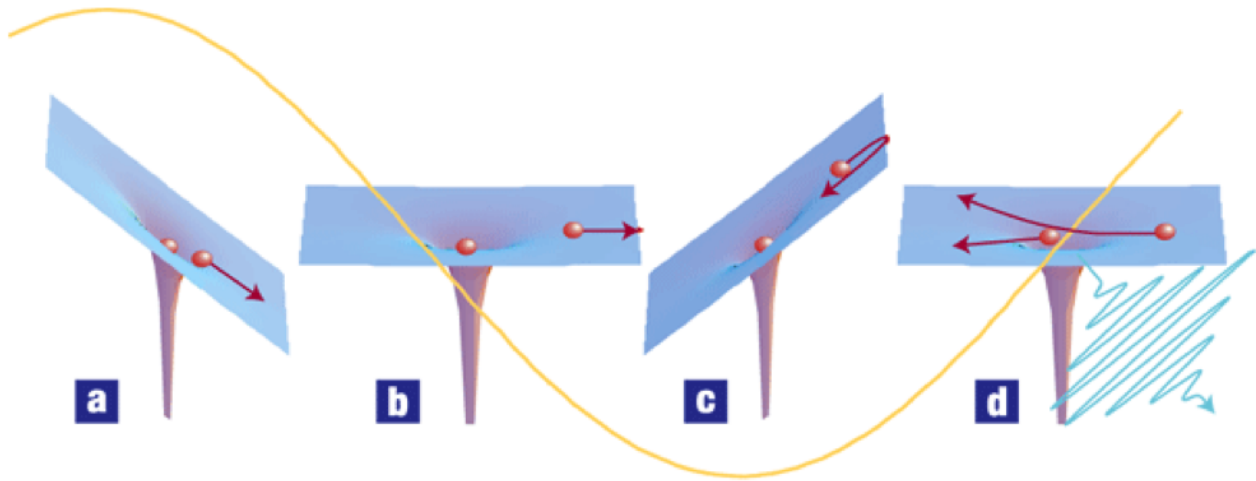


FIGURE 1.2 – Illustration du modèle à trois étapes expliquant les mécanismes de générations des harmoniques d'ordre élevés. Image extraite de ??

Le succès de ce modèle est attribué au fait qu'il permet d'expliquer assez simplement certaines caractéristiques du rayonnement harmoniques. En effet, il a permis de décrire l'énergie

de photon maximale générée ou énergie du « cutoff », la présence de trajectoires courtes et longues ainsi que le « chirp » des impulsions attosecondes générées à chaque demi-cycle optique.

### Propagation dans le champ électrique du laser

Supposons un atome situé à  $x = 0$  soumis à l'action d'un champ électrique  $E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t)$ . Nous étudierons l'effet du champ sur l'ionisation ultérieurement. Considérons ici que l'électron est ionisé à l'instant  $t'$  avec une vitesse nulle  $v = 0$  à  $x = 0$ . D'après l'équation fondamentale du mouvement :

$$\frac{d^2 x}{dt^2} = -\frac{e}{m_e} \cos(\omega_0 t) \quad (1.1)$$

Puis,

$$x(t) = \frac{1}{2} x_0 [\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t') + \sin(\omega_0 t') \omega_0 (t - t')] \quad \text{avec} \quad x_0 = \frac{2eE_0}{m_e \omega_0^2} \quad (1.2)$$

Ce qui peut être écrit autrement,

$$\frac{2x(t)}{x_0} = [\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t')] + \frac{d(\cos(\omega_0 t))}{d(\omega_0 t)} \Big|_{t'} \omega_0 (t - t') \quad (1.3)$$

Il n'existe pas de solution analytique à cette équation. Néanmoins, il est pratique de représenter les solutions graphiquement au moyen de la représentation de « Kramers-Henneberg » [7]. En effet, au moyen de l'équation 1.3, on peut noter la présence d'une partie oscillante  $\cos(\omega_0 t)$  ainsi qu'une partie linéaire tangente à la partie oscillante en  $t'$ . Le référentiel lié à la partie oscillante de l'électron apparaît donc naturellement. Au bilan, dans ce référentiel, l'ion observe un mouvement oscillatoire en  $\cos(\omega_0 t)$  et les trajectoires des électrons sont des droites tangentes à la trajectoire de l'ion au moment de l'ionisation  $t'$ .

Dans la figure 1.3, la courbe noire représente la partie oscillante et donc la trajectoire de

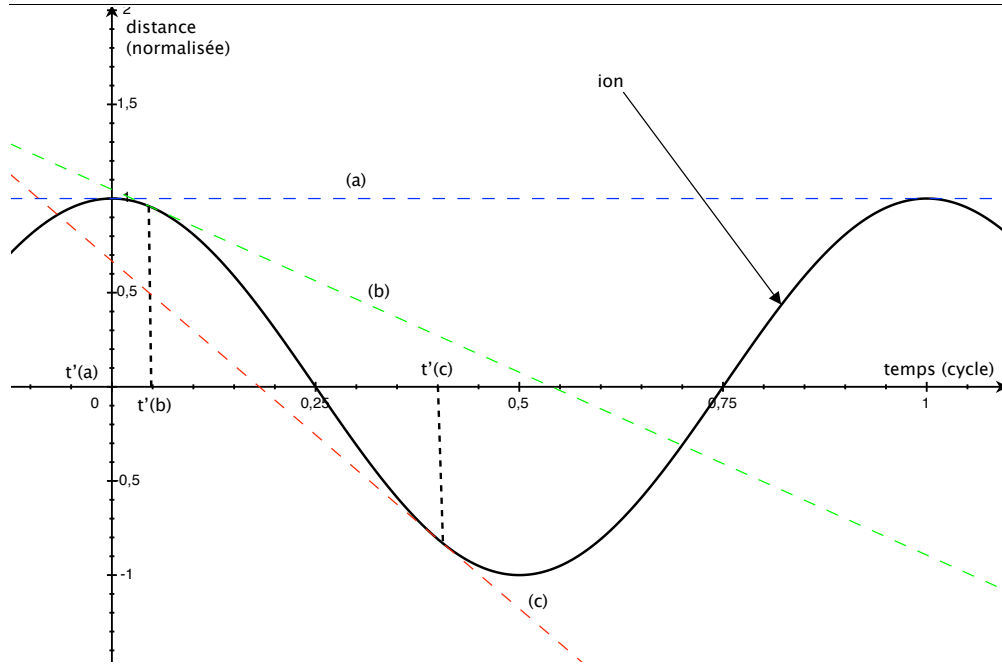


FIGURE 1.3 – Représentation de la trajectoire des électrons lors de la propagation dans le champ électrique laser dans le référentiel de « Kramers-Henneberg »

l'ion en fonction du temps ( $\omega_0 t$ ). La droite (a) en bleu représente un électron ionisé à  $t'(a) = 0$  et qui recombine un cycle optique plus tard. Cette trajectoire est la plus longue que peu faire un électron dans le continuum, c'est à dire un cycle optique. Ensuite, la droite (b) verte est celle d'un électron ionisé peu après  $t' = 0$ , celui-ci recombine également, mais préalablement à l'électron ionisé en  $t' = 0$ , il passe donc moins de temps dans le continuum. Pour finir, l'électron ionisé en  $t'(c) = 0.4 > 0.25$  cycle optique ne recombine pas avec l'ion parent. Il semble donc, que plus l'électron ionise tôt dans le cycle plus celui-ci se propage longtemps dans le champ électrique du laser. Cette propriété nous amène à la notion importante de trajectoires courtes et trajectoires longues.

Il convient, pour illustrer cette notion, de calculer l'énergie cinétique  $E_c = \frac{1}{2}m_e \left(\frac{dx}{dt}\right)^2 = \hbar\omega_q(t) - I_p$  gagnée par l'électron lors de sa propagation dans le champ laser en fonction du temps  $t'$  d'émission. L'énergie cinétique maximale gagnée lors de la propagation additionnée au potentiel d'ionisation  $I_p$  permettra ainsi de calculer l'énergie maximale  $\hbar\omega_{qmax}$  du photon émis lors de la recombinaison vers le niveau fondamental.

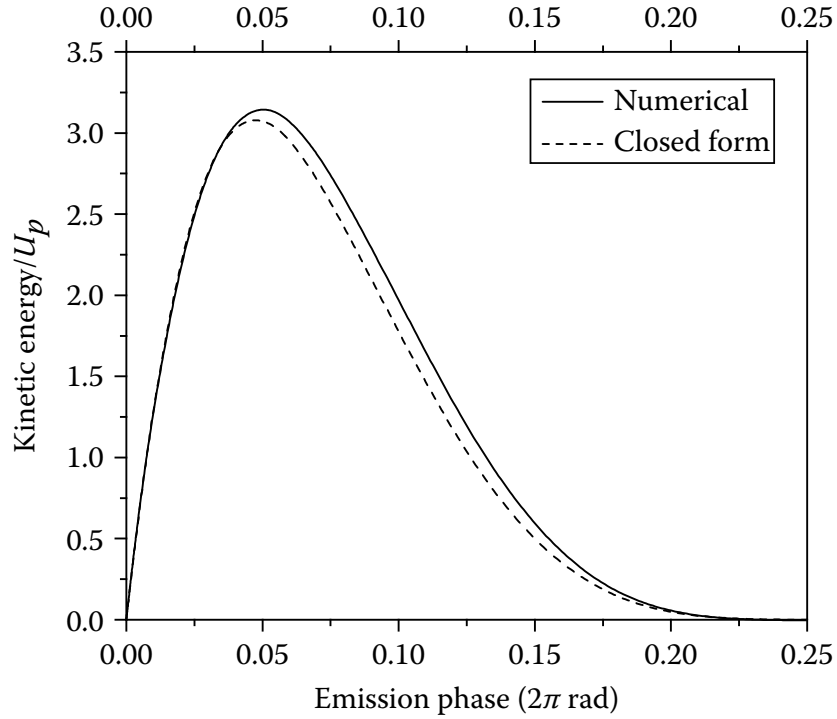


FIGURE 1.4 – Représentation de l'énergie cinétique de l'électron au moment de la recombinaison en fonction de la phase d'émission ( $\omega_0 t'$ ). Figure extraite de [8].

Dans la figure 1.4, nous pouvons noter que pour une même énergie cinétique gagnée lors de la propagation dans le champ laser, correspondent deux phases d'émissions, c'est-à-dire deux temps d'ionisation et de recombinaison différents. Or, comme il a été noté plus tôt, une phase ou moment d'émission plus faible implique un temps de propagation supérieur. Pour résumer, les électrons ionisés entre 0 et 0.05 cycle optique correspondent aux trajectoires longues. Les électrons ionisés entre 0.05 et 0.25 cycle optiques correspondent aux trajectoires courtes. De plus, il convient de faire une autre remarque qui ne sera pas détaillée ici. En effet, l'énergie cinétique acquise dans le continuum et donc l'énergie du photon émis lors de la recombinaison est fonction du temps d'émission et donc aussi du temps de recombinaison. En d'autres termes, différentes longueurs d'onde seront émises à des temps différents dans l'impulsion XUV. Ceci correspond donc à un « chirp » du rayonnement émis.

Enfin, il est possible de montrer numériquement que l'énergie maximale gagnée dans le

continuum est fonction du potentiel d'ionisation de l'espèce  $I_p$  et du potentiel pondéromoteur  $U_p$  tel que :

$$E_{cmax} = 3.17U_p \quad \text{avec} \quad U_p = \frac{(eE_0)^2}{4m_e\omega_0^2} \quad (1.4)$$

On peut donc en déduire que l'énergie maximale d'un photon émis s'exprime comme :

$$\hbar\omega_{qmax} = E_{cutoff} = I_p + 3.17U_p \quad (1.5)$$

Ce résultat simple est cependant très important dans le domaine de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. En effet, il contient beaucoup d'information sur la physique du processus de génération. Premièrement,  $E_{cutoff}$  dépend de  $I_p$ , donc, plus une particule aura un potentiel d'ionisation élevé, plus l'énergie maximale du photon généré sera élevée. Cependant, nous verrons par la suite que plus le potentiel d'ionisation est élevé, plus l'intensité nécessaire à l'ionisation devra être importante. Or, le système laser disponible limite généralement cette intensité.

Ensuite, l'autre terme est  $U_p$ , le potentiel pondéromoteur. Celui-ci est proportionnel à l'intensité laser ainsi qu'à la longueur d'onde au carré, en résumé,  $U_p \propto I\lambda^2$ . Augmenter l'intensité laser permet donc d'augmenter également l'énergie du cutoff. Comme dit plus haut, cette intensité est souvent limitée par le matériel. Comme nous le verrons plus tard également, il y aura une intensité de saturation fonction des espèces du milieu au-delà de laquelle augmenter l'intensité n'aura plus d'effet, voire réduira le signal harmonique. L'intensité est donc le plus souvent un paramètre de l'expérience considéré comme fixe. Par contre, l'autre grandeur dont dépend  $U_p$ , la longueur d'onde, est un paramètre plus efficace pour augmenter  $E_{cutoff}$  notamment à cause de sa dépendance quadratique. Nous verrons qu'elle est cependant souvent plus difficile à mettre en œuvre expérimentalement.



## Ionisation en présence d'un champ électrique fort : Modèle de Keldysh-Faisal-Reiss

Cette partie requiert d'être traitée de manière quantique. Elle consiste donc à résoudre l'équation de Schrödinger en présence d'un champ électrique intense dépendant du temps. Puis il faudra calculer la probabilité de transition  $P_{ion}(t)$  entre le niveau fondamental de fonction d'onde  $\Phi_g(\mathbf{r}, t)$  et le continuum de fonction d'onde  $\Phi_k(\mathbf{r}, t)$ , donc à résoudre l'équation pour les deux niveaux considérés :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = [H_0 + H_1] |\Psi(t)\rangle \quad (1.6)$$

Où  $H_0$  est l'Hamiltonien en absence de champ électromagnétique et  $H_1$  est l'Hamiltonien associé à l'onde électromagnétique, dans le cas précis celle du laser. La probabilité d'ionisation  $P_{ion}(t)$  vers le continuum est alors :

$$P_{ion}(t) = |\langle \Phi_k | \Psi(t) \rangle|^2 \quad (1.7)$$

Il n'est pas possible de calculer exactement ce taux d'ionisation, donc habituellement, le champ électromagnétique est traité comme une perturbation. Un développement perturbatif de l'équation de Schrödinger permet alors d'obtenir les solutions. Cependant, dans le cas présent, il peut sembler erroné de traiter le champ comme une perturbation étant donné que celui-ci va être extrêmement intense. Regardons alors les différentes quantités associées au champ et à l'atome pour définir la notion de champ fort et également la raison pour laquelle un traitement perturbatif n'a plus de sens.

**Analyse des ordres de grandeur** Le but de cette partie n'est pas de traiter de manière quantitative le problème, mais, à travers certains ordres de grandeur, d'amener une intuition quant à la particularité du traitement de l'équation de Schrödinger en champ fort.

Pour cela, nous allons introduire la notion de potentiel pondéromoteur précédemment

évoqué sous le nom de  $U_p$ . Cette grandeur définit l'énergie que gagne un électron libre durant son oscillation dans un champ électrique pendant une période. Une grandeur arrive alors naturellement :

$$z = \frac{U_p}{\hbar\omega} \quad \text{avec } \omega \text{ la fréquence de l'onde} \quad (1.8)$$

Cette grandeur  $z$  est le ratio entre le potentiel pondéromoteur et l'énergie d'un photon de l'onde. Lorsqu'un électron est ionisé d'un atome par un champ électrique, il va acquérir une énergie de l'ordre de  $U_p$  dans le continuum. On comprend alors qualitativement que si  $U_p \gg \hbar\omega \Leftrightarrow z \gg 1$ , il faudra l'interaction de plusieurs photons d'énergie  $\hbar\omega$  avec l'électron pour que celui-ci gagne  $U_p$  et donc, nous serons dans un régime dit de champ fort. Au contraire, si  $\hbar\omega \gg U_p \Leftrightarrow z \ll 1$ , un seul photon sera nécessaire et alors, un traitement perturbatif est valable. Nous sommes donc capables avec le terme  $z$  de discriminer le régime non perturbatif, où le champ ne peut pas être traité en tant que perturbation, du régime d'interaction à un seul photon.

Lorsque l'on s'intéresse plus précisément au régime non perturbatif, un facteur apparaît, très proche du facteur  $\gamma$  de Keldysh :

$$z_1 = \frac{2U_p}{I_p} = \frac{1}{\gamma^2} \quad \text{avec } I_p \text{ étant le potentiel d'ionisation de l'atome} \quad (1.9)$$

Si le facteur  $z_1 \gg 1$ , alors, cela signifie que  $U_p \gg I_p$  et donc le champ électrique est l'influence principale sur l'électron. On est alors dans le régime de champ fort.

Pour finir, même si ce point n'est pas expliqué en détail dans ce travail de thèse, nous serons toujours dans un cadre non relativiste, tel que  $\frac{v}{c} \ll 1$  où  $v$  est la vitesse de l'électron et  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide. Également, dans toute la suite, l'approximation dipolaire sera faite. Elle est motivée essentiellement par le fait que nous travaillons avec des longueurs d'onde  $\lambda$  assez élevées et donc,  $\frac{a_0}{\lambda} \ll 1$ , avec  $a_0$  étant le rayon de Böhr. Il est alors justifié de supposer que l'atome interagit avec un champ spatialement homogène.

**Résolution par la matrice S** Le but de cette partie est de donner les équations à partir desquelles les différents modèles d'ionisation en présence d'un champ fort ont été développés. Il ne sera donc pas pertinent de faire une étude détaillée du traitement grâce à la matrice S mais plutôt de donner les idées principales ainsi que les équations utiles. Un atout de la résolution par la matrice S est son lien direct avec les mesures en laboratoires. En effet, un électron dans un état initialement connu va évoluer en raison d'une interaction, ici avec une onde électromagnétique. Ce traitement consiste à évaluer l'amplitude du changement dû à cette interaction.

Comme il a été mentionné plus haut, le but est la résolution de l'équation de Schrödinger en présence d'un champ électrique, donc de trouver la fonction d'onde  $|\Psi\rangle$  solution de :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(t)\rangle = [H_0 + H_1] |\Psi(t)\rangle \quad (1.10)$$

Cette fois-ci,  $H_0$  sera la partie de l'Hamiltonien total  $H$  présente quelque soit  $t$ .  $H_0$  peut cependant être fonction du temps. Ensuite,  $H_1$  sera lui la partie donnant naissance à la transition électronique. On supposera que  $H_1$  n'est pas présent en limites de l'intervalle temporel, c'est-à-dire :

$$\lim_{t \rightarrow \pm\infty} H_1 = 0 \quad \Leftrightarrow \quad \lim_{t \rightarrow \pm\infty} H = H_0 \quad (1.11)$$

On notera également  $|\Phi\rangle$  les états solutions de la partie présente à tout moment  $H_0$  et  $|\Psi_i^+\rangle$  la solution de l'Hamiltonien total  $H$  satisfaisant à la condition limite :

$$\lim_{t \rightarrow -\infty} |\Psi_i^+(t)\rangle = |\Phi_i(t)\rangle \quad (1.12)$$

La superposition de l'état  $|\Psi_i^+\rangle$  avec l'état final  $|\Phi_f\rangle$  appartenant à l'ensemble des solutions  $|\Phi\rangle$  sera définie comme un terme de la matrice S. Elle représente l'amplitude de transition entre ces deux états :

$$S_{fi} = \lim_{t \rightarrow \infty} \langle \Phi_f(t) | \Psi_i^+(t) \rangle \quad (1.13)$$

Étant donné que l'équation de Schrödinger est symétrique temporellement, on peut définir de manière analogue la matrice S inverse par rapport au temps :

$$S_{fi} = \lim_{t \rightarrow -\infty} \langle \Psi_f^-(t) | \Phi_i(t) \rangle \quad \text{avec} \quad \lim_{t \rightarrow +\infty} |\Psi_f^-(t)\rangle = |\Phi_f(t)\rangle \quad (1.14)$$

On peut supprimer l'évaluation de la limite asymptotique pour l'obtention de S par l'intermédiaire des fonctions de Green. Les éléments de la matrice S sont obtenus par :

$$(S - 1)_{fi} = -\frac{i}{\hbar} \int dt \langle \Phi_f | H_1 | \Psi_i^+ \rangle \quad \Leftrightarrow \quad (S - 1)_{fi} = -\frac{i}{\hbar} \int dt \langle \Psi_f^- | H_1 | \Phi_i \rangle \quad (1.15)$$

Une remarque importante est le fait que les états  $|\Phi_f\rangle$  et  $|\Phi_i\rangle$  n'incluent aucun effet lié à la présence du champ électrique. Donc, tous les effets d'élargissement ou de décalage de niveaux sont inclus seulement dans  $|\Psi\rangle$ . Cette formule sera le point de départ de la résolution du phénomène d'ionisation en champs fort pour les différents modèles exposés dans le cadre de cette thèse. Il sera alors plus facile d'introduire et de comprendre les simplifications et hypothèses des différents modèles.

Finalement, nous obtiendrons la probabilité d'ionisation par unité de temps à partir de la matrice S par [9] :

$$\omega = \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{1}{t} |(S - 1)_{fi}|^2 \quad (1.16)$$

Et nous calculerons le taux de transition total sur tous les états finaux possibles par intégration de  $\omega$  sur tous les états finaux possibles.

**Spécificités liées à chaque modèle** Premièrement, Keldysh développa une théorie très importante au cours des années 60 [10]. Celle-ci est basée sur la résolution non perturbative par la matrice S inverse par rapport au temps (équation 1.15). Elle nécessite la connaissance de l'état final de l'électron  $|\Psi_f\rangle$  en présence du champ et du potentiel de l'atome. L'approximation faite par Keldysh est de remplacer  $|\Psi_f\rangle$  par l'état de Gordon-Volkov, solution de l'équation de Schrödinger en la seule présence d'une onde électromagnétique plane. On comprend alors le caractère « champ fort » de la théorie puisque l'effet du potentiel de Coulomb de l'atome est ignoré lorsque l'électron est dans le continuum.

L'Hamiltonien d'interaction avec le champ électrique est exprimé dans la jauge de Lorentz. Étant donné la complexité des états de Volkov-Gordon exprimés dans cette jauge, assez tôt dans le développement, le facteur  $z$  décrit dans 1.8 doit être supposé élevé. Cette théorie conviendra donc mieux à des champs électromagnétiques forts de basse fréquence.

Keldysh obtient alors la formule suivante pour la probabilité d'ionisation d'un électron à partir d'un état fondamental 1s de l'atome d'hydrogène en présence d'un champ électromagnétique fort :

$$W = Aw \left( \frac{I_p}{\hbar\omega} \right)^{\frac{3}{2}} \left( \frac{\gamma}{(1+\gamma^2)^{\frac{1}{2}}} \right)^{\frac{5}{2}} S(\gamma, \tilde{I}_p) \exp \left[ \frac{-2\tilde{I}_p}{\hbar\omega} \left( \sinh^{-1}(\gamma) - \gamma \frac{(1+\gamma^2)^{\frac{1}{2}}}{1+2\gamma^2} \right) \right] \quad (1.17)$$

Avec  $\gamma = \frac{\omega(2m_e I_p)^{\frac{1}{2}}}{eE_0} = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}}$ ,  $I_p$  étant le potentiel d'ionisation de l'atome et  $U_p$  le potentiel pondéromoteur du champ électrique,  $\tilde{I}_p = I_p + \frac{1}{2\gamma^2}$  et A un coefficient numérique proche de 1. Le facteur  $S(\gamma, \tilde{I}_p)$  est lui défini par la fonction :

$$S(\gamma, x) = \sum_{n=0}^{\infty} \exp \left( -2 \langle x+1 \rangle -x+1 \left[ \sinh^{-1} \gamma - \frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right] \right) \times \Phi \left( \left[ \frac{2\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}} \langle x+1 \rangle -x+n \right]^{\frac{1}{2}} \right) \quad (1.18)$$

La fonction  $\Phi$  est la fonction de probabilité définie par :

$$\Phi(z) = \int_0^\infty e^{y^2 - z^2} dy \quad (1.19)$$

Le modèle développé par Keldysh fait apparaître le facteur  $\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}}$ . Il permet d'identifier 2 régimes limites au phénomène d'ionisation par un champ intense.

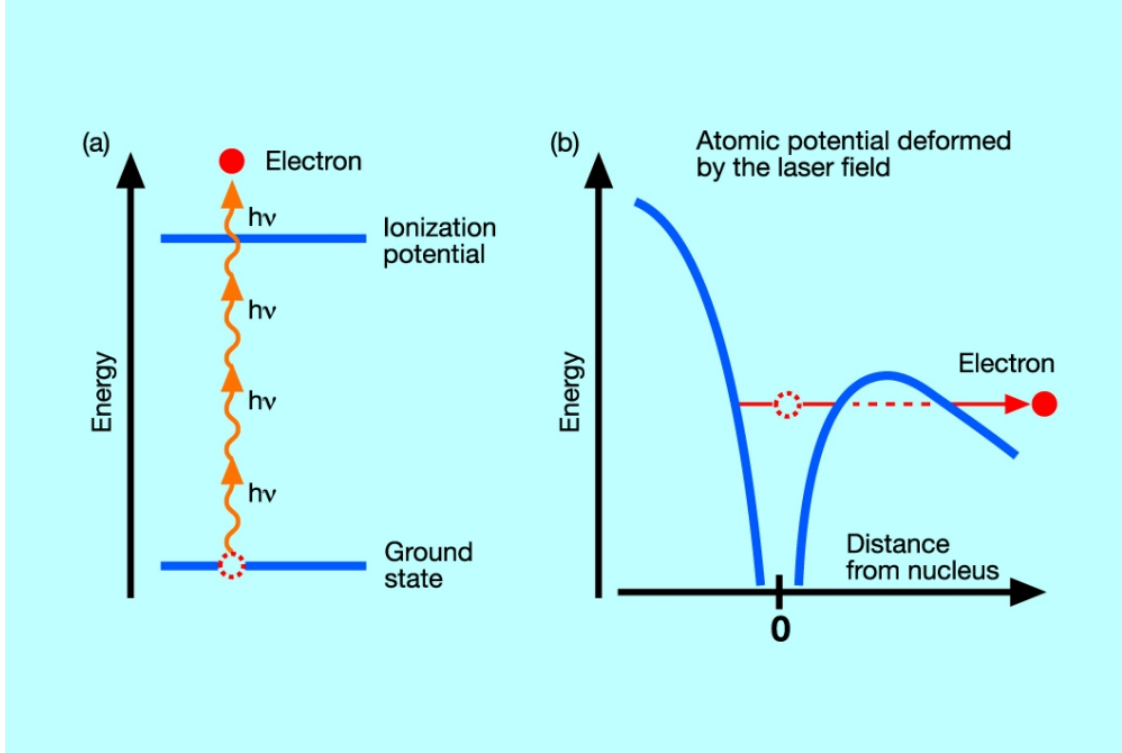


FIGURE 1.5 – (a) Cas  $\gamma \gg 1$ , le régime d'ionisation par absorption multi photonique est privilégié. (b) Cas  $\gamma \ll 1$ , le régime d'ionisation par effet tunnel est prépondérant.

Premièrement, le cas  $\gamma \ll 1$  correspond à un champ électromagnétique de basse fréquence associé à une haute intensité. Le cas limite étant bien sûr un champ électrostatique de force comparable ou supérieure à celle du champ Coulombien dû à l'atome. Le potentiel de Coulomb est «courbé» par le champ électrique et s'ensuit une ionisation de l'électron à travers la barrière qui reste « fixe » durant l'ionisation. On parlera de mécanisme d'ionisation horizontal. Une illustration du phénomène est donnée dans la figure 1.5 (b). Le facteur

$S(\gamma, \tilde{I}_p)$  peut être approché par l'expression  $S(\gamma, \tilde{I}_p) \approx \frac{\sqrt{3\pi}}{4\gamma^2}$ .

Le cas  $\gamma \gg 1$ , quant à lui, correspond à un phénomène d'ionisation par absorption simultanée de plusieurs photons, ou absorption multi photonique. En effet, une manière de le percevoir est le fait que la barrière de potentiel n'est pas fixe durant l'ionisation, l'électron n'a donc pas le « temps » d'ioniser par effet tunnel avant que la barrière n'ait été inversée. Donc, l'électron entre « collisions » successives avec les bords du puits de potentiel et acquiert assez d'énergie pour ioniser par un mécanisme dit vertical. Contrairement au cas d'ionisation par effet tunnel, ce régime sera favorisé pour de hautes fréquences et des intensités modérées. Ce phénomène est illustré dans la figure 1.5 (a). On utilisera alors  $S(\gamma, \tilde{I}_p) \approx 1$  dans ce cas.

Pour finir, nous décrirons plus succinctement les deux autres modèles de Faisal [11] et Reiss [12]. Le premier est basé sur la matrice S directe par rapport au temps ainsi que sur une transformation de Kramers-Henneberg. Le second est, comme le modèle de Keldysh, basé sur la matrice S inverse par rapport au temps, mais exprimé dans la jauge de Coulomb. Ce changement de jauge simplifie notamment l'expression des états de Volkov-Gordon et donc ne suppose plus un nombre  $z$  élevé, mais seulement un champ dont le potentiel pondérateur est supérieur au potentiel d'ionisation de l'atome. Ce dernier modèle a également l'avantage de pouvoir être étendu au cas relativiste. La théorie développée par Reiss est appelée théorie SFA ou «Strong Field Approximation».

## Les modèles PPT et ADK

Les modèles décrits dans la partie précédente ont tous un désavantage. En effet, ils négligent l'effet du potentiel de coulomb pour le calcul de l'état de l'électron dans le continuum. Le modèle dit PPT [13] fut développé par Perelomov, Popov et Terent'ev en 1966. Il décrit la probabilité d'ionisation d'un électron en présence d'un champ fort et d'un potentiel atomique à courte portée (typiquement un potentiel de Dirac). Il inclut une correction du premier ordre de l'action semi-classique afin de modéliser les effets à longue portée du potentiel de l'atome. Le modèle PPT s'applique dans le cas de l'ionisation par effet tunnel où  $\gamma \ll 1$ . Il fut en-

suite généralisé à des atomes et ions plus complexes par Ammosov, Delone et Krainov dans la théorie ADK développé dans l'article [14]. C'est cette dernière qui sera utilisée dans ce travail de thèse pour le calcul des probabilités d'ionisation des espèces carbonées qui seront traitées dans ce mémoire.

Cette théorie fournit une formule analytique afin de calculer la probabilité d'ionisation d'un atome soumis à un champ électrique oscillant dans le cas adiabatique, donc lorsque  $\gamma \ll 1$ . Le traitement est analogue à celui de Keldysh, mais est généralisé à des atomes plus complexes que le seul atome d'hydrogène. On obtient alors pour la probabilité d'ionisation  $W$  d'un atome de potentiel d'ionisation  $I_p$  soumis à un champ oscillant  $\epsilon(t)$  :

$$W = C_{n^*l^*}^2 \left( \frac{3\epsilon}{\pi F_0} \right) I_p \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}(|m|)!(l-|m|)!} \left( \frac{2F_0}{\epsilon} \right)^{2n^*-|m|-1} \exp\left( \frac{-2F_0}{3\epsilon} \right) \quad (1.20)$$

Avec,  $n^* = Z(2I_p)^{-\frac{1}{2}}$   $Z$  étant le degré d'ionisation de l'atome,  $F_0 = (2I_p)^{\frac{3}{2}}$  et le coefficient  $C_{n^*l^*}^2$  est défini par :

$$C_{n^*l^*}^2 = \frac{2^{n^*}}{n^*\Gamma(n^*+l^*+1)\Gamma(n^*-l^*)} \quad (1.21)$$

Où  $l^* = n_0^* - 1$ ,  $n_0^*$  étant le nombre quantique principal effectif tenant compte de l'effet d'écrantage par les électrons des couches de valence.

Cette théorie fut ensuite généralisée au cas des molécules dans la théorie molecular-ADK [15]. Cependant elle requiert une connaissance très exacte de la valeur asymptotique (lorsque  $r$  tend vers  $+\infty$ ) de la fonction d'onde du niveau fondamental afin d'en déduire l'équivalent du coefficient  $C_{n^*l^*}^2$  dans le cas des molécules. Dans le cadre de cette thèse, puisqu'aucune valeur tabulée n'existait au moment de la rédaction, il a été décidé d'utiliser le modèle atomique ADK même dans le cas de petites molécules. Nous sommes conscients de l'erreur introduite ici, mais cette approximation nous est apparue correcte pour une première étude. Il est évident que dans les travaux futurs, une description plus exacte de l'ionisation des particules décrite dans les chapitres suivants devra impliquer la théorie molecular-ADK.



### 1.2.3 La génération d’harmoniques dans le cadre du modèle de Lewenstein

Le modèle développé par Lewenstein [16] en 1994, très peu de temps après les modèles semi-classiques, reste semi-classique dans le sens où le champ électromagnétique n’est pas quantifié. Cependant, la différence avec les modèles développés par Corkum [6] et Kulander et al. [5] est le fait que l’électron est traité entièrement quantiquement. Dans cette partie, il apparaît pertinent de rappeler les principaux résultats de ce modèle ainsi que les hypothèses et étapes clés du développement afin d’analyser l’aspect physique des différents termes des équations. Le développement détaillé du modèle pourra être retrouvé dans l’article original [16].

Tout d’abord, il est à noter que le traitement fait par Lewenstein diffère du modèle dit « Strong Field Approximation » développé par Reiss [12] qui lui, est basé sur un traitement par la matrice  $S$  inverse par rapport au temps. Ici, nous sommes dans le cadre d’un traitement perturbatif où évidemment le champ électromagnétique ne peut pas être la perturbation, donc, c’est l’effet du potentiel de l’atome qui est la perturbation du système. Cette hypothèse semble être correcte dans le cas d’une ionisation par effet tunnel et donc dans le cas d’un champ intense à basse fréquence, c’est-à-dire, si  $\gamma \ll 1$ . Le cadre du modèle de Lewenstein sera donc décrit par les trois hypothèses suivantes :

1. Nous négligerons tout autre état que l’état fondamental  $|0\rangle$  de l’électron dans le processus d’ionisation : cette approximation définit clairement le régime d’ionisation par effet tunnel.
2. Nous négligerons la déplétion de l’état fondamental : cela signifie que l’intensité du champ, même forte, est suffisamment faible pour éviter l’ionisation de tous les atomes du milieu.
3. Finalement, lorsque l’électron est dans le continuum, l’effet du potentiel de Coulomb de l’atome sera négligé : cela sera d’autant plus exact que l’énergie acquise par l’élec-

tron dans le continuum (de l'ordre de  $U_p$ ) sera supérieure à  $I_p$ .

Considérant les trois hypothèses ci-dessus, la fonction d'onde électronique peut s'écrire de la manière suivante :

$$|\Psi(t)\rangle = e^{iI_p t} \left( a(t) |0\rangle + \int d^3v b(\mathbf{v}, t) |v\rangle \right) \quad (1.22)$$

La fonction d'onde est composée de deux parties. La première avec le coefficient  $a(t)$  représentant l'amplitude du niveau fondamental peut être considérée comme presque constante et égale à 1, ceci correspond au fait de négliger la déplétion du niveau fondamental. La seconde représente l'ensemble des niveaux du continuum dont chaque niveau  $|v\rangle$  est d'amplitude  $b(\mathbf{v}, t)$ .

Un développement détaillé à partir de l'expression de la fonction d'onde ci-dessus pour obtenir le moment dipolaire dépendant du temps pourra être trouvé dans la référence [8, 16]. Les étapes clés du calcul sont premièrement, le calcul de l'amplitude  $b(\mathbf{v}, t)$  par injection de l'expression 1.22 dans l'équation de Schrödinger, puis, l'utilisation de ce résultat pour le calcul final du moment dipolaire dépendant du temps obtenu par  $\langle \Psi(t) | \mathbf{r} | \Psi(t) \rangle$ .  $\mathbf{r}$  est l'opérateur moment dipolaire. Par souci de clarté, nous nous limiterons au cas à une dimension, c'est-à-dire,  $\mathbf{r} = x$ . Les éléments de transition entre les différents états du continuum sont négligés dans le traitement présent. Cela veut dire que dans l'intégrale qui suit, les éléments de matrice  $\langle \mathbf{v}' | x | \mathbf{v} \rangle$  ont été négligés. Le moment dipolaire  $x(t)$  d'un atome de potentiel d'ionisation  $I_p$  soumis à un champ électrique  $E \cos(\omega_0 t)$  satisfaisant les conditions du modèle s'exprime alors comme :

$$x(t) = i \int_0^t dt' \int d^3\mathbf{p} E \cos(\omega_0 t') d_x(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t')) d_x^*(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t)) \exp[-iS(\mathbf{p}, t, t')] + c.c. \quad (1.23)$$

$$\text{Avec } S = \int_{t'}^t dt'' \left( \frac{[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t'')]^2}{2} + I_p \right)$$

La double intégrale décrivant  $x(t)$  ci-dessus, bien que théoriquement calculable, peut être

évaluée premièrement par rapport à la variable  $\mathbf{p}$ . En effet, l'action semi-classique  $S$  est une grandeur variant rapidement avec  $\mathbf{p}$ , il est alors possible d'évaluer l'intégrale sur les moments grâce à l'approximation « point selle » ou « saddle point ». Plutôt qu'une justification mathématique rigoureuse de cette approximation, regardons les conséquences physiques du calcul de l'intégrale par cette méthode. En effet, le fait que l'action  $S$  soit une fonction variant rapidement avec  $\mathbf{p}$ , la contribution principale à l'intégrale viendra des points stationnaires de  $S$  tels que :

$$\nabla_{\mathbf{p}}S = 0 \quad \Leftrightarrow \quad \nabla_{\mathbf{p}}S = \int_{t'}^t dt'' [\mathbf{p} - \mathbf{A}(t'')] = \int_{t'}^t dt'' \mathbf{v}(t'') = \mathbf{r}(t') - \mathbf{r}(t) = 0 \quad (1.24)$$

On remarque donc que la contribution principale au moment dipolaire provient des trajectoires où l'électron recombine avec l'ion lui ayant donné naissance. Ce résultat est en accord avec le modèle semi-classique que nous avons décrit précédemment. En effet, celui-ci impliquait la génération d'un photon au moment où l'électron recombine avec l'ion. On voit donc ici qu'un résultat similaire est obtenu grâce au modèle entièrement quantique de l'électron.

Finalement, le moment dipolaire  $x(t)$  après évaluation de l'intégrale sur les moments  $\mathbf{p}$  devient :

$$\begin{aligned} x(t) = & i \int_0^\infty d\tau \left( \frac{\pi}{\epsilon + i\tau/2} \right)^{\frac{3}{2}} \cdot \underbrace{d_x[p_{st}(t, \tau) - A_x(t - \tau)] E \cos(\omega_0(t - \tau))}_{\text{terme d'ionisation}} \times \\ & \times \underbrace{d_x^*[p_{st}(t, \tau) - A_x(t)]}_{\text{terme de recombinaison}} \cdot \underbrace{\exp[-iS_{st}(t, \tau)]}_{\text{terme de propagation}} + c.c. \end{aligned} \quad (1.25)$$

Avec,

$$p_{st}(t, \tau) = \int_{t-\tau}^t dt' \frac{A_x(t')}{\tau} \quad \text{et} \quad S_{st} = \int_{t-\tau}^t dt' \left( \frac{[p_{st} - A_x(t')]^2}{2} + I_p \right) \quad (1.26)$$

Les spectres en fonction de  $\omega$ , l'énergie des photons, seront ensuite calculés au moyen de la transformée de Fourier de l'accélération du dipôle  $TF\left(\frac{d^2x(t)}{dt^2}\right) \approx \omega^4 TF(x(t))^2$  où  $TF$  est la transformée de Fourier.

Il convient de faire quelques remarques sur l'équation 1.25. En effet, comme indiqué en dessous de chaque terme, il est possible d'identifier aux différents termes l'étape correspondante du modèle semi-classique. Ensuite, nous noterons le changement de variable effectué  $\tau = t - t'$  par souci de commodité pour l'écriture et le calcul de l'intégrale. 1.25 est facilement calculable numériquement et sera donc l'équation de départ pour tout calcul de spectre harmonique dans le cadre du modèle de Lewenstein. Les spectres numériques des espèces étudiées dans cette thèse seront présentés ultérieurement.

#### 1.2.4 Aspect macroscopique : notion d'accord de phase

Nous avons introduit jusqu'ici les principes microscopiques de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Cependant, expérimentalement, le processus de génération est un phénomène collectif dans un milieu en trois dimensions qui prend naissance par l'interaction d'une impulsion laser ultra-intense avec un gaz (ou plasma comme nous pourrons le voir ultérieurement). De ce fait, il va être crucial que les différentes particules du milieu émettent de manière constructive pour qu'en sortie du gaz, toutes les ondes émises par chacune des particules du milieu interfèrent constructivement. Pour cela, un grand nombre de phénomènes non linéaires liés à la propagation de l'impulsion fondamentale devront être pris en compte afin d'en déduire le champ harmonique en sortie du milieu. Évidemment, dans ce but, nous allons considérer les équations d'ondes pour le champ électromagnétique fondamental et harmonique.

Il ne semble pas pertinent de détailler chaque terme de l'équation d'onde qui sera prise en compte dans cette étude, les détails d'une telle étude pourront être trouvés dans [8, 17–20]. Le cas simple d'une onde plane comme onde fondamentale permettra d'expliquer les phénomènes importants et le principe général de l'accord de phase entre le champ harmonique et le champ

qui lui a donné naissance. Ensuite, il nous a semblé plus pertinent de décrire le traitement complet du processus de propagation et la mise en œuvre du calcul numérique correspondant.

## Équation d'onde et accord de phase dans le cas d'ondes planes

L'équation d'onde décrivant la propagation d'un champ électrique  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \mathbf{t})$  dans un milieu de polarisation  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, \mathbf{t})$  est :

$$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, \mathbf{t}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, \mathbf{t})}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}(\mathbf{r}, \mathbf{t})}{\partial t^2} \quad (1.27)$$

L'équation 1.27 est valide pour le champ total dans le milieu. Or, comme nous l'avons dit précédemment, le champ électrique nécessaire pour générer des harmoniques d'ordres élevés est extrêmement intense, habituellement, des intensités d'environ  $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$  seront nécessaires. Le processus de génération est lui très peu efficace, de l'ordre de  $10^{-6}$  fois le champ fondamental, il est donc justifié de négliger l'influence du champ électrique harmonique sur la propagation du champ fondamental. En pratique, l'équation d'onde pour la propagation du champ électrique fondamental  $\mathbf{E}_1(\mathbf{r}, \mathbf{t})$  sera résolue en premier lieu, puis ses valeurs seront utilisées dans le terme source issu du modèle de Lewenstein décrivant la polarisation non linéaire du milieu.

Nous nous intéresserons ultérieurement à l'équation de propagation de l'onde fondamentale. Appliquons l'équation 1.27 au cas du champ harmonique seul noté  $\mathbf{E}_h(\mathbf{r}, t)$ . La polarisation  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, \mathbf{t})$  peut être décomposée en sa partie linéaire et sa partie non linéaire,  $\mathbf{P}(\mathbf{r}, \mathbf{t}) = \mathbf{P}_1(\mathbf{r}, \mathbf{t}) + \mathbf{P}_{nl}(\mathbf{r}, \mathbf{t})$  avec  $\mathbf{P}_1(\mathbf{r}, \mathbf{t}) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}_h(\mathbf{r}, t)$  et  $\mathbf{P}_{nl}(\mathbf{r}, \mathbf{t}) = e \mathbf{d}_{nl}(\mathbf{r}, t)$ ,  $\mathbf{d}_{nl}(\mathbf{r}, t)$  étant issu du moment dipolaire dépendant du temps calculé dans le cadre du modèle de Lewenstein. On obtient alors pour l'équation d'onde relative au champ harmonique :

$$\nabla^2 \mathbf{E}_h(\mathbf{r}, \mathbf{t}) - \frac{\epsilon^{(1)}}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}_h(\mathbf{r}, \mathbf{t})}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{nl}(\mathbf{r}, \mathbf{t})}{\partial t^2} \quad \text{avec } \epsilon^{(1)} = 1 + \chi^{(1)} \quad (1.28)$$

Étant donné le caractère discret des spectres harmoniques, il peut être naturel de convertir

l'équation 1.28 dans l'espace des fréquences afin de supprimer les dérivées temporelles. En développant donc le champ harmonique  $\mathbf{E}_h$  en série de Fourier, l'équation 1.28 devient pour chaque fréquence  $\omega_q$  associée au champ  $\mathbf{E}_q(\mathbf{r})$  :

$$\nabla^2 \mathbf{E}_q(\mathbf{r}) + \frac{\epsilon^{(1)}(\omega_q) \omega_q^2}{c^2} \mathbf{E}_q(\mathbf{r}) = -\mu_0 \omega_q^2 \mathbf{P}_q(\mathbf{r}) \quad (1.29)$$

1.29 est l'équation générale que nous allons devoir résoudre pour chaque fréquence du spectre harmonique. Cependant, afin d'identifier l'importance des effets d'accord de phase, nous allons considérer le cas particulier d'ondes planes dans l'approximation paraxiale. Cette dernière approximation sera faite également lors du traitement numérique décrit plus tard. Elle correspond à négliger la divergence du faisceau, impliquant que toutes les directions de propagations soient proches de l'axe de propagation. Ces deux dernières hypothèses, bien que fortes, restent valides pour le cas d'une impulsion comportant assez de cycles par impulsion ainsi qu'une longueur de Rayleigh et un diamètre focal très supérieur à la longueur d'onde. Nous écrirons alors pour le champ harmonique :

$$\begin{aligned} E_q(z) &= \tilde{A}_q(z) e^{-ik_q z} \quad \text{avec } k_q \text{ le vecteur d'onde de l'harmonique } q \\ P_q(z) &= \tilde{P}_q(z) e^{-iqk_1 z} \quad \text{avec } k_1 \text{ le vecteur d'onde du laser fondamental} \end{aligned} \quad (1.30)$$

En appliquant ces expressions à 1.29 couplé à l'approximation paraxiale, nous allons obtenir pour l'amplitude du champ de l'harmonique  $q$  :

$$2i\tilde{k}_q \frac{\partial}{\partial z} \tilde{A}_q(z) = \mu_0 \omega_q^2 \tilde{P}_q(\tilde{A}_1) e^{i(k_q - qk_1)z} \quad (1.31)$$

Avec,  $\tilde{k}_q = \frac{\omega_q}{c} \sqrt{\epsilon^{(1)}} = \frac{\omega_q}{c} [n_R(\omega_q) - in_I(\omega_q)]$ .  $n_R$  et  $n_I$  sont les indices réels et imaginaires linéaires du milieu de propagation.

En intégrant l'équation 1.31 et en supposant que le processus de génération d'harmoniques ne perturbe pas le champ  $\tilde{A}_1$ , nous obtenons pour  $\tilde{A}_q$  :

$$\tilde{A}_q(z) = -i \frac{\mu_0 \omega_q^2}{2\tilde{k}_q} \tilde{P}_q(\tilde{A}_1) \int_0^z e^{i\Delta k_q z} e^{-\alpha_q z} dz \quad (1.32)$$

Avec  $\Delta k_q = \frac{\omega_q}{c} n_R(\omega_q) - qk_1$  et  $\alpha_q = \frac{\omega_q}{c} n_I(\omega_q)$ .

C'est à partir du résultat 1.32 que nous allons faire certaines remarques quant à la notion d'accord de phase dans le milieu de propagation. Tout d'abord, il y a le terme devant l'intégrale qui, dans le cas d'une onde plane non perturbée par le processus de génération d'harmoniques, est constant. Le terme  $\tilde{P}_q(\tilde{A}_1)$  représente la polarisation non linéaire du milieu dû au moment dipolaire créée par l'onde fondamentale pour chaque particule du milieu. On peut donc considérer qu'elle est la somme du moment dipolaire microscopique sur les  $N$  particules constituant le gaz et donc,  $\tilde{P}_q(\tilde{A}_1) = N \cdot \tilde{d}_q(\tilde{A}_1)$ .

L'amplitude du champ harmonique sera donc la superposition des champs générés par chacune des particules du milieu, atténué ou modulé par la présence de l'intégrale. C'est donc dans le terme d'intégration que les effets d'accord de phase apparaissent. Examinons tout d'abord le cas où l'absorption du milieu peut être négligée, c'est-à-dire,  $\alpha_q = 0$ . L'équation 1.32 peut être écrite comme :

$$\tilde{A}_q(z) = N\tilde{a}_q \int_0^z e^{i\Delta k_q z} dz \quad \text{avec} \quad \tilde{a}_q = -i \frac{\mu_0 \omega_q^2}{2\tilde{k}_q} \tilde{d}_q(\tilde{A}_1) \quad (1.33)$$

On dira qu'il y a accord de phase parfait si le terme  $\Delta k_q z = 0$ . Dans ce cas, le champ harmonique est une fonction linéaire croissante de la coordonnée longitudinale  $z$ . Physiquement, cela signifie que les deux ondes fondamentales et harmoniques se propagent à la même vitesse dans le milieu. Cependant, le terme d'atténuation ne peut généralement pas être négligé. Il aura pour conséquence d'introduire une longueur limite à partir de laquelle le champ harmonique sera fortement atténué par absorption dans le milieu. En pratique, cela imposera une longueur maximale de milieu.

Généralement, il ne sera pas possible d'avoir un accord de phase parfait, mais on essaiera de se placer dans un cas où  $\Delta k_q z$  ne dépend pas de  $z$ . La contribution principale au terme

de phase provient de l'effet des électrons libres du milieu créés par la propagation du champ fondamental. Considérons de manière générale les différents effets qui peuvent influencer sur le champ harmonique à la sortie du milieu non linéaire. Les longueurs caractéristiques qui entreront en compte seront la longueur de cohérence (liée aux effets d'accord de phase que nous supposons constant par rapport à  $z$ ), la longueur d'absorption et de la longueur du milieu.

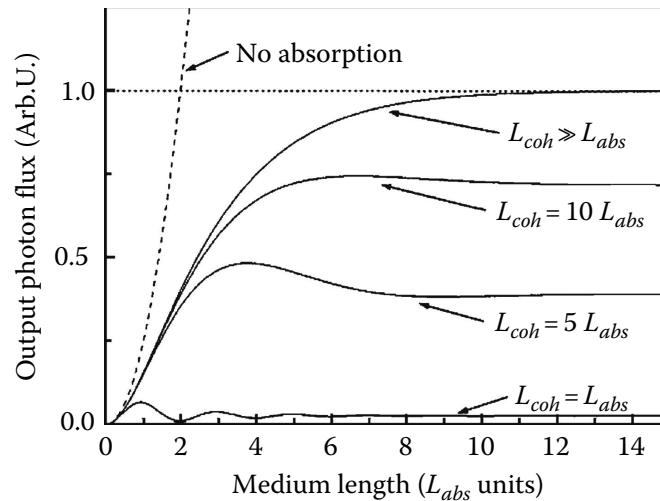


FIGURE 1.6 – Flux de photons XUV en fonction de la longueur du milieu pour différentes longueurs de cohérences. La figure est extraite de [18].

La figure 1.6 illustre les différents régimes qui peuvent avoir lieu dans le milieu. En effet, lorsque la longueur de cohérence est beaucoup plus grande que la longueur d'absorption, le système est limité essentiellement par l'absorption du milieu. Peu importe la longueur du milieu, les différentes contributions microscopiques s'additionneront en sortie de milieu. Au contraire, lorsque la longueur de cohérence est du même ordre de grandeur que la longueur d'absorption, les effets d'interférences ne peuvent plus être négligés. Alors, en fonction de la longueur du milieu, les différentes contributions microscopiques pourront interférer constructivement ou destructivement comme cela est illustré dans la figure 1.7. En effet, on remarque que dans le cas (1), l'onde fondamentale (noire) et les ondes harmoniques ont des vitesses de propagation identiques et donc, les différentes contributions microscopiques pour le champ



harmonique interfèrent constructivement en sortie de milieu. Au contraire, dans le cas (2), l'onde fondamentale et les ondes harmoniques ne se propagent pas à la même vitesse. Il s'en suit un décalage de phase entre les différentes ondes harmoniques qui, en sortie du milieu, ne s'additionnent plus complètement.

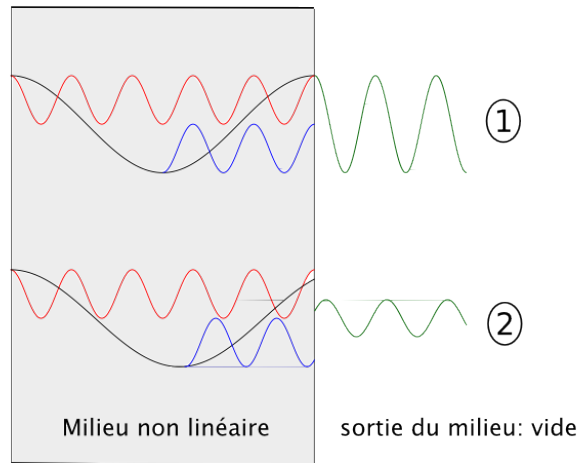


FIGURE 1.7 – Illustration du phénomène d'interférences constructives ou destructives selon les conditions d'accord de phase

### Traitement complet dans le cas d'une impulsion courte

Dans cette partie, nous allons décrire le traitement complet de la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans un milieu en tenant compte des effets de propagation ainsi que la propagation dans le vide jusqu'à l'appareil de détection. L'exemple d'une onde plane a été adéquat afin d'identifier et illustrer les mécanismes pouvant influencer sur le signal harmonique en sortie du milieu. Cependant, la génération d'harmoniques d'ordres élevés requiert des intensités très élevées et donc, expérimentalement, nous sommes dans un régime généralement impulsionnel. Il est alors nécessaire de résoudre les équations d'ondes pour les champs électriques fondamentaux et harmoniques numériquement. Cette partie portera donc sur les équations utilisées dans le modèle numérique ainsi que la description de l'implantation numérique.

**Propagation dans le milieu** Dans le but de calculer la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans un milieu non linéaire, nous adoptons l'approche développée par Priori et al. [21] puis généralisé par Takahashi et al. [22] afin de prendre en compte tous les effets physiques pouvant influencer sur la propagation des champs électriques. Le modèle décrit ci-dessous est un modèle à trois dimensions avec symétrie axiale. Il reprend l'essentiel des approximations énoncées précédemment. En effet, on suppose premièrement que le champ électrique harmonique  $E_h$  n'influence pas la propagation du champ électrique fondamental  $E_1$ . La propagation du champ électrique  $E_1$  peut donc être calculée en premier lieu pour ensuite être utilisée dans le terme de source (polarisation non linéaire du milieu) de l'équation de propagation pour  $E_h$ . La résolution des équations se fera dans le cadre de l'approximation paraxiale comme expliquée plus haut ainsi que dans le domaine des fréquences par transformée de Fourier de l'équation temporelle. Pour finir, un changement de variable est opéré afin de se placer dans le référentiel lié à l'onde fondamentale, c'est-à-dire,  $z' = z$  et  $t' = t - \frac{z}{c}$ .

$$\nabla_{\perp}^2 \tilde{E}_1(r, z', \omega) - \frac{2in(r, z', \omega)\omega}{c} \frac{\partial \tilde{E}_1(r, z', \omega)}{\partial z'} = FT [N(r, z', t)E_1(r, z', t')] \quad (1.34)$$

Avec,

$$\tilde{E}_1(r, z', \omega) = FT [E_1(r, z', t')] \quad (1.35)$$

Et,

$$N(r, z', t') = \underbrace{-\frac{\sigma}{2}(1 + i\omega_0\tau_c) \cdot \rho_e(r, z', t')}_{\text{Absorption et réfraction du au plasma}} - \underbrace{\frac{W(t')I_p}{|E_1|^2}(\rho_0 - \rho_e(r, z', t'))E_1(r, z', t')}_{\text{Absorption par ionisation multiphotonique}} \quad (1.36)$$

$\rho_0$  est la densité initiale du milieu en  $(r, z')$ ,  $\rho_e(r, z', t)$  est la densité électronique,  $W(t')$  est la probabilité de photo-ionisation calculée grâce au modèle ADK (cf équation 1.20) et la

section efficace  $\sigma$  décrit l'absorption par Bremsstrahlung inverse et est calculée dans le cadre du modèle de Drude :

$$\sigma = \frac{k\omega_0\tau_c}{\rho_c(1 + \omega_0^2\tau_c^2)} \quad (1.37)$$

$\rho_e(r, z', t')$  est obtenu par intégration de l'équation de conservation de la masse :

$$\frac{\partial \rho_e(r, z', t')}{\partial t'} = W(t') (\rho_0(r, z') - \rho_e(r, z', t')) + \frac{\sigma}{I_p} \rho_e(r, z', t') \left( \frac{1}{2} \epsilon_0 c |E_1(r, z', t')|^2 \right) \quad (1.38)$$

De la même manière, le champ électrique harmonique est lui calculé à partir de l'équation :

$$\nabla_{\perp}^2 \tilde{E}_h(r, z', \omega) - \frac{2i\omega}{c} \frac{\partial \tilde{E}_h(r, z', \omega)}{\partial z'} = -\omega^2 \mu_0 \tilde{P}_{nl}(r, z', \omega) \quad (1.39)$$

Où,  $\tilde{P}_{nl}(r, z', \omega) = TF [D_{//}(r, z', t')]$  est obtenu grâce au moment dipolaire microscopique pouvant être calculé, par exemple, grâce au modèle de Lewenstein. Les équations de propagations peuvent être intégrées, par exemple, grâce à un algorithme de type Crank-Nicolson.

**Calcul du champ lointain** Les calculs précédents ont permis de connaître le profil spatio-temporel du champ électrique issu de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Cependant, expérimentalement, la détection du rayonnement se fait par l'utilisation d'un spectromètre XUV situé généralement entre 50 cm et 1 m de la source. Or il n'est pas possible de « propager » les équations d'ondes jusqu'au détecteur. Puisqu'entre la sortie du milieu non linéaire et le détecteur, le rayonnement se propage sous vide, il est possible d'obtenir le profil spatio fréquentiel à partir de la transformée de Fourier du champ électrique harmonique  $TF[E_h(r, z', t')] = \tilde{E}_h(r, z', \omega)$  grâce à une transformée de Hankel [23] :

$$E_q(r_f, z_f) = -ik_q \int \frac{E_q(r_n, z_n)}{z_f - z_n} J_0 \left( \frac{k_q r_n r_f}{z_f - z_n} \right) \exp \left[ \frac{ik_q (r_n^2 + r_f^2)}{2(z_f - z_n)} \right] r dr \quad (1.40)$$

$(r_f, z_f)$  et  $(r_n, z_n)$  sont respectivement les coordonnées dans les champs lointains et

proches.  $k_q$  est le nombre d'onde pour la  $q^{\text{ème}}$  harmonique, c'est-à-dire,  $k_q = qk_0 = q\frac{\omega_0}{c}$  et  $E_q = \tilde{E}_h(r, z', \omega_q)$ . Il faut donc appliquer l'intégrale ci-dessus à toutes les fréquences du spectre du champ proche afin d'obtenir le champ lointain. Il est à noter que symétrie axiale du système est nécessaire pour appliquer la transformée de Hankel.

## 1.3 Le plasma comme milieu non linéaire : généralités et revue des résultats précédents

### 1.3.1 Motivation

Depuis environ 2003, T. Ozaki et son équipe ont orienté leur recherche sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés à partir d'un plasma d'ablation comme milieu non linéaire. En effet, les gaz nobles sont les milieux de génération les plus couramment utilisés à cause de la valeur de leur potentiel d'ionisation élevée. Or, le choix est assez limité et d'autant plus si on prend en compte le coût financier de certains gaz comme le xénon. Afin de pallier ce problème, il a été décidé de créer le milieu de génération en ablatant une cible solide. Ensuite, l'expansion du plasma pendant une période donnée permet d'obtenir un milieu propice à la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Les motivations de cette technique étaient donc :

- La présence d'ions dans le milieu permettrait la production de particules à très fort potentiel d'ionisation. Comme vu précédemment pour le calcul de l'énergie du cutoff grâce à l'équation 1.5, plus le potentiel d'ionisation est élevé, plus l'énergie maximale de photon générée est élevée.
- Le nombre de degrés de liberté pour l'optimisation des paramètres du milieu est plus élevé. En effet, dans le cas de la génération à partir d'un plasma d'ablation, il est aisé de varier les paramètres du laser permettant d'ablater la cible solide. On pourra ainsi varier la densité, le degré d'ionisation, la température (en supposant l'équilibre thermodynamique), la taille du milieu et bien sûr, les espèces présentes. Ce dernier

point est évidemment une raison de l'utilisation d'un plasma d'ablation. En effet, étant donné le fait que le milieu est créé à partir de l'ablation d'une cible solide, une grande partie du tableau périodique est accessible, mais aussi n'importe quel type d'alliage.

- Enfin, le dernier point est relié aux deux précédents. Le fait de générer des harmoniques d'ordres élevés dans un milieu complexe ionisé rend l'étude du processus de génération extrêmement intéressante. En effet, des réactions chimiques peuvent y avoir lieu pendant le processus de génération. Également, des phénomènes de résonance pourront avoir lieu, ainsi, certaines longueurs d'onde du spectre pourront voir leur efficacité de génération fortement accrue.

### 1.3.2 Mise en œuvre expérimentale et ordres de grandeur

**Montage expérimental** Comme énoncé plus haut, la génération d'harmoniques d'ordres élevés à partir d'un plasma d'ablation requiert une impulsion laser précédente à l'impulsion principale, nous l'appellerons « préimpulsion ». La mise en œuvre expérimentale est illustrée dans la figure 1.8. Afin de produire le milieu de génération, une préimpulsion longue est focalisée au moyen d'un système de lentilles à la surface d'une cible solide. Cette impulsion est considérée comme longue, car elle est d'une durée de 210 ps dans le cas présent. Elle est issue du prélèvement d'une partie de l'énergie du faisceau en sortie du boîtier laser avant compression et a donc une longueur d'onde centrale de 800 nm. La fluence nécessaire pour ablater la cible va dépendre du matériau choisi. L'ordre de grandeur sera de quelques millijoules focalisés sur une tâche focale d'environ  $200 \mu m$  de diamètre, ce qui équivaut à une fluence de quelques joules par centimètre carré. Cependant, nous verrons plus tard qu'il est important d'ajuster finement ce paramètre afin d'obtenir la densité et le degré d'ionisation souhaité. Après avoir ablaté la cible, il est nécessaire d'imposer un délai suffisant entre l'ablation de la cible et la focalisation de l'impulsion principale dans le milieu. En effet, directement après avoir été créé, le plasma est extrêmement dense et ionisé, l'impulsion

principale transverse ne pourrait pas s'y propager longitudinalement. Donc, un délai de l'ordre de 50 ns doit être introduit entre les deux impulsions afin d'attendre que l'expansion du plasma nous mène aux conditions propices à la génération d'harmoniques. Cela équivaut souvent à trouver un compromis entre une densité de particules élevée et un taux d'ionisation voulu, dépendant des espèces qui génèrent.

L'impulsion principale, à la suite du délai de 50 ns, est focalisée dans le plasma en expansion. Afin d'atteindre l'intensité requise, il est nécessaire de travailler avec une impulsion courte. Les propriétés de l'impulsion principale pourront varier assez fortement comme nous le verrons par la suite. Cependant, les paramètres typiques sont, une impulsion de longueur d'onde centrée à 800 nm, d'énergie 0.5-5 mJ, de durée d'impulsion de 40 fs focalisée avec une longueur focale typique de 50 cm. Ainsi, il est possible d'atteindre des intensités de l'ordre de  $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$  au sein du milieu. L'impulsion principale génère alors les harmoniques d'ordres élevés lors de sa propagation.

En sortie du milieu, le faisceau contient donc le rayonnement XUV. Cependant, celui-ci est toujours en présence du rayonnement infrarouge. Afin de séparer l'impulsion fondamentale du train d'impulsions harmoniques, plusieurs méthodes sont possibles. Par exemple, l'utilisation d'un filtre aluminium peut adéquatement transmettre les longueurs d'onde inférieures à 70 nm et donc bloquer l'impulsion fondamentale. Cependant, l'aluminium s'oxydant très rapidement lorsqu'il est mis en contact avec l'air, ses propriétés de transmission sont altérées, mais également non contrôlées. L'influence de l'oxyde d'aluminium sur la transmission du filtre sera d'autant plus forte pour les longueurs d'onde élevées du domaine XUV, donc pour les ordres harmoniques bas. Ce sont malheureusement ceux qui nous intéressent dans le cadre de cette thèse.

Il a été décidé d'opter pour une autre méthode beaucoup moins sensible à l'environnement extérieur. En effet, un moyen pour atténuer fortement un faisceau est qu'il soit réfléchi à l'angle de Brewster correspondant à la longueur d'onde de l'impulsion et à l'indice de réfraction du matériau dont lequel est fait le miroir. L'angle de Brewster peut être calculé

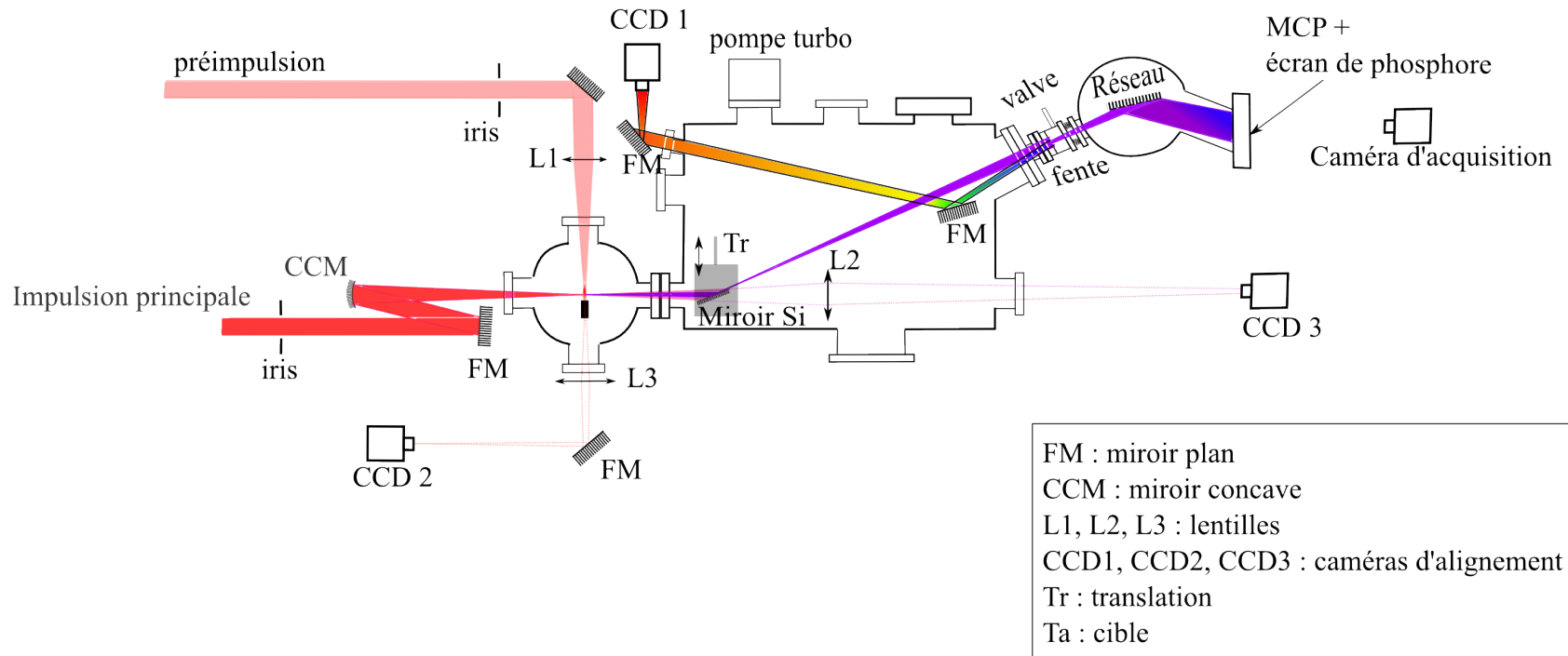


FIGURE 1.8 – Montage expérimental associé à la génération d'harmoniques d'ordres élevés à partir d'un plasma d'ablation

grâce à la formule :

$$\Theta_B = \arctan\left(\frac{n_{\text{matériau}}}{n_{\text{vide}}}\right) \quad (1.41)$$

Or si cet indice de réfraction assez élevé, l'angle de Brewster pour l'impulsion fondamentale sera élevé. En effet, un angle d'incidence élevé impliquera généralement un fort taux de réflexion pour le rayonnement XUV. En résumé, il serait possible d'atténuer le faisceau infrarouge en travaillant à l'angle de Brewster tout en gardant un bon taux de réflexion pour le rayonnement harmonique si cet angle de Brewster est élevé.

Le silicium est un matériau idéal lorsque celui-ci est placé à un angle d'incidence de 75 degrés [24]. On observe alors un taux d'extinction du rayonnement infrarouge (800 nm) de l'ordre de  $10^{-4}$ - $10^{-5}$  [24] combiné à un taux de réflexion supérieur à 50% dans la gamme de longueurs d'onde pertinentes dans le cadre de ce travail de thèse. Il est à noter que l'épaisseur de la couche d'oxyde  $\text{SiO}_2$  a été mesurée d'environ 13 Å après un an d'utilisation du miroir. Cela induit une baisse du taux de réflexion de seulement quelques pourcents. Etant donné le fait que la couche d'oxyde de silicium consiste seulement en quelques couches atomiques, celle-ci n'affecte pas les propriétés d'atténuation du miroir. Il en résulte que, pour la gamme de longueur d'onde pertinente à ce travail de thèse, la suppression du faisceau de pompe par réflexion sur miroir silicium est un bien meilleur choix que l'utilisation de filtre aluminium. En effet, ceux-ci s'oxydent très rapidement et leur taux de transmission chute fortement. La figure 1.9 représente le taux de réflexion théorique du silicium, calculé grâce un code développé dans notre groupe, pour un angle d'incidence de 75 degrés (équivalent à un angle rasant de 15 degrés) pour les harmoniques 9 à 31 générées grâce à une impulsion fondamentale de 800 nm de longueur d'onde centrale.

Enfin, après réflexion sur le miroir de silicium, le faisceau se propage jusqu'au spectromètre XUV qui permettra d'obtenir les images des spectres en intensité correspondant aux trains d'impulsion harmoniques générés dans le milieu non linéaire.



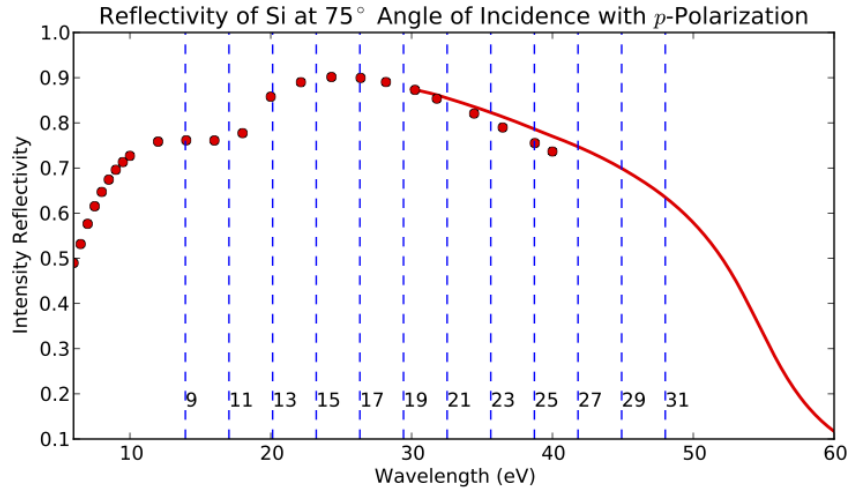


FIGURE 1.9 – Taux de réflexion du silicium en fonction de la longueur d’onde pour un angle d’incidence égal à l’angle de Brewster à 800 nm de longueur d’onde ( $75^\circ$ )

**Le spectromètre XUV** Le spectromètre XUV étant le dispositif de mesure principal utilisé dans ce travail de thèse, il convient d’en donner le principe de fonctionnement.

Il est composé tout d’abord d’une fente d’entrée de largeur ajustable. Celle-ci permet d’ajuster au mieux le rapport signal sur bruit. Le bruit étant issu des électrons ou particules éjectées du plasma ainsi que du rayonnement non cohérent émis. Ensuite, le faisceau est réfléchi et dispersé au moyen d’un réseau de diffraction de 1200 l/mm (« Hitachi aberration corrected concave grating for flat field spectrograph ») [25–28]. La particularité d’un tel réseau de diffraction est de pouvoir, dans un même dispositif, réaliser à la fois l’image de la fente d’entrée sur le dispositif de mesure tout en dispersant les différentes longueurs d’onde du rayonnement détecté.

L’appareil de mesure convertissant le rayonnement XUV en image exploitable est le détecteur à micro canaux (MCP) avec écran de phosphore. Son principe de fonctionnement est très proche de celui d’un photomultiplicateur qui aurait la particularité de réaliser des mesures en deux dimensions. En effet, lorsque toute particule, incluant un photon, entre en contact avec l’anode en un point de coordonnées  $(x, y)$  à sa surface, il y a création d’un ou plusieurs électrons. Ensuite, ces électrons sont accélérés au moyen d’une cathode et guidés

vers l'écran de phosphore grâce à un réseau très fin de micro canaux entre l'anode et la cathode. Lors du transport dans le micro canal en position  $(x, y)$ , il va y avoir création d'électrons secondaires et donc gain. En sortie du micro canal, il y a un faisceau d'électrons dont le nombre d'électrons dépend du nombre de photons initiaux. Ce faisceau est ensuite imagé sur un écran de phosphore. La superposition du signal obtenu à partir de tous les micros canaux permet d'obtenir l'image du spectre harmonique. Les composantes verticales et horizontales de l'image donnent respectivement l'information sur le profil radial du faisceau XUV et la distribution en intensité en fonction de la longueur d'onde, le spectre. Un exemple d'image de spectre harmonique obtenu avec une impulsion fondamentale à 800 nm focalisée dans un plasma de carbone est représenté figure 1.10.

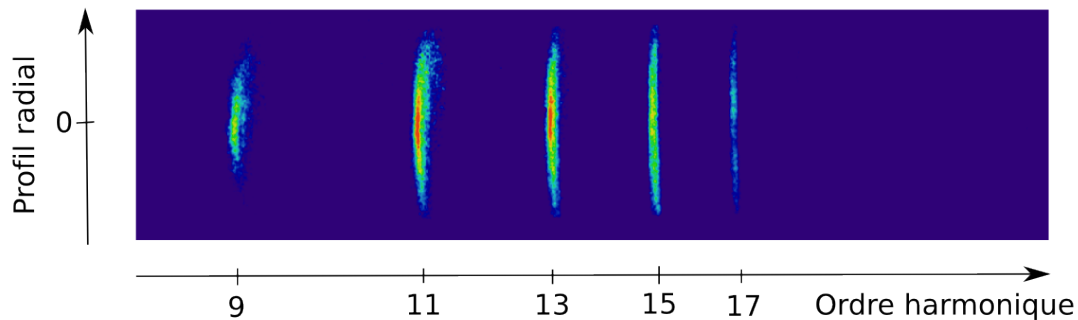


FIGURE 1.10 – Image d'un spectre d'harmoniques d'ordres élevés enregistré grâce à l'enregistrement de l'émission de l'écran de phosphore de la MCP

### 1.3.3 Principaux résultats obtenus précédemment

L'essentiel des résultats présentés dans cette section provient du travail de thèse de Luc Elouga Bom, ancien étudiant au doctorat avec T. Ozaki. Une partie du travail a été réalisé en collaboration avec le Dr. R.A. Ganeev.

## Génération de la 101<sup>ème</sup> harmonique à partir d'un plasma issu d'une cible de manganèse

Nous allons tout d'abord présenter un résultat lié à la possibilité d'obtenir de très courtes longueurs d'onde par le biais de la génération d'harmoniques d'ordres élevés par la méthode plasma. En effet, dans le cas particulier de la cible de manganèse, il a été possible d'obtenir un ordre maximum égal au 101<sup>ème</sup> de la longueur d'onde fondamentale égale à 800 nm [29], ceci correspond à une longueur d'environ 7.9 nm.

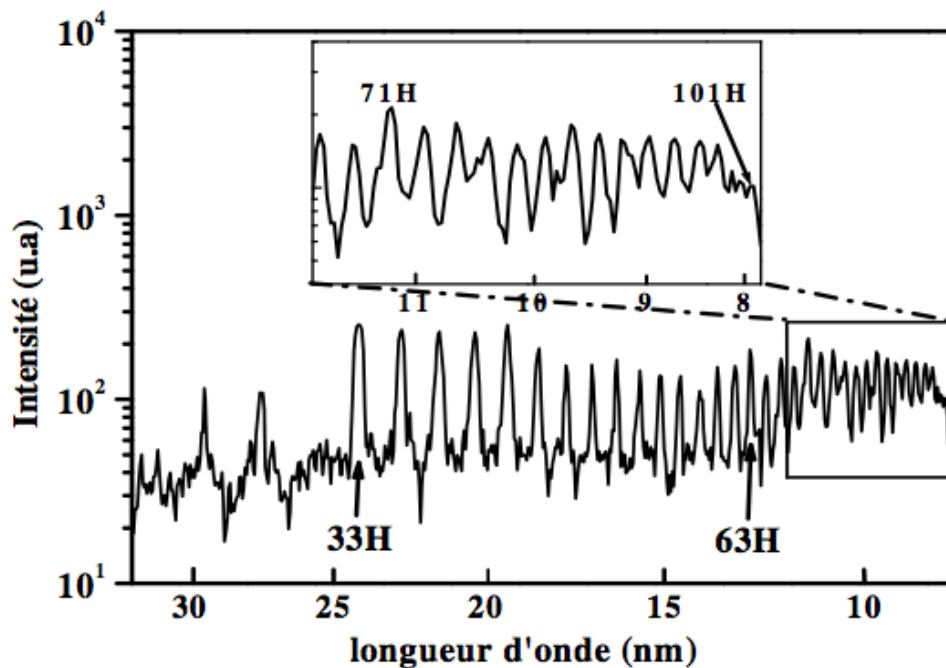


FIGURE 1.11 – Spectre d'harmoniques d'ordres élevés généré dans un plasma de manganèse avec une impulsion de longueur d'onde égale à 800 nm. Figure extraite de [29].

L'auteur explique que les conditions expérimentales propices à ce résultat ont été très difficiles à trouver. Elles impliquent une forte augmentation de l'énergie de l'impulsion principale. Un spectre représentant les harmoniques générées dans le plasma de manganèse est donné dans la figure 1.11. On peut y observer la présence de deux plateaux. Cela corrobore la nécessité d'augmenter fortement l'intensité du faisceau de génération. En effet, alors que le premier plateau peut être associé aux ions de degré d'ionisation égal à un, le deuxième

plateau est lui vraisemblablement lié aux ions doublement chargés. Il est donc normal, afin de produire ces ions, d'augmenter fortement l'intensité de l'impulsion de génération pour que le début de l'impulsion ionise le milieu et crée ainsi les ions doublement positifs. Cependant, le fait d'ioniser fortement le plasma tel qu'expliqué implique un fort désaccord de phase. Donc, même s'il est en général théoriquement possible de générer à partir des ions doubles de n'importe quel plasma, les électrons libres empêchent un bon accord de phase pour les harmoniques associées ainsi qu'une forte absorption du milieu à ces mêmes longueurs d'onde.

Cible	Densité d'électrons ( $cm^{-3}$ )	Fréquence de coupure
Au	$14.2 \times 10^{17}$	53
Ag	$6.0 \times 10^{17}$	69
Mn	$3.25 \times 10^{17}$	101

TABLE 1.1 – Tableau récapitulatif des densités électroniques calculées avec le code HYADES pour différentes cibles et une préimpulsion d'intensité  $2.10^{10} W.cm^{-2}$

Une explication avancée par l'auteur est le fait que dans le cas du plasma de manganèse, pour une même intensité d'ablation, proche de celle optimale pour la génération de la 101<sup>ème</sup> harmonique dans le manganèse, la densité d'électrons libres du plasma de manganèse est beaucoup plus faible que dans le cas de l'or et de l'argent. Toutes deux ont un cutoff plus faible que celui du manganèse. L'auteur associe donc cette faible densité d'électrons libres au fait, que même en cas de la présence d'ions doublement ionisés, les conditions d'accord de phase restent favorables. La cible de manganèse a permis de générer les longueurs d'onde les plus courtes à ce jour à partir d'un plasma d'ablation avec une impulsion de longueur d'onde égale à 800 nm.

### **Effet de résonance : exemple de la cible d'indium**

Un autre intérêt de l'utilisation d'un plasma comme milieu non linéaire est le fait d'avoir accès à une gamme très large d'éléments. Il est alors possible de choisir une cible qui fournira

des atomes ou ions dans le plasma ayant un comportement exotique. Cela peut se traduire par la présence d'une transition résonante avec une des harmoniques du spectre. Nous allons illustrer ce phénomène grâce à la cible d'indium. En effet, lors de la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans un plasma d'indium, il apparaît une très forte résonance de la treizième harmonique du faisceau principal à 800 nm de longueur d'onde. Un exemple de spectre est donné dans la figure 1.12.

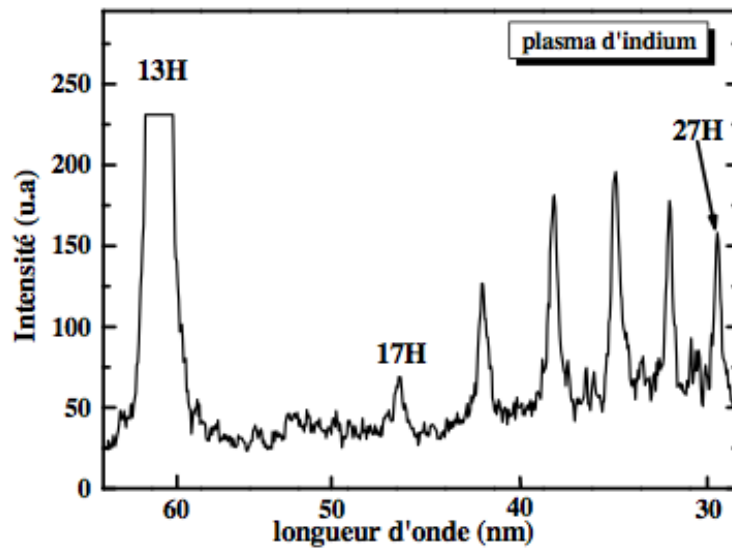


FIGURE 1.12 – Spectre d'harmoniques d'ordres élevés généré dans un plasma d'indium avec présence d'une forte résonance de la 13<sup>ème</sup> harmonique. Figure extraite de [30].

Plusieurs explications ont jusqu'ici été proposées afin d'expliquer cette augmentation d'intensité jusqu'à deux ordres de grandeur de l'harmonique 13. Premièrement, la possibilité de l'influence de la transition de l'état fondamental  $4d^{10} 5s^2 \ ^1S_0$  à l'état excité  $4d^{10} 5s 5p$  de l'ion  $In^+$  sur l'indice du milieu et donc l'accord de phase [30] a semblé fournir une explication satisfaisante. Ensuite, des modèles microscopiques [31–34] impliquant soit une ionisation non adiabatique dans le cas du travail développé dans [32] soit, le passage de l'électron par un niveau auto-ionisant lors du processus de recombinaison [34]. Cette dernière explication semble être en bon accord avec l'expérience [31]. On peut noter une disparition de l'harmonique 15. L'origine de cette disparition n'est pas discutée dans les travaux cités et donc,

l'origine microscopique ou macroscopique de cette disparition ne peut pas être confirmée dans ce travail de thèse. Nous commenterons simplement le fait qu'il est généralement possible de « modifier »() significativement le spectre harmonique dans le cas des plasmas en changeant les conditions de propagation (longueurs du milieu, position du point focal, ionisation du milieu).

**Effet d'accord de phase** Il ne semble pas pertinent de faire entièrement le traitement présenté dans l'article [30]. Nous allons cependant en exposer les principaux points.

Le modèle proposé considère donc les effets macroscopiques d'accord de phase de l'harmonique  $q$  et calcule le terme de déphasage  $\Delta k_q = k_q - qk_1 = \frac{2\pi}{\lambda_q}(\eta(\lambda_q) - \eta(\lambda_1))$ .  $k_q$  est le vecteur d'onde associé à l'harmonique  $q$  de longueur d'onde  $\lambda_q$ ,  $k_1$  celui associé à l'onde fondamentale de longueur d'onde  $\lambda_1$  et  $\eta(\lambda)$  est l'indice du plasma pour la longueur d'onde  $\lambda$ .

Or, le calcul numérique de la composition du plasma dans les conditions de l'expérience montre que les espèces responsables cette forte résonance sont le plus vraisemblablement les ions  $\text{In}^+$ . Le terme d'indice du milieu est alors la somme des contributions électroniques et ioniques. L'influence des électrons libres du plasma est facilement calculable, mais, afin de connaître celle des ions, il est nécessaire d'utiliser l'équation de Sellmeier appliquée dans le cas d'une résonance à la longueur d'onde  $\lambda_k$ .

La figure 1.13 montre l'influence du terme de déphasage sur l'intensité de la 13<sup>ème</sup> harmonique. On remarque que la partie réelle  $\Delta k_{13}$  s'annule pour une certaine valeur de la longueur d'onde très proche de la 13<sup>ème</sup> harmonique du 800 nm. Cette partie réelle représentant l'accord de phase au sein du milieu, on constate que celle-ci devient nulle pour cette longueur d'onde particulière. Il y a donc accord de phase parfait pour la 13<sup>ème</sup> harmonique du 800 nm. La partie imaginaire du terme de déphasage, relative à l'absorption du milieu, étant aussi faible pour cette longueur d'onde, il s'en suit une valeur élevée de l'intensité de l'harmonique. Dans l'étude précédente, la phase intrinsèque de l'onde XUV et l'ionisation

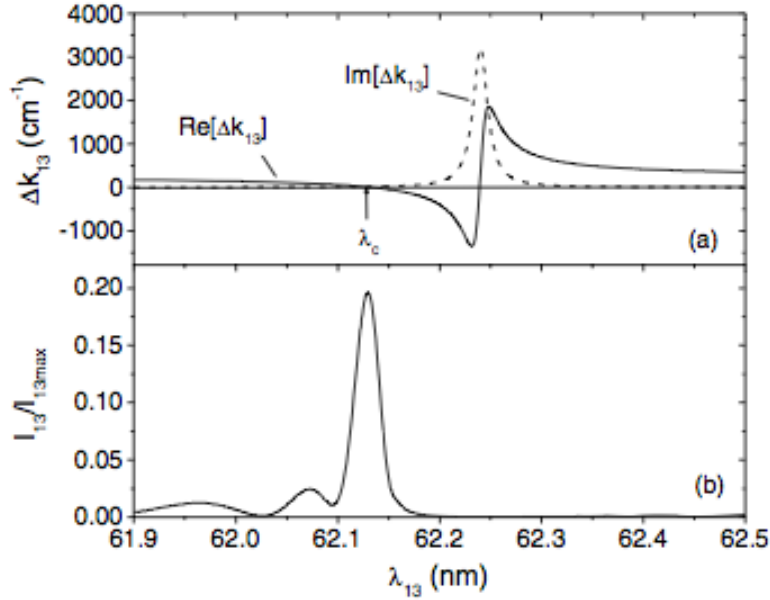


FIGURE 1.13 – (a) Parties imaginaires et réelles du terme de déphasage. (b) Intensité de l’harmonique associée au terme de déphasage de la 13<sup>ème</sup> harmonique. Figure extraite de [30].

due à l’onde fondamentale sont omises. Il est probable que la contribution de ces deux termes deviennent négligeable en présence d’une résonance. Il conviendrait néanmoins d’analyser les orders de grandeur.

**Explication microscopique** Nous traiterons ici deux modèles microscopiques impliquant tous deux la présence d’un niveau résonant avec la fréquence du laser et une des harmoniques. C’est-à-dire, il faut que la fréquence de la transition  $\Delta\omega$  depuis le niveau fondamental de l’espèce jusqu’au niveau excité soit un multiple entier impair de la longueur d’onde du laser  $\omega$ ,  $\Delta\omega = (2k + 1)\omega$ . La différence entre les deux modèles réside dans quelle étape apparaît la transition entre le niveau fondamental et le niveau excité.

Le premier modèle sera décrit très brièvement. Il fut développé par Milosevic et al. dans [32, 33]. Ce modèle implique la transition depuis le niveau fondamental vers le niveau excité durant l’étape de ionisation. Le signal harmonique devient alors la superposition du signal depuis le niveau fondamental et depuis le niveau excité résonant avec une des harmoniques du spectre. Si les niveaux sont de même parité, la génération depuis la superposition des

deux états mènera à une simple augmentation du signal pour l'harmonique résonante et dans une moindre mesure pour les harmoniques adjacentes. Cependant, lorsque les niveaux sont de parité différente, l'auteur énonce la possibilité d'émission stimulée si la transition est très efficace et donc que l'inversion de population est possible. Il montre numériquement que dans ce cas, une forte augmentation de l'intensité de l'harmonique résonante apparaît.

Le deuxième modèle proposé par V. Strelkov dans [34] a une approche différente quant au rôle du niveau résonant. En effet, partant de la constatation que le modèle précédent n'expliquait que partiellement la très forte augmentation d'une harmonique isolée et non toute une gamme d'harmonique, il a été proposé le modèle impliquant le niveau résonant durant l'étape de recombinaison. L'électron, ionisé depuis le niveau fondamental se propage dans le continuum et au lieu de recombiner directement dans le niveau fondamental, celui-ci sera « piégé » dans l'état autoionisant pour ensuite relaxé vers le niveau fondamental. Ce modèle à quatre étapes pourrait paraître peu efficace au premier abord, mais, si une section efficace inélastique de diffusion élevée est combinée à une transition de force d'oscillateur importante, le processus à quatre étapes peut devenir extrêmement efficace. Une illustration du modèle à quatre étapes tel qu'énoncé dans le travail cité ici est donnée dans le figure 1.14.

L'auteur présente deux approches numériques. La première basée sur le traitement de l'équation de Schrödinger dépendante du temps appliquée dans le cas d'un potentiel incluant un niveau autoionisant. La deuxième approche analytique mène elle à une formule assez simple pouvant décrire l'augmentation du signal de l'harmonique résonante par rapport au cas non résonant. Cette formule prend la forme :

$$\frac{|f_{ai-g}|^2}{|f_{c-g}|^2} = \frac{2\pi\Omega^3 f_{osc}}{\omega p^3 [Z^* M(p)]^2} \left[ \frac{\Gamma^2}{4(\Omega - q\omega)^2 + \Gamma^2} \right] \quad (1.42)$$

$|f_{ai-g}|^2$  et  $|f_{c-g}|^2$  sont respectivement les intensités dans le cas de la présence d'un niveau autoionisé et dans le cas d'une transition depuis le continuum.  $\Gamma$  est le taux de désexcitation du niveau autoionisé vers le niveau fondamental,  $f_{osc}$  est la force d'oscillateur de la même transition de fréquence  $\Omega$ . Les grandeurs  $M(p)$ ,  $p$  étant le moment canonique, et  $Z^*$  la charge



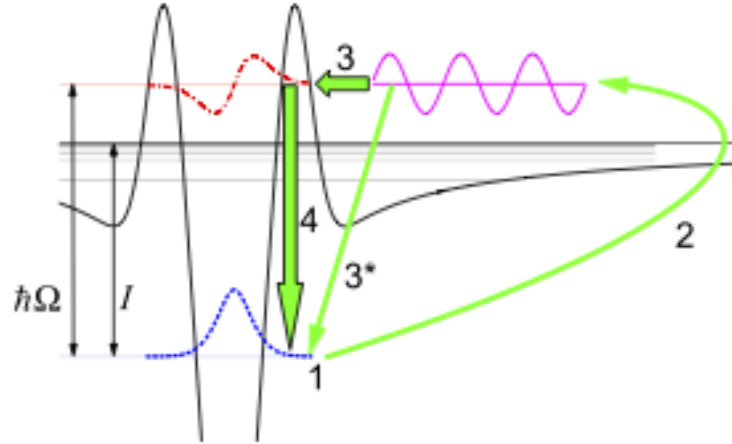


FIGURE 1.14 – Illustration du modèle à 4 étapes : 1) l'électron est ionisé depuis le niveau fondamental 2) Propagation dans le continuum 3) Piégeage dans le niveau autoionisé ou 3\*) Recombinaison vers le niveau fondamental 4) Désexcitation vers le niveau fondamental. Figure extraite de [34].

effective de l'ion parent sont données par :

$$M(p) = 4i\sqrt{\pi} \frac{[p - \arctan(p)]}{p^3} \quad \text{et} \quad Z^* = \sqrt{\frac{I_p}{R}} \quad (1.43)$$

$I_p$  est le potentiel d'ionisation de l'espèce et  $R$  le Rydberg.

La figure 1.15 représente les résultats numériques ainsi qu'expérimentaux obtenus par différents groupes. L'auteur attribue la divergence des résultats numériques obtenus d'un côté par la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps et de l'autre par le modèle analytique essentiellement au fait que les valeurs des forces d'oscillateur sont mal reproduites par le potentiel utilisé dans la résolution de l'équation de Schrödinger. Cependant, on observe un très bon accord avec les résultats expérimentaux.

Également, une mesure [31] du profil femtoseconde et attoseconde de l'impulsion XUV générée à partir d'un ion comportant une résonance a été réalisée (dans le cas précis, les ions  $\text{Sn}^+$ ). Les résultats expérimentaux sont en accord avec notamment la brisure de continuité de la phase spectrale aux alentours de l'harmonique résonante.

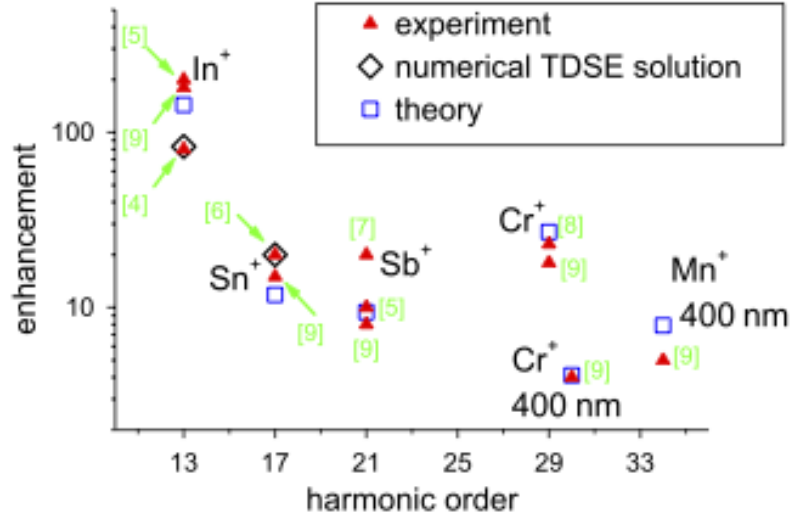


FIGURE 1.15 – Comparaison des valeurs numériques et expérimentales obtenues pour l’augmentation d’intensité des harmoniques résonantes de plusieurs ions. Figure extraite de [34].

Il est à noter que, bien que ce modèle microscopique soit en très bon accord avec les résultats expérimentaux, il semble néanmoins primordial de considérer les effets d’accord de phase exposés précédemment.

### Particularités des cibles de nanoparticules

Un dernier résultat à exposer est la génération d’harmoniques d’ordres élevés à partir d’une cible composée de nanoparticules. Ce sujet sera discuté en détail tout au long de ce travail de thèse, nous expliquerons donc l’état des résultats au commencement de ce doctorat.

Nous allons prendre l’exemple des nanoparticules d’oxyde d’indium. D’autres types de nanoparticules comme celles d’argent, d’or ou d’oxyde de chrome ont également été testés, mais la tendance des résultats est assez similaire [35–38]. De plus, étant donné la description que nous venons de faire de la génération d’harmoniques d’ordres élevés dans un plasma issu de l’ablation d’un cible solide d’indium, il semble pertinent de considérer cet exemple précis à fin de comparaison.

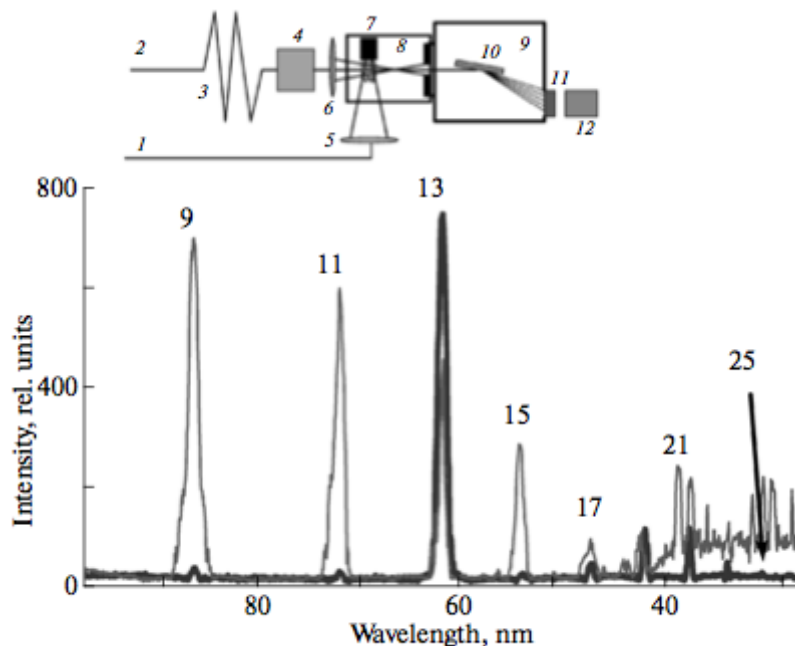


FIGURE 1.16 – Comparaison du signal harmonique issu d’un cible solide d’indium (trait épais) et d’une cible d’oxyde d’indium  $In_2O_3$  (traits fin). La figure représente également le montage expérimental permettant l’obtention de ces spectres. Figure extraite de [36].

La figure 1.16 représente en trait épais le signal obtenu à partir d’un plasma issu d’une cible solide d’indium et en trait fin, celui obtenu à partir de la cible de nanoparticules d’oxyde d’indium  $In_2O_3$ . Ces deux figures non normalisées sont représentées à la même échelle. On observe évidemment la forte résonance de la 13<sup>ème</sup> harmonique pour la cible solide d’indium dû à la présence des ions  $In^+$  au sein du plasma. On note par contre que dans le cas de la cible de nanoparticules, il n’y a pas de phénomène de résonance d’un harmonique isolée. Cependant, l’intensité des basses harmoniques (ordres 9 à 17) est comparable, voire supérieure à celle de l’harmonique résonante des ions  $In^+$ . Or, l’efficacité de conversion dans le cas d’une résonance de l’ion indium avait été évalué à  $10^{-4}$  [30, 34], donc deux ordres de grandeur supérieurs aux efficacités communément observées dans le cas de la génération d’harmoniques d’ordres élevés à partir de gaz nobles. On peut donc estimer l’efficacité de génération du même ordre dans le cas des cibles de nanoparticules, mais cette fois-ci pour

toute une gamme de longueurs d'onde. Les mesures de l'énergie par impulsion dans le cas de l'indium n'ont pas été vérifiées dans le cadre de cette thèse.

L'auteur attribut cette très forte efficacité de génération à la présence de nanoparticules dans le plasma d'ablation. En effet, dans le cas de la génération d'harmoniques d'ordres élevés à partir de nanoparticules neutres, une forte influence de l'ion parent impliquerait une probabilité de recombinaison beaucoup plus élevée et donc mènerait à un mécanisme de génération efficace. Ces résultats sont corroborés par la mesure de la composition de dépôts réalisés à partir du plasma d'ablation de nanoparticules utilisé durant la génération des harmoniques.

Nous verrons que nous nuancerons cette proposition de mécanisme dans la suite de ce travail de thèse. Mais il est cependant indéniable que le caractère nanométrique de la cible de départ est d'une très forte importance. Cependant, même si les efficacités de conversion sont extrêmement élevées, ce type de cible est très rapidement ablaté ainsi que fortement inhomogène. Donc, le signal harmonique est instable et perd très rapidement son intensité ce qui rend très improbable l'utilisation de telles cibles en l'état pour de futures applications de la source harmonique.

## 1.4 Intérêt des cibles carbonées et objectifs de recherche

Comme dans le cas des cibles de nanoparticules d'oxyde d'indium, les cibles de nanoparticules carbonées (fullerènes, poudres de types suies, etc.) ont montré une très forte efficacité de conversion égale, voire supérieure aux autres nanoparticules. Au premier abord il a semblé que, de manière similaire aux autres cibles, les cibles de nanoparticules de carbonées étaient plus efficaces que le carbone solide (graphite) [39]. Cependant, en variant les paramètres de la préimpulsion, il s'est avéré possible de trouver des conditions telles que l'efficacité de génération à partir de la cible de graphite était similaire à celle des nanoparticules, cf figure 1.17. Il est donc possible d'allier la relative stabilité du signal issu d'une cible solide à celle

de la forte efficacité de génération des cibles de nanoparticules.

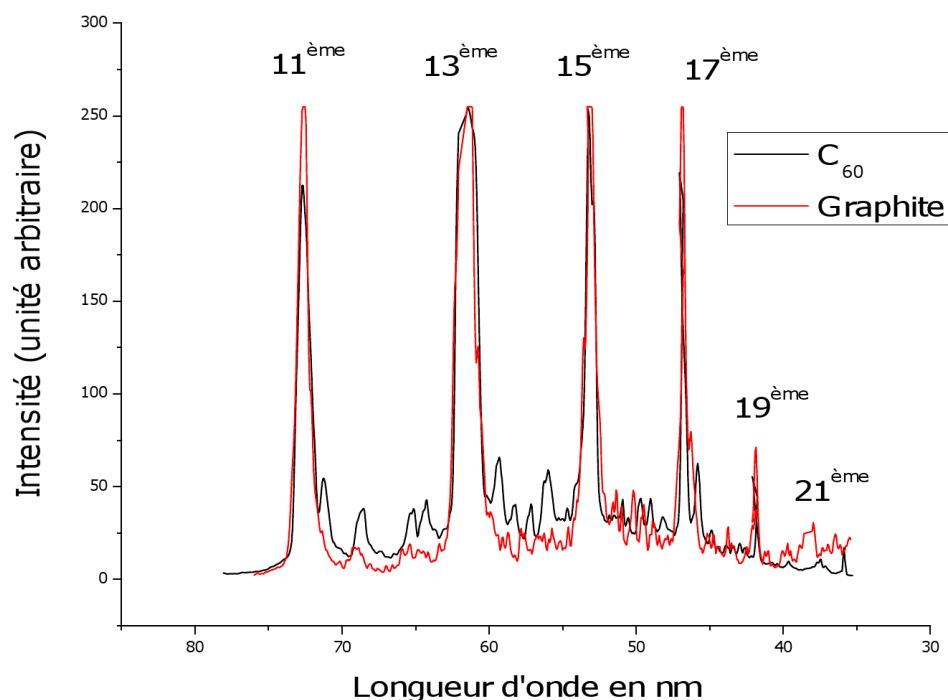


FIGURE 1.17 – Comparaison du signal harmonique issu d’une cible de carbone solide (graphite) (courbe noire) et d’une cible de nanoparticules de  $C_{60}/C_{70}$ . Figure réalisée à partir des données publiées dans [40].

Les possibles raisons de la haute efficacité de génération même dans le cas d’une cible solide de carbone feront l’objet de toute une partie de ce mémoire de thèse, nous n’en discuterons donc pas ici. Nous partirons donc de la constatation de ce résultat afin de définir le cadre de ce travail de thèse.

Tout d’abord, un point qui semble primordial est la nécessaire compréhension des mécanismes de génération des harmoniques d’ordres élevés au sein d’un plasma d’ablation issu d’une cible solide de carbone. Pour cela, différents types de cibles solides ou nanoparticulaires ont été testées. L’optimisation des paramètres de génération ou l’étude des spectres nous a permis de déduire certains mécanismes.

Un autre volet de ce travail a été la démonstration de la génération d’harmoniques d’ordres élevés à partir d’un plasma d’ablation en tant que possible source pour des applications de spectroscopie résolue en temps. Ce chapitre nous permettra de mettre en lumière les atouts de la méthode plasma, mais aussi d’identifier le travail qu’il reste à faire afin que la génération d’harmoniques d’ordres élevés dans un plasma d’ablation devienne une alternative viable à la génération d’harmoniques dans les gaz.

## 1.5 Résumé du premier chapitre

Nous avons donc vu que l’ionisation d’un atome ou d’une molécule en présence d’un champ fort a nécessité le développement de nouveaux outils théoriques principalement basé sur le traitement de la matrice  $S$ . Même si ces théories sont apparues durant les années 70, il aurait fallu attendre les années 90 avant de voir le réel développement de la recherche sur l’interaction matière-lumière dans le régime de champ fort.

La première étape à toute interaction entre le champ et la particule est l’ionisation. Des modèles comme ceux développés par Keldysh [10] ou Ammosov, Delone et Krainov [14] fournissent des formules simples de la probabilité d’ionisation en fonction des paramètres de l’atome et laser. Plus tard, en considérant la probable recombinaison avec l’ion lui ayant donné naissance, le sujet de la génération d’harmoniques d’ordres élevés est apparu dans le domaine général de l’interaction matière-lumière. Depuis, un grand nombre de types de particules à partir desquelles il est possible de générer des harmoniques ont été testés. Notamment, notre équipe s’est orientée vers une technique originale impliquant la production d’un plasma d’ablation à fin de milieu non linéaire.

Après plusieurs années de recherche sur le sujet, une cible a semblé montrer des propriétés intéressantes notamment en terme de flux XUV généré, la cible de graphite. Un comportement similaire aux cibles de nanoparticules y est observé, mais tout en conservant l’avantage de la stabilité du signal issu d’une cible solide.

## Références du premier chapitre

- [1] U. Teubner and P. Gibbon. High-order harmonics from laser-irradiated plasma surfaces. *Rev. Mod. Phys.*, 81 :445–479, Apr 2009.
- [2] C. Thaury and F. Quéré. High-order harmonic and attosecond pulse generation on plasma mirrors : basic mechanisms. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 43(21) :213001, 2010.
- [3] J. L. Krause, K. J. Schafer, and K. C. Kulander. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Phys. Rev. Lett.*, 68 :3535–3538, Jun 1992.
- [4] J. J. Macklin, J. D. Kmetec, and C. L. Gordon. High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 70 :766–769, Feb 1993.
- [5] K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause. Theoretical model for intense field high-order harmonic generation in rare gases. *Laser Physics*, 3 :359–364, 1993.
- [6] P. B. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71 :1994–1997, Sep 1993.
- [7] H. G. Muller and F. C. Kooiman. Bunching and focusing of tunneling wave packets in enhancement of high-order above-threshold ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 81 :1207–1210, Aug 1998.
- [8] Z. Chang. *Fundamentals of Attosecond Optics*. CRC Press, 2011.
- [9] H.R. Reiss. *Theoretical Methods in Quantum Optics : S-matrix and Keldysh Techniques for Strong-field Processes*. Progress in quantum electronics. Pergamon Press, 1992.
- [10] L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave ionization in the field of a strong electromagnetic wave ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Soviet Physics JETP*, 20(5), 1965.
- [11] F. H. M. Faisal. Collision of electrons with laser photons in a background potential. *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, 6(11) :L312, 1973.

- [12] H. R. Reiss. Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system. *Physical Review A*, 22(5), 1980.
- [13] V. S. Popov A. M. Perelomov and M. V. Terent'ev. Ionization of atoms in an alternating electric field. *Soviet Physics JETP*, 23(5), 1966.
- [14] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Soviet Physics JETP*, 64 :4–7, 1986.
- [15] X. M. Tong, Z. X. Zhao, and C. D. Lin. Theory of molecular tunneling ionization. *Phys. Rev. A*, 66 :033402, Sep 2002.
- [16] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 1994.
- [17] P. Balcou, P. Salières, A. L'Huillier, and M. Lewenstein. Generalized phase-matching conditions for high harmonics : The role of field-gradient forces. *Physical Review A*, 55(4) :3204–3210, April 1997.
- [18] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, C. Dorrer, Le C. Blanc, F. Salin, and P. Agostini. Optimizing high harmonic generation in absorbing gases : model and experiment. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :1668–1671, 1999.
- [19] T. Popmintchev, M.-C. Chen, A. Bahabad, M. Gerrity, P. Sidorenko, O. Cohen, I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Phase matching of high harmonic generation in the soft and hard X-ray regions of the spectrum. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 106(26) :10516–21, June 2009.
- [20] P. Balcou, A. S. Dederichs, and M. B. Gaarde. Quantum-path analysis and phase matching of high-order harmonic generation and high- order frequency mixing processes in strong laser fields. *J. Phys. B*, 2973, 1999.



- [21] E. Priori, G. Cerullo, M. Nisoli, S. Stagira, S. De Silvestri, P. Villoresi, L. Poletto, P. Ceccherini, C. Altucci, R. Bruzzese, and C. de Lisio. Nonadiabatic three-dimensional model of high-order harmonic generation in the few-optical-cycle regime. *Physical Review A*, 61(6) :1–8, May 2000.
- [22] E. Takahashi, V. Tosa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa. Experimental and theoretical analyses of a correlation between pump-pulse propagation and harmonic yield in a long-interaction medium. *Phys. Rev. A*, 68 :023808, Aug 2003.
- [23] P. Salieres and T. Ditmire. Angular distributions of high-order harmonics generated by a femtosecond laser. *Journal of Physics B*, 4771, 1996.
- [24] E. J. Takahashi, H. Hasegawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa. beam splitter for high-order harmonics in the extreme-ultraviolet region. *Optics Letters*, 29(5) :507–509, 2004.
- [25] T. Kita, T. Harada, N. Nakano, and H. Kuroda. Mechanically ruled aberration-corrected concave gratings for a flat-field grazing-incidence spectrograph. *Applied optics*, 25(23) :4228, December 1986.
- [26] T. Harada, K. Takahashi, H. Sakuma, and A. Osyczka. Optimum design of a grazing-incidence flat-field spectrograph with a spherical varied-line-space grating. *Applied optics*, 38(13) :2743–8, May 1999.
- [27] J. Edelstein, M. C. Hettrick, S. Mrowka, P. Jelinski, and C. Martin. Extreme UV measurements of a varied line- space Hitachi reflection grating : efficiency and scattering. *Applied op*, 23 :3267, 1984.
- [28] N. Nakano, H. Kuroda, T. Kita, and T. Harada. Development of a flat-field grazing-incidence XUV spectrometer and its application in picosecond XUV spectroscopy. *Applied optics*, 23(14) :2386, July 1984.
- [29] R. Ganeev, L. Bom, J.-C. Kieffer, M. Suzuki, H. Kuroda, and T. Ozaki. Demonstration of the 101st harmonic generated from a laser-produced manganese plasma. *Physical*

*Review A*, 76(2), August 2007.

- [30] L.-B. Elouga-Bom, F. Bouzid, F. Vidal, J.-C. Kieffer, and T. Ozaki. Correlation of plasma ion densities and phase matching with the intensities of strong single high-order harmonics. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 41(21) :215401, November 2008.
- [31] S. Haessler, V. Strelkov, L. B. Elouga Bom, M. Khokhlova, O. Gobert, J.-F. Hergott, F. Lepetit, M. Perdrix, T. Ozaki, and P. Salières. Phase distortions of attosecond pulses produced by resonance-enhanced high harmonic generation. *New Journal of Physics*, 15(1) :013051, 2013.
- [32] D. B. Milošević. High-energy stimulated emission from plasma ablation pumped by resonant high-order harmonic generation. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 40(17) :3367–3376, September 2007.
- [33] D. B. Milosevic. Theoretical analysis of high-order harmonic generation from a coherent superposition of states. *J. Opt. Soc. Am. B*, 23(2) :308–317, Feb 2006.
- [34] V. Strelkov. Role of Autoionizing State in Resonant High-Order Harmonic Generation and Attosecond Pulse Production. *Physical Review Letters*, 104(12) :26–29, March 2010.
- [35] R. a. Ganeev, L. B. Elouga Bom, and T. Ozaki. Application of nanoparticle-containing laser plasmas for optical harmonic generation. *Journal of Applied Physics*, 106(2) :023104, 2009.
- [36] R. a. Ganeev, L. B. Elouga Bom, and T. Ozaki. Generation of higher harmonics of femtosecond radiation in clusters. *Optics and Spectroscopy*, 108(6) :970–978, June 2010.
- [37] T. Ozaki, L.B. Elouga Bom, J. Abdul-Hadi, and R.a. Ganeev. Evidence of strong contribution from neutral atoms in intense harmonic generation from nanoparticles. *Laser and Particle Beams*, 28(01) :69, April 2010.
- [38] H. Singhal, R. a. Ganeev, P. a. Naik, A. K. Srivastava, A. Singh, R. Chari, R. a. Khan, J. a. Chakera, and P. D. Gupta. Study of high-order harmonic generation from nano-

particles. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 43(2) :025603, 2010.

- [39] R. a. Ganeev. Fullerenes : The attractive medium for harmonic generation. *Laser Physics*, 20(8) :1–19, July 2010.
- [40] Y. Pertot, L. B. Elouga Bom, V. R. Bhardwaj, and T. Ozaki. Pencil lead plasma for generating multimicrojoule high-order harmonics with a broad spectrum. *Applied Physics Letters*, 98(10) :101104, 2011.



# Chapitre 2

## LES LASERS À TECHNOLOGIE TITANE : SAPHIR

### 2.1 Introduction

Ce chapitre a pour objet la description de l'outil primordial pour l'étude de la génération d'harmoniques d'ordres élevés, le laser à technologie titane : saphir. Comme nous venons de le préciser, ce laser est un outil de travail, c'est-à-dire, il ne fait l'objet d'aucun développement particulier dans le cadre de ce travail de thèse. Cependant, il convient d'en comprendre les détails de fonctionnement, car ce sont eux qui caractériseront les propriétés des impulsions en sortie du boîtier laser. Il faut donc être capable de réaliser la mesure des propriétés des impulsions générées par le système laser et, en cas de problème, être capable d'identifier les possibles problèmes afin de les résoudre.

Dans ce but, nous commencerons tout d'abord par expliquer le fonctionnement général des lasers à technologie titane : saphir, en particulier les mécanismes permettant la génération d'impulsions courtes au sein de l'oscillateur. Puis, nous décrirons les méthodes d'amplification des impulsions permettant d'augmenter considérablement leur énergie et donc leur intensité, mais tout en conservant une durée proche de la durée d'origine.

## 2.2 Fonctionnement général des lasers

Les lasers, de façon générale, sont des dispositifs qui produisent ou amplifient une radiation cohérente pour des fréquences situées de l'infrarouge au domaine des rayons X récemment. Il existe actuellement une très grande variété de lasers englobant d'innombrables applications (allant de la médecine au refroidissement d'atomes). Les éléments essentiels d'un laser sont les suivants :

- un milieu amplificateur
- un système d'excitation ou «de pompe» permettant de créer l'inversion de population nécessaire à l'amplification
- le plus souvent une cavité (ou résonateur optique) permettant d'accroître la cohérence du rayonnement émis

Intéressons-nous maintenant au processus d'inversion de population. Un système à deux niveaux ne permet pas d'obtenir cette inversion de population à l'équilibre, même si une inversion transitoire entre deux niveaux est possible en cas d'excitation assez rapide. La nécessité de vider le niveau inférieur de la transition laser plus vite qu'il ne se remplit impose l'existence d'un troisième niveau. On adoptera dans la suite un modèle à trois niveaux<sup>1</sup> (voir fig 2.1).

Les niveaux seront notés comme suit, 0 pour le niveau fondamental, 1 pour le niveau inférieur de la transition, 2 pour le niveau supérieur. On notera également  $W_p$  la probabilité d'absorption par seconde du pompage  $0 \rightarrow 2$ ,  $\Gamma$  la probabilité de désexcitation non radiative par seconde du niveau 1 vers le niveau 0 et  $A$  la probabilité de désexcitation spontanée du niveau 2 vers le niveau 1. On arrive alors pour le bilan de population des niveaux à :

$$\frac{\Delta N}{N} = \frac{(\Gamma - A)W_p - A\Gamma}{(3W + 2A + \Gamma)W_p + (A + 2W)\Gamma} \quad (2.1)$$

Avec  $\Delta N = N_2 - N_1$  et  $N = N_0 + N_1 + N_2$ .

---

1. D'autres modèles existent, par souci de simplicité, seuls 3 niveaux seront considérés

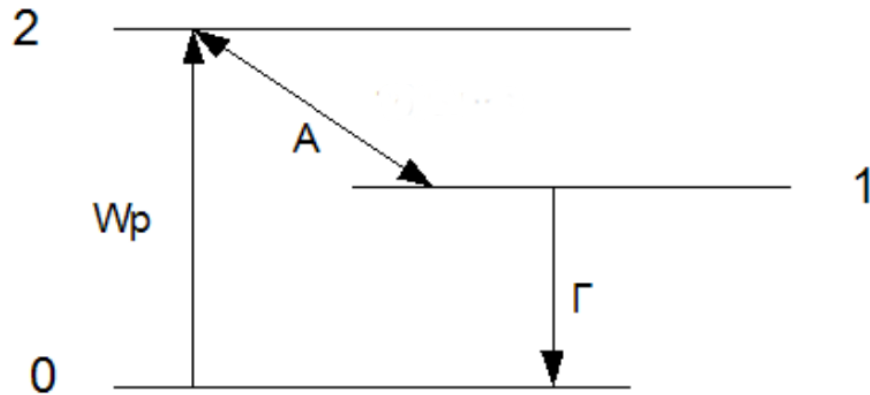


FIGURE 2.1 – Modèle à 3 niveaux : bilan de population appliqué au laser

Pour qu'il y ait inversion de population, il faut que le terme  $(\Gamma - A)W_p$  soit suffisamment grand et donc que  $\Gamma > A$ . Pour  $\Gamma \gg A$  la formule 2.1 se ramène à :

$$\frac{\Delta N}{N} = \frac{W_p - A}{W_p + A + 2W} \quad (2.2)$$

On arrive donc à une deuxième condition qui est  $W_p > A$ . La probabilité de pompage doit être supérieure à la probabilité d'émission spontanée. En résumé, pour que le phénomène d'amplification laser ait bien lieu, il est nécessaire de vider très efficacement le niveau inférieur de la transition laser et de peupler également efficacement le niveau supérieur de cette même transition. Le système doit donc être constamment hors équilibre pour que celui ne revienne pas vers une distribution de Maxwell-Boltzmann.

## 2.3 Cas des lasers à technologie Titane : Saphir

### 2.3.1 Principe général de fonctionnement

Le système laser développé à ALLS est basé sur la technologie Titane Saphir (Ti :Sa). Le cristal de saphir  $Al_2O_3$ , d'une excellente conductivité thermique, chimiquement stable, très

dur et réfractaire, est dopé avec des ions  $Ti^{3+}$  remplaçant certains ions  $Al^{3+}$ . L'avantage de ce matériau est de comporter une très large bande d'émission (entre 700 nm et 1100 nm) et une densité d'énergie de saturation très élevée.

Pour générer des impulsions ultra-brèves, les propriétés de la transformée de Fourier montrent que cette large bande spectrale est nécessaire. Le problème est, que pour générer ces impulsions ultra-courtes, tous les modes<sup>2</sup> contenus dans cette bande spectrale doivent pouvoir interférer de manière constructive. Il faut pour cela fonctionner en «modes bloqués», c'est-à-dire synchroniser tous les modes et bloquer leurs phases. La particularité de ce type de laser est de naturellement fonctionner en modes bloqués grâce à un phénomène non linéaire dans le cristal de saphir.

On sait aujourd'hui que le phénomène responsable de cet «autoblocage» de modes est l'effet Kerr. En effet, lorsque la densité de puissance augmente dans le cristal, son indice varie non linéairement :

$$n = n_0 + n_2 \cdot I \quad (2.3)$$

Où  $n_0$  est l'indice linéaire du cristal,  $n_2$  son indice non linéaire et  $I$  l'intensité de l'impulsion lumineuse. Lorsque les différents modes de la cavité seront synchronisés, ils vont interférer constructivement et produire une impulsion ultra-courte. Puisque l'intensité de cette impulsion sera beaucoup plus élevée que le reste du rayonnement dans la cavité, l'effet Kerr va induire une autofocalisation lorsque les modes seront synchronisés. Il va alors être possible de séparer spatialement le régime impulsionnel plutôt que continu. On introduira une perte qui sera plus grande pour le rayonnement continu et donc, le fonctionnement impulsionnel sera passivement favorisé dans la cavité.

Ce laser, appelé oscillateur, génère des impulsions d'une durée de l'ordre de 20 fs, avec une énergie de 4 nJ à une fréquence de 75 MHz. Cependant, cette énergie n'est pas suffisante pour les applications voulues. Il faut donc maintenant amplifier ces impulsions. Pour cela, la technologie CPA [1], pour « Chirped Pulse Amplification », a été utilisée.

---

2. fréquences amplifiées par la cavité laser  $\nu_n = n \cdot \frac{c}{L}$  avec L la longueur de la cavité



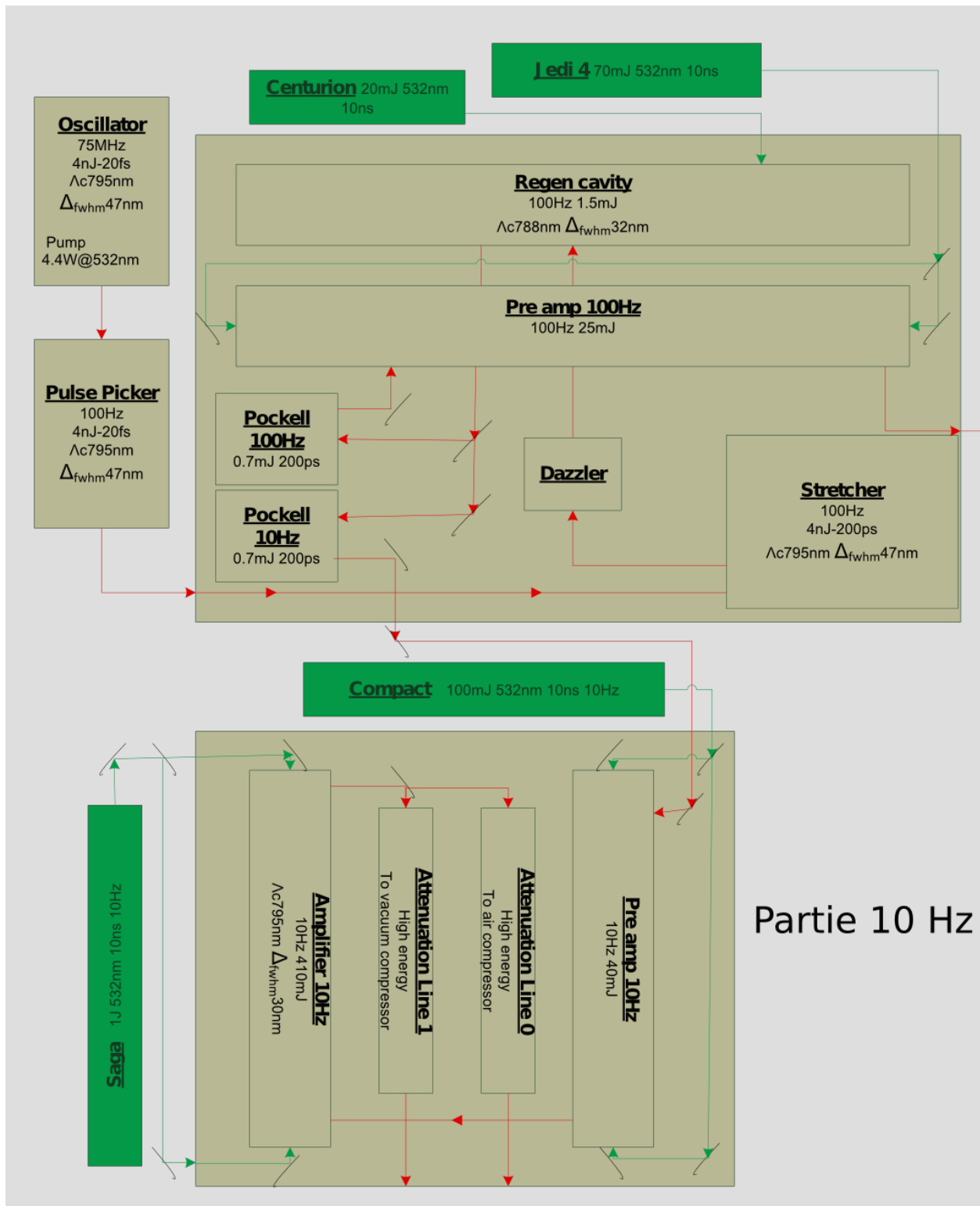


FIGURE 2.2 – Schéma du système laser installé dans le laboratoire ALLS. Les systèmes 10 Hz et 100 Hz partagent le même amplificateur régénératif. Le travail relatif à cette thèse a été mené sur la partie 10 Hz du système laser.

Le principe du CPA est tout d'abord, d'étirer temporellement l'impulsion grâce à un système de paire de réseau. Ensuite, il y a amplification de cette impulsion étirée puis enfin, compression sous vide. L'impulsion finale a généralement une durée supérieure à la durée des impulsions de l'oscillateur. Un schéma du montage expérimental est représenté en figure 2.2. La raison pour laquelle les impulsions sont d'abord étirées temporellement est que, si on amplifiait directement les impulsions ultra-brèves, toutes les optiques et notamment les cristaux Ti :Sa utilisés pour l'amplification ne supporteraient pas une telle intensité. Après amplification et avant compression, les impulsions ont une durée égale à 210 ps, une énergie maximale de 300 mJ à un taux de répétition de 10 Hz.

Dans le cas de la génération d'harmoniques d'ordres élevés, le faisceau est séparé en deux à la sortie du boîtier laser avant compression. Une première partie du faisceau non compressée est utilisée pour la création du plasma par ablation de la cible solide. Ensuite, la seconde partie du faisceau est envoyée dans un compresseur afin de retrouver une impulsion courte, qui servira à générer les harmoniques.

### 2.3.2 La méthode d'amplification par dérive de fréquence

Étant donné le fait que le principe d'amplification par décalage de fréquence est la technologie clé des lasers à Titane : Saphir, il convient d'en détailler un peu plus le fonctionnement. Comme énoncé plus haut, un oscillateur à cristal de Titane : Saphir permet de générer des impulsions ultra-courtes de l'ordre de la dizaine de femtoseconde. Cependant, pour de nombreuses applications, dont la génération d'harmoniques d'ordres élevés, l'énergie de sortie, environ quelques nanojoules, est beaucoup trop faible. Or, amplifier cette impulsion jusqu'à quelques millijoules tout en conservant sa durée d'impulsion détruirait les cristaux d'amplification ainsi que les différentes optiques. L'amplification par décalage de fréquence consiste donc à « étirer » temporellement l'impulsion avant amplification, puis amplifier cette impulsion dite « longue », 210 ps dans le cas du système 10 Hz du laboratoire ALLS. Cela évite donc tous les problèmes d'endommagement des optiques et cristaux ou bien les pro-

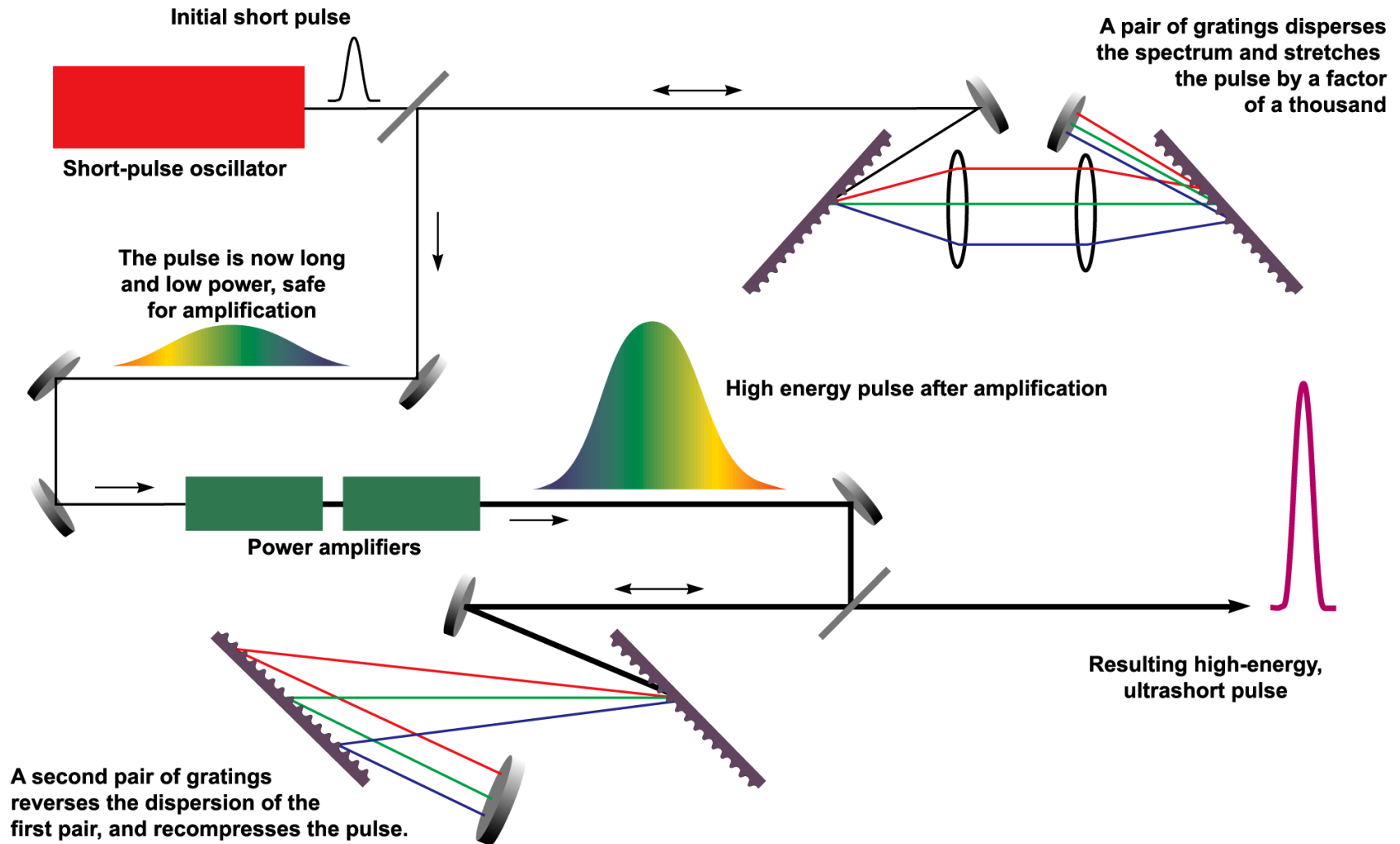


FIGURE 2.3 – Illustration du principe d'amplification par dérive de fréquence. L'impulsion en sortie de l'oscillateur est d'abord étirée temporellement, puis amplifiée dans l'amplificateur de puissance et enfin compressée afin de retrouver une durée d'impulsion la plus proche possible de celle en sortie de l'oscillateur. Figure extraite de [2].

blèmes de non-linéarités lors de la propagation dans les différentes pièces de verre tel que l'automodulation de phase.

Le but est donc maintenant d'obtenir un moyen d'allonger temporellement l'impulsion tout en étant capable de pouvoir la compresser de nouveau une fois le processus d'amplification terminé. Une des propriétés des impulsions ultras courtes, liées aux propriétés de la transformée de Fourier, est le fait qu'elles ont une bande spectrale très large. Par exemple, la largeur spectrale des impulsions en sortie de l'oscillateur pour le système 10-100 Hz du laboratoire [ALLS](#) est de 47 nm centrée autour de 795 nm. Il pourrait donc être possible d'utiliser la propriété des prismes dans lesquels les différentes longueurs d'onde se propagent à des vitesses différentes afin d'étirer l'impulsion puis de la compresser ensuite. Le problème de l'utilisation de prisme est le fait qu'il y a nécessité de propagation à travers une grande épaisseur de verre et donc, tous les problèmes énoncés plus haut sont susceptibles d'avoir lieu.

Une autre technique [\[1\]](#) sera donc préférée afin de décaler temporellement les différentes fréquences. Au lieu d'utiliser la différence de vitesse de phase au sein d'un milieu dispersif, la technique basée sur l'utilisation de paire de réseau de diffraction va introduire une différence de chemin entre les différentes composantes spectrales de l'impulsion. Certaines « couleurs » parcourront donc plus de distances que d'autres dans le dispositif d'étirement de l'impulsion. On parlera alors d'introduction d'un « chirp » dans l'impulsion, c'est-à-dire, la phase de l'impulsion sera une fonction du temps, quadratique idéalement. Une impulsion chirpée positivement verra donc les composantes rouges arriver avant les bleues et inversement pour une impulsion chirpée négativement. L'impulsion longue pourra alors être amplifiée par passages successifs dans un cristal de Titane : Saphir puis compressée de manière analogue, mais inverse grâce à l'utilisation de réseaux. Les différentes étapes qui viennent d'être décrites sont illustrées dans la figure [2.3](#).

## 2.4 Méthodes de caractérisation des impulsions ultra-courtes

### 2.4.1 Que doit-on mesurer pour caractériser une impulsion courte

Il est important de pouvoir caractériser précisément les impulsions avec lesquelles nous travaillons. En effet, étant donné l'extrême non-linéarité des processus physiques induits par cette impulsion, une petite variation des paramètres laser aura de grandes répercussions sur les processus d'interaction dans le milieu. Également, puisque nous travaillons généralement avec des intensités très élevées, il est très facile d'endommager des optiques par exemple si des zones de plus fortes intensités dans le profil spatial du faisceau sont présentes. Il va alors être nécessaire de connaître précisément les caractéristiques spatiales et temporelles des impulsions utilisées pour l'expérience. Pour cela, plusieurs méthodes de mesure existent. Nous ne donnerons pas une liste exhaustive de toutes les méthodes de mesures associées aux impulsions courtes, mais seulement celles utilisées dans le cadre de cette thèse.

### 2.4.2 Caractéristiques spatiales de l'impulsion laser

**Focalisation** Dans cette partie, il ne semble pas pertinent de décrire précisément les méthodes de mesures, car elles consistent généralement à réaliser un système d'imagerie au moyen de lentilles. Il est plus important d'identifier les points critiques des caractéristiques spatiales du faisceau et de donner quelques méthodes afin de les corriger.

Premièrement, dans la plus grande majorité des cas, le but est de travailler avec un faisceau le plus proche possible d'un faisceau dit gaussien. On parlera de faisceau gaussien si la distribution spatiale de l'intensité (proportionnelle à la moyenne du champ électrique au carré) pour un faisceau de longueurs d'onde  $\lambda$  peut s'écrire tel que :

$$I(r, z) = \frac{2P}{\pi w^2(z)} \exp\left(\frac{-2r^2}{w^2(z)}\right) \quad (2.4)$$

Avec  $P$  la puissance moyenne par impulsion et  $w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}$  le rayon du faisceau en fonction de la position le long de l'axe de propagation  $z$ . Les grandeurs  $w_0$  et  $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$  sont illustrées sur la figure 2.4.  $w_0$  est donc le diamètre du faisceau en  $z = 0$  représentant le point focal et  $z_R$  est nommé « longueur de Rayleigh » et représente la longueur selon la direction de propagation sur laquelle le faisceau est focalisé.

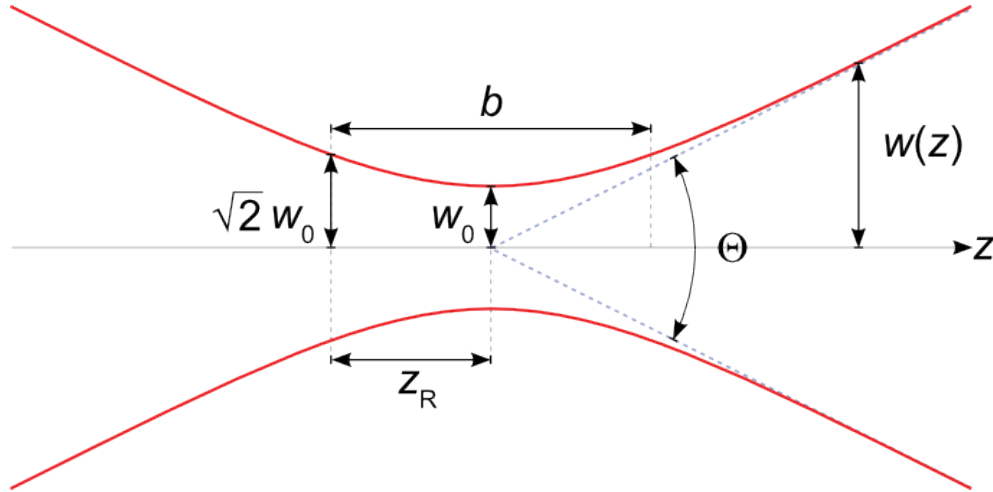


FIGURE 2.4 – Illustration des différentes quantités caractérisant un faisceau gaussien.

On remarque également sur la figure 2.4 la présence de la grandeur  $\Theta$ , la divergence du faisceau. Cette grandeur est donnée par :

$$\Theta = 2M^2 \frac{\lambda}{\pi w_0} \quad (2.5)$$

Dans cette formule apparaît la valeur  $M^2$  caractérisant si le faisceau est éloigné ou non d'un faisceau gaussien. En effet, pour un faisceau parfaitement gaussien,  $M^2 = 1$ , dans le cas contraire,  $M^2 > 1$ , le cas  $M^2 < 1$  est physiquement impossible. Or dans la plupart des expériences, la valeur de  $\Theta$  est fixée par la distance focale du système de focalisation ainsi que l'ouverture numérique. Alors, il est évident que plus  $M^2$  sera élevé, plus la valeur de  $w_0$  le sera aussi. Afin de générer des harmoniques d'ordres élevés, une des conditions nécessaire est d'obtenir une intensité suffisante dans le milieu de génération. Cela sera d'autant plus aisé

avec un petit rayon de faisceau au niveau du point focal, c'est-à-dire,  $w_0$  assez faible. Cela sera le cas pour un faisceau gaussien. Également, la « qualité » du point focal aura une forte influence sur les effets de propagation et d'accord de phase entre l'onde fondamentale laser et l'onde harmonique. Cette notion est abordée plus en détail ultérieurement. Il est cependant possible de corriger les défauts du faisceau grâce à la méthode du « filtrage spatial ».

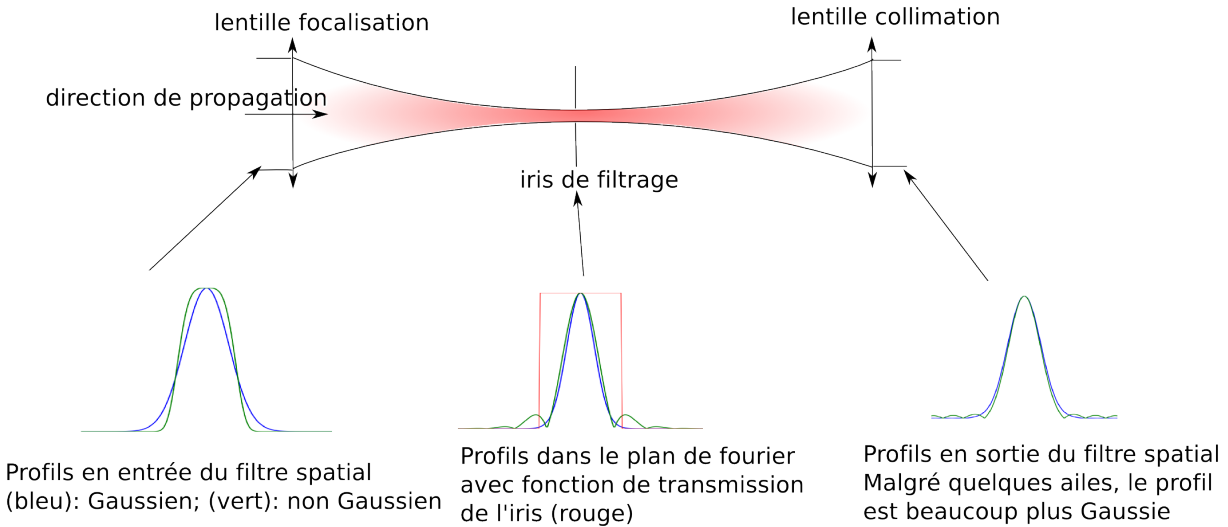


FIGURE 2.5 – Principe de fonctionnement d'un filtre spatial. L'impulsion de départ est de type super gaussienne puis après filtrage spatial, son profil se rapproche d'une gaussienne.

Avant d'expliquer à proprement dit le filtrage spatial, il convient d'introduire la notion de transformée de Fourier. Elle est plus intuitive lors du passage du domaine temporel au domaine des fréquences. En effet, la transformée de Fourier du champ électrique depuis le domaine temporel permet d'obtenir le spectre en intensité ainsi que la phase spectrale de l'onde. Or, il existe exactement la même équivalence dans le domaine spatial; le plan de Fourier étant le plan focal d'une lentille par exemple, la tâche focale représentera donc la transformée de Fourier de la distribution spatiale en intensité du faisceau. Lorsque le faisceau a une distribution spatiale en intensité parfaitement gaussienne, la tâche focale sera gaussienne également. Cependant, lorsque cette distribution en intensité est modifiée, cela se manifestera par l'apparition d'ordres plus élevés dans la tâche focale ainsi qu'un élargissement

du point focal central. Concrètement, plus le profil de l'impulsion s'éloignera d'un caractère gaussien, plus la tâche focale comportera des halos autour d'un point focal central lui-même élargi.

Le filtrage spatial consistera donc premièrement, à focaliser le faisceau afin de se placer dans le plan de Fourier puis, à bloquer les ordres élevés de la tâche focale grâce à l'utilisation d'un iris de petite taille. Après filtrage du faisceau et collimation de celui-ci, le profil spatial se verra grandement amélioré. L'effet du filtrage spatial sur deux différents types de profils est illustré en figure 2.5. On remarque que le profil non gaussien en entrée (vert) est très proche du faisceau gaussien en sortie du filtre. Généralement, la taille de l'iris est choisie afin de satisfaire la condition [3]  $d_{iris} = 1.5 \cdot d_{pointfocal}$  avec  $d_{pointfocal} = \frac{1.27\lambda f}{D_{faisceau}}$ ,  $f$  étant la distance focale de la lentille (ou du miroir) de focalisation et  $D_{faisceau}$  le diamètre (définition à  $\frac{1}{e^2}$  du faisceau avant focalisation. Cependant, il s'avère qu'expérimentalement, il y a généralement nécessité de trouver le diamètre optimum pour l'iris, compromis entre perte d'énergie minimum et meilleure amélioration du profil.

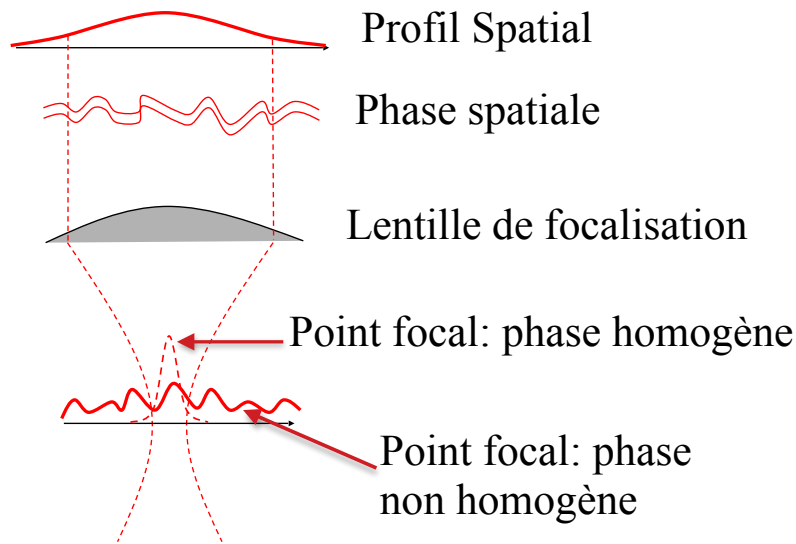


FIGURE 2.6 – Incidence de l'inhomogénéité du front de phase sur la focalisation d'un faisceau laser. Plus le front de phase sera distordu, plus il sera difficile de focaliser le faisceau.



**Front de phase** Comme nous le verrons ultérieurement, il est très important pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés d'avoir un front de phase le plus homogène possible. Concrètement, cela signifie qu'en dehors du point focal, la phase de l'onde ne doit pas dépendre de la distance radiale. Le caractère non homogène de la phase se traduit également par la présence de halos autour du point focal ainsi que de l'élargissement de celui-ci. Le filtrage spatial corrige donc aussi ce problème. Une représentation des conséquences de l'inhomogénéité du front de phase sur la focalisation est donnée en figure 2.6.

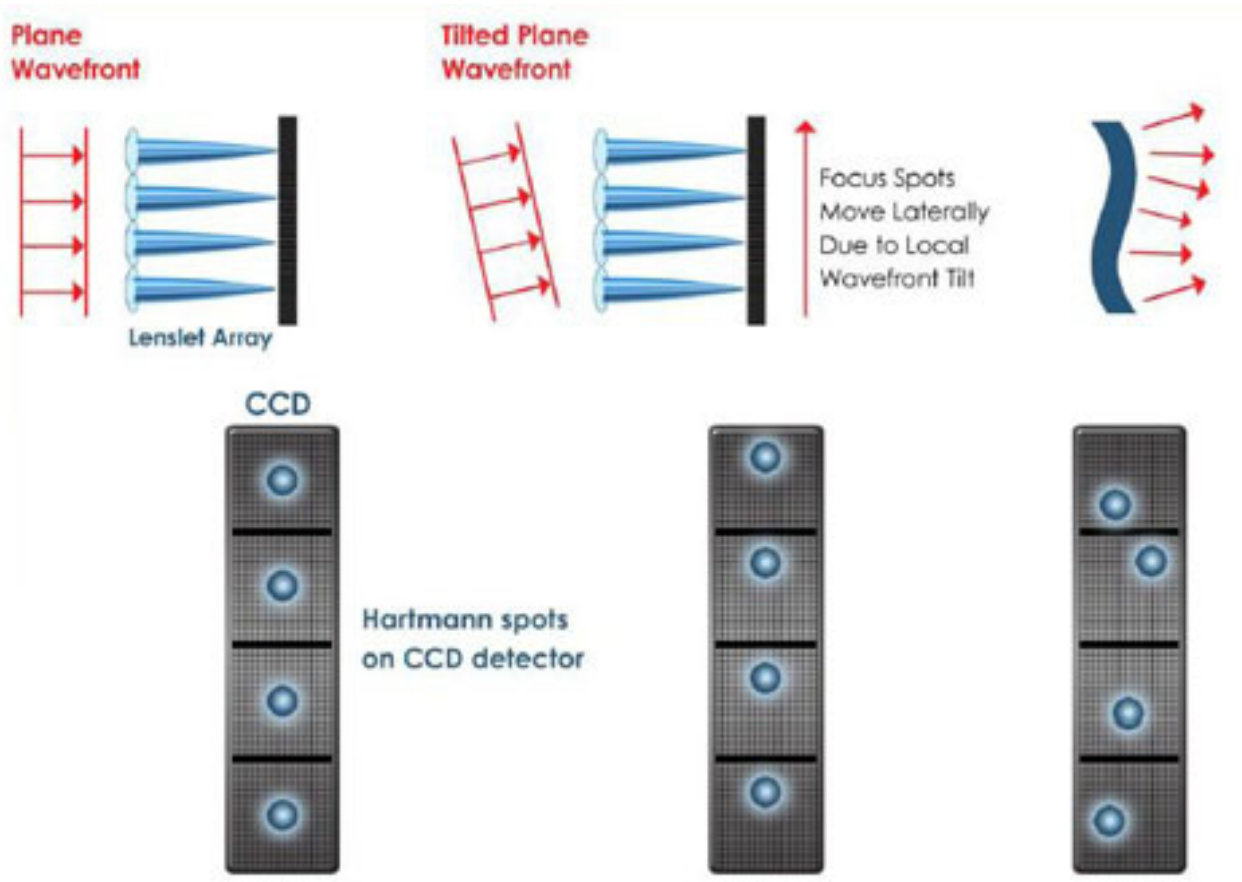


FIGURE 2.7 – Détecteur de front de phase Shack-Hartman. La déviation des différents points focaux des micros lentilles est liée à l'orientation du front de phase à chacune des micros lentilles. Auteur : B.M. Levine, Jet Propulsion Laboratory.

Cependant, on ne pourra pas quantifier la distribution spatiale de la phase seulement grâce au profil de la tâche focale. Plusieurs méthodes existent afin de mesurer cette distribution spatiale. Celle disponible dans le laboratoire ALLS consiste en un détecteur de front de

phase Shack Hartmann [4]. Il est composé d'une matrice à deux dimensions de micro lentilles. La position du point focal associé à chaque micro lentille sera dépendante de la courbure de front de phase au niveau de chaque lentille. Un capteur placé au niveau du plan défini par la position des points focaux des micros lentilles permet de mesurer la déviation de ceux-ci par rapport à leur position centrale. Cela est illustré sur la figure 2.7. Généralement, les systèmes laser sont livrés avec des caractéristiques satisfaisantes pour les futures expériences.

### 2.4.3 La méthode de mesure de durée d'impulsion SPIDER

**Principe de fonctionnement** Généralement, puisqu'il n'existe aucun appareil électronique capable de mesurer directement le profil temporel d'une impulsion de quelques dizaines (ou moins) de femtosecondes, la mesure sera faite dans le domaine spectral pour réaliser une reconstruction temporelle grâce à la transformée de Fourier. Cependant, il ne suffit pas de mesurer un spectre en amplitude pour accéder au profil de l'impulsion laser. En effet, celle-ci est caractérisée, non seulement par son profil spectral, mais également par sa phase spectrale tel que :

$$\underbrace{\tilde{I}(\omega)}_{\text{Profil spectral complet}} = \underbrace{I(\omega)}_{\text{Amplitude spectrale}} \times \underbrace{e^{i\phi(\omega)}}_{\phi(\omega) : \text{phase spectrale}} \quad (2.6)$$

Alors qu'il est facile de mesurer le terme d'amplitude, il l'est beaucoup moins d'accéder à la phase. Lorsque le terme de phase est constant et donc que l'impulsion est la plus courte possible, on dira que l'impulsion est limitée par transformée de Fourier. En effet, seule la largeur du spectre limite la durée de l'impulsion dans ce cas précis. Cependant, de nombreux facteurs sont susceptibles d'altérer la phase de l'impulsion laser. Tout d'abord, un décalage temporel de fréquence est volontairement introduit au moment de l'amplification. Cela implique que la fréquence dépend du temps  $\omega = \omega(t)$  et donc que la phase  $\omega(t) \cdot t$  en dépend également. Évidemment, cela implique que la phase  $\phi(\omega)$  obtenue par transformée de Fourier sera dépendante de  $\omega$ . De manière tout à fait équivalente, chaque réflexion ou

propagation à travers une pièce de verre ou de cristal impliquera une dispersion dépendante elle aussi de la longueur d'onde. Cependant, ces dernières ne sont pas quantitativement connues. Ce n'est donc pas parce que l'impulsion en sortie de compresseur est optimisée qu'elle le sera toujours sur cible. La mesure de la phase est donc cruciale.

La méthode de mesure complète de durée d'impulsion [SPIDER](#) [5] est basée sur le principe d'interférences par décalage spectral. Deux impulsions décalées spectralement et temporellement vont interférer dans un spectromètre. La trace du spectromètre  $S(\omega)$  sera décrite par l'équation :

$$\begin{aligned} S(\omega) &\propto |E(\omega) + E(\omega - \Omega)e^{i\omega\tau}|^2 \\ &\propto I(\omega) + I(\omega - \Omega) + 2\sqrt{I(\omega)I(\omega - \Omega)} \cos(\phi(\omega) - \phi(\omega - \Omega) - \omega\tau) \end{aligned} \quad (2.7)$$

Cette trace fait apparaître tout d'abord les amplitudes spectrales  $I(\omega)$  et  $I(\omega - \Omega)$  associées aux deux impulsions décalées spectralement, ainsi qu'un terme d'interférence relié à la phase spectrale  $\phi(\omega)$  inconnue. C'est cette dernière dont on souhaite faire la mesure. Le délai entre les deux impulsions  $\tau$  va pouvoir être obtenu par calibration comme nous allons l'expliquer.

La phase  $\phi(\omega)$  va pouvoir être calculée à partir de la trace du spectromètre grâce à un algorithme simple [6] dont les étapes sont les suivantes :

1. On réalise d'abord la transformée de Fourier inverse du spectrogramme afin d'obtenir le signal dans le domaine pseudo-temporel. En réalisant cette transformée de Fourier inverse, les 2 premiers termes  $I(\omega)$  et  $I(\omega - \Omega)$  vont donner un pic dont la largeur sera inversement proportionnelle à la largeur spectrale de ces deux termes et centrée sur  $t$ . Il contient l'information relative à l'amplitude. Ensuite, le terme d'interférence donnera lui deux satellites centrés sur  $t \pm \tau$  qui contiennent l'information sur la phase  $\phi(\omega)$ . Il convient donc de sélectionner un de ces deux satellites.
2. Après sélection de l'un des deux termes satellites, il est nécessaire de réaliser de nouveau la transformée de Fourier afin d'obtenir la phase spectrale. On obtient alors

un signal  $D(\omega, \Omega)$  tel que :

$$D(\omega, \Omega) = 2\sqrt{I(\omega)I(\omega - \Omega)}e^{i(\phi(\omega) - \phi(\omega - \Omega))}e^{-i\omega\tau} \quad (2.8)$$

La partie liée au délai entre les deux impulsions  $\omega\tau$  peut être obtenue grâce à la trace des deux impulsions fondamentales avant qu'elles interagissent avec le milieu permettant le décalage de fréquence. On alors accès au terme  $\Theta(\omega, \Omega) = \phi(\omega) - \phi(\omega - \Omega)$  dont il va falloir extraire l'information sur la phase.

3. Une méthode afin de reconstruire la phase est de traiter le terme  $\phi(\omega) - \phi(\omega - \Omega)$  comme une différence finie et donc :

$$\phi(\omega_N - \frac{\Omega}{2}) = - \sum_{n=0}^N \frac{\omega_{n+1} - \omega_n}{2\Omega} [\Theta(\omega_n) + \Theta(\omega_{n+1})] \quad (2.9)$$

Cette méthode est exacte pour retrouver les termes d'ordre deux (dispersion de vitesse de groupe) et d'ordre trois (dispersion d'ordre 3), ce qui en règle général sera suffisant. La mesure des ordres supérieurs dépendra de la valeur du décalage de fréquence  $\Omega$ , plus celui-ci sera faible, plus le calcul des ordres supérieurs sera précis. La partie en amplitude du spectre sera généralement obtenue à partir du spectre de calibration en raison d'un meilleur rapport signal sur bruit.

Il existe cependant quelques limitations à cette méthode de mesure. En effet, si le spectre en amplitude comporte des « trous », il ne sera pas possible de reconstruire la phase pour ces zones du spectre. En conclusion, il est nécessaire d'avoir un spectre assez homogène pour réaliser une bonne mesure.

**Réalisation expérimentale** Rappelons les différentes propriétés que chacune des impulsions doit comporter afin de satisfaire les conditions pour la mesure de durée d'impulsion par la méthode [SPIDER](#). Le point essentiel est d'introduire une différence de fréquence entre les deux impulsions qui servent à la mesure. Pour cela, puisque dans le cas d'impulsions courtes,

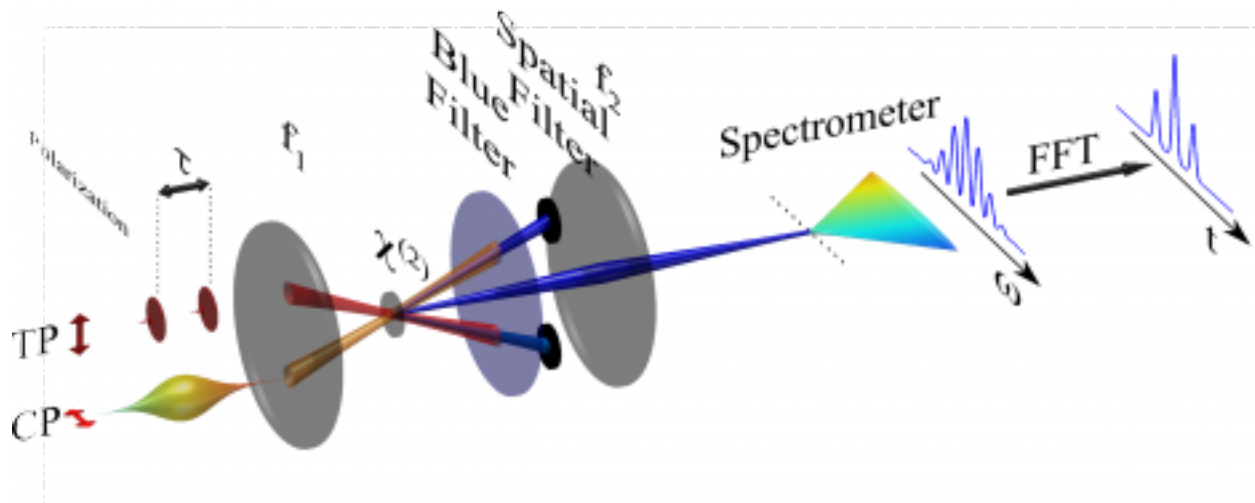


FIGURE 2.8 – Principe de mesure de la durée d’impulsion par la méthode **SPIDER**.

il y a nécessité d’avoir un spectre large, il est possible de faire interagir non linéairement deux impulsions décalées temporellement avec une impulsion « chirpée ». Cette dernière aura une phase quadratique par rapport au temps et donc, une fréquence évoluant linéairement dans le temps. On comprend alors qu’en faisant interagir deux impulsions courtes décalées temporellement avec une impulsion « chirpée » longue, ces deux impulsions vont interagir avec deux fréquences différentes. Il sera possible de supposer, si l’impulsion est suffisamment « chirpée », que chaque impulsion courte interagira avec une fréquence constante. Une méthode qui permet de réaliser cette interaction est le mixage de fréquences à l’intérieur d’un cristal doubleur comme le BBO. Une illustration du principe de mesure **SPIDER** est donnée en figure 2.8.

#### 2.4.4 La méthode de mesure de durée d’impulsion **FROG**

Concrètement, c’est une forme d’autocorrélation avec acquisition de l’information sur le spectre, on parle alors d’interférogramme. Le principe général de la mesure par autocorrélation est l’enregistrement du signal résultant de l’interaction entre une impulsion de référence et le signal à mesurer, ce qui nécessitera la présence d’une non-linéarité. Idéalement, la réponse du milieu devra être très rapide par rapport à la durée de l’impulsion à mesurer.

Cette non-linéarité peut prendre plusieurs formes comme la génération de seconde harmonique dans un cristal doubleur, la rotation de polarisation ou le mixage à quatre ondes, ces deux dernières méthodes exploitant l'effet Kerr dans du verre par exemple. Nous allons nous concentrer sur la mesure par effet Kerr dans un morceau de verre. Contrairement à la génération de seconde harmonique, cette méthode de mesure sera possible pour une large gamme de longueurs d'onde allant de l'ultra-violet (troisième harmonique d'un laser Ti : Sa) à l'infrarouge (sortie d'un OPA par exemple) [7, 8].

**Mesure FROG par rotation de polarisation** Examinons tout d'abord l'exemple impliquant la rotation de polarisation par effet Kerr. Un schéma du montage expérimental est représenté figure 2.9. Sans donner une description détaillée de la mesure et de l'algorithme permettant de remonter à l'information sur l'amplitude et la phase du champ électrique de l'onde mesurée, nous allons décrire les étapes principales pour l'exemple ci-dessous. Il a été choisi, car il semble plus intuitif et accessible pour la compréhension du principe de fonctionnement que le montage de mixage à quatre ondes.

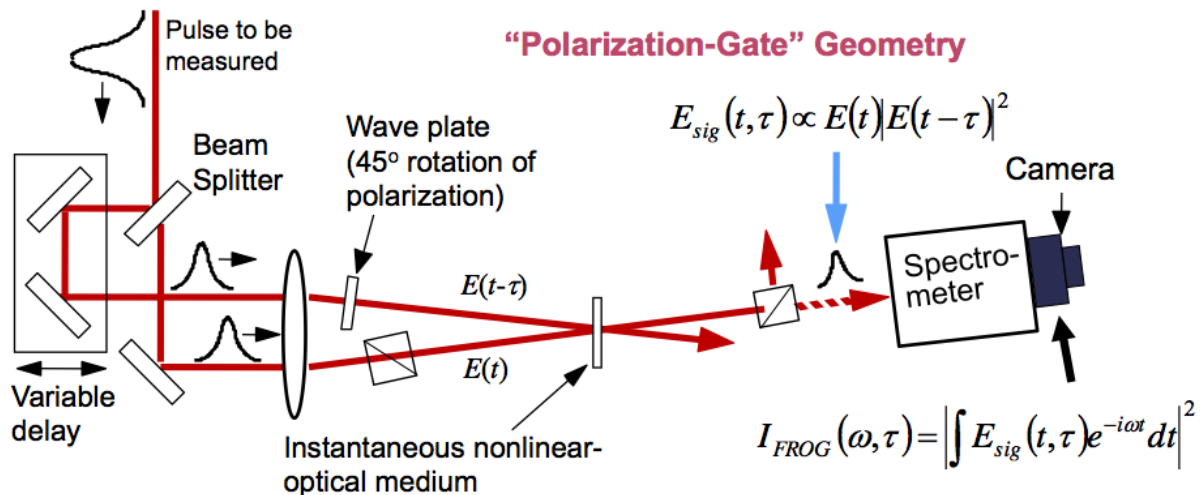


FIGURE 2.9 – Montage expérimental associé à la mesure de durée d'impulsion par la méthode PG-FROG. Figure extraite de [9].

Tout d'abord, examinons grâce à l'exemple de montage expérimental ci-dessous comment

fonctionne le système. Le faisceau est divisé en deux afin de créer l'impulsion de référence et le signal à mesurer. Il est à noter que référence et signal sont identiques. La polarisation de l'impulsion de référence est tournée afin d'induire, ultérieurement, la rotation de la polarisation de l'impulsion que l'on mesure lors de l'interaction dans le milieu à effet Kerr. En effet, un polariseur est placé de telle sorte qu'en l'absence de l'impulsion de référence, il n'y a pas de signal dans le spectromètre. L'impulsion de référence agira donc comme un interrupteur qui ne laissera passer que la superposition des deux ondes et donc, le spectrogramme  $S(\omega, \tau)$  fonction du délai  $\tau$  entre les deux impulsions obtenu pourra être décrit par :

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} E(t)g(t - \tau)e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (2.10)$$

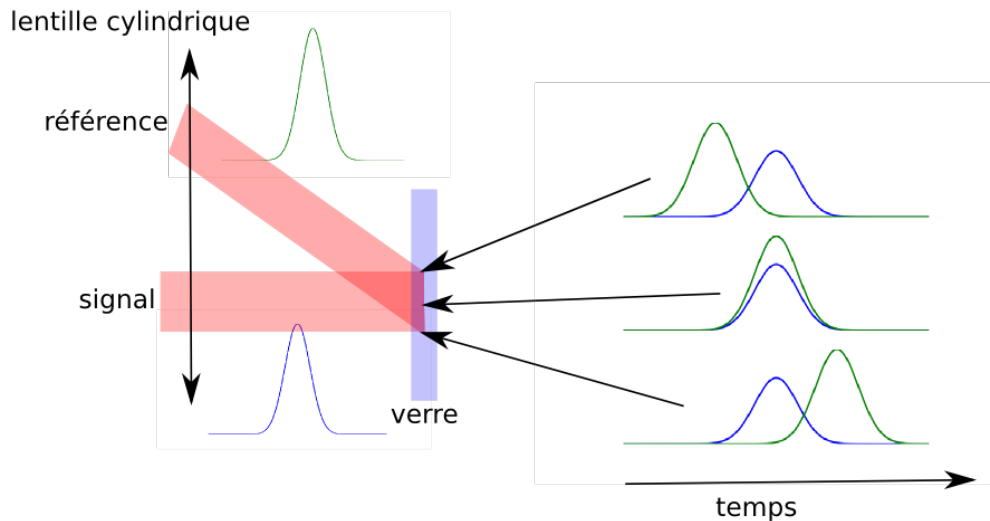


FIGURE 2.10 – Illustration de l'effet de l'angle entre l'impulsion de référence et le signal à mesurer. Le délai entre les deux impulsions est alors fonction de la position sur la ligne focale.

$E(t)$  est le champ électrique associé à l'onde que l'on souhaite mesurer et  $g(t - \tau)$  est la fonction associée à la réponse du milieu soumis à l'impulsion de référence. Dans le cas de l'effet Kerr, on aura  $g(t - \tau) = |E(t - \tau)|^2$ . Dans l'exemple décrit figure 2.9, le faisceau de référence est focalisé sur une ligne avec un angle par rapport au signal à mesurer. Cela a pour conséquence d'introduire un délai entre les deux impulsions qui dépendra de la zone

d'interaction, comme illustré sur la figure 2.10. Il suffira alors d'acquérir le spectre associé à chaque position de la ligne focale pour obtenir le spectrogramme complet en une seule impulsion. Il aurait été tout à fait équivalent, bien que plus long, de focaliser les deux impulsions sur un point et de varier leur délai respectif. L'acquisition du spectre en fonction de ce délai donne l'interférogramme.

Nous venons de décrire la mesure de durée d'impulsion **FROG** par rotation de la polarisation induite par effet Kerr. Cependant, même si cette technique est intuitivement simple, elle présente un inconvénient, elle est sensible à la polarisation et donc, dans le cas d'une polarisation circulaire par exemple, la mesure n'est plus possible. Dans le laboratoire **ALLS**, la technique utilisée est celle impliquant la création d'un réseau transitoire grâce à deux impulsions qui permettra la diffraction d'une troisième impulsion focalisée dans ce réseau transitoire. Le signal diffracté sera donc l'exacte réplique de celui obtenu par rotation de polarisation, mais cette fois-ci, aucune considération quant à la polarisation du signal à mesurer n'est nécessaire. Cette méthode est nommée « Transient Grating (**TG**) » -**FROG** [10].

**Description de l'algorithme** Un problème lié à la mesure par la méthode **FROG** est le fait que l'impulsion de référence n'est pas connue et donc que  $g(t, \tau)$  n'est pas connu également. Il n'est donc pas possible de déduire  $E(t)$  directement à partir de la trace **FROG**. Trebino et al. ont proposé un algorithme très efficace afin de retrouver le champ électrique à partir de la trace **FROG**. Il ne nécessite que la connaissance de la réponse du milieu en fonction du champ électrique de l'onde de référence, en l'occurrence  $|E(t - \tau)|^2$ .

Le signal temporel obtenu après interaction avec l'onde de référence peut être écrit  $E_{sig}(t, \tau) \propto E(t)|E(t - \tau)|^2$  et donc  $E(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_{sig}(t, \tau)d\tau$ .  $E(t)$  pourra à son tour permettre de calculer  $E_{sig}(t, \tau)$  grâce à la relation  $E_{sig}(t, \tau) = E(t)|E(t - \tau)|^2$ . Les étapes de l'algorithme itératif basé sur la transformée de Fourier sont données dans la figure 2.11.



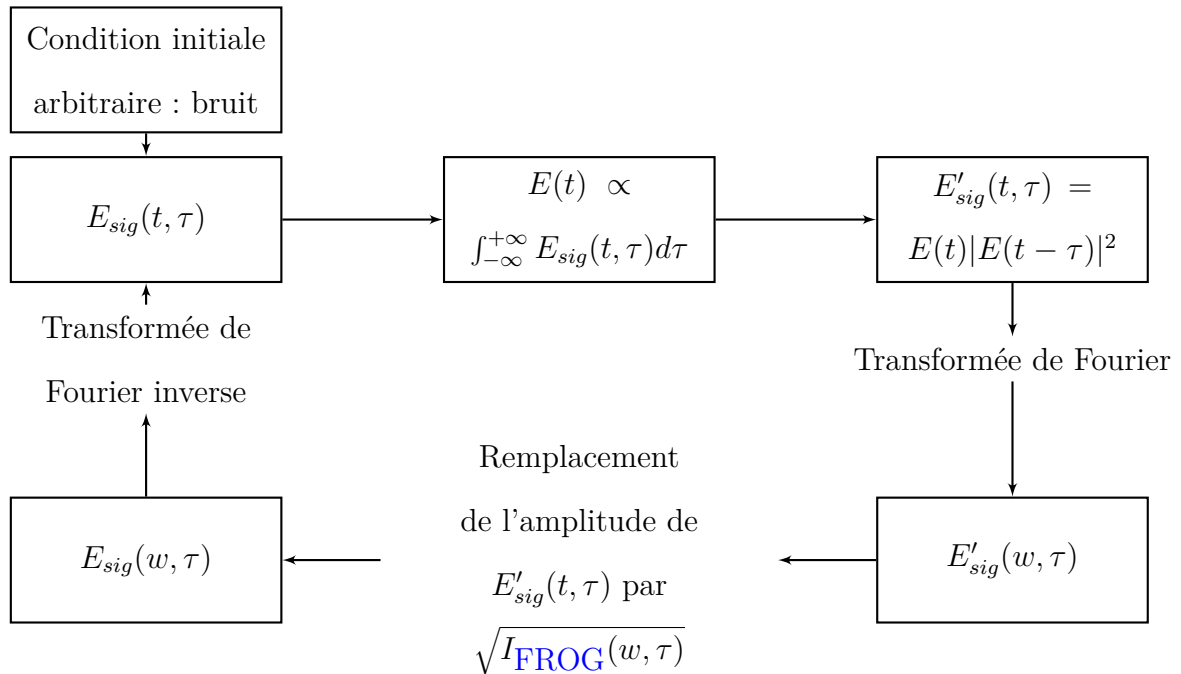


FIGURE 2.11 – Diagramme expliquant les différentes étapes de l'algorithme itératif permettant de remonter aux caractéristiques de l'impulsion à mesurer à partir de la trace FROG

## 2.5 Résumé du deuxième chapitre

L'amplification par émission stimulée a permis d'obtenir de nouvelles sources lumineuses, les lasers. Ils ont pour principal avantage de permettre l'obtention d'intensité lumineuse très élevée, notamment grâce à leur faculté à être focalisé sur une petite surface. Cependant, cette surface minimale de focalisation est limitée par la limite de diffraction. Afin d'augmenter encore les intensités générées, la durée des impulsions lumineuses a été réduite. Pour cela, il faut être capable non seulement de générer un large spectre, mais aussi de faire en sorte que toutes les longueurs d'onde se propagent à la même vitesse dans la cavité laser, et donc dans le milieu amplificateur.

La propriété principale des cristaux de Titane : Saphir n'est pas seulement d'avoir un large spectre d'émission, mais aussi, de permettre à ce que toutes les longueurs d'onde générées soient en phase dans la cavité de manière passive. Cela est possible grâce à l'effet non linéaire

Kerr. Aucun système électronique n'est donc nécessaire afin de réaliser ce blocage de mode. Cette découverte, alliée à la technique d'amplification par décalage de fréquence, a permis de générer des intensités extrêmement élevées et des durées d'impulsion de quelques dizaines de femtosecondes. Cela a ouvert tout champ de la physique relative à l'interaction ultra non linéaire entre la matière et la lumière précédemment difficile d'accès.

Comme tous les outils dont nous disposons afin de réaliser les expériences, il est très important de pouvoir caractériser précisément leurs caractéristiques. Or, les appareils électroniques ayant un temps caractéristique de réponses de l'ordre de la nanoseconde, ils deviennent inutiles dans le cas présent. De nouvelles techniques de mesure, impliquant l'utilisation de non-linéarité, ont dû être développées. Dans ce chapitre, nous avons développé plus particulièrement les techniques [SPIDER](#) et [FROG](#).

Ce chapitre a permis d'introduire l'outil principal de la recherche menée dans le cadre de ce mémoire de thèse. De fréquentes références aux propriétés des lasers Ti : Sa seront faites dans la suite de ce mémoire ainsi qu'aux méthodes de mesures associées.

## Références du deuxième chapitre

- [1] D. Strickland and G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 55(6) :447 – 449, 1985.
- [2] M. Perry. Multilayer Dielectric Gratings : Increasing the Power of Light. (September), 1995.
- [3] Understanding spatial filters. <http://www.edmundoptics.com/technical-resources-center/lasers/understanding-spatial-filters/>.
- [4] B. C. Platt and R. Shack. History and Principles of Shack-Hartmann Wavefront Sensing. *The Journal of Refractive Surgery*, 17, 2001.
- [5] C. Iaconis and I. A. Walmsley. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. *Optics letters*, 23(10) :792–4, May 1998.
- [6] M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi. Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry. *J. Opt. Soc. Am.*, 72(1) :156–160, Jan 1982.
- [7] A. Baltuška, M. S. Pshenichnikov, and D. A. Wiersma. Amplitude and phase characterization of 4.5-fs pulses by frequency-resolved optical gating. *Opt. Lett.*, 23(18) :1474–1476, Sep 1998.
- [8] D. J. Kane and R. Trebino. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 29(2) :571–579, Feb 1993.
- [9] R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbügel, B. A. Richman, and D. J. Kane. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating. *Review of Scientific Instruments*, 68(9) :3277–3295, 1997.

- [10] D. Lee, S. Akturk, P. Gabolde, and R. Trebino. Experimentally simple, extremely broadband transient-grating frequency-resolved-optical gating arrangement. *Opt. Express*, 15(2) :760–766, Jan 2007.

# Chapitre 3

## DESCRIPTION DU PLASMA D'ABLATION DU GRAPHITE ET OPTIMISATION DU PROCESSUS DE GÉNÉRATION

### 3.1 Introduction

Ce chapitre sera dédié au développement et l'optimisation de la source de rayonnement XUV basé sur le principe de la génération d'harmoniques d'ordres élevés à partir d'un plasma d'ablation de carbone. Comme nous l'avons exposé dans les chapitres précédents, les cibles de nanoparticules ont montré une efficacité de génération beaucoup plus élevée que les cibles solides. Or, la cible de graphite s'est exceptionnellement comportée comme une cible de nanoparticules. Malheureusement, le très grand nombre de degrés de liberté dans l'ajustement des paramètres de génération (création du plasma et génération), qui est un avantage pour l'optimisation du processus, est un inconvénient dans la compréhension de celui-ci. Il a donc été décidé de procéder premièrement de manière empirique afin d'optimiser le signal harmo-

nique. Une fois ces conditions connues, l'étude du plasma et du processus de génération peut être restreinte aux paramètres spécifiques de la génération d'harmoniques.

Ce chapitre sera donc consacré à l'optimisation du processus de génération et à la compréhension du milieu. Pour cela, plusieurs types de cibles carbonées, de compositions et arrangement cristallin différents, ont été testées. Au regard de ces résultats et des paramètres de la préimpulsion, une étude sur le processus de création du plasma de carbone est décrite. En effet, les plasmas d'ablation de cibles carbonées sont des milieux extrêmement complexes, comprenant tout aussi bien de petites particules jusqu'à de plus grandes nanoparticules de type fullerène ou nanotubes. Au regard des expériences menées jusqu'ici et de la littérature, il a été possible de restreindre considérablement la composition probable du milieu. Pour finir, même si chronologiquement cette dernière partie a été traitée avant l'étude du plasma, la description de l'optimisation des paramètres de génération est donnée. Il ne s'agira pas de refaire ce qui a déjà été étudié durant les précédents travaux, mais plutôt d'identifier les particularités et avantages du plasma de carbone.

## 3.2 Influence du type de cibles carbonées

Cette partie aura pour but de comparer le signal harmonique obtenu à partir de différentes cibles carbonées, notamment graphitiques et non graphitiques. Les résultats seront tout d'abord présentés de manière empirique. Une interprétation sera donnée dans la partie 3.3 suivante.

### 3.2.1 Description des différentes cibles carbonées testées

**Nanoparticules AC3** Les nanoparticules AC3 sont un acronyme pour des nanoparticules de carbone activées [1]. Elles sont généralement issues de la combustion de la noix de coco. Elles sont dites activées car un procédé physique ou chimique leur confère un rapport volume-surface très élevé. Elles sont utilisées pour certaines réactions chimiques lorsque des effets

d'adsorption entrent en jeu, par exemple la purification d'eau, la décaféination.

Leur structure est de type amorphe, il n'y a donc pas d'arrangement cristallin particulier. Elles sont vendues sous forme de poudre. Afin de pouvoir réaliser leur ablation, elles sont mélangées avec une colle de type époxy puis mises en forme afin de réaliser une cible solide. Ensuite, ce mélange est ablaté par la préimpulsion. Des tests de génération avec la colle époxy seule ont été réalisés et aucun signal n'a été obtenu. Les mécanismes de transfert de l'énergie durant l'ablation entre les nanoparticules et la colle sont complexes. Nous supposons que le substrat époxy est spectateur dans le processus de création du plasma et de génération des harmoniques. Cela semble en accord avec les résultats obtenus à partir de nanoparticules sous forme de dépôts sur un substrat de verre ou mise en forme avec de l'époxy [2]. Il semble donc raisonnable de supposer l'influence de la colle époxy comme négligeable dans le processus global.

**Nanoparticules C<sub>60</sub>/C<sub>70</sub>** Les nanoparticules de type fullerènes sont un mélange de C<sub>60</sub>/C<sub>70</sub> avec un rapport de composition 73%/22% ainsi que 1% d'impuretés. Elles ont été obtenues commercialement chez Alfa Aesar. Elles sont également mises en forme grâce à un substrat de colle époxy. Leur composition cristalline est graphitique. La densité de carbone totale de la cible mise en forme est certainement inférieure à la densité de la poudre de départ (environ 1.5 g.cm<sup>-3</sup>).

**Graphite solide** Pour finir, deux types de cibles graphitiques ont été utilisées. La première est une cible commerciale (achetée chez «GoodFellow») d'une grande pureté, généralement utilisée lors de dépôt par ablation laser de type « Pulsed Laser Deposition (PLD) ». L'autre est simplement une mine de crayon de type HB car elles semblent être celles contenant le moins d'additifs. D'autres types de mine de crayon ont été testées mais ont donné des résultats de moins bonne qualité.

Au moyen des diagnostics « X Ray Diffraction (XRD) » et « Energy Dispersive X-ray microscopy (EDX) », il va être possible d'identifier les différences entre les deux cibles, en

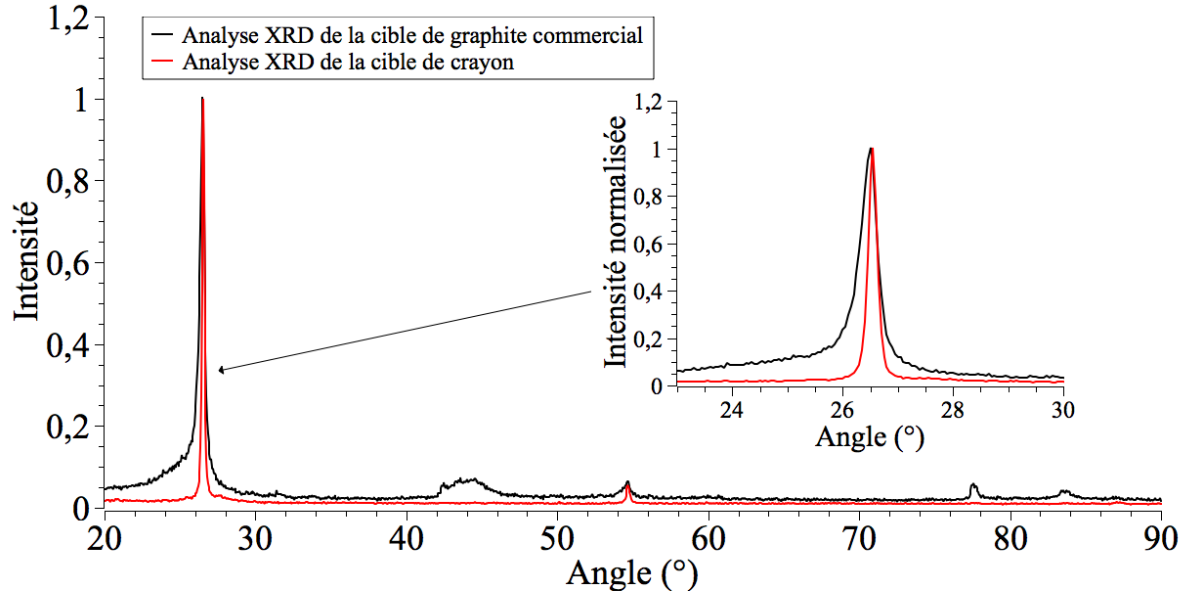


FIGURE 3.1 – Courbe XRD (XRay diffraction) obtenue pour le graphite commercial et une mine de crayon

particulier, la taille des microcristaux ainsi que la pureté. Premièrement, la figure 3.1 représente le spectre XRD des deux cibles graphitiques. Le terme graphitique avait d’ores et déjà été utilisé, car cette propriété était évidente, les spectres en donnent la confirmation. De plus, il est possible de connaître la grandeur des microcristaux dont est faite la cible. En effet, ces deux cibles sont des graphites dits polycristallins, c.-à-d. qu’ils ne sont pas composés d’un seul cristal, mais d’une multitude de nanocristaux de graphite orientés aléatoirement. La taille des microcristaux peut être obtenue grâce à l’équation de Scherrer [3] :

$$\tau = \frac{K\lambda}{\beta \cos(\theta)} \quad (3.1)$$

Avec :

- $\tau$  la dimension moyenne des nanocristaux.
- $K$  une constante proche de 1. Elle sera supposée égale à 1 ici, car seule une estimation est nécessaire.
- $\lambda$  est la longueur d’onde du rayonnement X, 0.15418 nm correspondant à la raie



K-alpha du cuivre.

- $\beta$  est la largeur à mi-hauteur du pic considéré en radians.
- $\theta$  est l'angle de Bragg du pic considéré.

A propos des résultats de la figure 3.1, on obtient pour la dimension moyenne des nanocristaux des cibles, 14 nm pour le cas de la cible commerciale et 24 nm en ce qui concerne la mine de crayon. Les résultats ne sont pas surprenants, car, la cible de grande pureté est réalisée à partir de produit de combustions mis en formes. Les mines de crayons sont, quant à elles, faites à partir de graphite naturel dont les cristaux sont plus grands.

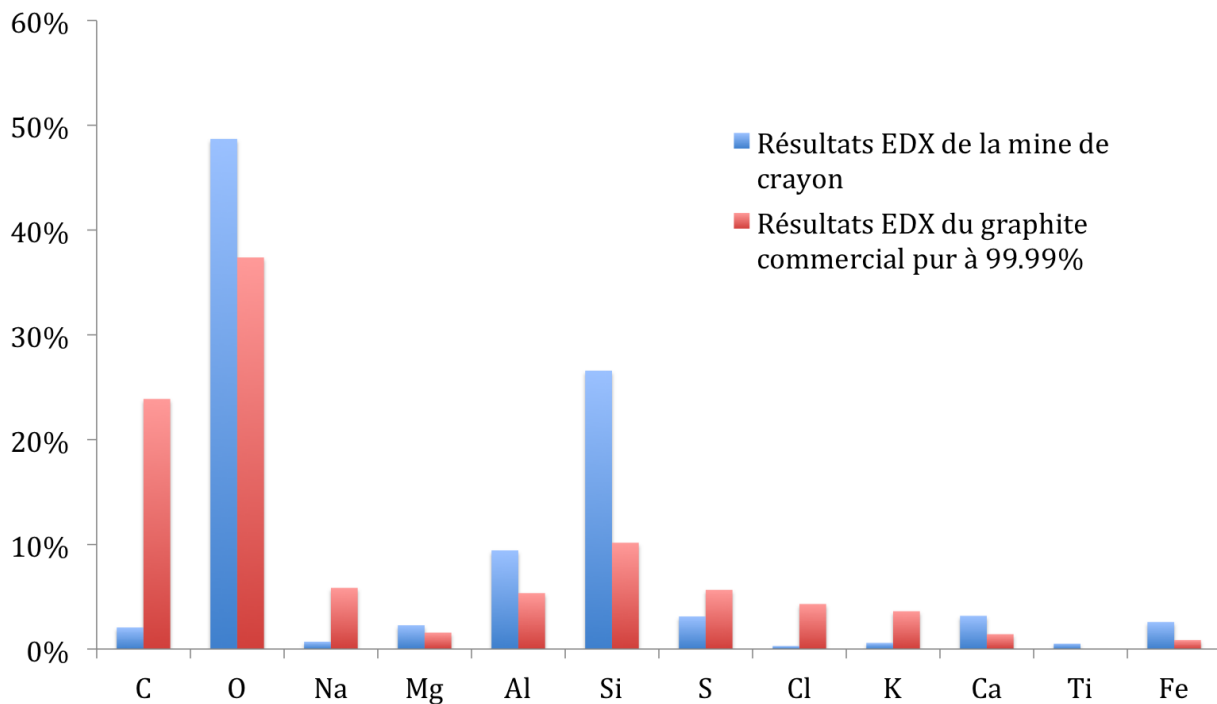
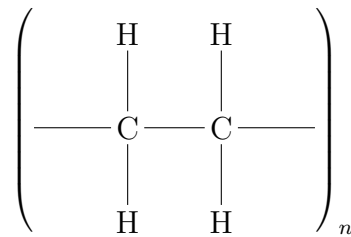


FIGURE 3.2 – Résultats de la composition des cibles solides de graphite commercial et de mine de crayon obtenues par le test EDX («Energy-dispersive X-ray spectroscopy»)

Enfin, la figure 3.2 illustre les résultats obtenus grâce à la technique d'émission X par bombardement électronique. Malheureusement, cette technique est beaucoup moins sensible aux éléments légers tels que le carbone. Il faut donc s'abstenir d'analyser quantitativement les résultats. Cependant, il est possible de donner quelques conclusions qualitatives. Pre-

mièrement, comme attendu, la cible commerciale semble de plus grande pureté que la mine de crayon. De nouvelles mesures par spectroscopie photoélectronique-X (XPS) ont permis d'évaluer la teneur réelle en carbone de la mine de crayon aux alentours de 35%. En ce qui concerne le graphite commercial, le fabricant certifie une pureté de 99.99%. Ensuite, dans le cas de la mine de crayon, les concentrations de silice et d'oxygène sont plus élevées. En effet, la mise en forme du carbone requiert énormément d'énergie due à une température de fusion du graphite très élevée. Alors, les fabricants mélangent le graphite naturel avec de la silice (SiO<sub>2</sub>) qui a une température de fusion beaucoup plus basse. Lors de la solidification, la silice «piège» les nanocristaux de graphites.

**Cible de polyéthylène haute densité** Le PEHD est un polymère très simple fait d'un enchainement de molécules d'éthylènes (C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>)<sub>n</sub> :



Le but dans l'utilisation de ce type de cible est qu'elle n'est composée que de carbone et d'hydrogène. Également, elle est complètement non graphitique et est donc susceptible d'avoir un comportement tout à fait différent lors de l'ablation. Les ions H<sup>+</sup> probablement générés durant l'ablation de la cible ne seront évidemment pas une source de rayonnement harmonique. Cependant, ils pourront perturber les conditions d'accord de phase en augmentant la densité d'électron libre du milieu.

### 3.2.2 Résultats expérimentaux

**Conditions expérimentales** Une description détaillée du montage expérimental est donnée dans la partie 1.3.2. Il convient cependant d'en rappeler les points principaux. Premièrement, la cible est ablatée par une première impulsion laser, la préimpulsion. Elle a une

durée de 210 ps, une longueur d'onde centrale égale à 800 nm, une énergie de l'ordre de quelques millijoules et est focalisée au moyen d'une lentille convergente sur une tâche focale de l'ordre de 300  $\mu\text{m}$  en diamètre. Ensuite, après un délai de 24 ns dans le cas précis, l'impulsion principale est focalisée dans le plasma en expansion. L'impulsion principale a une durée d'impulsion de l'ordre de 40 fs, une énergie de l'ordre du millijoule, une longueur d'onde centrale de 800 nm est focalisée dans le plasma au moyen d'une lentille de longueur focale égale à 50 cm. La position du point focal en fonction de celle du plasma est ajustée afin que les conditions d'accord de phase soient les plus optimales.

À chaque nouvelle cible, le terme «nouvelle cible» incluant également le fait de changer de zone d'ablation sur un même solide, les paramètres de l'expérience sont finement ajustés. Cette opération requiert généralement de quelques secondes à quelques minutes. Ceci ne pose pas de problème dans le cas des cibles solides, mais dans le cas des cibles de nanoparticules, cela est une grande limitation. En effet, le substrat d'époxy qui permet de les mettre en forme s'ablate très rapidement et donc, le signal disparaît après quelques secondes sur une même zone d'ablation. Néanmoins, il a été possible d'obtenir des spectres de bonne qualité et reproductible car dans la plupart des cas, lors d'un rafraîchissement de la surface, très peu d'ajustement sont nécessaires.

Tous les spectres harmoniques des différentes cibles carbonées ont été acquis dans des conditions similaires. Les tensions sur le détecteur MCP, le nombre de coup par image (2), le nombre d'images par spectre moyenné (20) et le délai entre la préimpulsion et l'impulsion principale sont identiques, conduisant à une saturation du signal pour certaines cibles afin d'avoir un signal observable dans le cas des cibles les moins efficaces. Les intensités (préimpulsion et impulsion principale) ont du être adaptées au cas de chaque cible.

**Comparaison nanoparticules-graphite** La figure 3.3 représente les spectres générés à partir du plasma issu de l'ablation de différentes cibles carbonées. Dans la partie gauche de la figure, il y a la comparaison entre les spectres générés à partir de cible de nanoparticules

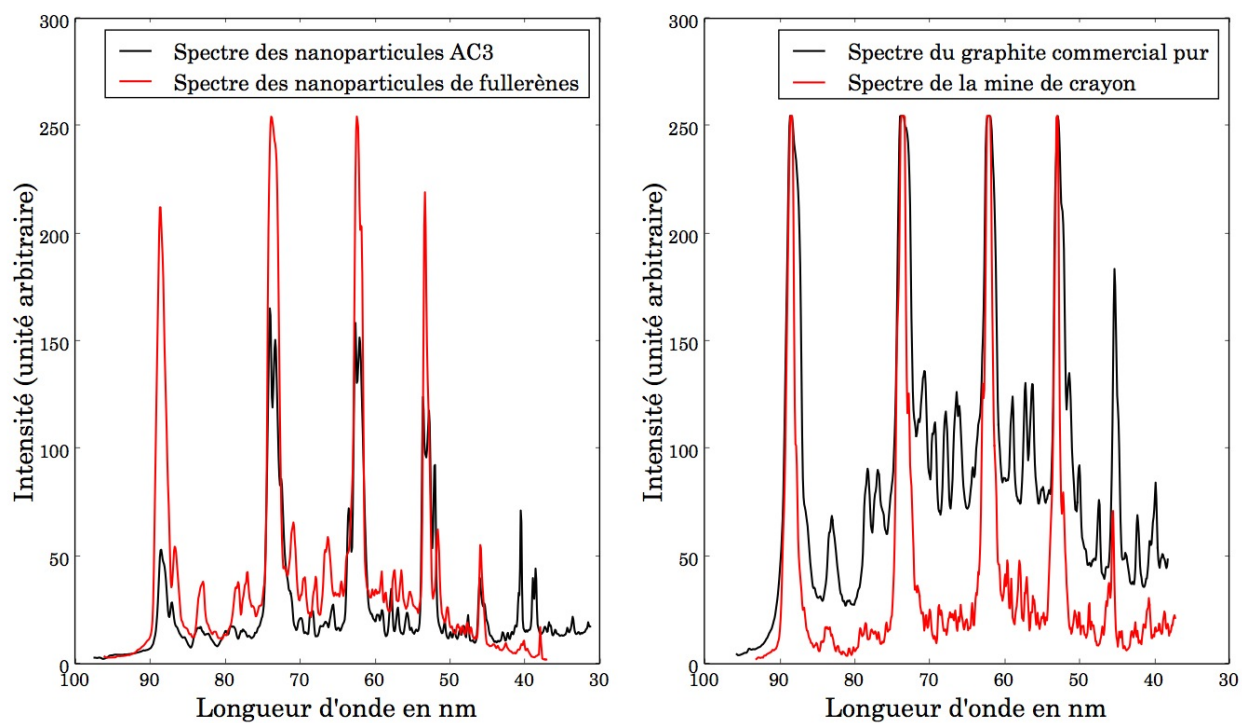


FIGURE 3.3 – (gauche) Spectres d’harmoniques d’ordres élevés générés à partir d’une cible de nanoparticules  $C_{60}/C_{70}$  (rouge) et AC3 (noir) ; (droite) Spectres d’harmoniques d’ordres élevés générés à partir d’une mine de crayon (rouge) et de graphite commercial pur (noir)

de type fullerènes (rouge) et AC3 (noir). Elles ont toutes deux été mises en forme sur un substrat d'époxy. On remarque tout d'abord un signal harmonique moins élevé pour la cible de nanoparticules AC3. Il est probable que certaines variations apparaissent dans la composition des cibles, mais ce résultat a été observé à plusieurs reprises. Il semble donc naturel d'attribuer les variations des spectres au type de particules elles-mêmes. La première différence à noter est le caractère non ou peu graphitique des nanoparticules de AC3. Les fullerènes C<sub>60</sub>/C<sub>70</sub> le sont au contraire. Étant donné la provenance des nanoparticules AC3, produits de la combustion de la noix de coco, elles doivent contenir beaucoup d'impureté. Cependant, nous allons voir que cela ne semble pas être un paramètre limitatif dans le cadre de la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

La partie droite de la figure 3.3 représente les spectres issus de l'ablation de cibles solides, une mine de crayon (rouge) et un graphite de haute pureté commercial (noir). Les intensités maximales sont comparables pour les harmoniques basses. Cependant, le bruit lié notamment à la génération incohérente par les ions du plasma est beaucoup plus fort pour la cible de graphite pur. Cela semble étrange au premier abord, car, le fort taux d'impuretés dans la mine de crayon pourrait être source de bruit dans le plasma. Les détails de l'ablation d'une cible graphitique seront détaillés dans la prochaine section, mais il est possible de faire quelques remarques. Comme décrit précédemment, la mine de crayon contient, en plus du graphite, de la silice. Or ce matériau est beaucoup plus facile à ablater que le graphite. Nous pouvons alors émettre l'hypothèse que l'ablation d'une grande quantité de matériel requiert moins d'énergie en présence de silice et ainsi le plasma aurait un degré d'ionisation plus faible. En effet, au cours de l'ablation de la silice, celle-ci pourrait transférer une partie de son énergie aux nanocristaux de graphite et le plasma serait ainsi composé d'un mélange de molécules ou atomes dont des éléments carbonés. Ensuite, sans pouvoir donner une justification claire à cette hypothèse, il semblerait que le rayonnement de la préimpulsion pénètre mieux dans la mine de crayon, peut être du à une plus faible densité. Au contraire, la cible de graphite pure nécessiterait une fluence élevée pour générer un plasma assez dense. Alors, un taux

d'ionisation plus élevé dans le milieu, ou une température accrue, impliquerait un taux d'émission de rayonnement incohérent plus important.

Finalement, si l'on compare les intensités maximales générées à partir des nanoparticules à celle générée par ablation des cibles solides, il semble que les cibles solides soient légèrement plus efficaces. Il faut cependant nuancer ce résultat. En effet, tout d'abord, la différence d'intensité est assez faible. Ensuite, comme expliquée auparavant, la stabilité du signal issu des cibles de nanoparticules est très mauvaise et donc, il est fort probable que les paramètres de génération ne soient pas complètement optimisés. Au contraire, les cibles solides permettent, elles, d'optimiser complètement les différents paramètres. Enfin, il est fort probable qu'il soit plus difficile d'obtenir une densité de particules de carbone élevée dans le plasma issu des nanoparticules. En effet, il a été dit plus haut qu'elles sont mixées à un substrat époxy. Il apparaît évident que la densité de carbone dans les cibles époxy-nanoparticules est plus faible que les cibles de graphite.

**Différents types de carbone solide** La figure 3.4 représente les spectres harmoniques générés à partir d'un plasma d'ablation du PEHD (noir) et de la mine de crayon (rouge). La cible de PEHD est comparée à la mine de crayon, car elle représente la cible qui semble montrer la meilleure efficacité de génération. Tout d'abord, il est évident que le PEHD est une cible beaucoup moins efficace que le graphite. Plusieurs explications sont possibles :

- L'efficacité de génération est intimement liée aux conditions plasma, notamment à la densité électronique. Or, celle-ci, en raison de la présence des atomes d'hydrogène, peut être fortement modifiée.
- L'énergie de liaison C-H ( 4.25 eV) est plus forte que l'énergie de liaison C-C ( 3.6 eV). L'ablation à faible fluence favorisera donc la rupture des liaisons C-C. Or nous le verrons plus tard, mais la présence de molécules carbonées  $C_2$  ou  $C_3$  semble jouer un rôle important dans la forte efficacité de génération. Et cela est impossible puisque les atomes d'hydrogène empêcheront l'ablation directe depuis la cible de chaîne carbonée

sans hydrogènes.

- Enfin, considérant toujours la plus forte énergie de liaison C-H, il faudra sûrement une fluence plus importante pour l'ablation du PEHD. Cela pourrait mener à une densité électronique plus forte et donc à une densité d'ion plus importante. En effet, dans les conditions plasmas adéquates pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés, la longueur de Debye est faible (quelques nanomètres), ainsi, il n'y a pas de séparation des charges au sein du plasma. Or, les éléments neutres [4] ont un rôle indéniable dans cette forte efficacité. Cela sera montré expérimentalement par la suite.

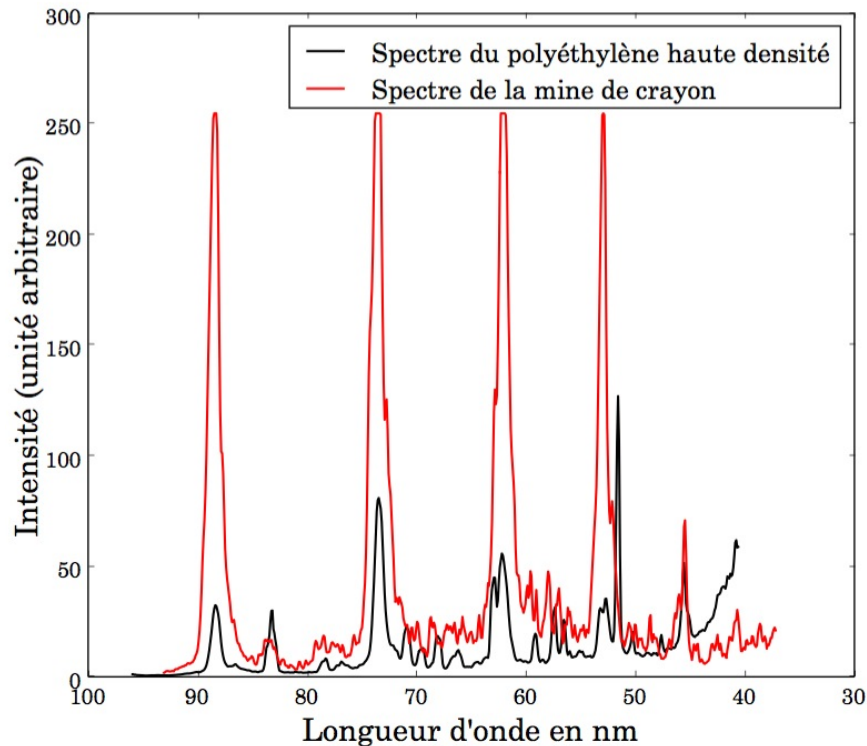


FIGURE 3.4 – Spectres d’harmoniques d’ordres élevés générés à partir d’un plasma d’ablation d’une cible de crayon (rouge) et de PEHD (noir)

Les cibles de diamant et de carbone amorphe ont également été testées et comparées à une cible de graphite. Il est intéressant d’exposer le cas de la cible de diamant seul puis ensuite, la comparaison entre la cible de carbone amorphe (proche du diamant en type de liaisons C-C du réseau cristallin) et le graphite. Le but est de montrer que la considération

de l'état de la cible après ablation est importante.

Il est clair que le le polyéthylène a donné des résultats très différents des autres cibles de carbone. Cependant, il est assez difficile de comparer plus quantitativement les résultats en raison de sa composition différente et de ses propriétés physiques éloignées. Or, il est apparu qu'une cible carbonée non graphitique était le diamant. Évidemment la cible n'était pas monocristalline, mais consiste en la mise en forme à très haute température d'une poudre de diamant. Les conditions de l'expérience étaient très proches, en terme de paramètres des impulsions, au cas du graphite. Un résultat assez surprenant a été observé.

En effet, peu importe la fluence de la préimpulsion, les premières impulsions n'ont donné aucun ou très peu de signal harmonique. Cependant, après un certain temps, variable en fonction de la fluence de la préimpulsion, le signal apparaît puis atteint une valeur maximale très proche de l'intensité observée dans le cas du graphite, comme cela est illustré sur la figure 3.5. Or, comme nous allons l'expliquer dans la partie suivante, lors de l'ablation de la cible de carbone, peu importe l'arrangement cristallin, il y a liquéfaction puis solidification. Le carbone ainsi solidifié présente généralement un caractère graphitique en raison de transitions liquide-liquide [5] durant le processus de refroidissement. Ce processus aura deux implications :

- Premièrement, il va permettre un changement dans le taux d'absorption du rayonnement de la préimpulsion. Le diamant a une différence d'énergie entre la bande de Valence et la bande de conduction est de 5.47 eV. Il est donc transparent à la longueur d'onde 800 nm et nécessitera un processus multiphotonique (absorption de 4 photons au minimum). Le graphite absorbe lui cette même longueur d'onde. Il s'en suivra une meilleure absorption de l'énergie laser et donc une plus grande quantité de matière ablatée. Nous avons cependant tenté d'augmenter la fluence de la préimpulsion. Cela n'a eu d'autre effet que de diminuer le temps à partir duquel le signal augmente jusqu'à son niveau maximal proche de celui du graphite.
- Deuxièmement, comme nous allons l'aborder dans la partie suivante, la composition



du plasma issu de l'ablation d'une cible de diamant (ou de manière équivalente de carbone amorphe) est différente de celle d'une cible de graphite [6]. Notamment, la présence de carbone moléculaire est beaucoup plus prépondérante dans le cas du graphite. Or, nous allons montrer que ces molécules semblent jouer un rôle primordial dans le processus de génération.

Enfin, il convient de décrire brièvement les résultats de la comparaison du signal obtenu à partir des cibles de graphite et de carbone amorphe. Premièrement, toutes deux sont opaques à la longueur d'onde de la préimpulsion. Leur taux d'absorption sera donc comparable. Comme nous venons de l'expliquer, les plasmas issus de ces deux cibles sont normalement de composition différente. Or nous avons observé un signal harmonique identique depuis ces deux cibles.

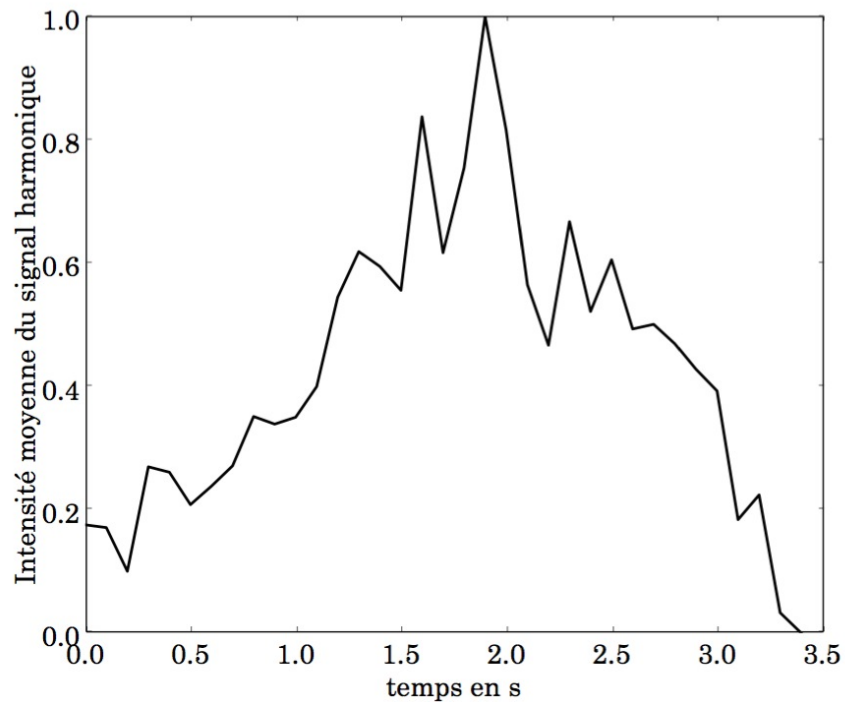


FIGURE 3.5 – Courbe représentant l'évolution temporelle de l'intensité du signal XUV généré à partir d'un plasma issu d'une cible de diamant. La position de la cible n'est pas modifiée lors de l'acquisition.

Pour interpréter ce résultat, rappelons quelques points expérimentaux. À chaque renouvellement de zone d'ablation, il est nécessaire d'ajuster de nouveau les paramètres, en particulier la position de la cible. Or ceci prend en général quelques dizaines de secondes voire une minute. C'est lorsque cette optimisation est réalisée que les images sont acquises. Comme nous venons de le décrire, le processus de liquéfaction puis de solidification change profondément les propriétés du solide [7]. Il apparaît donc qu'après ce temps nécessaire à l'optimisation, l'état du solide au niveau de la zone d'ablation aura des propriétés équivalentes pour toutes les cibles de types carbonées, proche de celui du graphite. Ce résultat semble confirmé par les résultats obtenus pour le diamant.

**Résumé et conclusions des résultats** La comparaison des cibles de nanoparticules a montré que le caractère graphitique de la cible semble avoir une importance assez forte. Nous verrons que cela semble en accord avec le mécanisme principal de génération avancé dans la partie 4.

Ensuite, il apparaît que contrairement aux cibles de types métalliques [8], le carbone solide, en particulier le graphite, montre des intensités de génération tout à fait équivalentes, voire supérieures aux nanoparticules.

Enfin, il semble que toutes les cibles carbonées tendent vers un même état après un certain temps d'exposition à la préimpulsion, le graphite. Cela reste à confirmer notamment par un suivi de l'évolution temporelle de la composition du plasma par des mesures à temps de vol, par exemple. Il semble donc naturel de s'intéresser au processus d'ablation des cibles carbonées plus en détail et notamment au cas du graphite.

## 3.3 Description du plasma issu d'une cible carbonée appliqué à la génération d'harmoniques d'ordres élevés

### 3.3.1 Ablation d'une cible carbonée

#### Paramètres de la préimpulsion

Comme nous pourrions le voir dans la suite de ce chapitre, la description d'un plasma issu d'une cible carbonée est extrêmement complexe. C'est un domaine qui est activement étudié notamment dans le cas de la création de nanotubes, fullerènes ou de carbone dit «diamonlike» par pulvérisation laser de cible de graphite. Malheureusement, il semble y avoir autant de paramètres laser différents que d'études menées sur ce sujet. Il est alors assez difficile d'identifier les résultats de la littérature pertinents pour l'étude menée ici. Nous essaierons néanmoins d'expliquer la compréhension qu'il est possible d'avoir de la création d'un plasma carboné par ablation laser. Il faudra garder à l'esprit que cette étude est loin d'être définitive et donc reste à débattre et à compléter.

Avant d'entrer à proprement dit dans les mécanismes d'ablation d'une cible de carbone, il convient de décrire les paramètres lasers généralement utilisés pour la création d'un plasma adéquat à la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Ils ne sont pas réglés précisément avant l'expérience. Cependant, nous savons que les conditions plasma voulues sont un milieu le plus dense possible avec un degré d'ionisation le plus bas possible. Il semble donc logique de travailler proche ou légèrement au-dessus du seuil d'ablation de la cible. Également, en ce qui concerne les dimensions spatiales du plasma, nous pouvons faire un parallèle avec le cas des gaz. En effet, la dimension longitudinale (direction de propagation de l'impulsion principale) est en général de l'ordre du millimètre. Or dans le cas d'un milieu ionisé, on s'attend à ce que la longueur de cohérence soit inférieure, à cause de la présence d'électron libre. Généralement, les conditions de focalisation de la préimpulsion sont réglées telles que

les dimensions de la tache focale sur la surface de la cible soient de l'ordre de la centaine de microns. Ensuite, les paramètres sont optimisés en fonction du signal harmonique. Les conditions optimales lors de la création du plasma de carbone se situent dans la zone définie par les paramètres suivants :

Durée d'impulsion	Énergie	Tache focale	Fluence	Gaz ambiant
40 fs-210 ps	1-5 mJ	100-500 $\mu m$	1-3 $J.cm^{-2}$	Vide ( $10^{-3}$ Torr et inférieur)

TABLE 3.1 – Définition des paramètres lasers de la préimpulsion adéquats pour l'ablation d'une cible de graphite solide appliquée à la génération d'harmoniques d'ordres élevés

Il convient de faire quelques remarques quant aux valeurs du tableau 3.1. Premièrement, on remarque que les conditions sur la durée de l'impulsion sont extrêmement larges. En effet, la variation de la durée de la préimpulsion n'a pas montré d'influence sur le signal harmonique, nous discuterons ce point plus en détail plus tard. Il a semblé néanmoins nécessaire de travailler à une fluence différente en fonction de la durée d'impulsion. Ceci peut être lié à un seuil d'ablation dépendant de cette durée par exemple. Néanmoins, hormis la nécessité d'ajuster l'énergie par impulsion, il semble que les paramètres plasma soient identiques au moment de la génération quelque soit la durée de la préimpulsion.

Il n'est pas utile ici de commenter les dimensions de la tache focale, liée aux effets d'accord de phase, ni les paramètres de fluence qui seront décrits en détail très prochainement.

On remarque aussi une condition sur la pression du gaz ambiant dans la chambre de génération. L'ablation de la cible de carbone en présence d'un gaz ambiant à différentes pressions a été testée. En effet, la variation de la pression ambiante dans la chambre a un effet sur la formation des particules lors de l'ablation (taille abondance). Le but était donc d'identifier l'influence des espèces moléculaires sur l'efficacité de génération. Étant donné l'absence d'effet autre que la disparition du signal harmonique au-delà d'une certaine pression, il n'a pas été jugé nécessaire de réserver une section particulière pour ces résultats.

Nous avons pu observer une baisse progressive du signal harmonique en fonction de la

pression du gaz ambiant. Celle-ci est vraisemblablement attribuable à l'absorption du rayonnement XUV émis lors de l'interaction du faisceau fondamental avec le plasma. Il est également possible que le gaz perturbe les conditions de focalisation de l'impulsion de génération. Cependant, étant donné le fait que la baisse du signal commence dès que la pression du gaz ambiant atteint  $10^{-1}$  Torr, il est plus vraisemblable que la baisse soit due à l'absorption du signal XUV. Afin de justifier cette hypothèse, il est possible de calculer la longueur d'absorption en fonction de l'énergie des photons XUV pour une pression égale à  $10^{-1}$  Torr, les résultats sont représentés sur la figure 3.6. En moyenne, une longueur d'absorption de l'ordre de 10 cm est obtenue pour des photons d'énergie égale à 30 eV. La chambre expérimentale excède cette dimension.

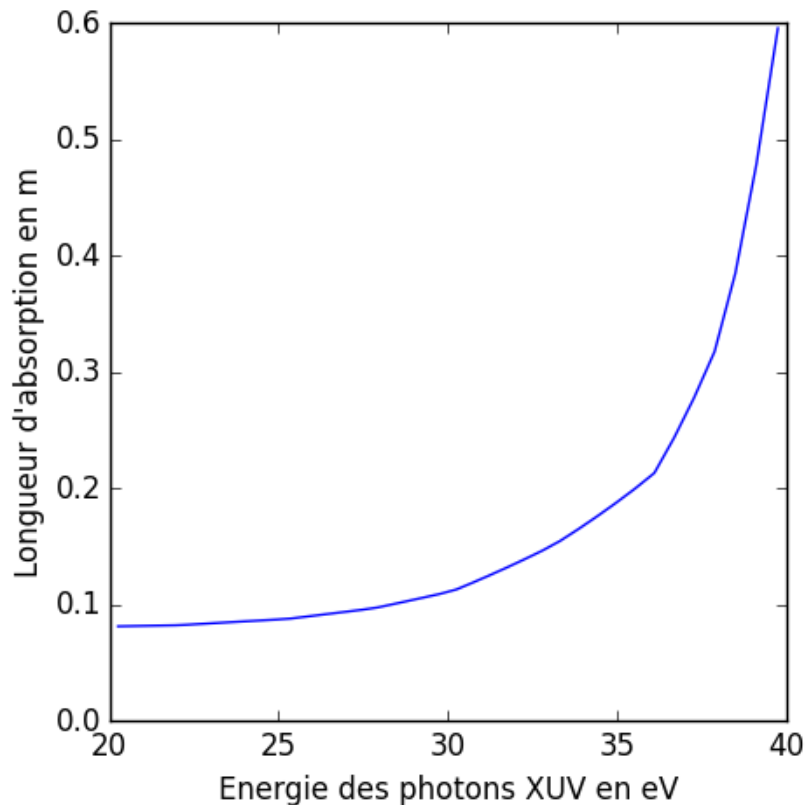


FIGURE 3.6 – Longueur d'absorption en m du gaz argon à une pression égale  $10^{-1}$  Torr. La gamme d'énergie des photons se situe entre 20 eV et 50 eV, ce qui constitue la gamme pertinente pour les harmoniques d'ordres élevés générés dans le carbone.

De plus, le premier gaz testé a été l'azote. Il était susceptible d'interagir avec les molécules de carbone  $C_2$  diatomique pour produire des molécules  $CN$  [6]. Or dans l'hypothèse que les molécules de carbone diatomiques soient les émetteurs les plus efficaces pour la génération d'harmoniques, cela aurait pu expliquer cette baisse d'intensité. Alors, nous avons testé l'ajout d'hélium comme gaz ambiant. Celui-ci ne perturbe pas la présence de molécules de carbone diatomique, voire en favorise la production [9]. Or l'augmentation de la pression du gaz d'hélium a eu exactement le même effet que pour l'azote. Cela corrobore l'hypothèse de l'absorption du signal harmonique XUV lors de la propagation dans la chambre de génération.

Il faudrait confiner l'influence du gaz dans une zone beaucoup plus restreinte autour du plasma. Le rayonnement XUV se propagerait dans le gaz sur une très courte distance et donc, il serait possible d'augmenter la pression du gaz sans réel effet sur l'absorption des harmoniques.

### **Absorption de l'énergie laser et régime d'ablation**

Nous venons de voir les paramètres de la préimpulsion permettant de créer un plasma favorable à la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Ces paramètres ont été trouvés de manière empirique. Ils sont un bon point de départ pour analyser les mécanismes d'absorption de l'énergie laser ainsi que le régime d'ablation dans lequel nous nous trouvons. En effet, les plasmas issus de cibles carbonées sont extrêmement complexes. Ils sont composés d'une variété considérable de particules, allant des ions et atomes de carbone [6], à la production de nanoparticules de types graphène, fullerène et nanotubes [10–12]. La gamme de paramètres dans laquelle il convient de travailler pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés permettra d'identifier plus facilement les possibles espèces présentes dans le plasma au moment de la génération. Nous verrons également que la prise en compte, notamment du délai entre la préimpulsion et l'impulsion principale, ou de la position de focalisation de l'impulsion principale dans le plasma seront également considérés dans l'analyse des propriétés de celui-ci.

Premièrement, la première étape est la considération des mécanismes d'absorption de l'énergie laser. Il ne semble pas y avoir de consensus clair sur le passage ou non par un état liquide durant le processus d'ablation d'une cible de graphite. Par exemple, dans le cas d'une impulsion d'ablation ultra-courte [10, 13, 14], la considération du passage par un état liquide ne semble pas voir d'influence sur les caractéristiques du plasma. Cependant, d'autres études [5, 7, 15], observant notamment l'état de surface de la cible après ablation, montrent l'implication d'un état liquide durant l'ablation de la cible. Nous allons donner une proposition dans le cas précis du plasma de carbone adéquat à la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

Comme nous l'avons vu dans la section 3.2, une large gamme de types de cibles carbonées ont donné des résultats très similaires. Il faut garder à l'esprit que généralement, quelques secondes sont nécessaires afin d'ajuster proprement les paramètres de génération à chaque changement de cible. Il est donc impossible, dans la configuration actuelle de l'expérience, de comparer le signal harmonique issu de différentes cibles «fraîches». Il convient de tenir compte de la possible influence de l'impulsion laser précédente sur l'état de surface de la cible. Or, la similarité de tous les résultats obtenus laisse penser que l'arrangement cristallin du carbone n'entre pas en compte ou que, celle-ci est modifiée vers une configuration commune. C'est cette dernière hypothèse que nous préférons, car il a été démontré par exemple [6] que des plasmas issus de cibles graphitiques présentaient des propriétés différentes des cibles amorphes. Certaines études [5, 7] montrent que lors de la solidification depuis l'état liquide, des transitions liquide-liquide durant le refroidissement imposent une configuration de type graphitique du carbone solidifié. Cette hypothèse a été évoquée durant la génération à partir d'une cible de diamant. En début d'ablation il n'y a pas de signal harmonique, mais après un certain temps, typiquement une minute, un signal apparaît. Une observation de l'état de la cible de diamant après ablation a montré une transformation du diamant en graphite.

Comme il a été dit précédemment, la durée de la préimpulsion est de 210 picosecondes. Cette durée est très largement supérieure au temps caractéristique de transferts de l'énergie

des électrons vers les atomes du solide qui est de l'ordre de une picoseconde [15]. Cependant, la durée de l'impulsion est de l'ordre du temps caractéristique d'expansion du plasma dont la vitesse peut être donnée par [16] :

$$c_s = 9.79 \cdot 10^5 \left[ \frac{\gamma Z \theta_e}{\mu} \right]^{\frac{1}{2}} \text{ cm/s} \quad (3.2)$$

$Z$  est la charge des espèces du milieu supposée égale à 1 dans le cas présent.

$\gamma = \frac{C_p}{C_v}$  est le rapport des capacités thermiques à pression constante et volume constant, égal à 1.6 [15].

$\theta_e$  est la température du milieu. Elle est difficile à mesurer, mais elle se situe vraisemblablement entre 5 eV et 10 eV étant donné le fait que l'ablation se fait à une fluence modérée.

Enfin,  $\mu$  est la masse atomique du carbone c.-à-d. 12 en unité atomique de masse.

Il est possible d'évaluer la distance d'expansion du plasma à environ deux longueurs d'onde durant les 210 premières picosecondes. On comprend que le plasma ne s'est pas significativement étendu durant la durée de l'impulsion d'ablation. Il est raisonnable de supposer que le milieu est tout d'abord chauffé par l'impulsion laser, puis s'étend dans le vide sans apport extérieur d'énergie.

Pour conclure à propos de l'état de la cible durant l'ablation, la figure 3.7 résume l'hypothèse avancée pour ce travail de thèse. Tout d'abord, étant donné la très basse pression du milieu entourant la cible, il est raisonnable de penser qu'une partie de la cible sera sublimée par l'impulsion laser. Étant donné le fait que l'expansion n'est pas significative, la partie inférieure du solide va être chauffée fortement, mais à pression élevée. Le carbone sera plus vraisemblablement dans un état liquide [5]. Une partie du carbone liquéfié pourra vaporiser durant l'expansion, mais la partie la plus «profonde» du liquide verra sa température diminuer à pression plus élevée. Cela impliquera une re-solidification du carbone dans un arrangement proche de celui du graphite [7].

Il était important d'avoir une hypothèse sur les changements de phases du carbone durant l'ablation, car on comprend maintenant que l'impulsion laser interagira non pas avec un



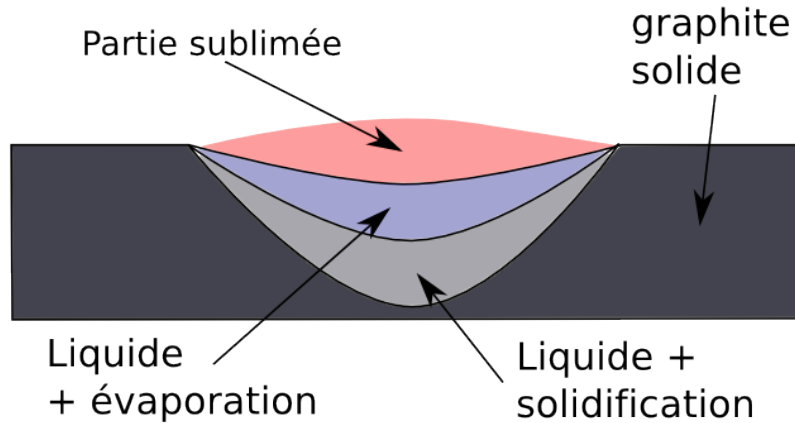
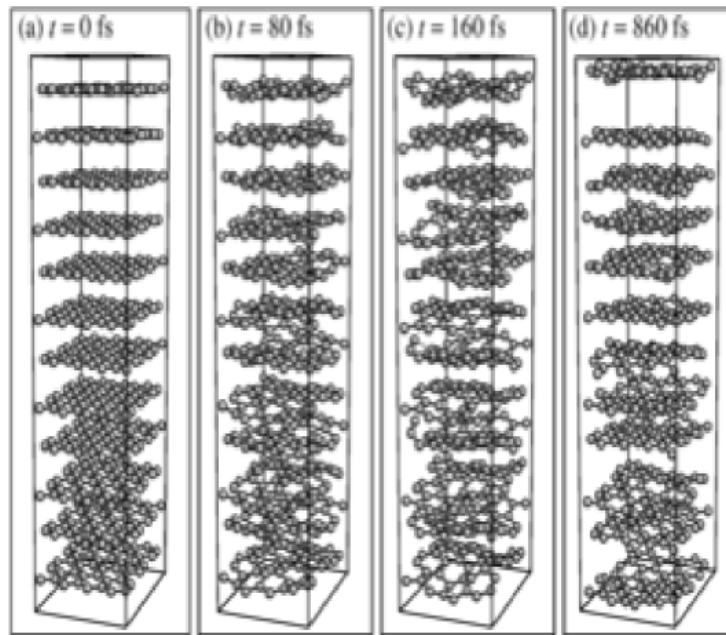


FIGURE 3.7 – Hypothèse de la distribution des phases du carbone durant l’ablation par une impulsion laser

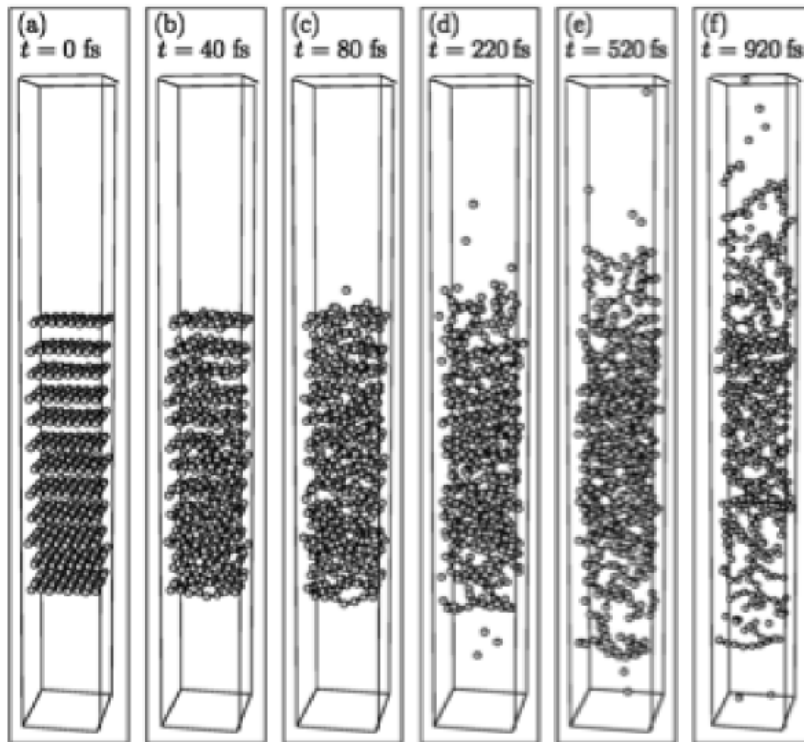
solide, mais avec un liquide de carbone. En effet, même à basse fluence, il y a une chute de la réflectivité durant les vingt premières picosecondes [15], passant de 0.3 à 0.1. Celle-ci reste ensuite constante pendant la première nanoseconde. Il faudra alors supposer que le taux de réflexion de la cible est plutôt 0.1 que 0.3.

Calculons maintenant le volume de matériel ablaté, puis l’énergie laser transmise par atome. Cela nous permettra d’établir le régime d’ablation. En effet, une étude théorique menée par Harald O. Jeschke et al. [10] montrent qu’à basse fluence ( $2.0 \text{ eV} < E_{\text{par atome}} < 3.3 \text{ eV}$ ) des plans entiers de graphite sont extraits de la cible, appelés graphènes. À haute fluence ( $E_{\text{par atome}} > 3.3 \text{ eV}$ ), l’étude montre une liquéfaction du carbone suivi d’une rapide évaporation de celui-ci. Ces deux régimes d’ablation sont illustrés dans la figure 3.8. On peut observer un détachement intact de feuilles de graphite dans la figure 3.8 (a) qui est le cas à basse fluence. Au contraire, dans la figure (b) correspondant à l’ablation à haute fluence, il y a passage par un état désordonné avant évaporation et expansion.

Dans la gamme de fluence considérée dans ce travail de thèse, on peut évaluer le diamètre du cratère à environ 1.5 fois le diamètre de la tache focale sur cible, ceci est illustré dans la figure 3.9 (gauche). Or il a été mentionné auparavant que celui-ci vaut environ 300 microns, cela conduit à un diamètre de cratère d’environ 450 microns. Ensuite, pour une fluence



(a)



(b)

FIGURE 3.8 – Illustration des simulations de dynamique moléculaire lors de l’ablation d’une cible de graphite à basse fluence (a) ainsi qu’à haute fluence (b).

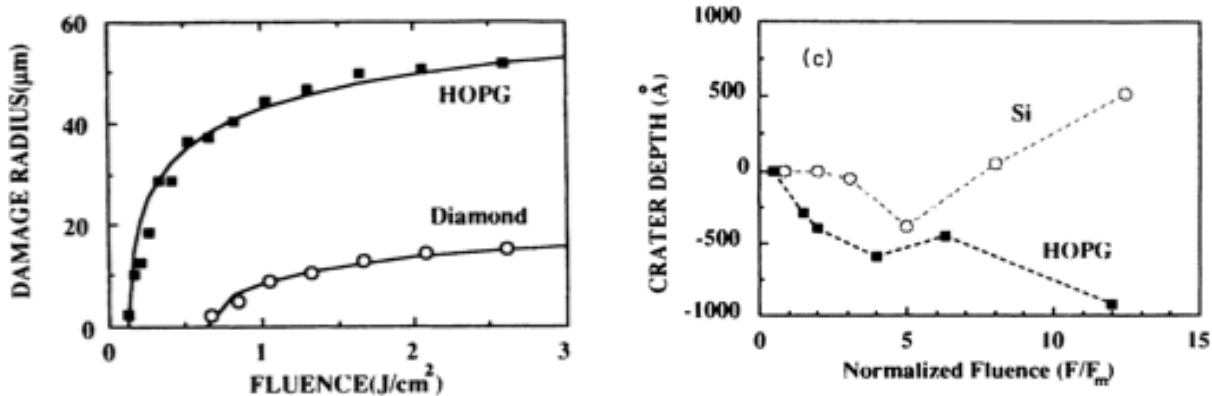


FIGURE 3.9 – (Gauche) Diamètre du cratère en fonction de la fluence d’une impulsion dont la tache focale a un diamètre de  $30 \mu\text{m}$  pour le graphite et de  $7.5 \mu\text{m}$  pour le diamant. (Droite) Profondeur d’ablation en fonction de la fluence de l’impulsion d’ablation pour le graphite et le silicium.  $F_m = 0.13 \text{ J/cm}^2$  [15]

équivalente à celle utilisée ici, la profondeur d’ablation est évaluée à  $1000 \text{ \AA}$ . En considérant la densité usuelle du graphite d’environ  $2.1 \text{ g.cm}^{-3}$  couplée à une réflexion de 0.1, l’énergie laser déposée par atome de carbone est évaluée à 5-6 eV/atome. Ces chiffres ne sont évidemment qu’une approximation, mais permettent de connaître le régime d’ablation dans lequel les conditions de l’expérience nous placent. Elles correspondent au régime de «haute fluence», mais tout en étant cependant proches de la valeur du seuil de dommage. Les implications de cette proximité avec le seuil de dommage seront détaillées dans la section suivante 3.3.1.

Une dernière remarque quant à l’absorption de l’énergie par le graphite paraît pertinente. En effet, dans la figure 3.9 (droite), il est clair que la profondeur d’ablation du graphite augmente avec la fluence. Dans le cas du silicium, la profondeur d’ablation est beaucoup plus faible que celle du graphite puis diminue fortement au-delà d’une certaine fluence. Cette diminution est sûrement due à la solidification du silicium liquide durant l’influence d’une onde de choc. L’augmentation du volume d’ablation pour des fluences plus élevées implique le fait que l’énergie déposée par atome n’augmentera, elle, pas avec la fluence. En résumé, il est possible d’ablater un volume plus grand de matériel tout en conservant un degré d’ionisation assez bas. Ces conditions, une forte densité de particules peu ionisées, sont idéales pour la génération d’harmoniques d’ordres élevés.

## Rupture des liaisons C-C du réseau dans le régime de «haute fluence» et composition du plasma

La section précédente a permis d'identifier comment l'énergie était distribuée au sein de la cible solide ainsi que le régime d'ablation. Ce dernier aurait impliqué un plasma composé de «grosses» nanoparticules pour un régime de basse fluence. Cependant, les conditions propices à la génération d'harmoniques d'ordres élevés imposent un régime dit de «haute» fluence où le carbone passera par un état désordonné avant de rapidement vaporisé dans le vide. Mais de quelles particules est composé cet état désordonné? Pour répondre à cette question, il convient de décrire les mécanismes de rupture des liaisons C-C au sein d'un cristal de graphite. Nous ne décrirons que les cibles graphitiques puisque, selon le raisonnement précédent, toutes les cibles de carbone tendent à devenir graphitiques durant les changements de phase dus à l'influence de l'énergie laser déposée durant l'ablation.

Les conditions expérimentales nous permettent de penser que la composition du plasma sera très proche de celle du gaz issu de la sublimation du graphite solide ou de la vaporisation du liquide carboné. En effet, l'état liquide ou gazeux sera essentiellement lié à la pression, une pression accrue réduisant la distance entre particules et permettant ainsi aux forces de Van Der Waals de «lier» les particules. Mais il est raisonnable de penser que les mécanismes de rupture des liaisons carbonées seront identiques dans les deux cas, la sublimation ou la liquéfaction. De plus, une fois le plasma en expansion, étant donné une température très modérée et une faible pression (calculée proche de la pression atmosphérique dans les conditions spécifiques à la génération d'harmoniques), due à la faible fluence d'ablation, la composition du plasma devrait être peu perturbée par les collisions. En résumé, la compréhension de la manière dont les liaisons C-C se rompent donnera accès à la composition du plasma en expansion.

Pour cela, il semble adapté de décrire le formalisme développé par Douglas J. Krajnovich dans l'article [13], lui-même inspiré du travail de Herzberg et al. [14] relatif au calcul de la chaleur de sublimation du graphite. L'explication qui suit sera chronologiquement inversée

par rapport au travail de Douglas J. Krajnovich. En effet, il décrit dans son article [13] la composition du plasma de carbone mesurée grâce à un spectromètre à temps de vol pour ensuite proposer un mécanisme d’ablation pouvant expliquer les observations. Nous exposerons donc d’abord ces mêmes mécanismes pour en déduire la possible composition du plasma généré dans le cadre de la génération d’harmoniques.

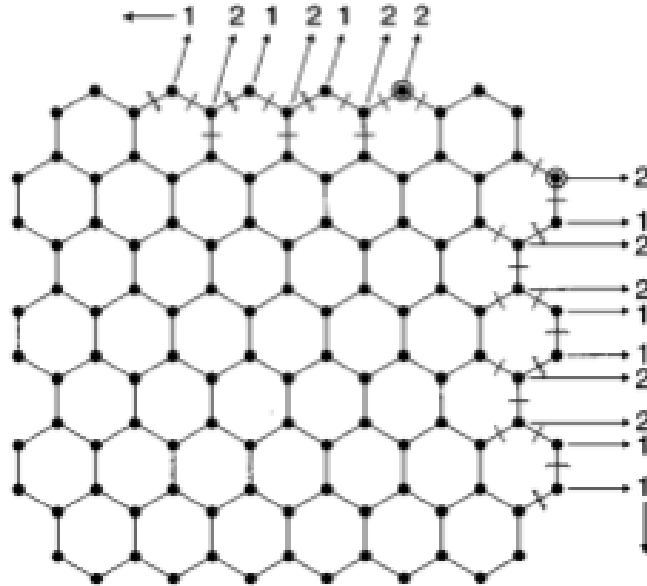


FIGURE 3.10 – Illustration du processus de rupture des liaisons C-C dans le cas de l’ablation d’une cible de graphite par une impulsion laser. Figure extraite de [13].

Le modèle de rupture de liaisons C-C est illustré sur la figure 3.10. Tout d’abord, l’ablation des particules de carbone sera réalisée par couches successives. Les liaisons entre carbones seront rompues dans le plan supérieur du cristal de graphite, puis, une fois celui-ci entièrement désintégré, l’ablation continue au plan graphitique suivant et ainsi de suite. Maintenant, concentrons-nous au mécanisme d’ablation d’un seul plan. L’auteur explique que le premier atome de carbone extrait du réseau sera un des atomes sur le bord d’un des plan graphitique des micro-cristaux contenus dans la cible. En effet, il ne nécessitera la rupture que de deux liaisons alors qu’un atome du centre du plan comprend trois liaisons à rompre. Ensuite, l’ablation continuera par une alternance de rupture d’une liaison puis deux liaisons comme

on peut la remarquer sur la figure 3.10.

Jusqu'ici, il n'y a pas eu de considérations autres que la désintégration du plan de graphite en  $N$  atomes de carbone. Or, il est clair que des molécules de carbone diatomique ou triatomique peuvent être ablatées suivant exactement le même mécanisme d'alternance de rupture de deux liaisons puis trois liaisons. Il pourrait en être de même pour des molécules plus grosses de type  $C_n$ . Cependant, l'auteur explique que le facteur pré-exponentiel de la loi d'Arrhenius, lié au nombre d'atomes impliqués dans la réaction, favorisera les ruptures des particules  $C_1$ ,  $C_2$  et  $C_3$ .

Finalement, l'ablation d'une cible de graphite à fluence modérée donnera naissance à un plasma composé essentiellement d'atomes de carbones ainsi que des molécules carbonées diatomiques et triatomiques. Dans le cas particulier des conditions expérimentales de l'auteur, celui-ci obtient un ratio pour la distribution  $C_1 : C_2 : C_3 : C_4 : C_5$  de 29 :18 :51 :1.3 :0.8. Il précise que cette distribution est stable pour une large gamme de paramètres laser sans préciser toutefois l'étendue de ces conditions expérimentales. Cependant, même s'il est très difficile de dire que la composition du plasma dans le cas de la génération d'harmoniques sera la même, il est probable que les molécules diatomiques et triatomiques joueront un rôle non négligeable dans les processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés dans un plasma de carbone.

### 3.3.2 Spectroscopie résolue en temps et en espace du plasma d'ablation d'une cible de graphite

**Dispositif expérimental** Cette section va permettre d'illustrer expérimentalement les conclusions obtenues précédemment à propos des mécanismes d'ablation d'une cible de graphite. Pour cela, nous avons réalisé la spectroscopie résolue en temps et en espace du plasma d'ablation du graphite. Cette expérience a été inspirée par le travail de Noël S. et al. [17]. La résolution temporelle est de quelques nanosecondes dans notre cas. Elle semble longue comparée aux différents processus mis en jeu. Cependant, il est à rappeler que le délai du-

rant lequel le plasma s'étend avant la focalisation de l'impulsion courte dans celui-ci est de plusieurs dizaines de nanosecondes. De plus, seule une variation de ce délai de plusieurs dizaines de nanosecondes induit une variation notable du signal harmonique généré. On peut donc en conclure que le temps caractéristique d'évolution est comparable, voire supérieur à la résolution temporelle de la mesure.

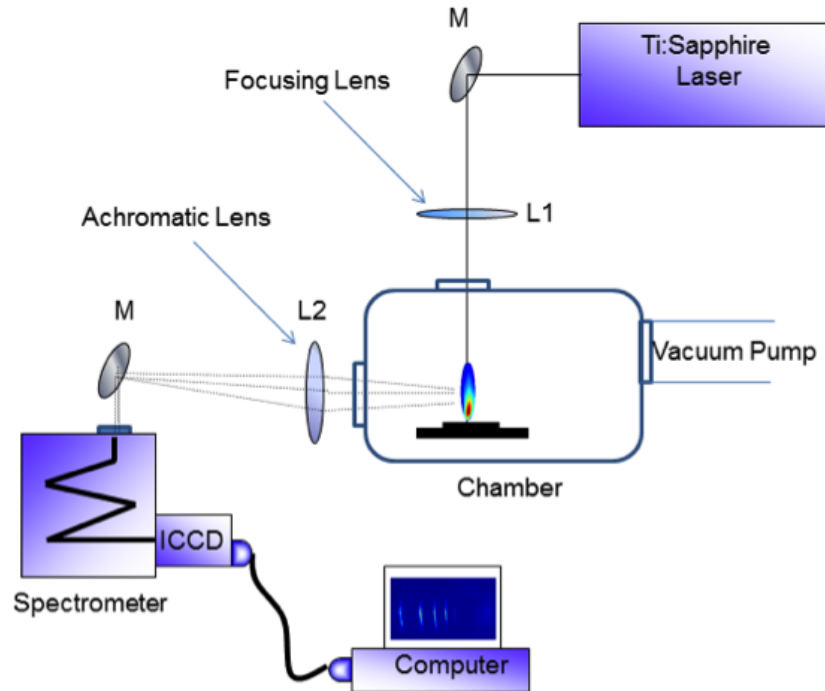


FIGURE 3.11 – Montage expérimental pour la mesure du spectre d'émission du plasma d'ablation du graphite résolu spatialement et temporellement. Cette illustration est extraite d'un rapport interne écrit par Muhammad Ashiq Fareed.

La figure 3.11 illustre le montage expérimental utilisé pour la mesure. Il consiste en l'ablation sous vide d'une cible de graphite au moyen d'une impulsion laser dont les paramètres sont identiques à ceux dans le cas de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Ensuite, le plasma est imagé sur la fente d'entrée du spectromètre au moyen d'une lentille achromatique. Celui-ci est un spectromètre Oriol MS260i couplé à une caméra iCCD ultrarapide Andor DH720-25mm comportant une porte temporelle d'acquisition minimale de 5 ns. Les spectres sont enregistrés grâce à un ordinateur couplé à la caméra et au spectromètre.

**Résultats** Les figures 3.12 et 3.13 représentent les spectres d'émission plasma dans le domaine spectral visible. Un filtre BG-39 a été utilisé pour supprimer la diffusion du rayonnement de longueur d'onde 800 nm provenant de l'impulsion d'ablation.

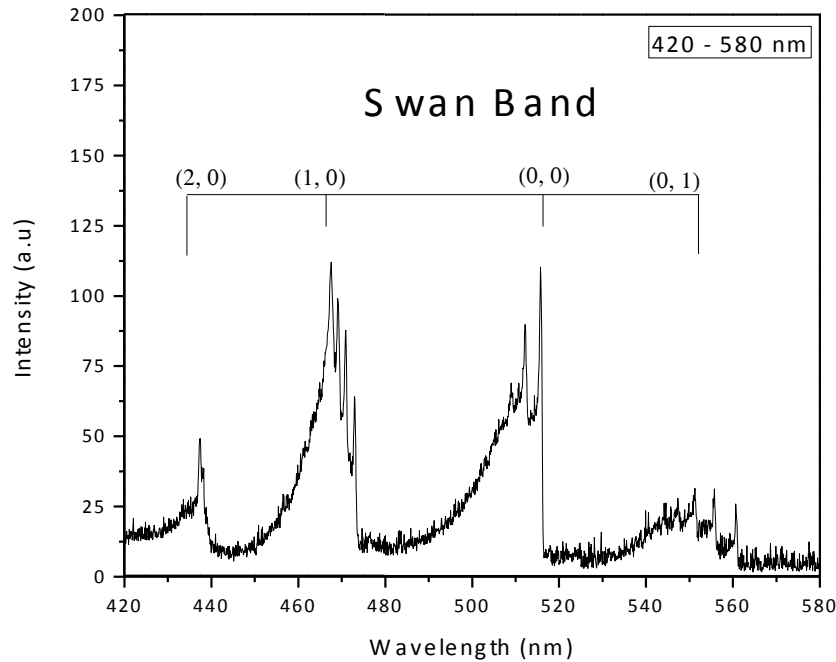


FIGURE 3.12 – Spectre d'émission du plasma de carbone dans le domaine du visible environ 30 ns après sa création. La signature de la présence de carbone diatomique est claire du à la présence de bandes de Swan [18]

Premièrement, la figure 3.12 est la signature caractéristique de la présence de molécules de carbone diatomique  $C_2$ . Les différentes bandes, composées de plusieurs raies d'émission, constituent les bandes de Swan [18]. Elles sont liées à des transitions entre niveaux rotationnels. Il n'est pas pertinent de nommer précisément les niveaux entrants en jeu, car cela n'apporterait pas d'information supplémentaire. Nous résumerons par le fait qu'ils sont la signature de la présence de molécules de carbone diatomique au sein du plasma. Cela semble être en accord avec l'interprétation précédente. En effet, lorsque la fluence de la préimpulsion est proche du seuil d'ablation, il semblerait thermodynamiquement favorable d'ablater de petites espèces moléculaires de type  $C_2$  ou  $C_3$ .

Ensuite, dans la figure 3.13, on peut observer un continuum d'émission commençant aux



alentours de 405 nm et s'étendant jusqu'à 435 nm de longueur d'onde. Elles sont attribuées aux bandes de Swings des molécules de carbone triatomique [19]. Ces molécules sont généralement très difficiles à observer, la présence de ce continuum est donc un signe de leur présence significative dans le plasma.

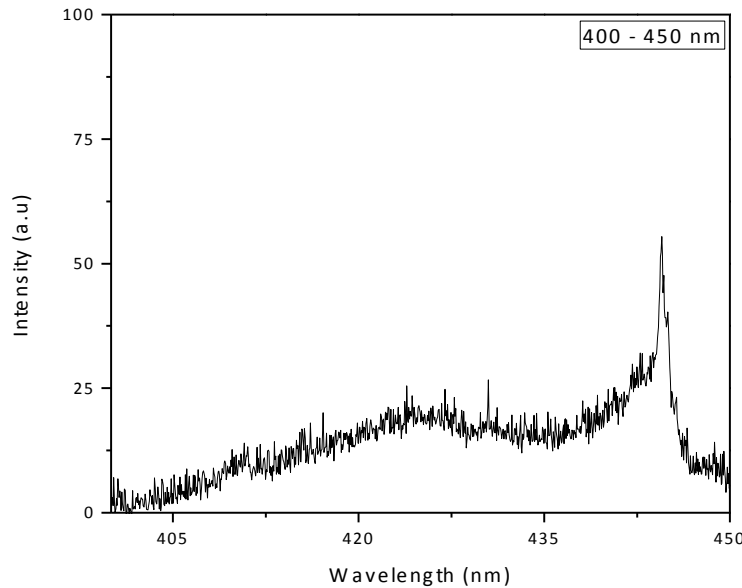


FIGURE 3.13 – Spectre d'émission du plasma de carbone dans le domaine du visible environ 30 ns après sa création. Le continuum d'émission est attribué à la présence de carbone triatomique [19].

Enfin, il n'y a aucune émission de la part des molécules ou ions de carbone atomique. Le fait de ne pas observer de signature de la présence du carbone ionique n'est pas surprenant. Les conditions plasma favorables pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés imposent, condition nécessaire mais non suffisante, une densité électronique la plus faible possible. C'est une raison pour laquelle l'ablation se fait proche du seuil. La densité ionique est donc sûrement très faible. En ce qui concerne la présence des atomes de carbone, il serait surprenant qu'ils ne soient pas présents au sein du plasma. Nous devons garder à l'esprit que cette mesure est liée à l'émission spontanée des particules du plasma. Or si celles-ci n'émettent pas de lumière dans la fenêtre spectrale d'acquisition, elles ne seront pas détectées.

La température du plasma, en supposant un équilibre thermodynamique local, se situe

à priori entre 5 eV et 10 eV. Or la première transition dans le domaine du visible implique que les atomes de carbone soient excités dans le niveau  $2s^22p4p$ . Or ce niveau est situé à 9.988520 eV, il est donc nécessaire d'avoir une température du plasma égale, voire supérieure à 10 eV afin d'observer un rayonnement émis depuis les atomes de carbone. Il semble donc peu probable qu'une quelconque émission depuis le carbone atomique puisse être observée.

## 3.4 Optimisation des paramètres de l'impulsion principale de génération

### 3.4.1 Changements opérés dans les conditions de génération et présentation des résultats

#### Description des paramètres précédents pour le cas des cibles métalliques

Afin de décrire les paramètres de génération pour le cas de plasma issu de cibles métalliques, le travail de Luc Elouga Bom est décrit ici. Il a été montré que le mécanisme de génération des plasmas métalliques implique essentiellement les ions une fois ionisés [20, 21] mais également des ions doublement ionisés [22]. On comprend ici la singularité des conditions d'accord de phase liée à la forte densité électronique ou à un potentiel d'ionisation élevé.

La figure 3.14 représente l'intensité du signal harmonique en fonction de la position du point focal de l'impulsion principale. Il est clair que l'optimum est atteint lorsque le faisceau est focalisé après le milieu de génération.

La figure 3.15 est un spectre harmonique généré à partir du plasma de carbone avec les mêmes paramètres pour l'impulsion principale que ceux des plasmas métalliques. C'est-à-dire que la longueur d'onde centrale est 800 nm, la durée de l'impulsion 40 fs, et l'intensité au niveau du point focal de l'ordre de  $10^{15}$  W.cm<sup>-2</sup>. On observe clairement une forte divergence des harmoniques, elle est évaluée à 12.5 mrad. De plus, le faisceau est inhomogène

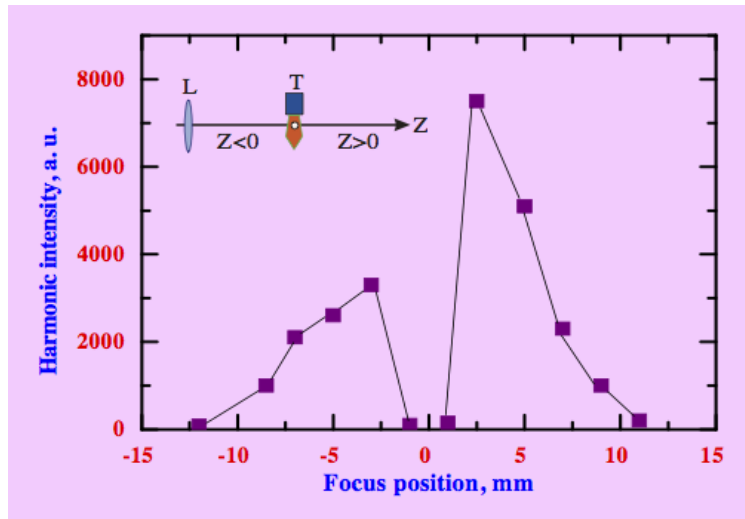


FIGURE 3.14 – Influence sur l’intensité du signal harmonique de la position du point focal de l’impulsion principale par rapport au plasma dans le cas des plasmas issus de cibles métalliques. Figure extraite du mémoire de thèse de L. B. Elouga Bom.

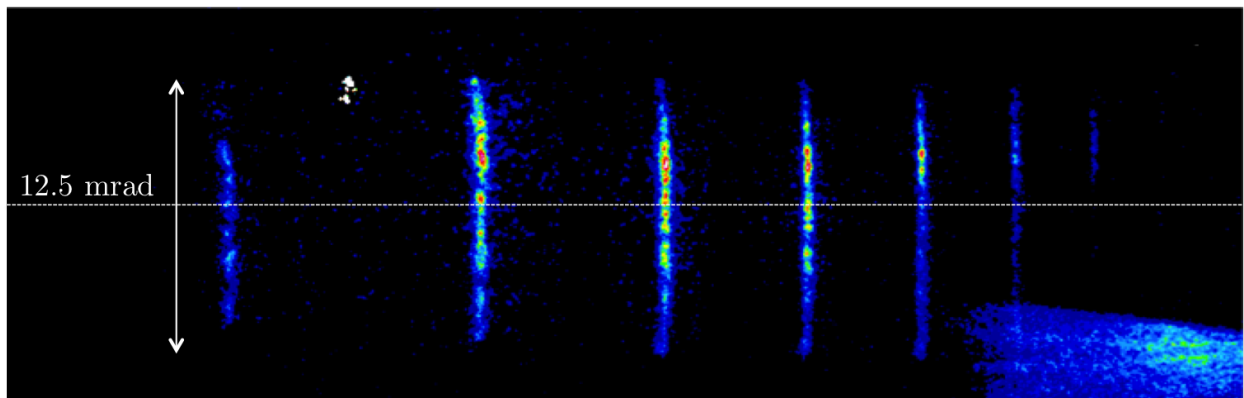


FIGURE 3.15 – Spectre harmonique à tir unique obtenu à partir d’un plasma d’ablation de carbone avec une impulsion principale dont les paramètres sont identiques à ceux des plasmas métalliques. Le spectre représente les harmoniques basses, commençant avec la 9<sup>ème</sup> à gauche de l’image.

spatialement. Afin de pouvoir comparer ces spectres avec le cas optimisé, l'intensité sur le détecteur était faible. Une plus longue intégration aurait permis d'obtenir un faisceau d'apparence plus homogène.

### Description des paramètres optimisés dans le cas du graphite

Après tout le processus de réflexion lié aux propriétés du plasma précédemment décrites, il a semblé nécessaire d'adapter fortement les conditions de génération. En effet, la forte densité électronique, induisant des effets de défocalisation, et le fort potentiel d'ionisation des espèces métalliques (ions) imposaient l'utilisation d'une très forte intensité pour l'impulsion principale. Ici, contrairement à l'appellation plasma d'ablation, le milieu non linéaire est plus proche d'un gaz d'espèces carbonées que d'un plasma ionisé. Il a semblé donc naturel de chercher des paramètres de génération proche de ceux des gaz.

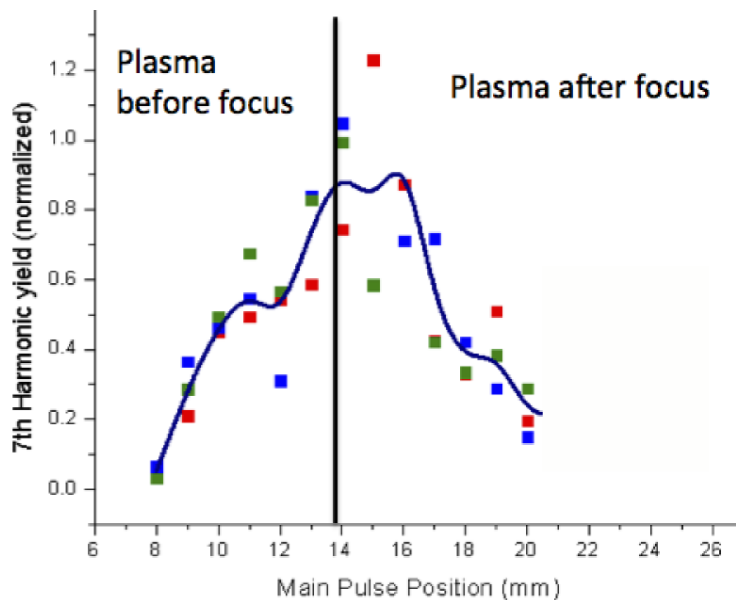


FIGURE 3.16 – Influence sur l'intensité du signal harmonique de la position du point focal de l'impulsion principale par rapport au plasma dans le cas du plasma de carbone. Le trait vertical représente la position du foyer dans le plasma. La courbe indique une efficacité de génération plus élevée pour un foyer avant le plasma.

Dans le cas des gaz, il est connu que les conditions d'accord de phase sont optimisées pour un faisceau focalisé avant le milieu non linéaire ??, favorisant cette fois-ci les trajectoires

courtes de l'électron. La figure 3.16 représente l'intensité du signal harmonique reçu en fonction de la position du point focal de l'impulsion principale. La focalisation du faisceau a été réalisée au moyen d'une lentille de longueur focale égale à 35 cm. L'intensité était de l'ordre de  $10^{14}$  W.cm<sup>-2</sup>. On observe un maximum d'intensité pour une position du point focal en accord avec le cas des gaz, c.-à-d., en amont du milieu non linéaire.

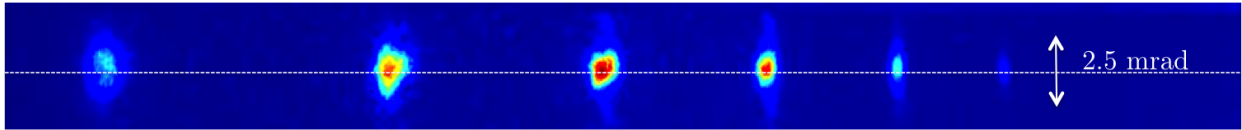


FIGURE 3.17 – Spectre harmonique obtenu à partir d'un plasma d'ablation de carbone avec une impulsion principale optimisée. Le spectre représente les harmoniques basses, commençant par la 9<sup>ème</sup> à gauche de l'image.

La figure 3.17 représente le spectre d'harmoniques d'ordres élevés issu d'un plasma de carbone avec les paramètres optimaux. Une optimisation à la fois de la divergence et de l'intensité du signal sont reportées par rapport aux conditions habituelles dans les plasmas métalliques. L'interprétation de cette amélioration est donnée ci-dessous.

### 3.4.2 Analyse de nouveaux paramètres

#### Influence du plasma

Aucune considération quant aux changements des paramètres de la préimpulsion n'a été faite au paragraphe précédent. En effet, même si les cibles et les propriétés plasmas diffèrent, ces paramètres sont en réalité assez proches. Deux explications à cette similarité sont possibles :

- Premièrement, dans le cas des cibles métalliques, les espèces émettrices sont les ions, il faut donc une fluence suffisante afin de créer des espèces ionisées. Or, les conditions optimales du plasma de carbone requièrent un plasma le plus neutre possible. Il serait alors logique de nécessiter une fluence inférieure. Cependant, le carbone n'est pas un métal parfait. Le fait de devoir peupler la bande de conduction lors de l'ablation

d'un diélectrique impose généralement une augmentation de la fluence d'ablation par rapport à un métal. En fin de compte, une même fluence créera un plasma beaucoup moins ionisé pour une cible diélectrique qu'un métal.

- Une autre explication peut venir compléter le premier point. Il semblerait que les conditions plasma soient stables pour une gamme assez large de paramètres laser [13]. Ceci pourrait être dû, lors d'une augmentation de la fluence, à une plus grande quantité de matière ablatée [15] plutôt qu'une augmentation du taux d'ionisation dans le plasma.

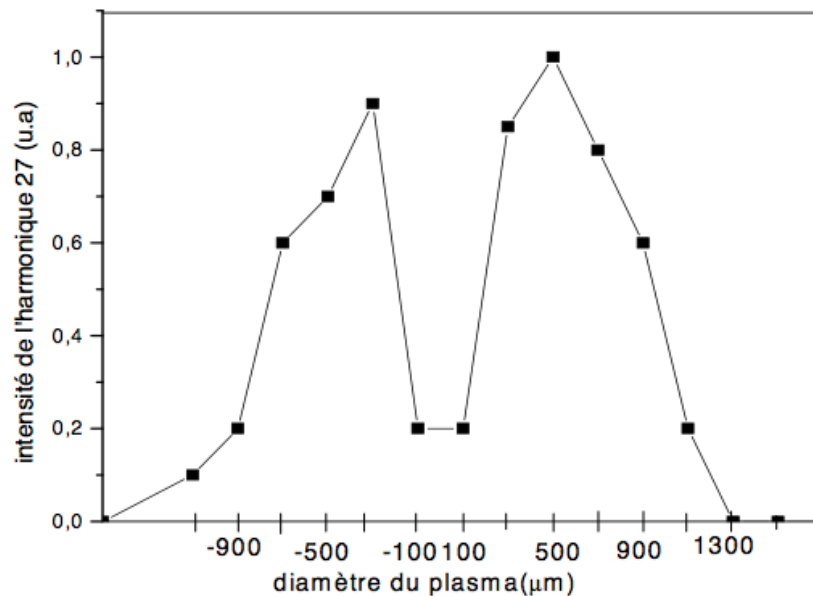


FIGURE 3.18 – Intensité du signal XUV en fonction de la dimension du plasma d'ablation de l'argent. Résultats issus du travail de thèse de L. B. Elouga Bom.

Il convient de donner une dernière remarque par rapport aux conditions du plasma. La figure 3.18 représente l'influence de la dimension spatiale du milieu dans la direction de propagation de l'impulsion principale. Celle-ci a été variée grâce au changement de position du point focal de la préimpulsion. Tout d'abord, nous remarquerons une courbe assez symétrique. Cela était attendu en raison de la symétrie du faisceau. On observe donc un maximum clair pour une dimension de plasma égale à  $600 \mu\text{m}$ . Cette courbe avait été obtenue dans le

cas d'un plasma d'argent.

Au contraire, nous savons que le plasma de carbone est lui un milieu proche de la neutralité au moment de la génération. Il est naturel d'attendre une longueur de cohérence supérieure au cas du plasma d'argent due à la présence d'électrons libres dans le cas de l'argent. La figure 3.19 représente les spectres d'harmoniques d'ordres élevés pour deux longueurs de milieu différentes pour un plasma de carbone. Nous remarquerons cependant que le comportement est fonction de la longueur d'onde, donc de l'ordre harmonique. Dans les deux cas, les conditions plasma ont été optimisées afin d'obtenir le signal maximum. Il s'en suit une difficulté de comparaison des deux signaux et des causes de leur similitude.

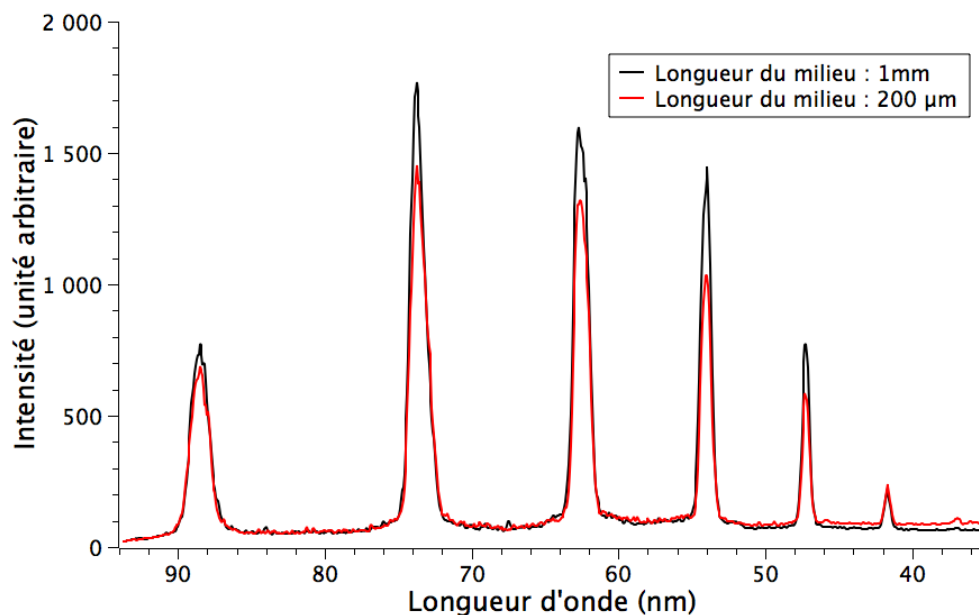


FIGURE 3.19 – Spectre d'harmoniques d'ordres élevés générés à travers un plasma de carbone de deux longueurs différentes : (noir) 1mm et (rouge) 200  $\mu\text{m}$ .

Nous pouvons cependant proposer une hypothèse. Les deux signaux sont assez similaires en intensité totale, cependant, un des milieux est cinq fois plus long que l'autre. Si nous négligeons la contribution des électrons libres, il est vraisemblable que dans le cas d'un milieu de longueur 1 mm, la densité d'émetteur soit plus faible pour obtenir le même signal que dans le cas du plasma de 200  $\mu\text{m}$ . Une grande variété de paramètres mènent à une

intensité de signal similaires. Cela rend l'alignement et l'optimisation plus simples.

## **Incidence sur le signal harmonique des changements opérés sur l'impulsion principale**

La première différence à remarquer est la très forte réduction de la divergence du faisceau XUV. En effet, alors qu'elle avait été évaluée à 12.5 mrad dans le cas précédent, elle est ici de 2.5 mrad. Ceci est vraisemblablement dû aux changements dans les conditions d'accord de phase favorisant dorénavant les trajectoires courtes [23]. D'ailleurs, pour chaque harmonique, un rayonnement peu intense de part et d'autre du maximum d'intensité est observé. Il est attribué à la contribution des trajectoires longues de l'électron. Il n'était pas observé avant probablement à cause d'une trop faible intensité de celles-ci.

L'optimisation des conditions d'accord de phase au sein du plasma a été complétée par l'utilisation simple d'un iris sur le trajet du faisceau principal [24]. En effet, la présence d'un iris aura des conséquences multiples sur les propriétés de l'impulsion laser. Il ne sera pas pertinent de redonner les détails du modèle développé par S. Kazamias et al. dans [24]. Voici les points principaux du raisonnement, il est décrit que de petites valeurs du nombre d'ouverture seront favorisées pour les considérations géométriques d'accord de phase. Le contrôle de l'ionisation par la variation d'intensité due au changement du nombre d'ouverture favorisera également les petits diamètres de l'iris afin de réduire l'ionisation. Au contraire, l'amplitude et la phase du moment dipolaire seront maximisées pour des valeurs élevées de l'ouverture de l'iris. Nous pourrions conclure que la valeur optimale sera un compromis entre les différents effets sur les conditions d'accord de phase au sein du milieu et la réponse de l'atome unique.

Le dernier point porte sur les changements d'intensité apportés à l'impulsion principale. Ce dernier point est d'une grande importance notamment technique. En effet, il est assez facile d'obtenir des intensités de l'ordre de  $10^{13} - 10^{14}$  W.cm<sup>-2</sup> grâce à des systèmes laser de type multi millijoules avec un taux de répétition kilohertz. Un haut taux de répétition peut



être un atout pour un grand nombre d'expériences, en particulier liées à la spectroscopie XUV. Or, dans le cas des cibles métalliques, des intensités de  $10^{15} - 10^{16}$  W.cm<sup>-2</sup> étaient nécessaires. Or cela nécessite l'accès à des installations laser térawatt qui, le plus souvent, ont un taux de répétition de 10 Hz. La réduction de l'intensité nécessaire afin de générer des impulsions XUV intenses (voir le chapitre 5) ouvre donc un potentiel d'applications précédemment impossibles.

### 3.5 Résumé du troisième chapitre

De nombreux types de cibles carbonées ont été testées. L'une des principales caractéristiques du rayonnement issu du plasma d'ablation de ces cibles est, contrairement aux attentes, une forte similarité des résultats obtenus pour une large gamme de paramètres. Quelques tendances ont cependant pu être déduites, notamment le fait que le caractère graphitique de la cible semble important.

Ensuite, une réflexion, au regard des paramètres de l'impulsion d'ablation habituellement utilisés pour l'ablation du graphite a été menée. Le passage par un état liquide de la cible pendant le processus d'ablation pourrait expliquer la similarité des résultats pour des cibles carbonées non graphitiques. En effet, lors du refroidissement, un changement de phase s'opère et la cible, quelque soit son arrangement d'origine, solidifie dans un état graphitique. Ces résultats semblent être confirmés par le diamant notamment.

La rupture des liaisons C-C est très complexe. En effet, des atomes de carbone sont ablatés de la cible, mais aussi, de petites molécules carbonées telles que le carbone diatomique ou triatomique. Les particules de plus grandes tailles ne semblent pas favorisées durant l'ablation. Il semble également peu probable qu'elles aient le temps de se former durant l'expansion du plasma due à la faible densité. Il est important de retenir que le plasma d'ablation du graphite, dans les conditions appliquées à la génération d'harmoniques d'ordres élevés, est composé d'atomes et de petites molécules. Cela fut ensuite vérifié par des mesures

de spectres d'émission du plasma résolu spatio temporellement. Malheureusement, il n'est pas possible d'obtenir les abondances relatives des espèces du milieu.

Enfin, une optimisation empirique des paramètres de l'impulsion principale pour la génération à partir d'un plasma d'ablation de carbone a été décrite. Alors qu'auparavant dans le cas des métaux, les espèces impliquées dans le processus de génération étaient des ions, il semble que cela soit des neutres dans ce cas. Il a donc fallu travailler sur un modèle de génération beaucoup plus proche de celui du gaz que du plasma, c.-à-d., une intensité de l'impulsion principale dans le milieu plus modéré et un changement radical dans les considérations géométriques de l'accord de phase et de l'intensité. Cela se traduit principalement par favoriser maintenant les trajectoires courtes.

## Références du troisième chapitre

- [1] J. S. Prasad and V. Dhand. Methane cracking over commercial carbons for hydrogen production. *International Journal of Energy and Environment*, 1(4) :607–616, 2010.
- [2] R.a. Ganeev, P.a. Naik, H. Singhal, J.a. Chakera, M. Kumar, U. Chakravarty, and P.D. Gupta. Use of carbon-containing materials for efficient high-order harmonic generation of laser radiation. *Optics Communications*, 285(12) :2934–2941, June 2012.
- [3] A. L. Patterson. The scherrer formula for xray particule size determination. *Physical review*, 56 :978–982, 1939.
- [4] T. Ozaki, L.B. Elouga Bom, J. Abdul-Hadi, and R.a. Ganeev. Evidence of strong contribution from neutral atoms in intense harmonic generation from nanoparticles. *Laser and Particle Beams*, 28(01) :69, April 2010.
- [5] J. Glosli and F. Ree. Liquid-Liquid Phase Transformation in Carbon. *Physical Review Letters*, 82(23) :4659–4662, June 1999.
- [6] Y. Yamagata, A. Sharma, J. Narayan, R. M. Mayo, J. W. Newman, and K. Ebihara. Comparative study of pulsed laser ablated plasma plumes from single crystal graphite and amorphous carbon targets. Part I. Optical emission spectroscopy. *Journal of Applied Physics*, 88(11) :6861, 2000.
- [7] J. S. Speck, J. Steinbeck, and M. S. Dresselhaus. Microstructural studies of laser irradiated graphite surfaces. *Journal of Materials Research*, 5(05) :980–988, January 1990.
- [8] R. a. Ganeev, L. B. Elouga Bom, and T. Ozaki. Generation of higher harmonics of femtosecond radiation in clusters. *Optics and Spectroscopy*, 108(6) :970–978, June 2010.
- [9] K. F. Al-Shboul, S. S. Harilal, a. Hassanein, and M. Polek. Dynamics of C2 formation in laser-produced carbon plasma in helium environment. *Journal of Applied Physics*, 109(5) :053302, 2011.
- [10] H. Jeschke, M. Garcia, and K. Bennemann. Theory for the Ultrafast Ablation of Graphite Films. *Physical Review Letters*, 87(1) :015003, June 2001.

- [11] M. S. Tillack, D. W. Blair, and S. S. Harilal. The effect of ionization on cluster formation in laser ablation plumes. *Nanotechnology*, 15(3) :390–403, March 2004.
- [12] M. Huang, F. Zhao, Y. Cheng, N. Xu, and Z. Xu. Large area uniform nanostructures fabricated by direct femtosecond laser ablation. *Optics express*, 16(23) :19354–65, November 2008.
- [13] D. J. Krajnovich. Laser sputtering of highly oriented pyrolytic graphite at 248 nm. *The Journal of Chemical Physics*, 102(2) :726, 1995.
- [14] G. Herzberg, K. F. Herzfeld, and E. Teller. The Heat of Sublimation of Graphite. *The Journal of Physical Chemistry*, 41(2) :325–331, February 1937.
- [15] D. H. Reitze, H. Ahn, and M. C. Downer. Optical properties of liquid carbon measured by femtosecond spectroscopy. *Phys. Rev. B*, 45(6), 1992.
- [16] J. D. Huba. NRL PLASMA FORMULARY. pages 1–71, 2009.
- [17] S. Noel, J. Hermann, and T. Itina. Investigation of nanoparticle generation during femtosecond laser ablation of metals. *Applied Surface Science*, 253(15) :6310–6315, May 2007.
- [18] W. Swan. On the prismatic spectra of the flames of compounds of carbon and hydrogen. *Earth and Environmental Science Transactions of the Royal Society of Edinburgh*, 21 :411–429, 1 1857.
- [19] L. Nemes, A. M. Keszler, C. G. Parigger, J. O. Hornkohl, H. A. Michelsen, and V. Stakhursky. Spontaneous emission from the c3 radical in carbon plasma. *Appl. Opt.*, 46(19) :4032–4040, Jul 2007.
- [20] T. Ozaki, L.B. Elouga Bom, R. Ganeev, J.-C. Kieffer, M. Suzuki, and H. Kuroda. Intense harmonic generation from silver ablation. *Laser and Particle Beams*, 25(02) :321–325, June 2007.
- [21] L.-B. Elouga-Bom, F. Bouzid, F. Vidal, J.-C. Kieffer, and T. Ozaki. Correlation of plasma ion densities and phase matching with the intensities of strong single high-

- order harmonics. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 41(21) :215401, November 2008.
- [22] R. Ganeev, L. Bom, J.-C. Kieffer, M. Suzuki, H. Kuroda, and T. Ozaki. Demonstration of the 101st harmonic generated from a laser-produced manganese plasma. *Physical Review A*, 76(2), August 2007.
- [23] P. Balcou, A. S. Dederichs, M. B. Gaarde, and A. L’Huillier. Quantum-path analysis and phase matching of high-order harmonic generation and high-order frequency mixing processes in strong laser fields. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 32(12) :2973, 1999.
- [24] S. Kazamias, F. Weihe, D. Douillet, C. Valentin, T. Planchon, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, and Ph. Balcou. High order harmonic generation optimization with an apertured laser beam. *The European Physical Journal D*, 21(3) :353–359, December 2002.



# Chapitre 4

## IDENTIFICATION DES MÉCANISMES DE GÉNÉRATION

### 4.1 Introduction

L'un des buts principaux de ce travail de thèse était de comprendre les mécanismes de génération des harmoniques d'ordres élevés à partir du plasma de carbone. En effet, étant donné la forte efficacité de conversion (supérieure à  $10^{-4}$ , voir chapitre 5), comprendre les raisons de cette efficacité permettrait de continuer à l'optimiser ou à transposer ses avantages à d'autres types de cibles. Malheureusement, la complexité du milieu issu de l'ablation de la cible de graphite ne rend pas la tâche aisée. Un grand nombre d'espèces sont potentiellement présentes dans le milieu, bien sûr, des atomes de carbone, mais aussi de petites molécules ou même de plus grosses nanoparticules. La partie précédente a permis d'écarter la piste des nanoparticules, car celles-ci, même si elles sont certainement présentes, sont probablement beaucoup trop peu nombreuses pour influencer la génération des harmoniques.

Dans ce chapitre, nous allons donc proposer les premières pistes pour un modèle de génération. Pour cela, nous allons considérer les propriétés du rayonnement émis dans certaines conditions et analyser les possibles causes expliquant les résultats observés. Par exemple, un

fort décalage vers le rouge a été observé lors d'une augmentation de l'intensité de l'impulsion principale. Ensuite, parce que l'utilisation d'une impulsion à 800 nm de longueur d'onde centrale limite fortement l'étendue du spectre harmonique, la génération à partir de longueurs d'ondes plus élevées a été réalisée. La forme des spectres a été analysée au regard des sections efficaces de photo-ionisation des différentes espèces dont la présence dans le milieu non linéaire est la plus probable.

## 4.2 Décalage vers le rouge : signature d'un mécanisme de génération complexe

### 4.2.1 Observation expérimentale

Travailler dans des conditions optimisés a permis l'observation d'un phénomène assez atypique. En effet, lors de l'augmentation de l'intensité de l'impulsion principale dans le milieu de génération (plasma de carbone), un fort décalage vers le rouge des harmoniques a été observé, cf figure 4.1. Ceci est atypique dans le sens où, une augmentation de l'intensité menant à un décalage de la longueur d'onde fondamentale vers le bleu due à l'ionisation du milieu, nous attendons que les harmoniques soient également décalées vers le bleu. Le terme décalage vers le rouge (respectivement bleu) réfère à un décalage du signal vers des longueurs d'onde plus (respectivement moins) élevées. Lorsque l'intensité de génération est augmentée, deux phénomènes principaux expliquent un décalage vers le bleu du signal. Premièrement, une automodulation de phase de l'impulsion de génération lors de la propagation dans le milieu ionisé implique une réduction de la longueur d'onde centrale de celle-ci et donc des harmoniques impaires générées. Également, en cas de forte intensité, la déplétion du milieu implique un taux de génération inférieur pour le front descendant de l'impulsion. Cette asymétrie dans le train d'impulsion généré mène à un décalage vers le bleu des harmoniques.

La figure 4.2 représente le montage expérimental simple relié à l'observation du décalage



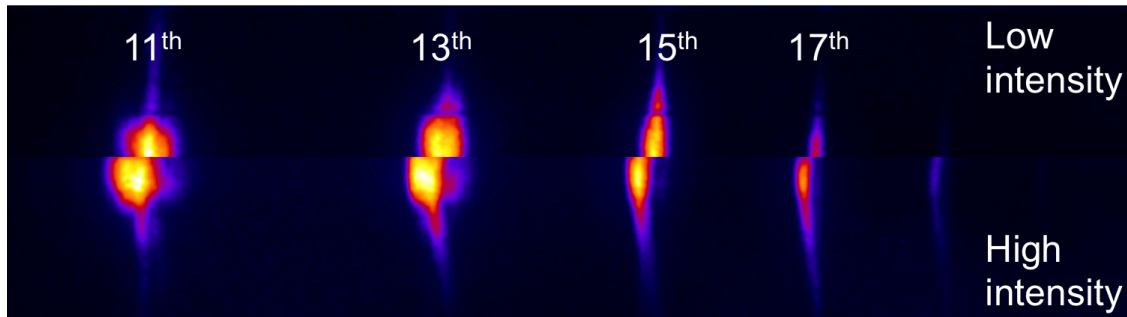


FIGURE 4.1 – Illustration de l’observation du décalage vers le rouge. L’image représente les spectres d’harmoniques d’ordres élevés à basse intensité (haut) et haute intensité (bas). Les échelles horizontales de longueurs d’onde sont les mêmes pour les deux images.

spectral des harmoniques vers le rouge lors de l’augmentation de l’intensité de l’impulsion principale. Il consiste en l’ajout d’une ligne d’atténuation sur le trajet de l’impulsion courte afin de pouvoir modifier facilement l’intensité de l’impulsion. Elle est composée premièrement d’une lame demi-onde permettant la rotation de la direction de polarisation. Ensuite, deux polariseurs de type «thin film» fonctionnant à un angle d’incidence de  $72^\circ$  en réflexion sélectionnent la polarisation S (verticale par rapport au plan de la table). Une deuxième lame demi-onde peut être ajoutée après la ligne d’atténuation afin de revenir à une polarisation P (parallèle au plan de la table). Cela sera utile afin d’atténuer la réflexion de l’impulsion infrarouge sur le miroir silicium à angle de Brewster. Le signal harmonique ainsi généré est ensuite dispersé puis détecté au moyen d’un spectromètre XUV précédemment décrit dans la partie 1.3.2. Le spectre et durée d’impulsion après les «thin film» polariseurs ont été mesuré afin de vérifier que les réflexions dans la ligne d’atténuation ne perturbent pas la mesure.

La méthode utilisée afin d’étudier l’influence de l’intensité de l’impulsion a été tout d’abord d’optimiser tous les paramètres lasers afin d’obtenir le signal harmonique le plus intense possible. Ensuite, une nouvelle surface de la cible était choisie, suivie d’une rapide optimisation fine des paramètres. Enfin, pour chaque valeur de l’intensité, 20 spectres ont été enregistrés afin d’obtenir une erreur statistique de mesure. Les onze points de la courbe représentent donc 220 tirs, ce qui correspond à 22 secondes d’acquisition pour un taux de répétition à 10 Hertz. Or le signal harmonique issu du plasma d’ablation d’une cible de

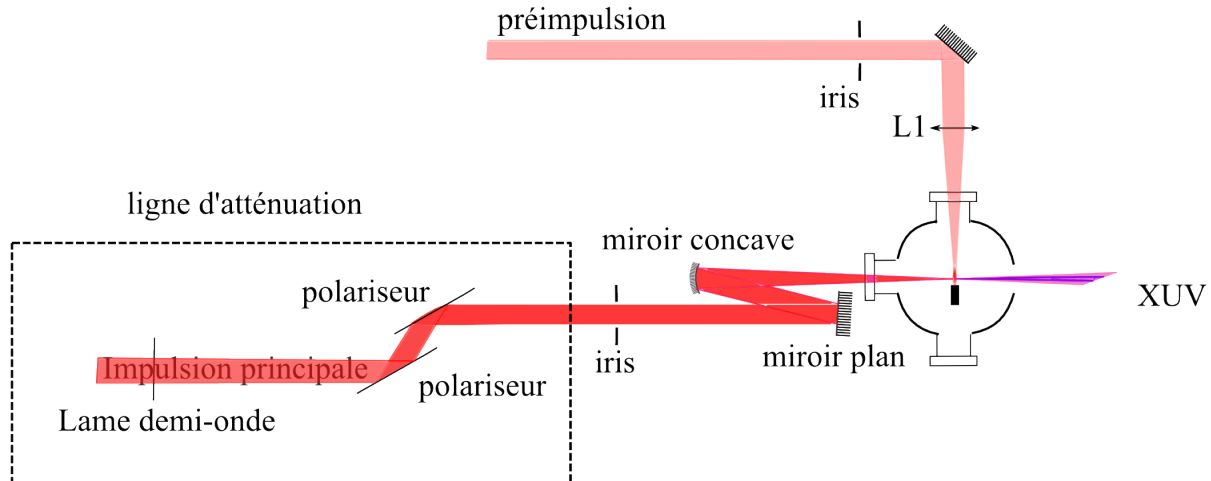


FIGURE 4.2 – Montage expérimental utilisé lors de l’observation du décalage vers le rouge par augmentation de l’intensité de l’impulsion de génération. Le faisceau XUV est ensuite détecté au moyen d’un spectromètre XUV.

graphite a été mesuré stable pour une durée minimum d’une minute. On peut donc considérer que l’effet d’ablation de la cible est négligeable.

Les résultats de la mesure sont présentés sur la figure 4.3. La valeur absolue du décalage spectral est une fonction de l’intensité de l’impulsion principale. Nous observons une rapide croissance du décalage spectral avec l’intensité entre  $10^{14}$  et  $5 \times 10^{14}$  W.cm<sup>-2</sup>, mesuré par imagerie du point focal et mesure de l’énergie par impulsion ainsi que de la durée d’impulsion par dispositif SPIDER. Ensuite, une fois la valeur maximale atteinte, celle-ci reste stable ou légèrement croissante pour, en fin de courbe entamer ce qui semble une diminution. La valeur du décalage est une fonction de la longueur d’onde de l’harmonique considéré. Seuls les ordres 11, 13 et 15 ont pu être traités, car à basse intensité, ils sont les seuls observés.

## 4.2.2 Investigation d’une résonance

**Motivation de la recherche d’une résonance comme mécanisme de décalage spectral** Premièrement, il convient d’expliquer en quoi l’observation d’un décalage vers le rouge peut être la signature d’un mécanisme de génération complexe, incluant par exemple une

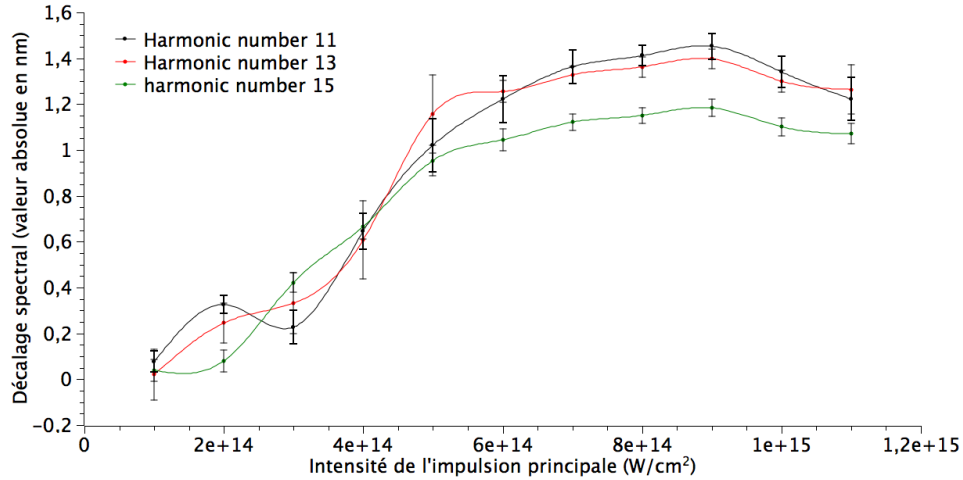


FIGURE 4.3 – Valeur relative du décalage en longueur d’onde en fonction de l’intensité de l’impulsion de génération. Le zéro est défini par rapport à la longueur des harmoniques pour un faisceau de génération peu intense.

étape supplémentaire d’excitation résonante. En effet, comme nous l’avons expliqué plus haut, une augmentation de l’intensité de l’impulsion de génération mène logiquement à un décalage spectral vers le bleu. Or, à notre connaissance, seuls deux autres processus que ceux abordés dans ce travail de thèse existent pour expliquer un décalage vers le rouge du signal harmonique.

K. Y. Kim et al. montrent la possibilité d’un décalage vers le rouge en cas de présence de clusters dans le milieu de génération [1]. Ce décalage spectral est assimilé à un processus de type automodulation de phase et implique un changement de longueur d’onde centrale de l’impulsion infrarouge lors de la propagation dans le milieu. Premièrement, comme nous l’avons abordé dans le chapitre précédent, il est peu probable qu’il y ait présence de clusters volumineux dans la zone d’interaction avec l’impulsion ultra-courte. Ensuite, une mesure du spectre de l’impulsion de génération en sortie du milieu non linéaire a été réalisée. Aucun changement notable dans la forme du spectre ou dans la longueur d’onde centrale n’a été remarqué dans la gamme d’intensité étudiée ici. Pour finir, le décalage spectral rapporté dans l’article [1] est de l’ordre de 5 nm pour les valeurs les plus élevées. Or dans le cas présent, un décalage de l’ordre de 1 nm a été reporté pour la quinzième harmonique. Il aurait nécessité

un changement de la longueur d'onde centrale de 15 nm. Or, cela est incompatible avec le modèle proposé par K. Y. Kim et al. dans [1]. Il est vraisemblable qu'un autre mécanisme est responsable.

Ensuite, une autre mesure de décalage vers le rouge a été reportée par F. Brandi et al. dans [2]. Cependant, l'explication nécessite la génération des harmoniques grâce à une impulsion d'une durée de plusieurs dizaines de picosecondes. Or dans notre cas, la durée d'impulsion est de 40 femtosecondes. Ce modèle échoue également à expliquer le décalage vers le rouge observé.

Les travaux du X. B. Bian [3–5] sont une autre piste pouvant expliquer la présence de ce décalage spectral non habituel. Lorsque le système présente une résonance avec la longueur d'onde de l'impulsion de génération, une étape supplémentaire lors de l'ionisation entre en compte. En effet, le modèle courant de la génération des harmoniques d'ordres élevés est modifié de la manière suivante :

1. Excitation résonante du niveau fondamental vers le niveau excité
2. Ionisation depuis le niveau excité vers le continuum
3. Oscillation de l'électron libre sous l'effet du champ électrique laser : gain d'énergie cinétique
4. Recombinaison vers le niveau fondamental : génération d'un photon XUV.

Ce processus à 4 étapes va induire une asymétrie dans la phase du train d'impulsions, résultant en un décalage spectral vers le rouge. En effet, pour une impulsion suffisamment courte, la valeur du pic du champ électrique va augmenter rapidement au cours du temps. Or, plus il est important, plus la longueur d'onde du rayonnement XUV émis a une fréquence élevée. Il y aura alors une augmentation de la fréquence de l'impulsion XUV avec le temps durant le front montant de l'impulsion de génération. Au contraire, le front descendant de l'impulsion infrarouge génère un « chirp » négatif. En effet, habituellement aucun décalage spectral n'est observé de par la symétrie du « chirp ». Cependant, lors de l'introduction d'une asymétrie dans la variation du « chirp » donc de la phase, un décalage vers le rouge

(respectivement vers le bleu) est observé si le train d'impulsions attosecondes est généré durant le front descendant (respectivement montant) de l'impulsion principale.

Une asymétrie temporelle dans le processus de génération pourra donc induire un décalage spectral. En effet, dans la plupart des cas, le front montant de l'impulsion est favorisé, en particulier en raison de la déplétion du niveau fondamental. Cela se traduira en une tendance à la réduction de la longueur d'onde des harmoniques générées. Cependant, dans le cas d'une résonance, la première étape d'excitation introduira un délai supplémentaire dans le processus d'ionisation et donc, la contribution du front descendant de l'impulsion sera plus importante, expliquant un décalage spectral vers le rouge.

### **Quelle modification au modèle de Lewenstein pour une génération résonante ?**

Considérons un atome dont nous noterons  $|0\rangle$  le niveau fondamental,  $|1\rangle$  le niveau excité résonant et  $|v\rangle$  les niveaux électroniques dans le continuum. Les mêmes hypothèses que dans le cadre du modèle de Lewenstein de la partie 1.2.3 sont faites excepté le fait qu'ici, le niveau fondamental n'est plus le seul considéré. Nous n'en considérerons cependant pas d'autres que le niveau fondamental, le niveau excité et les états du continuum. Lorsque l'électron est ionisé, l'influence du potentiel de coulomb de l'ion parent est négligée. Connaître la trajectoire de l'électron revient donc à résoudre l'équation de Schrödinger en présence d'un champ électrique :

$$i\frac{\partial\Psi(t)}{\partial t} = [H_0 - zE(t)]\Psi(t) \quad (4.1)$$

On supposera que  $\Psi(t)$  peut s'écrire sous la forme :

$$\Psi(t) = e^{-iE_0t} \left[ a_0(t) |0\rangle + a_1(t) |1\rangle e^{-i(E_1-E_0)t} + \int d^3v b(v, t) |v\rangle \right] \quad (4.2)$$

Où  $a_0(t)$ ,  $a_1(t)$  et  $b(v, t)$  sont les amplitudes des niveaux  $|0\rangle$ ,  $|1\rangle$  et  $|v\rangle$ .  $E_0$ ,  $E_1$  et  $E_v$  sont les valeurs propres des états respectifs  $|0\rangle$ ,  $|1\rangle$  et  $|v\rangle$ , donc leur énergie. L'utilisation de 6.2 dans 6.1 puis la projection sur un des niveaux considérés permettra d'obtenir les amplitudes

$a_i(t)$  ( $i = 0, 1, v$ ). Les détails du calcul sont donnés en annexes 6.1. Le moment dipolaire  $d(t) = \langle \Psi(t) | z | \Psi(t) \rangle$  s'écrira alors :

$$d(t) = 2\Re \left[ \underbrace{d_1(t)}_{\text{transition résonante } \langle 0|z|1 \rangle} + \underbrace{d_2(t)}_{\substack{\text{ionisation depuis } |0\rangle \\ \text{recombinaison vers } |0\rangle}} + \underbrace{d_3(t)}_{\substack{\text{ionisation depuis } |0\rangle \\ \text{recombinaison vers } |1\rangle}} \right. \\ \left. + \underbrace{d_4(t)}_{\substack{\text{ionisation depuis } |1\rangle \\ \text{recombinaison vers } |0\rangle}} + \underbrace{d_5(t)}_{\substack{\text{ionisation depuis } |1\rangle \\ \text{recombinaison vers } |1\rangle}} \right] \quad (4.3)$$

Des simulations ont été menées par le Dr Bian sur une molécule  $\text{H}_2^+$  avec une distance interatomique fixe de 2 ua. L'intensité laser a été fixée à  $2 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$  avec une impulsion centrée à 800 nm de durée treize femtosecondes. Les résultats obtenus grâce au modèle précédemment décrit ont été comparés au spectre calculé par la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps. Les résultats du calcul sont représentés figure 4.4. Ces calculs fournissent la réponse microscopique et donc aucun effet de propagation n'est inclus.

Premièrement, on observe clairement un décalage spectral des harmoniques impaires vers les longueurs d'onde plus élevées. Les valeurs diffèrent suivant la méthode de calcul, mais le comportement est lui le même. On remarque également une division de chaque harmonique en sa partie résonante décalée spectralement et sa partie non résonante ici décalée vers le bleu. En conclusion, la présence d'un niveau résonant avec la longueur d'onde du laser peut induire un décalage des harmoniques vers le rouge. Il est attendu que ce décalage augmente avec l'intensité dans le cas d'une excitation résonante multiphotonique. Donc, une intensité accrue permettra de peupler le niveau excité plus efficacement, résultant en une augmentation du décalage spectral. Les ordres les plus élevés n'étant générés qu'au centre de l'impulsion, ils seront beaucoup affectés par ce phénomène. Cela explique donc également la dépendance spectrale du décalage.

Il a donc été décidé de rechercher expérimentalement la présence d'une résonance autour de la longueur fondamentale égale à 800 nm.

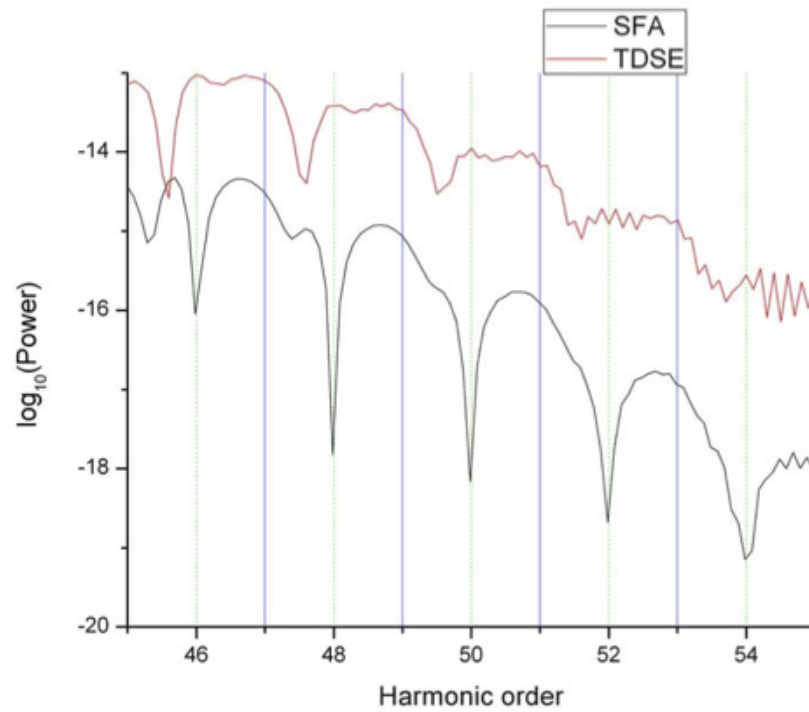


FIGURE 4.4 – Spectres obtenus numériquement par (noir) le calcul dans l’approximation du modèle de Lewenstein (rouge) la résolution de l’équation de Schrödinger dépendante du temps.

**Montage expérimental** Le montage qui sera décrit prochainement a été motivé par plusieurs points. Premièrement, dans l'hypothèse de la présence d'une résonance, il semblait naturel de travailler à une longueur d'onde proche de 800 nm. En effet, la génération d'harmoniques d'ordres élevés avec une impulsion courte centrée à 400 nm n'a montré aucun comportement de décalage spectral, autre qu'un décalage vers le bleu à haute intensité. Ceci est donc en accord avec une possible résonance. Également, étant donné qu'aucune certitude sur l'espèce émettrice n'est connue, il semblait difficile de réaliser une revue de la littérature des possibles transitions de toutes les espèces carbonées d'un plasma d'ablation. Nous avons la certitude de la présence de molécules diatomique et triatomique comportant donc de nombreux niveaux de vibration et rotation. Il a donc été décidé de procéder de manière empirique. Enfin, il a semblé probable que la longueur d'onde de la résonance ne soit pas exactement 800 nm. En effet, la nécessité d'une forte augmentation de l'intensité pour l'observation d'un décalage spectral notable pourrait corroborer cette hypothèse. Cela pourrait être le signe que la résonance soit située sur un des bords du spectre de l'impulsion de génération ou que l'automodulation de phase de l'impulsion lors de la propagation rapproche la longueur d'onde centrale de la résonance.

En résumé, le but de l'expérience était d'avoir une impulsion courte dont le spectre est accordable sur une large plage spectrale autour de 800 nm. Pour cela, il est nécessaire de modeler l'impulsion de génération en plusieurs étapes. Le montage expérimental est représenté sur la figure 4.5. Nous allons maintenant en décrire les différentes étapes :

1. Le faisceau en sortie du boîtier laser est divisé en deux grâce à une lame séparatrice. Une partie de l'énergie servira à ablatir la cible, l'autre partie sera modelée par le système optique afin de générer les harmoniques. Décrivons maintenant les étapes du modelage de l'impulsion principale.
2. Étant donné le fait que le profil spatial du faisceau pour le système 10 Hz du laboratoire ALLS n'est pas de qualité suffisante, celui-ci est filtré spatialement avant compression. Un profil spatial le plus gaussien possible est important pour un bon



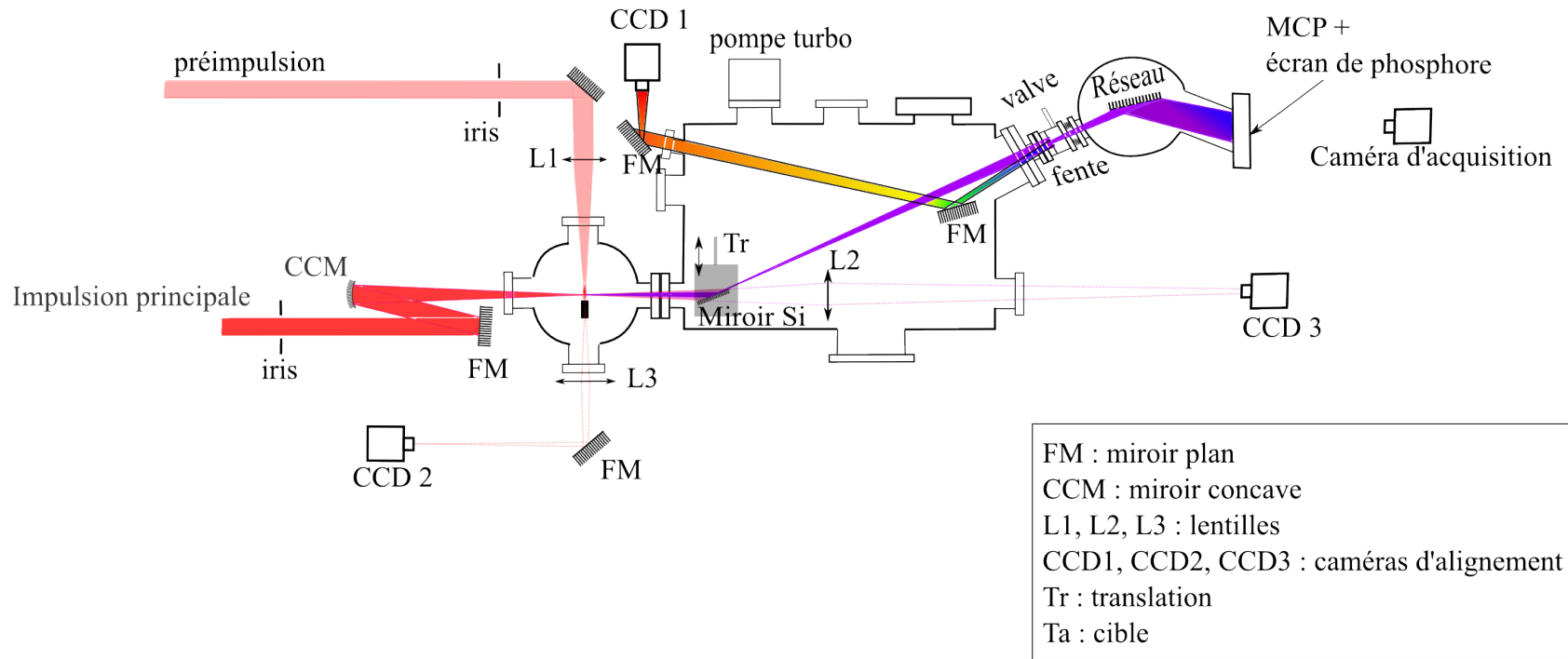


FIGURE 4.5 – Montage expérimental utilisé pour l'investigation d'une résonance lors de la génération des harmoniques d'ordres élevés dans un plasma de carbone.

couplage ultérieur avec la fibre creuse.

3. L'impulsion filtrée spatialement est ensuite compressée jusqu'à une durée de 40 femtosecondes grâce à une paire de réseau. Le système est à l'air étant donné les intensités modérées utilisées ici. Il est important d'avoir un profil temporel d'impulsion après compression de qualité, car, comme nous l'expliquerons plus tard, cela introduira des défauts dans le spectre de l'impulsion en sortie de fibre. Les profils temporels d'impulsion ont été mesurés grâce à la méthode [SPIDER](#). Un grand soin a été apporté afin d'éviter tout ordre 2 ou 3 dans la phase de l'impulsion en sortie de compresseur.
4. L'impulsion ainsi compressée est focalisée à l'entrée d'une fibre creuse remplie d'un gaz noble, néon ou hélium dans notre cas. Le but est d'élargir spectralement l'impulsion de départ qui ne comporte, avant élargissement, qu'un spectre de 30 nm de largeur. En effet, lors de la propagation de l'impulsion dans le guide de verre remplie d'un gaz avec un indice non linéaire  $n_2$ , l'automodulation de phase va permettre l'élargissement du spectre d'origine. Le spectre après élargissement est représenté figure [4.8](#). Le spectre avant compression étant une gaussienne centrée sur 800 nm d'environ 30 nm de largeur de bande.

La difficulté de ce montage a résidé dans le fait qu'il nécessitait une énergie la plus élevée possible en sortie de fibre. Or, voir annexes [6.2](#) pour plus de détails, généralement le couplage dans la fibre ne permet pas d'avoir un coefficient de transmission supérieur à 60%. Donc, environ la moitié de l'énergie de l'impulsion est perdue durant le processus d'élargissement du spectre. De plus, l'impulsion en sortie de fibre est ensuite dirigée vers un montage de mise en forme de l'impulsion connu sous le nom de «pulse shaper». Celui-ci est également décrit plus en détail en annexes [6.3](#). La mise en forme de l'impulsion va impliquer la réflexion sur une paire de réseau ainsi que la sélection d'une partie du spectre. Beaucoup d'énergie sera alors également perdue.

Or, le but était d'obtenir une impulsion avec une énergie sur cible supérieure à 500 microjoules. Cela nécessitait alors d'entrer dans le montage 4f avec environ trois milli-

joules et, pour cela, de pouvoir coupler six millijoules en entrée de la fibre creuse. Son système de focalisation est donc sous vide. De plus, le système de pompage doit être performant afin qu'il reste le moins possible d'oxygène dans le montage de fibre, celui-ci engendrant de la filamentation et nuisant fortement à l'énergie maximale pouvant être couplée dans la fibre.

5. L'impulsion en sortie de fibre comporte donc un spectre très large, pouvant aller jusqu'à un octave. Elle est ensuite envoyée dans le montage de mise en forme d'impulsion ou montage 4f. Ce montage consiste à se placer dans le plan de Fourier où les différentes fréquences sont séparées spatialement puis à masquer les parties du spectre non désirées. Les fréquences autorisées sont alors recombinaées pour former une nouvelle impulsion modifiée. Ici, le masque consistait simplement en un iris. C'est donc mathématiquement une fonction rectangulaire. Il est vrai que, par transformée de Fourier inverse, ce type de fenêtre introduit des «pieds» à l'impulsion principale. Nous avons cependant considéré cet effet comme négligeable dans un premier temps.
6. En sortie du dernier montage, un miroir pouvant être positionné sur le trajet du faisceau permet de diriger l'impulsion dans un spectromètre ainsi que dans un dispositif de mesure de durée d'impulsion **SPIDER**. À chaque nouvelle sélection de longueurs d'onde centrales de l'impulsion, les paramètres d'énergie, de durée d'impulsion et de spectres étaient vérifiés afin d'être dans des conditions de génération comparables.
7. L'impulsion est enfin focalisée dans le milieu de génération afin de produire les harmoniques d'ordres élevés. Ce milieu est le plasma d'ablation créée précédemment grâce à la focalisation du faisceau non compressé sur la cible de graphite. Un délai naturel d'environ 40 nanosecondes existe entre les deux impulsions.

**Résultats** Malheureusement, aucune information pertinente quant à la présence ou non d'une résonance n'a pu être trouvée. Il a premièrement été extrêmement difficile de conserver des conditions parfaitement identiques pour chaque longueur centrale sélectionnée. En effet,

comme nous pouvons le voir sur la figure 4.8, le spectre de l'impulsion en sortie de la fibre n'est absolument pas gaussien. Il a fallu trouver une pression de gaz adéquate pour chaque sélection spectrale (l'indice non linéaire est proportionnel à cette pression) afin d'avoir un spectre le plus constant possible. De plus, la phase spectrale, comme décrit en annexe 6.2, présente également des irrégularités en sorties de fibres. Il était alors impossible de compenser les variations spectrales de la phase de manière homogène sur tout le spectre. Il a fallu travailler avec des fenêtres spectrales de largeur non constantes afin d'obtenir des durées d'impulsions identiques.

Si le signal avait montré un maximum clair pour une longueur d'onde précise du spectre, nous aurions pu en déduire la présence d'une résonance en dépit des erreurs issues du montage. Cependant, aucun comportement aussi défini n'a été observé. Nous devons donc conclure qu'une résonance ne paraît pas être l'hypothèse la plus probable pour expliquer la présence d'un décalage vers le rouge, aussi bien qu'une forte efficacité de conversion.

**Effet de l'introduction d'un «chirp»** Après cette absence de résultats en ce qui concerne une possible résonance, nous avons décidé d'étudier le signal harmonique reçu en fonction de la valeur du «chirp» introduit par la translation du deuxième réseau du montage 4f. Aucun masque n'a été appliqué dans le plan de Fourier, transmettant ainsi la totalité du spectre élargi par propagation dans la fibre. Une valeur minimale claire de la durée d'impulsion a été observée, à la fois par mesure SPIDER ainsi que grâce à l'observation du signal harmonique. En effet, le minimum de durée d'impulsion se traduit par un signal harmonique maximum ainsi qu'une augmentation de la largeur spectrale associée à chaque harmonique, voir figure 4.6. Ainsi, ce minimum de durée d'impulsion, environ 20 femtosecondes durant l'expérience, a été considéré comme l'origine du «chirp». Ensuite, par translation du dernier réseau, un décalage temporel entre les différentes longueurs d'onde a été introduit résultant en une augmentation de la durée d'impulsion, mais aussi une modification du profil temporel de l'impulsion.

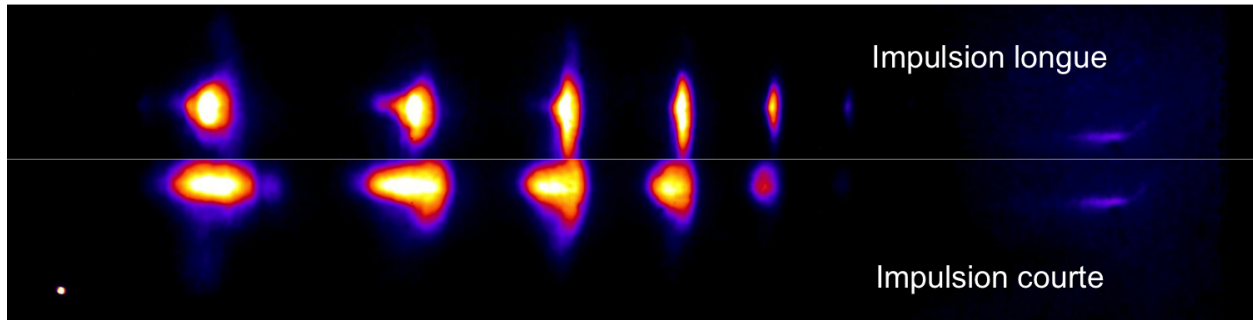


FIGURE 4.6 – Images des spectres harmoniques obtenus dans le cas (haut) d’une impulsion longue chirpée (bas) d’une impulsion courte

L’intensité du signal harmonique a été mesurée en fonction de la valeur du «chirp» ajoutée par translation du réseau. La figure 4.7 représente le graphique obtenu pour cette mesure. Intéressons-nous premièrement à la courbe obtenue pour un «chirp» positif, c’est-à-dire que la fréquence augmente en fonction du temps. C’est une courbe décroissante, résultat attendu, car la durée de l’impulsion diminuant à énergie constante, l’intensité diminue donc. Au contraire, dans le cas d’un «chirp» négatif, le signal commence à diminuer faiblement puis, pour une certaine valeur du «chirp», une augmentation du signal est observée. Ce comportement n’est pas relatif à une impulsion dont l’intensité diminue.

Or, le spectre obtenu en sortie de la fibre, permettant l’élargissement spectral de l’impulsion d’origine, n’est absolument pas gaussien, voir figure 6.2 en annexe 6.2. La phase est également modifiée lors de la propagation et celle-ci acquiert des ordres élevés. Il était donc nécessaire d’analyser le profil temporel obtenu par introduction d’un «chirp» à une impulsion comportant un spectre complexe. Malheureusement, il n’a pas été possible de réaliser la mesure dans le laboratoire, car le dispositif SPIDER nécessitait une durée d’impulsion inférieure à 50 fs pour fournir une mesure correcte. Le dispositif FROG n’était lui pas disponible pendant le temps de l’expérience.

L’analyse qui suit est donc théorique. Nous avons cependant utilisé des paramètres très proches de ceux de l’expérience, qui notamment, permettait de retrouver un spectre en sortie de fibre le plus proche possible du spectre expérimental. La comparaison des spectres

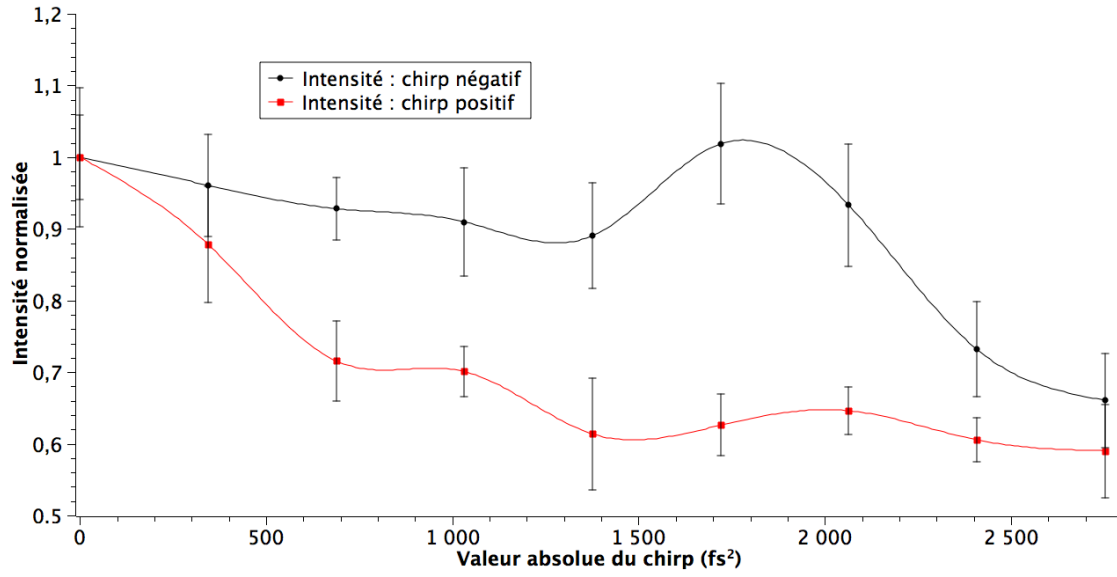


FIGURE 4.7 – Intensité du signal total harmonique en fonction de la valeur absolue du «chirp». Ce comportement montre une asymétrie claire en fonction du signe de celui-ci.

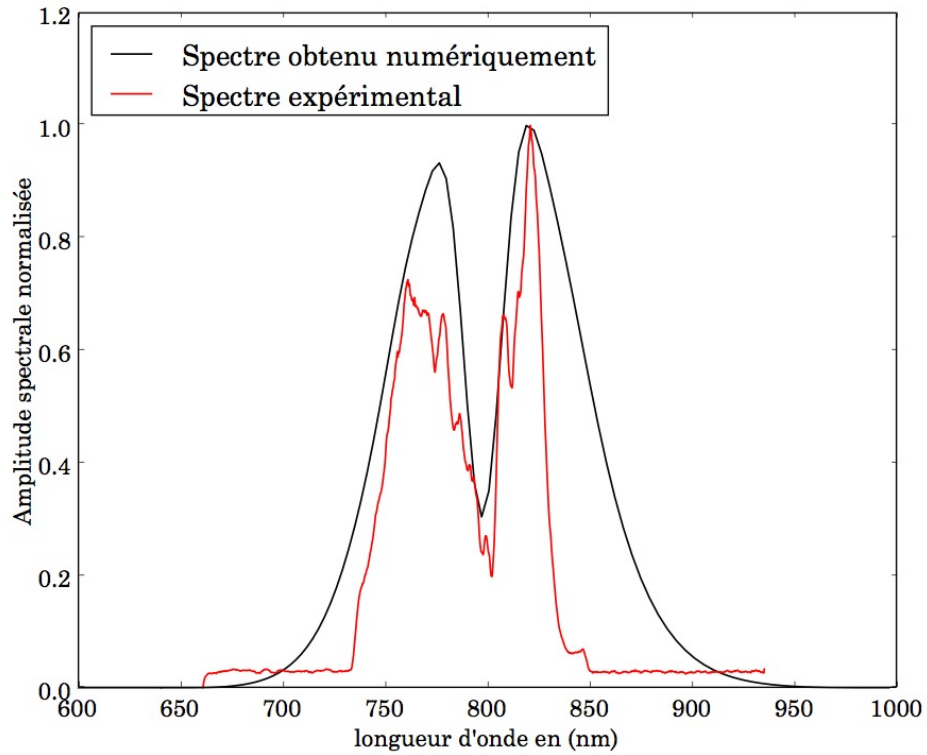


FIGURE 4.8 – Comparaison des spectres obtenus expérimentalement (rouge) et numériquement (noir).

expérimentaux et numériques est donnée dans la figure 4.8.

Ensuite, nous avons observé le comportement temporel d'une impulsion dont le spectre coïncide avec celui obtenu numériquement plus haut à laquelle un «chirp» est ajouté. Les figures 4.9 et 4.10 représentent le profil temporel de l'intensité d'une impulsion pour deux valeurs positives (respectivement négatives) du «chirp» dans la figure 4.9 (respectivement 4.10). On remarque clairement un comportement asymétrique par rapport au signe du «chirp». Il est vrai que le spectre numérique diffère légèrement du spectre expérimental. Cependant, leur forme composée de deux pics est proche et de plus, cette asymétrie a été vérifiée pour différents paramètres de l'impulsion et elle semble être stable. En effet, le caractère de double impulsion dans le cas de l'introduction d'un «chirp» négatif semble perdurer pour une large gamme de conditions en entrée de la fibre. L'introduction du «chirp» positif semble essentiellement allonger temporellement l'impulsion, donc diminuer son intensité, ainsi que d'introduire certaines structures de type multi pics, mais celles-ci variant. Cette asymétrie explique donc la différence de comportement pour les courbes obtenues dans la figure 4.7.

Maintenant, il convient d'analyser un peu plus en détail les raisons qui expliquent notamment l'augmentation de l'intensité du signal harmonique dans le cas d'une valeur particulière négative du «chirp». Mais tout d'abord, il semble assez évident, au regard de la figure 4.9 la raison de la décroissance du signal. En effet, l'impulsion semble contenir un pic principal dont l'intensité décroît avec l'augmentation du «chirp». Ce comportement, tout à fait normal, n'est pas observé dans le cas opposé. Une augmentation assez forte du signal est même observée.

Tout d'abord, il ne semble pas y avoir une forte diminution de l'intensité des pics. En effet, même si leur intensité décroît effectivement, c'est surtout le délai entre ces deux pics qui augmente. Cela peut expliquer la diminution moins brutale du signal en début d'augmentation de la valeur absolue du «chirp» (négatif ici). Cependant, cela n'explique pas, dans le cas d'un mécanisme de génération de type atomique, l'augmentation soudaine du signal.

Pour cela, nous proposons une hypothèse qui pourrait expliquer ce comportement aty-

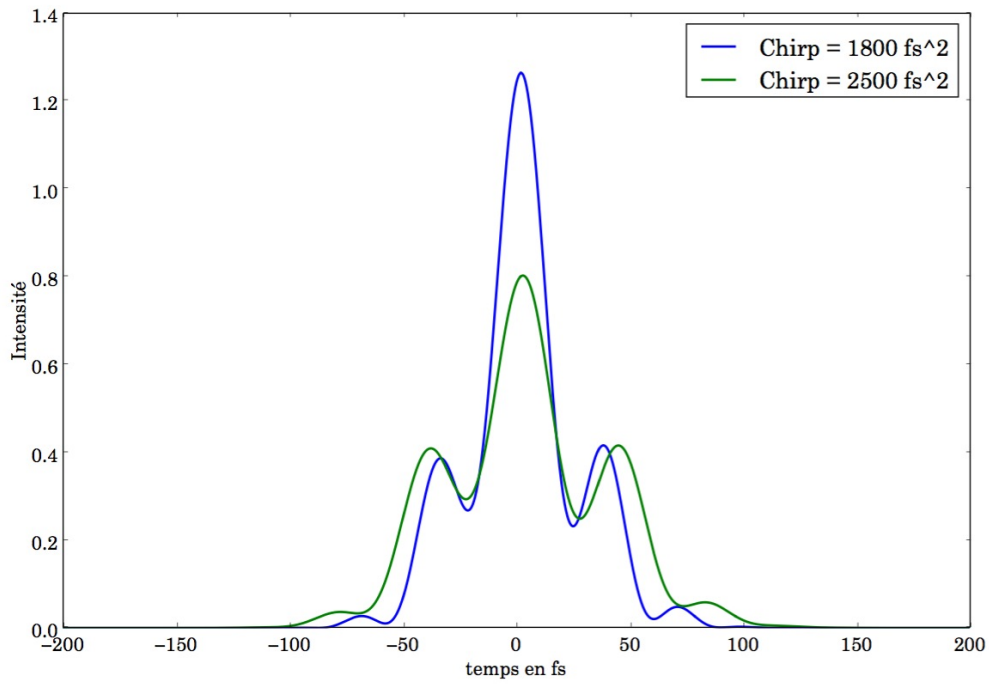


FIGURE 4.9 – Profil temporel de l’intensité d’une impulsion pour deux valeurs positives différentes du «chirp».

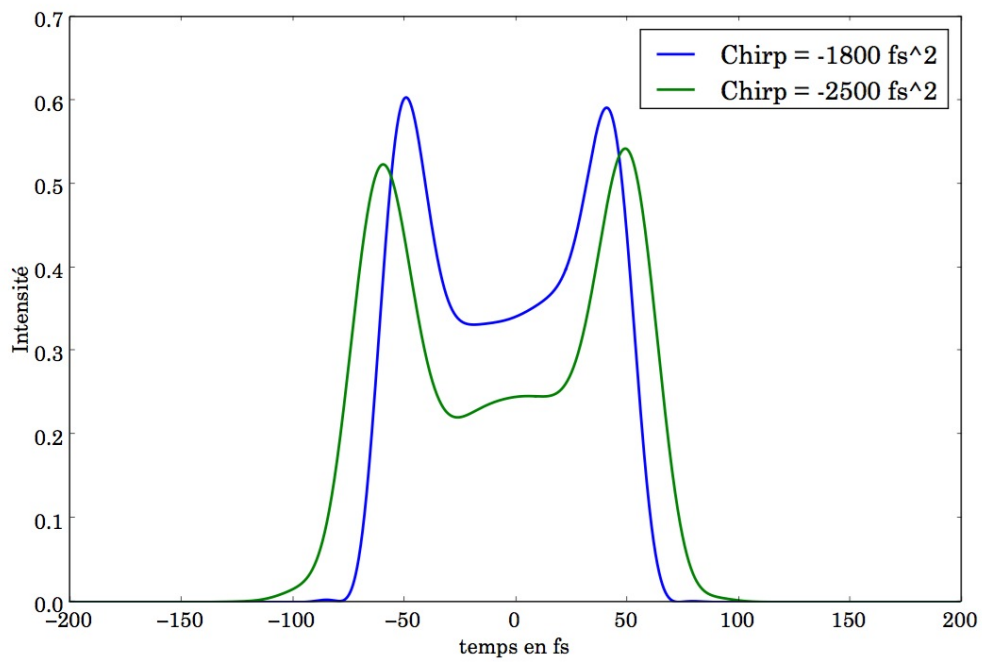


FIGURE 4.10 – Profil temporel de l’intensité d’une impulsion pour deux valeurs négatives différentes du «chirp».



pique et rétrospectivement, explique également la présence d'un décalage vers le rouge. Cette hypothèse est le fait que premièrement, le mécanisme de génération implique une molécule et non seulement un atome, mais également que le mouvement des atomes de la molécule n'est pas négligeable durant la génération. Lors de la dissociation de la molécule, celle-ci aura une extension spatiale plus importante, la probabilité de recombinaison pourrait donc également être supérieure.

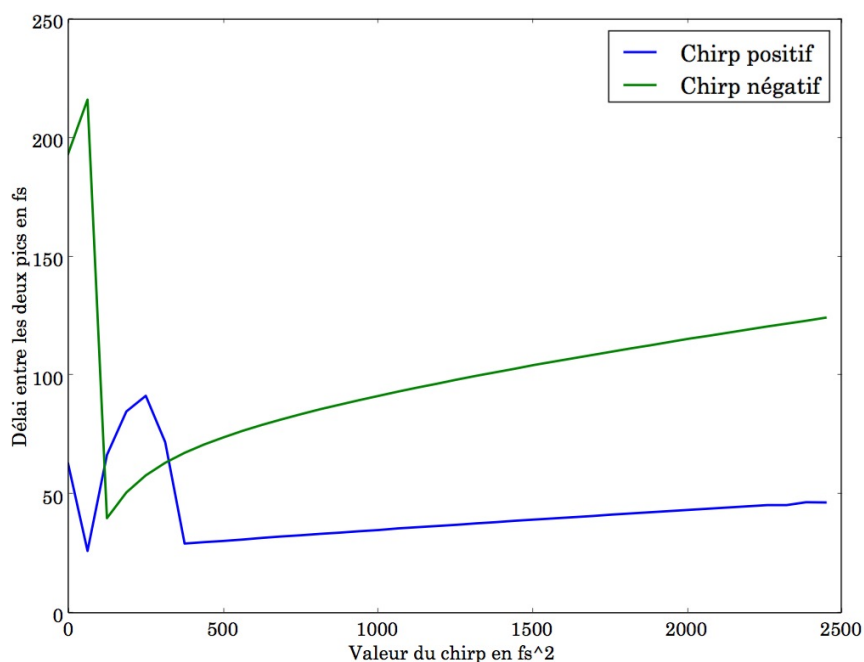


FIGURE 4.11 – Courbe représentant le délai entre les deux pics présents dans l'impulsion dans les cas d'un «chirp» positif (bleu) et négatif (vert). Le cas de la courbe bleu ne représente pas une réelle valeur de ce délai, car la double structure n'y est pas présente.

La figure 4.11 représente le délai entre les deux pics de l'impulsion chirpée. Le début de la courbe n'est pas significatif d'un grand délai, mais plutôt du fait qu'à très petit chirp, l'impulsion n'a pas encore ce double profil. Le code ayant calculé ce délai n'a pas convergé pour les très petits «chirp». De plus, la courbe bleue (cas d'un chirp positif) présente une évolution non continue. Clairement, le problème est le même que pour le début de la courbe. Le cas du «chirp» positif n'amenant pas à cette double impulsion, le code n'a donc tout simplement pas trouvé les deux pics. Finalement, on remarque une augmentation du délai entre les deux

pics dans le cas du «chirp» négatif. Le signal harmonique présente une augmentation pour un délai approximatif d'une centaine de femtosecondes.

Nous n'avons pas pu, dans un temps raisonnable, trouver d'information sur la dissociation des molécules de dicarbone dans un champ laser très intense. En effet, cette étude n'a à priori jamais été menée. Nous parlons ici du cas de la molécule de dicarbone, car elle est la molécule carbonée la plus simple. Cependant, la dissociation moléculaire peut impliquer par exemple des molécules de carbone triatomique dont on sait qu'elles sont présentes dans le plasma. De plus, nous n'avons pas d'information quant au caractère de cette possible dissociation. Prend-elle la forme d'une ionisation dissociative ?



Ou bien le peuplement efficace des niveaux de vibrations permet la dissociation de la molécule sans nécessaire ionisation ?

Cela a des incidences sur le caractère ionique ou neutre l'espèce qui générera les harmoniques. En effet, il a été reporté que des molécules diatomiques avec une charge impaire pouvait montrer une efficacité de génération élevée [6]. Mais aussi, comme nous le verrons plus tard, la section efficace de photo-ionisation des molécules de carbone diatomiques semble particulièrement élevée pour les faibles valeurs d'énergie. Ceci est également en accord avec une efficacité de génération élevée pour les ordres les plus bas du spectre harmonique.

### 4.2.3 Considération du mouvement intramoléculaire

**Interprétation théorique** Comme nous venons de le voir, l'investigation d'une résonance n'a pas été concluante. Même s'il est évident qu'il existe de nombreux niveaux excités, il ne semblerait pas qu'il y ait la présence d'un niveau peuplé très efficacement par absorption multiphotonique à une longueur d'onde proche de 800 nm. Les résultats considérant l'introduction d'un «chirp» nous ont amené à la supposition d'un processus de dissociation

moléculaire durant le processus de génération. Pour une valeur précise de la distance inter-nucléaire [7–9], la probabilité d’ionisation serait fortement augmentée et donc ainsi le signal harmonique également. Afin d’étudier le rôle de la dissociation lors de la génération d’harmoniques d’ordres élevés, X. B. Bian [10] a résolu l’équation de Schrödinger dépendante du temps 4.5 dans le cas d’une molécule diatomique  $H_2^+$ . Un champ électrique de longueur d’onde 800 nm, de durée d’impulsion 20 fs et d’intensité  $2 \times 10^{14} W.cm^{-2}$  est appliqué.

$$i \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \left[ -\frac{1}{2\mu_e} \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{2\mu_N} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + \frac{1}{R} - \frac{1}{\sqrt{(z + \frac{R}{2})^2 + a}} - \frac{1}{\sqrt{(z - \frac{R}{2})^2 + a}} + \kappa z E(t) \right] \Psi \quad (4.5)$$

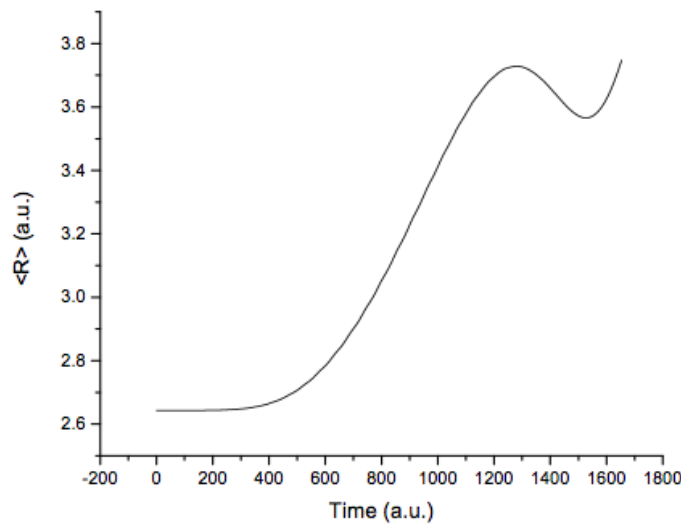


FIGURE 4.12 – Évolution temporelle de la distance inter-atomique entre les deux atomes d’hydrogène pendant le processus de génération d’harmoniques à partir de l’ion  $H_2^+$ .

Les calculs menés par le Dr Bian n’ont pas montré une sensible augmentation du signal harmonique, ceci étant peut être du au fait que la modélisation est le cas particulier d’une molécule  $H_2^+$ . En effet, si l’on considère la distance inter-atomique de la molécule en fonction du temps représentée figure 4.12, on observe que la distance maximale est environ

3.5 ua. Or, il est reporté dans [9] que l'effet « enhanced ionization » nécessite des distances inter-atomiques de l'ordre de 10 ua. Cela expliquerait donc que pour le cas particulier de la molécule de  $H_2^+$  et d'une impulsion de 20 fs, nous n'observons pas d'augmentation du signal harmonique.

Cependant, ce modèle a montré un résultat en accord avec une précédente expérience 4.2. En effet, la dissociation de la molécule pendant le processus de génération des harmoniques d'ordres élevés induit clairement un décalage vers le rouge des harmoniques générées. La figure 4.13 représente le signal obtenu numériquement à partir de la résolution de l'équation 4.5 avec les paramètres laser décrits plus haut. On observe effectivement un décalage vers le rouge des harmoniques.

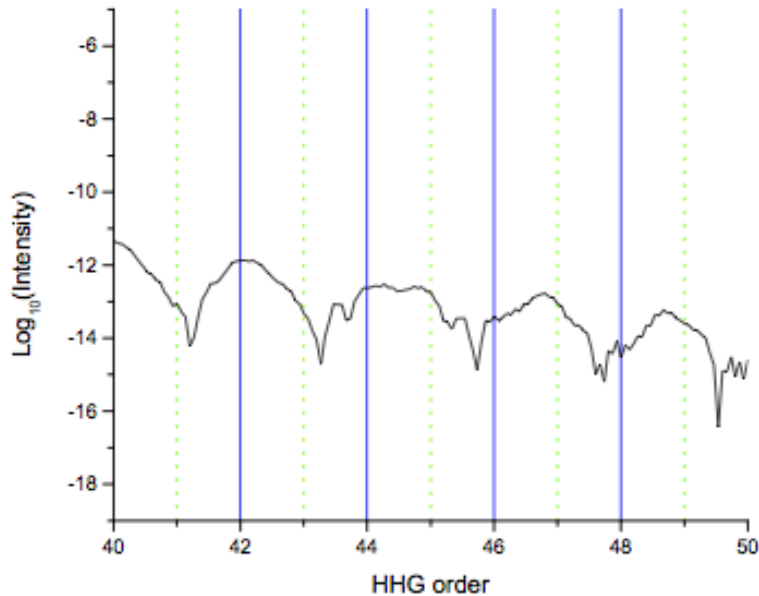


FIGURE 4.13 – Signal harmonique calculé numériquement par la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps incluant l'effet de dissociation moléculaire de  $H_2^+$ .

Ce résultat encourageant devra être néanmoins approfondi par, par exemple, la prise en compte d'une masse des atomes de la molécule plus importante. Ce travail est en cours de discussion avec le Dr. Bian au moment de la rédaction de ce mémoire et devrait donc être

publié prochainement.

**Proposition d'expérience** Dans le but de corroborer ou d'infirmer l'hypothèse ci-dessus, nous voudrions proposer la réalisation d'une expérience permettant d'avoir accès à la dynamique temporelle femtoseconde du signal harmonique au cours du train d'impulsion. Pour résumer, le but est de pouvoir résoudre temporellement le spectre généré à différents moments de l'impulsion infrarouge.

Au moment de l'écriture de ce manuscrit, les expériences n'ont pas été réalisées. Cela prend donc la forme d'une proposition d'expérience. Cependant, celle-ci devrait avoir été réalisée au moment de la soutenance. Voici donc la proposition d'expérience que nous souhaitons faire.

Premièrement, le but principal est de pouvoir résoudre temporellement le signal harmonique issu à différents moments de l'impulsion de génération. Étant donné le temps caractéristique du phénomène que nous voulons observer, environ 100 femtosecondes, un schéma de type pompe-sonde sera difficile à mettre en œuvre, car la durée des impulsions du système laser est de 40 à 50 femtosecondes. La résolution temporelle sera donc mauvaise. Afin de résoudre ce problème, nous proposons d'utiliser le processus de génération des harmoniques lui-même comme sonde du processus, en effet sa dynamique intrinsèque attoseconde permet d'avoir une résolution temporelle suffisante. Pour cela, un schéma d'excitation par une impulsion dont le front d'onde est en rotation temporelle au point focal de la lentille de focalisation est proposé.

En effet, ce principe [11–13] est généralement utilisé pour la génération d'impulsions attosecondes isolées dans le cas de la génération d'harmoniques d'ordres élevés par miroir plasma [14, 15]. Cependant, Christopher Heyl a montré la possibilité d'utiliser cette technique dans le cas de la génération à partir d'un gaz [16]. Dans notre cas, le but n'est pas de générer une impulsion attoseconde isolée, mais plutôt de réaliser la spectroscopie résolue en temps du processus de génération. Une figure représentant l'image obtenue en champ

lointain lors de la génération grâce à une telle impulsion est représenté figure 4.15. Elle a été obtenue numériquement par le calcul tout d'abord du dipole microscopique sur une tranche de milieu (pas d'effets d'accord de phase) grâce à un modèle de type « Strong Field Approximation ». Puis, le champ électrique en champ lointain est obtenu par le calcul de l'intégrale de diffraction du champ proche. Dans ce calcul, la génération des harmoniques se fait à partir d'une orbitale 1s sans inclusion du mouvement inter-atomique. Une fois la modélisation du dipole microscopique incluant le mouvement des atomes de la molécule réalisé, il pourra être inclus dans le calcul décrit ici.

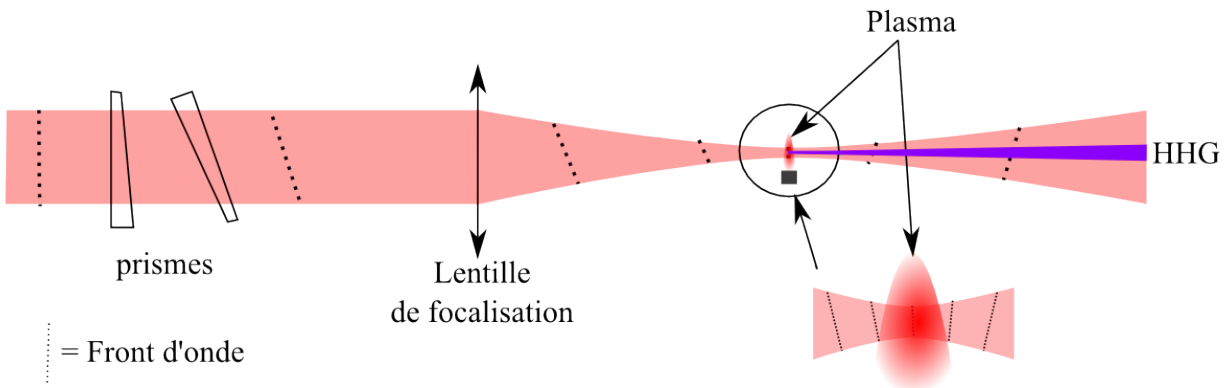


FIGURE 4.14 – Figure illustrant le principe de rotation du front d'onde induit grâce à l'introduction d'un prisme sur le trajet du faisceau.

Le but de ce schéma de génération (illustré figure 4.14) est d'utiliser le fait que le faisceau harmonique est généré perpendiculairement au front d'onde de l'impulsion génératrice. Habituellement, le front est constant par rapport au temps et donc, toutes les impulsions attosecondes générées à chaque demi-cycle ont la même direction de propagation. On comprend alors qu'en faisant varier temporellement la direction du front d'onde dans la zone de génération, nous pourrions séparer spatialement les différentes impulsions attosecondes. En résumé, chaque impulsion attoseconde aura un vecteur d'onde dont la direction dépendra du moment de la génération. Nous avons ici un moyen de résoudre temporellement le processus de génération au cours de l'impulsion femtoseconde.

Nous proposons donc tout d'abord d'observer le signal harmonique dans le cas d'une im-

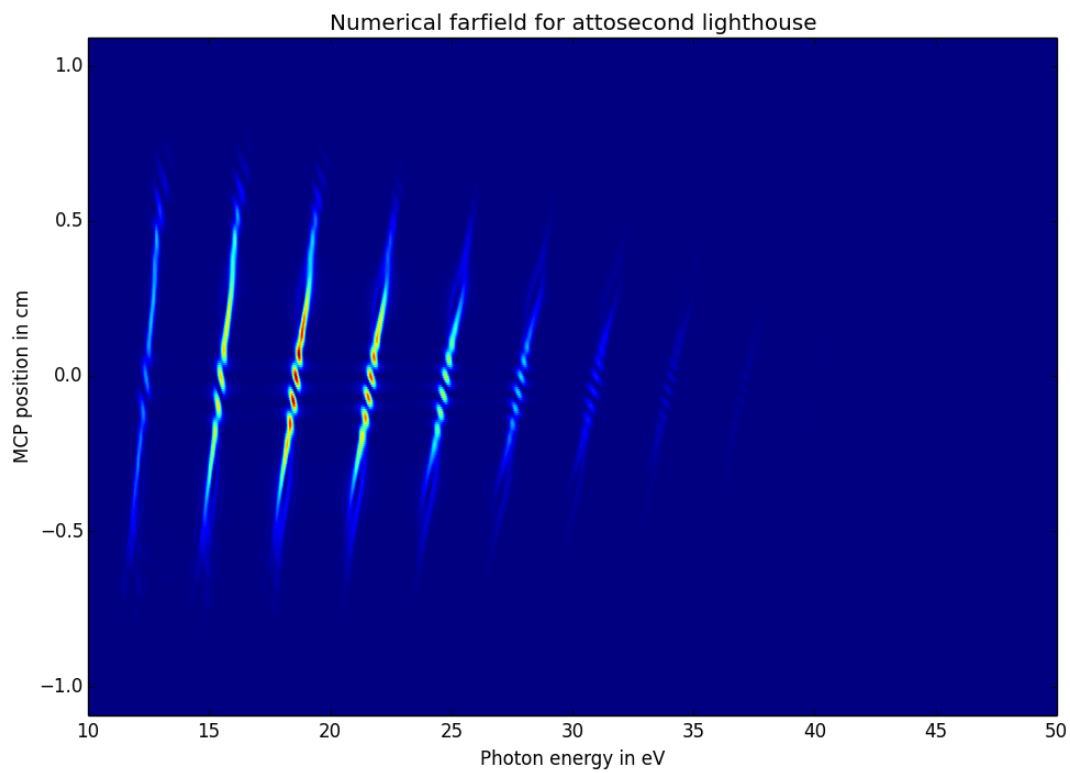


FIGURE 4.15 – Champ lointain obtenu dans le cas de la génération d’harmoniques d’ordres élevés avec une impulsion à front d’onde rotationnel. Les autres paramètres de l’impulsion sont une longueur d’onde centrale de 800 nm, une durée de 50 fs, une intensité de  $3 \cdot 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ .

pulsion de durée croissante. L'augmentation de la durée d'impulsion se faisant en introduisant un « chirp » dans le compresseur en sortie du boîtier laser par exemple. Les spectrogrammes obtenus, avec en abscisse la longueur d'onde et en ordonnée le temps, permettront potentiellement d'identifier une augmentation du signal harmonique pour une durée spécifique de l'impulsion. De plus, comme nous l'avions dit plus tôt, la dissociation moléculaire induit un décalage vers le rouge des harmoniques [17]. Nous pourrions ainsi remonter à la dynamique d'explosion des molécules carbonées à l'intérieur du plasma en accédant à la phase spectrale à l'échelle femtoseconde.

Ensuite, étant donné le fait que l'augmentation du signal avait été observée dans le cas d'une double impulsion. Nous proposons également de se placer de nouveau dans le cas d'une double impulsion. Il est assez fastidieux et peu stable de travailler dans la configuration d'un interféromètre de type Michelson. Cette solution reste cependant envisageable, mais l'ajout de très petits délais tels que 100 femtosecondes requiert des translations précises et stables. Il semble plus simple de doubler le faisceau et d'exploiter la différence de vitesse de groupe dans un milieu dispersif tel que le verre. Ensuite, un montage équivalent à celui mentionné plus haut permettrait d'imposer une orientation des vecteurs d'ondes des deux impulsions différentes.

## **4.3 Génération grâce à une impulsion fondamentale à 1,8 micron de longueur d'onde**

### **4.3.1 Amplification optique paramétrique : principe de génération d'impulsions ultra-courtes dans le domaine infrarouge**

Cette section a pour but de donner le principe de fonctionnement du dispositif optique permettant la conversion de la longueur d'onde du laser d'origine. Nous expliquerons également l'amplification du faisceau converti, celui-ci étant de plus grande longueur d'onde que



celui d'origine. Nous aurons notamment l'occasion d'introduire les notions de signal et idler.

**Réponse d'un milieu à l'application d'un champ électrique** Lorsqu'une onde électromagnétique se propage dans un milieu, celui-ci a une réponse fonction de ce même champ. Cette réponse est nommée polarisation du milieu. Elle va à son tour modifier les propriétés du champ électromagnétique durant sa propagation dans le milieu. Ce mécanisme sera décrit par l'équation d'onde suivante :

$$\nabla^2 E(t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E(t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P(t)}{\partial t^2} \quad (4.6)$$

$E(t)$  étant le champ électrique de l'onde et  $P(t)$  la polarisation du milieu dépendante du temps. Nous restons dans le cas d'un champ scalaire (application de l'équation à une composante du vecteur champ).

Comme nous venons de le dire, la polarisation est une réponse du milieu à l'application d'un champ électrique dans celui-ci. Sa réponse, en supposant que nous restons en dessous du seuil d'ablation, pourra être développée en série par rapport à  $E$ . Il pourra alors s'écrire de la manière suivante :

$$P(t) = \epsilon_0 (\chi^{(1)} E(t) + \chi^{(2)} E^2(t) + \chi^{(3)} E^3(t) + \dots) \quad (4.7)$$

L'équation 4.8 pourra donc se réécrire :

$$\nabla^2 E(t) - \frac{n^2}{c^2} \frac{\partial^2 E(t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P_{nl}(t)}{\partial t^2} \quad \text{avec } n^2 = (1 + \chi^{(1)}) \quad (4.8)$$

Le tableau 4.1 donne les valeurs caractéristiques des différents coefficients  $\chi^{(i)}$  dans le cas de la matière condensée [18]. Dans le cas d'un laser continu, ou à impulsion longue, la réponse non linéaire du milieu peut généralement être négligée, c.-à-d.,  $\chi^{(1)} E \gg \chi^{(2)} E^2 \gg \chi^{(3)} E^3$ . Cependant, dans le cas d'impulsions ultracourtes comme celles générées par un laser Ti : Sa, l'intensité du champ est si importante que les ordres élevés de la polarisation ne sont plus

négligeables. Nous verrons apparaître alors des effets non linéaires dans le milieu tels que, par exemple, le doublage ou la différence/somme de fréquence.

$\chi^{(1)}$	$\chi^{(2)}$	$\chi^{(3)}$
$\sim 1$	$\sim 1.94 \times 10^{-12} \text{ V/m}$	$\sim 3.78 \times 10^{-24} \text{ V}^2/\text{m}^2$

TABLE 4.1 – Valeurs caractéristiques des coefficients non linéaires dans les solides.

**Amplification et fluorescence paramétrique** Considérons un champ électrique composé de deux fréquences  $w_1$  et  $w_2$  :

$$E(t) = E_1 \exp(-iw_1t) + E_2 \exp(-iw_2t) + c.c. \quad (4.9)$$

Supposons que la réponse non linéaire du milieu est d'ordre 2, donc  $P_{nl}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t)$ . La polarisation pourra alors s'écrire :

$$\begin{aligned} P_{nl}(t) = \epsilon_0 \chi^{(2)} [ & E_1^2 e^{-2iw_1t} + E_2^2 e^{-2iw_2t} \\ & + 2E_1 E_2 e^{-i(w_1+w_2)t} \\ & + 2E_1 E_2^* e^{-i(w_1-w_2)t} \\ & + c.c.] \\ & + 2\epsilon_0 \chi^{(2)} [E_1 E_1^* + E_2 E_2^*] \end{aligned} \quad (4.10)$$

Dans l'équation 4.10 ci-dessus, nous reconnaissons différents processus physiques tels que le doublage de fréquence (première ligne), la somme et différence de fréquence (deuxième et troisième ligne). C'est ce dernier phénomène, la différence de fréquence, qui va nous intéresser par la suite. Celui-ci est illustré sur la figure 4.16. L'application de champs électriques de fréquence  $w_1$  et  $w_2$  va permettre la génération d'une troisième fréquence  $w_1 - w_2$ . On appellera l'onde de fréquence  $w_1$  la «pompe», le «signal» sera celle de fréquence  $w_2$  et celle associée à

$w_3$ , généralement non désirée, sera nommée «idler».

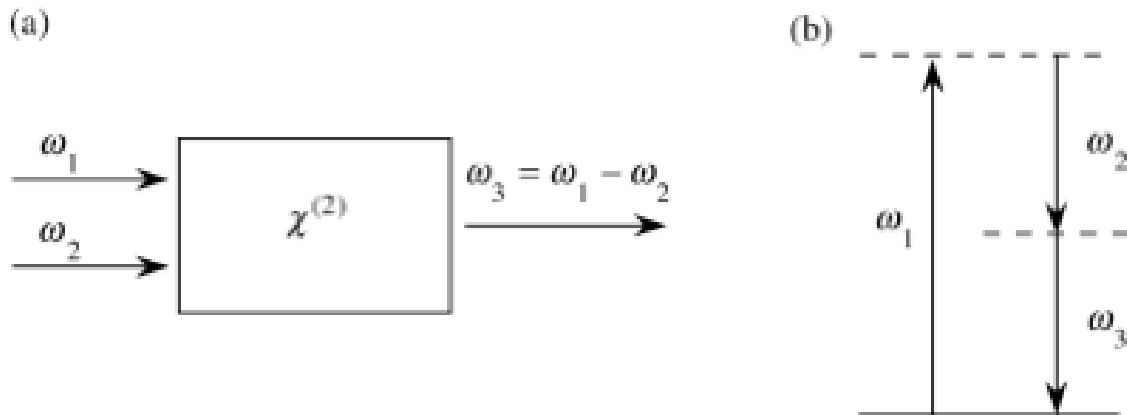


FIGURE 4.16 – Schéma expliquant la génération d’une différence de fréquence. (a) Faisceau d’entrée et de sortie du milieu non linéaire. (b) Schéma des niveaux entrant en jeu durant le processus de différence de fréquence.

Lors de l’application, à l’entrée du milieu non linéaire, des champs électriques de fréquences  $w_1$  et  $w_2$ , avec l’onde  $w_1$  assez intense, l’onde  $w_2$  est amplifiée par le processus paramétrique. Ce phénomène est appelé amplification optique paramétrique. Cependant, même si le signal  $w_2$  n’est pas présent, si l’onde  $w_1$  est assez intense, il y aura tout de même génération des ondes  $w_2$  et  $w_3$  par un processus appelé superfluorescence paramétrique. L’onde  $w_1$  excite les électrons jusqu’à un niveau supérieur puis, par désexcitations successives et passage par un niveau virtuel, les photons d’énergie  $w_2$  et  $w_3$  seront émis.

Ces deux phénomènes sont la base du mécanisme de fonctionnement du dispositif He-Topas du laboratoire ALLS. Un faible signal est premièrement généré grâce à la superfluorescence d’un cristal de Barium borate (BBO). Celui-ci est tout d’abord auto amplifié par trois passages successifs dans le cristal non linéaire. Ensuite, trois étages supplémentaires permettent l’amplification du signal de départ jusqu’à une énergie d’impulsion proche de 1 millijoule à une longueur d’onde entre  $1.2 \mu m$  et  $1.6 \mu m$  pour le signal et  $1.6 \mu m$  et  $2 \mu m$  pour l’idler.

Il est à noter que les appareils de conversion de fréquence basée sur la superfluores-

cence du cristal non linéaire sont ceux de première génération et produisent un rayonnement de moins bonne qualité que ceux développés actuellement, notamment en terme de durée d'impulsion et de qualité du profil spatial. Ces derniers sont basés sur la production d'un continuum visible par automodulation de phase dans une fenêtre de verre ou de saphir. C'est ce rayonnement de très large bande qui sert ensuite à générer des longueurs d'onde élevées.

### 4.3.2 résultats expérimentaux

**Montage expérimental** Le but de cette expérience était double. Premièrement, nous voulions réaliser la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans un plasma de carbone avec un faisceau de longueurs d'onde centrale  $1.8 \mu m$ . Le but était d'étendre l'énergie maximale des photons générés et ainsi avoir un spectre beaucoup plus large. Ensuite, une première tentative de la génération d'un continuum d'harmoniques signe de la forte probabilité de génération d'une impulsion attoseconde unique en un seul tir. Cette dernière partie sera décrite plus amplement dans le dernier chapitre 5. Nous allons donc nous concentrer sur l'information que nous pouvons retirer sur le processus de génération par l'observation d'un spectre d'émission harmonique [19, 20].

La figure 4.17 représente le montage dans sa totalité. Nous n'allons pas décrire la partie liée à la compression de l'impulsion infrarouge par élargissement spectral dans une fibre creuse. Cela sera décrit dans le chapitre 5. Cette expérience a donc consisté en la génération d'harmoniques d'ordres élevés avec un faisceau de longueurs d'onde centrées à  $1.8 \mu m$ . L'intérêt d'augmenter la longueur d'onde de génération est la possibilité de l'extension de l'énergie maximale des photons générés. En effet, comme nous l'avons décrit dans le chapitre 1, cette énergie maximale est proportionnelle au carré de la longueur d'onde. Il est donc évident qu'en augmentant celle-ci, l'énergie maximale augmente.

Alors que les spectres générés à partir d'un faisceau à 800 nm de longueur d'onde ne comportaient que peu d'harmoniques, dus à la faible énergie d'ionisation des particules du plasma. En effet, quel que soit le type d'espèce carbonée, elles ont toutes un potentiel d'io-

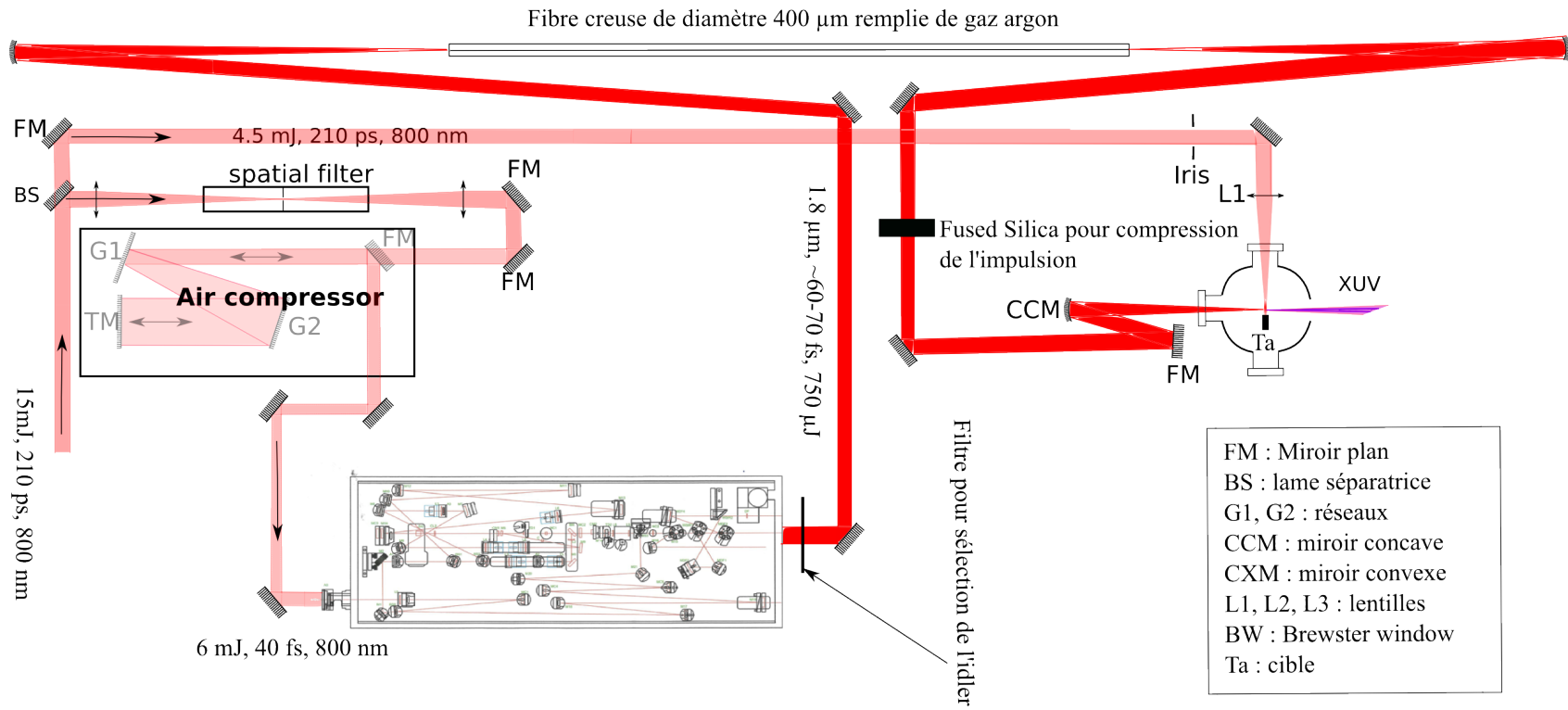


FIGURE 4.17 – Schéma du montage expérimental permettant la génération d’harmonique issu d’un plasma d’ablation avec un faisceau de longueurs d’onde centrées à  $1.8 \mu\text{m}$ . La sortie du dispositif He-TOPAS pouvait être directement envoyée dans la chambre d’expérience ou élargie spectralement par passage dans une fibre creuse remplie d’argon.

nisation proche de 12 eV. Mais en utilisant une longueur d'onde plus élevée, la présence de structure dans le spectre pourrait nous aider à comprendre les mécanismes de génération et les espèces associées.

Pour cela, le faisceau en sortie du boîtier laser est filtré spatialement et compressé à son minimum de durée d'impulsion dans un compresseur à air. Ce dernier de durée égale à 40 femtosecondes, d'énergie 6 millijoules et centrée à 800 nm est envoyé dans le dispositif [He-TOPAS](#). Après trois étages pour la création de la superfluorescence suivie de 3 étages d'amplification, le signal (ou idler) en sortie a une énergie proche de 1 millijoule, une longueur d'onde pouvant varier de 1.2  $\mu\text{m}$  à 2  $\mu\text{m}$  selon que l'on sélectionne le signal ou idler. La durée de l'impulsion n'a quant à elle pas pu être mesurée, car le dispositif [FROG](#) n'était pas disponible. Il est cependant vraisemblable qu'elle soit plus longue, 60-70 femtosecondes, que l'impulsion de pompe. Ceci étant dû au fait que la superfluorescence est elle-même plus longue.

En ce qui concerne les étapes de la génération des harmoniques, celles-ci sont exactement les mêmes que précédemment. Une première impulsion non compressée est focalisée sur une cible de graphite. Après un délai d'environ 30 nanosecondes permettant au plasma en expansion d'avoir des conditions adéquates pour la génération d'harmoniques, l'impulsion principale, ici celle issue du [He-TOPAS](#), est focalisée dans celui-ci. Dans le cas de l'impulsion longue, nous avons tout d'abord focalisé le faisceau au moyen d'une lentille de 35 cm de distance focale.

**Résultats** La figure [4.18](#) représente les images des spectres acquis pour une impulsion centrée à 1.8  $\mu\text{m}$  de longueur d'onde pour deux durées d'impulsion différentes. L'énergie de l'impulsion élargie spectralement était plus faible, car, comme dans le cas du montage que nous avons décrit pour la recherche d'une résonance, il y a environ 50% de perte dans la fibre. Cette perte d'énergie a été compensée par une durée d'impulsion inférieure, résultant en une intensité comparable au point focal.

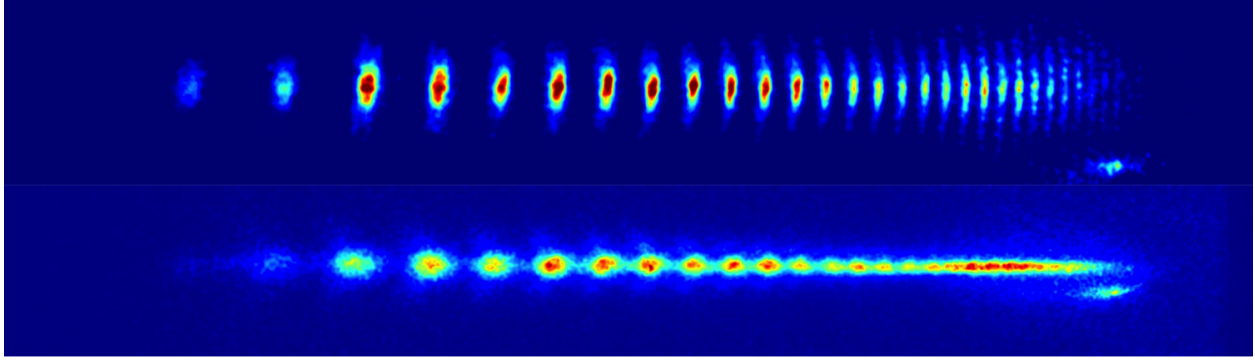


FIGURE 4.18 – Images obtenues lors de l’acquisition des spectres pour (haut) une impulsion centrée à  $1.8 \mu m$  directement sortie du He-TOPAS et (bas) centrée à  $1.8 \mu m$  élargie spectralement.

Il convient de faire quelques remarques quant à la difficulté d’obtention de spectres exploitables et le traitement réalisé sur les images présentées dans ce travail de thèse. Premièrement, il s’est avéré qu’une radiation de plus grande longueur d’onde était beaucoup plus sensible à la réfraction dans le plasma d’ablation de carbone. Dans le cas d’une impulsion centrée à  $800 \text{ nm}$  aucun changement de direction de propagation n’était observé entre l’alignement sans plasma et la génération. Or il s’est avéré que pour une impulsion centrée à  $1.8 \mu m$ , en plus d’une efficacité de génération plus faible, la propagation de l’impulsion subissait une forte réfraction au sein du milieu, produisant ainsi un faisceau harmonique dans une direction totalement différente que l’alignement. Cela a évidemment rendu difficile l’observation du signal. Une cause certaine de ce problème a été un délai entre la préimpulsion et l’impulsion principale trop court, conduisant à un plasma peu homogène. Le choix de ce court délai avait été motivé par la volonté d’un milieu dense afin d’avoir une efficacité de génération la plus forte possible.

Malgré l’ensemble des difficultés énoncées plus haut, il a été possible de faire l’acquisition d’images en un seul tir. Cependant, afin de présenter des images de meilleure qualité dans ce mémoire, les spectres sont une moyenne réalisée sur 50 images. De plus, pour une meilleure interprétation de ces résultats, ils ont été convertis d’une représentation en longueur d’onde à une en énergie. Pour cela, les spectres ont été corrigés par le jacobien  $S(\Omega) = S(\lambda) \cdot \frac{\partial \lambda}{\partial \Omega}$  où

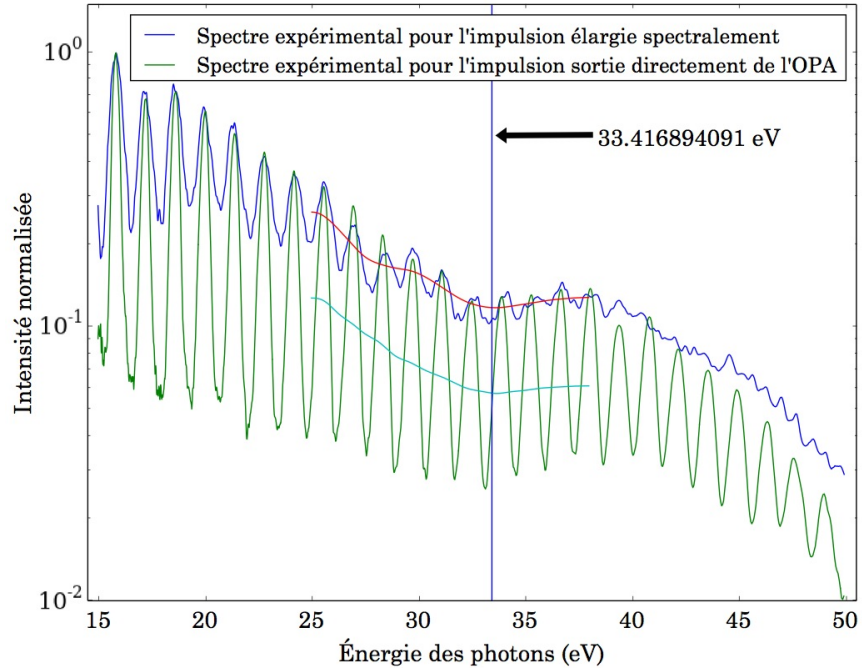


FIGURE 4.19 – Spectres expérimentaux représentant l’intensité normalisée en fonction de l’énergie des photons émis.

$S(x)$  est le signal représenté dans l’espace des  $x$ . Les spectres ainsi traités sont représentés dans la figure 4.19.

### 4.3.3 Remarques et interprétation

Il est évident que les spectres d’harmoniques d’ordres élevés contiennent de l’information quant à la section efficace de photo-ionisation de l’espèce qui génère. En effet, l’hypothèse de base de la théorie développée par Anh-Thu Le et al. nommée « Quantitative Rescattering Theory (QRS) » [21] est que les spectres calculés dans le cadre de l’approximation en champ fort peuvent être corrigé par la section efficace de photo-ionisation de l’espèce. Cela est motivé par le fait que dans le calcul du moment dipolaire apparait la matrice de transition dipolaire  $\mathbf{d}(\mathbf{r}, t)$  dépendant de la fonction d’onde de l’état fondamental de l’électron  $\langle \phi_0 |$  et celle une fois ionisée  $|\phi_{ion}\rangle$  :



$$\mathbf{d}(\mathbf{r}, t) = \langle \phi_0 | -e \cdot \mathbf{r} | \phi_{ion} \rangle \quad (4.11)$$

Avec  $-e$  la charge de l'électron qui sera égale à un si le choix des unités atomiques est fait. Or, cette matrice est directement reliée à la section efficace  $\sigma$  de photo-ionisation telle que :

$$\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega_k \partial \Omega_n} = \frac{\pi^2 w k}{c} |\mathbf{d}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{n}|^2 \quad (4.12)$$

$k$  et  $n$  sont respectivement les directions du moment de l'électron ionisé et celle de la polarisation de l'onde.  $\Omega$  représente alors l'angle solide associé à chacune de ces directions. Alors que dans le cadre de l'approximation en champ fort, la fonction d'onde  $|\phi_{ion}\rangle$  est approchée par un état de Volkov d'un électron soumis à un champ électrique oscillant sans aucune autre interaction. Comme nous l'avons décrit dans le chapitre 1, l'effet du potentiel de l'ion est alors négligé. Les auteurs de la [QRS](#) montrent la possibilité de «corriger» les spectres calculés dans le cadre de l'approximation en champ fort par la section efficace de photo-ionisation exacte de l'espèce telle que :

$$S^{QRS}(w, \theta) = \frac{\sigma_{exact}(w, \theta)}{\sigma_{PWA}(w, \theta)} \cdot S^{SFA}(w, \theta) \quad (4.13)$$

On aura  $S \sim w^4 D^2(w, \theta)$  avec  $D(w, \theta)$  la transformée de Fourier du moment dipolaire calculé ici grâce au modèle de Lewenstein.  $w$  et  $\theta$  sont respectivement la fréquence (énergie en unités atomiques) et la direction de la polarisation.  $\sigma_{exact}$  est la section efficace de photo-ionisation exacte et  $\sigma_{PWA}$  celle calculée dans l'approximation en champ fort, c.-à-d., que la fonction d'onde de l'électron dans le continuum est simplifiée par une onde plane.

D'autres études ont également corrélé la section efficace de photo-ionisation et la structure du spectre [20, 22–26]. Il convient alors d'étudier les sections efficaces de photo-ionisation des différentes espèces du plasma. Nous avons vu au chapitre que les espèces ayant la plus forte probabilité d'être responsable du processus de génération sont C, C<sub>2</sub> et C<sub>3</sub>. Cette hypothèse

est également justifiée au regard de la position du point focal de l'impulsion principale par rapport à la surface de la cible, dans la direction d'expansion du plasma. En effet, la figure 4.20 représente l'intensité du signal harmonique en fonction de cette distance. Celui-ci est maximum lorsque l'impulsion est focalisée entre  $200\ \mu\text{m}$  et  $300\ \mu\text{m}$  de la surface de la cible. Or il est assez peu probable que de grosses nanoparticules aient une densité suffisante dans cette zone du fait de leur forte inertie. En effet, celles-ci resteront très proches de la cible tandis que les particules de faibles masses seront en expansion beaucoup plus rapide.

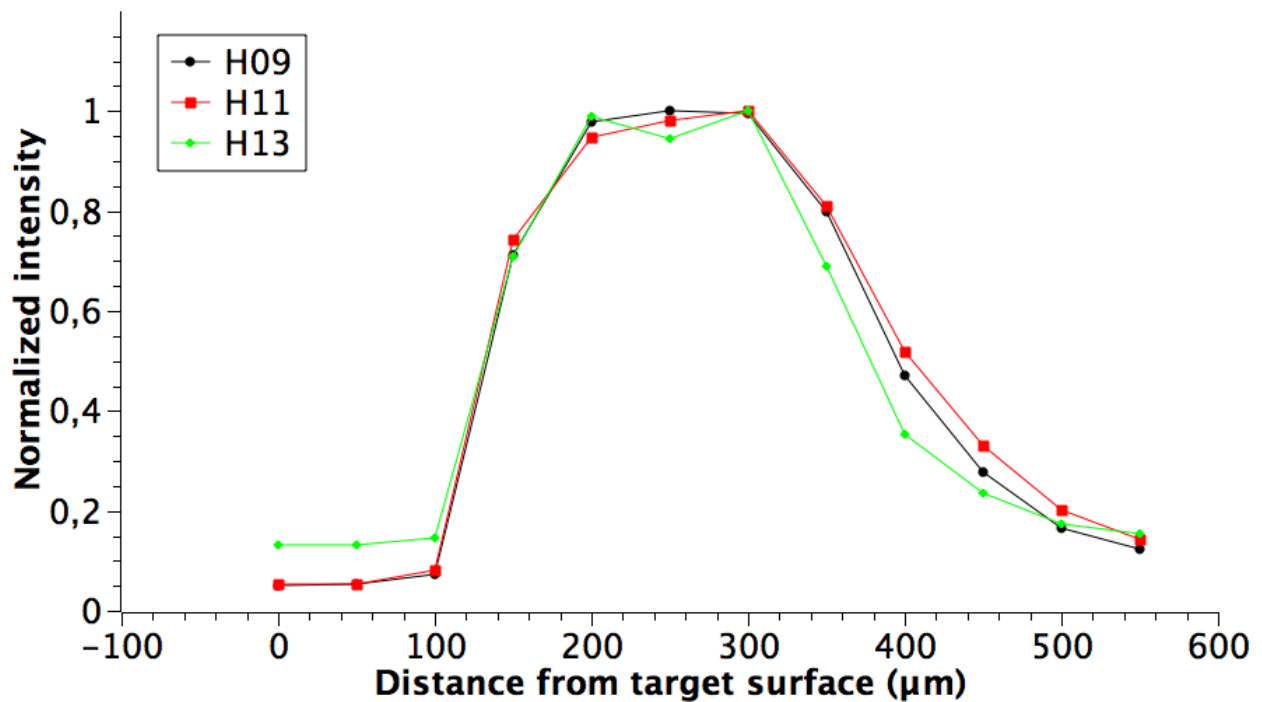


FIGURE 4.20 – Profil d'intensité du signal harmonique en fonction de la position de focalisation du faisceau principal par rapport à la surface de la cible pour un délai entre la préimpulsion et l'impulsion principale égal à 25 ns.

Nous allons donc concentrer l'étude suivante sur les particules citées plus haut,  $C$ ,  $C_2$  et  $C_3$ . Malheureusement, la section efficace de photo-ionisation de la molécule  $C_3$  n'a pas été trouvée dans la littérature.

Les atomes et molécules du milieu sont supposés dans leur état fondamental lors de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Ceci est évidemment une hypothèse de travail. En

effet, des molécules telles que  $C_2$  ou  $C_3$  présentent des valeurs de potentiels d'ionisation depuis des couches inférieures assez proches de celle de la « Highest Occupied Molecular Orbital (HOMO) » [27]. Cependant, premièrement par manque d'information dans la littérature puis par complexité du système, nous partirons d'une hypothèse de départ la plus simple possible. Il convient donc de comparer les spectres obtenus expérimentalement aux sections efficaces de photo-ionisation de C et  $C_2$  dans le cas d'une ionisation depuis la HOMO dans son état fondamental.

$C_2$			C		
Énergie (eV)	$\sigma_{ph}(Mb)$	$\beta$	Énergie (eV)	$\sigma_{ph}(Mb)$	$\beta$
13.5	50	0.514	16.7	8.286	1.162
14.5	51.3	0.707	20	6.63	1.279
15	51.1	0.771	21.2	6.126	1.31
17.5	42.3	0.935	25	4.8	1.383
20.00	28.7	1.01	26.8	4.288	1.408
22.5	18.9	1.07	30	3.523	1.444
25	13	1.14	35	2.617	1.481
27.5	9.54	1.21	40	1.968	1.503
30	7.43	1.28	40.8	1.882	1.506
32.5	6.05	1.35	45	1.499	1.516
35	5.06	1.42	50	1.159	1.523
37.5	4.29	1.47	55	0.9091	1.524
40	3.67	1.52	60	0.7232	1.522
42.5	3.16	1.56			
45	2.73	1.59			
47.5	2.39	1.62			
50	2.1	1.64			

TABLE 4.2 – Tableau récapitulatif des valeurs de  $\sigma_{ph}$  et  $\beta$  pour l'atome de carbone et la molécule de dicarbone. Valeurs extraites de [28, 29].

Les sections efficaces différentielles seront intégrées par rapport à l'orientation de la molécule. La formule décrivant leurs valeurs sera exprimée en fonction de la section efficace de photo-ionisation totale  $\sigma_{ph}$  et d'un paramètre d'asymétrie  $\beta$  :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sigma_{ph}}{4\pi} [1 + \beta P_2^0(\cos(\theta))] \quad (4.14)$$

$\theta$  est l'angle entre la direction de polarisation et la direction du moment de l'électron éjecté. Dans notre cas, nous nous intéressons aux électrons qui sont éjectés parallèlement à la direction de polarisation. On supposera  $\theta = 0$ .

Dans le cas du carbone atomique C, celui-ci sera donc dans la configuration électronique  $^3P$ . Les paramètres de la formule 4.14 sont obtenus à partir de [28, 29]. En ce qui concerne le carbone diatomique  $C_2$ , nous supposons qu'il ionise depuis le niveau  $^1\pi_u$  avec  $C_2$  dans l'état  $X^1\Sigma_g$ . Les paramètres pour le carbone diatomique sont extraits de [30]. Les valeurs sont résumées dans le tableau 4.2.

Afin de comparer les sections efficaces décrites ci-dessus aux spectres expérimentaux, elles ont été normalisées par rapport au maximum de la section efficace du  $C_2$ . La figure 4.21 représente ces sections efficaces et le spectre expérimental issu de l'impulsion élargie spectralement. Nous avons multiplié par deux la section efficace du carbone atomique afin que celle-ci soit comparable à celle du carbone diatomique.

La section efficace de photo-ionisation de la molécule  $C_2$  est proche de la forme du spectre expérimental, en particulier pour les photons de basse énergie. De plus, sa forte valeur pour les basses énergies (entre 15 eV et 25 eV) pourrait expliquer également la forte efficacité de génération dans cette gamme de longueurs d'onde. En effet, dans le cas d'une impulsion centrée à 800 nm, l'énergie maximale des photons générés est en général proche de 25 eV. Il semble donc que, sans exclure l'implication des atomes de carbone, la contribution des molécules soit significative. Malheureusement, aucune information sur la section efficace du carbone triatomique n'a été trouvée dans la littérature. Des calculs sont en cours au moment de la rédaction de ce mémoire. Néanmoins, nous pouvons concevoir un résultat assez comparable à

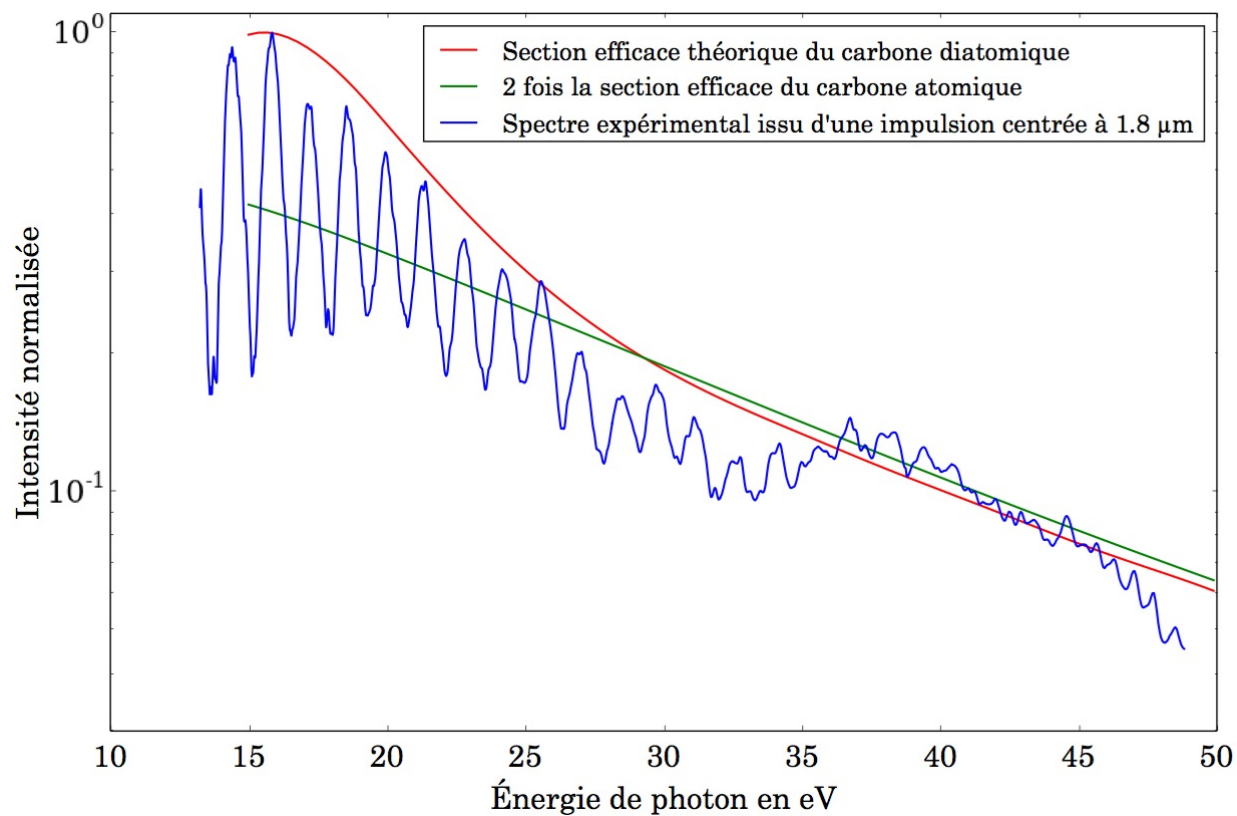


FIGURE 4.21 – Comparaison du spectre expérimental et des sections efficaces de photoionisation du carbone diatomique et de deux fois le carbone atomique. Les sections efficaces moléculaires sont moyennées sur toutes les possible orientations de la molécule.

celui du carbone diatomique. En effet, ces deux molécules sont linéaires et sont évidemment très proche l'une de l'autre comme cela nous pouvons le voir sur la figure 4.22. Le carbone triatomique peut être vu comme deux molécules de carbone diatomiques combinées. De plus amples détails pourront être donnés dès l'obtention des résultats du calcul.



FIGURE 4.22 – Schéma de Lewis des molécules de carbone diatomique(gauche) et triatomique (droite).

Nous pouvons également remarquer que le spectre expérimental présente un minimum du signal à environ 33.4 eV. Ceci est montré sur la figure 4.19. Le minimum n'étant pas extrêmement marqué, il subsiste une incertitude sur sa valeur. Après avoir réalisé plusieurs mesures avec des fenêtres de moyenne différente, une incertitude de plus ou moins 0.4 eV a été observée. Ce minimum peut provenir d'interférences à deux ou plusieurs centres dus à la génération à partir d'une molécule [31–34]. Cela peut être une contribution de la molécule de  $\text{C}_2$  ou de  $\text{C}_3$ .

**Origine du minimum de génération** Nous avons réalisé l'étude numérique du calcul du moment dipolaire dans l'approximation en champ fort (modèle de Lewenstein). Les fonctions d'onde du niveau fondamental ont été obtenues à partir de calculs ab initio grâce au code « General Atomic and Molecular Electronic Structure System (GAMESS) » [35, 36]. Seules les molécules  $\text{C}_2$  et  $\text{C}_3$  ont été calculés, en effet, aucun minimum de génération ne sera observé pour l'atome de carbone à notre connaissance. Nous ne détaillerons pas les étapes du calcul, ils pourront être trouvés dans [37]. Les éléments de matrice dipolaire de transition sont obtenus par la transformée de Fourier de la fonction d'onde de l'orbitale à partir de laquelle l'ionisation est réalisée, dans notre cas, la HOMO.

Les calculs ont été menés pour une impulsion centrée à 1.8  $\mu\text{m}$  de longueur d'onde avec une intensité sur cible de  $3.5 \times 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$  et d'une durée de 60 fs. Cette valeur assez faible de l'intensité est premièrement en relation avec la valeur de l'énergie du cutoff observé. De

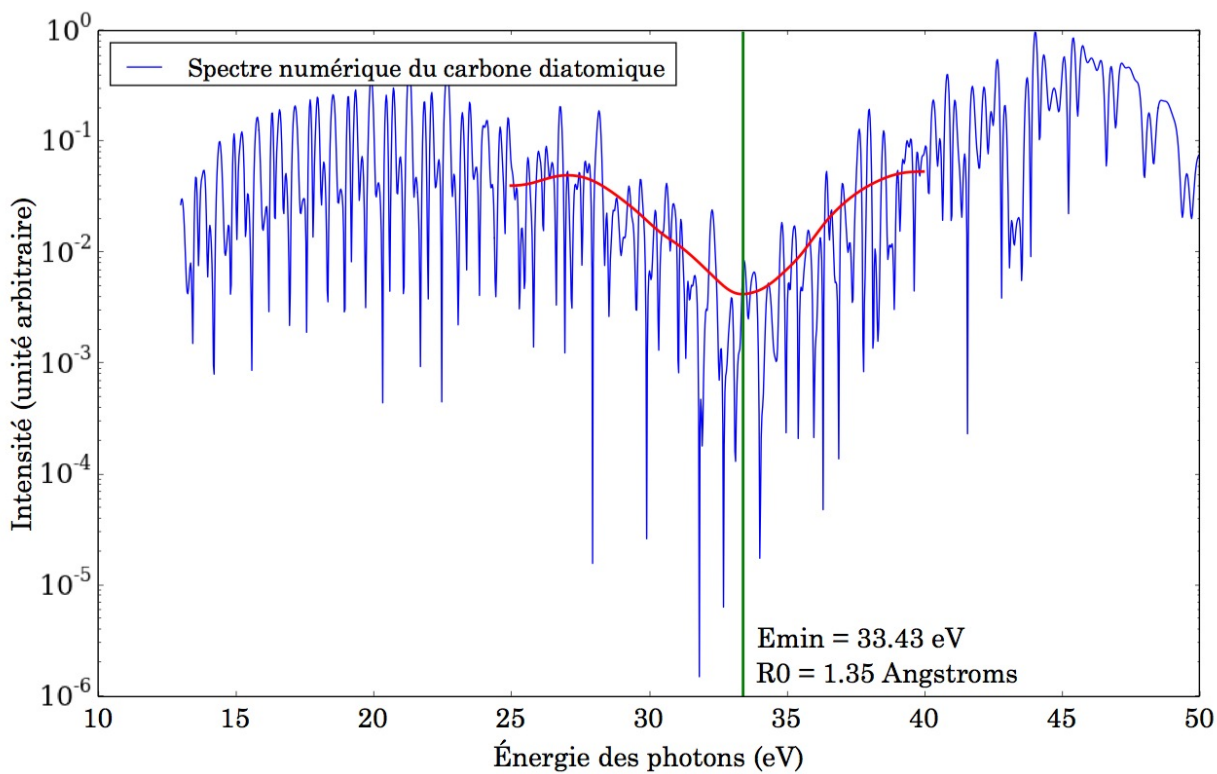


FIGURE 4.23 – Spectre calculé numériquement pour la molécule de  $C_2$  alignée par rapport à la polarisation du champ laser. La distance interatomique  $R_0$  a été optimisée pour avoir un minimum proche de celui observé expérimentalement

plus, dans le cas d'un atome de carbone, l'intensité de saturation est évaluée à  $7 \times 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$ . Il semble donc raisonnable de devoir imposer une intensité faible dans le milieu de génération.

La figure 4.23 représente elle le spectre calculé de la molécule de  $\text{C}_2$  et la mesure du minimum avec les mêmes paramètres que pour les spectres expérimentaux. La molécule a été alignée selon la direction de polarisation du laser et la distance internucléaire a été optimisée afin d'obtenir un minimum de génération dans le spectre proche de celui observé expérimentalement. La valeur de cette distance a été calculée à  $1.35 \text{ \AA}$ . Les valeurs tabulées reportées dans la littérature, notamment dans [38], où le calcul de la distance internucléaire a été fait pour différentes méthodes, varient de  $1.24 \text{ \AA}$  à  $1.36 \text{ \AA}$ . La valeur retrouvée ici semble donc tout à fait en accord avec les calculs reportés dans la littérature. De plus, la molécule évolue au sein d'un plasma dont la température est de quelques électronvolts. Il est donc vraisemblable que les niveaux de vibrations soient peuplés, ce qui peut induire une augmentation de la distance internucléaire. Cela expliquerait le fait que nous obtenions une valeur située parmi les valeurs hautes reportées dans la littérature.

Le même calcul a été réalisé pour la molécule de  $\text{C}_3$ . Cependant, il était impossible de trouver une distance interatomique permettant d'expliquer le minimum observé. L'optimisation a été faite sur l'orientation de la molécule par rapport à la polarisation du champ laser avec une valeur de distance interatomique égale à  $1.3 \text{ \AA}$ . Nous trouvons une valeur d'environ  $60^\circ$  pour l'angle entre l'axe défini par la molécule de carbone triatomique (linéaire) et la polarisation du laser. Ces résultats sont représentés sur la figure 4.24.

Dans les deux cas, une orientation au moins partielle de la molécule est nécessaire afin d'expliquer le minimum observé. Cela impliquerait donc une certaine orientation au sein du plasma en expansion. Comme nous l'avons vu auparavant, c'est un milieu extrêmement complexe. Il pourrait par exemple y avoir présence de champs électriques dus à des effets de séparation de charges durant l'expansion du plasma. Le fait qu'ils soient présents de manière continue induirait une rupture de l'isotropie du milieu.



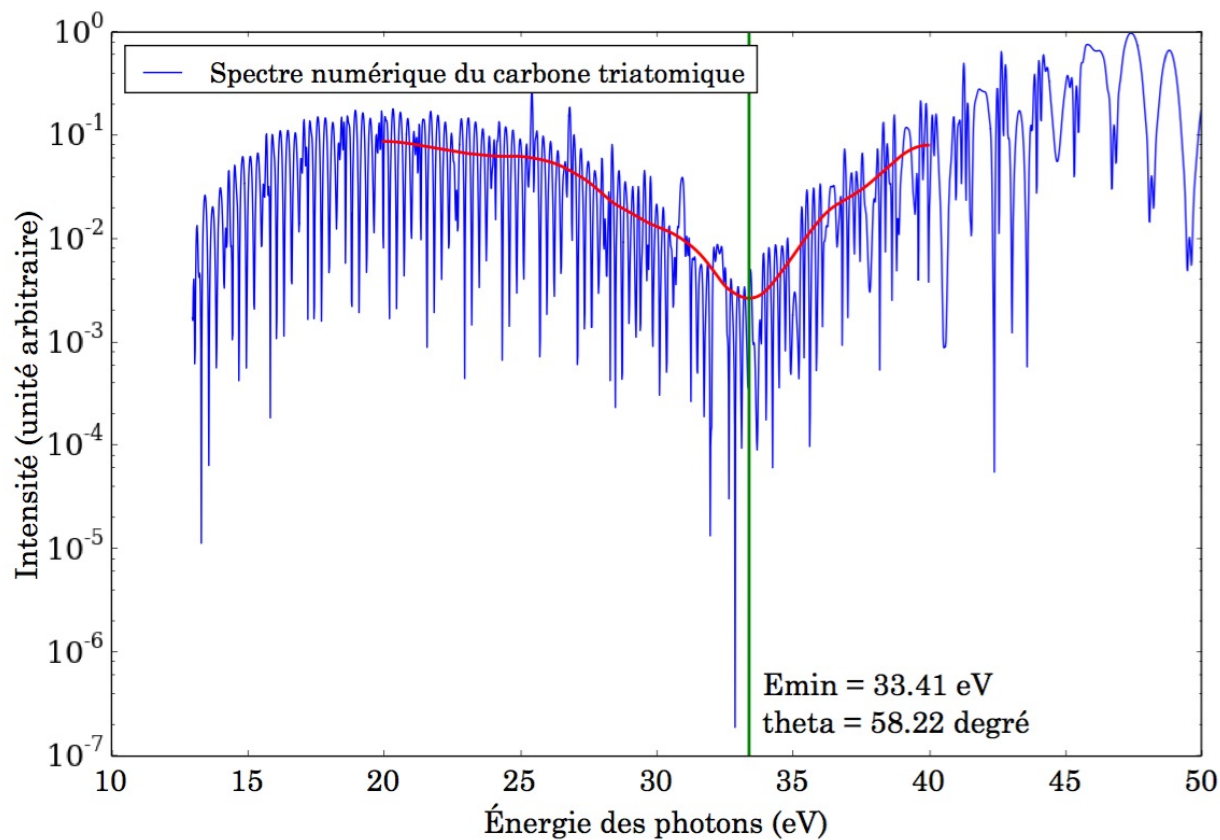


FIGURE 4.24 – Spectre calculé numériquement pour la molécule de  $C_3$ . La distance interatomique  $R_0$  a été définie égale à la valeur obtenue pour le calcul ab initio. L'orientation a été optimisée pour avoir un minimum proche de celui observé expérimentalement

Le faisceau de génération présente une polarisation P, parallèle au plan de la table et est focalisé au centre du plasma. Durant l'expansion, on peut s'attendre à une expansion plus rapide des électrons dans le sens d'expansion du plasma [39, 40]. Cette expansion rapide des électrons hors de la cible crée de forts champs électriques qui ont tendance à attirer vers eux les ions du milieu. Ces champs électriques présents depuis le début de l'ablation pourraient être responsables d'un alignement partiel des molécules du plasma. Celles s'alignant selon la direction du champ électrique seraient alors alignées selon la direction de polarisation. Selon ce raisonnement, les molécules de  $C_2$  expliqueraient le minimum observé. Étant donné l'angle particulier auquel  $C_3$  doit être aligné, il paraît assez peu vraisemblable, dans le cas d'interférences interatomiques, qu'elle soit la cause du minimum de génération.

Ce raisonnement ne représente seulement qu'un début d'explication et nous voulons insister sur le fait qu'il sera nécessaire de continuer les études théorique et expérimentale afin de comprendre mieux l'origine du signal harmonique issu d'un plasma de carbone. Par exemple, dans [41], T. Kanai et al. montrent un phénomène d'interférences destructives dues à la présence d'un mélange d'espèces dans le milieu. Également, dans [42], O. Smirnova et al. réalisent une étude théorique, appuyée par des résultats expérimentaux, expliquant le minimum observé dans le spectre d'émission du dioxyde de carbone aligné. Ce minimum est lié au caractère multi électronique de la molécule impliquant des interférences entre différents canaux d'ionisation. Cependant, ces deux derniers résultats montrent une dépendance en intensité du faisceau infrarouge de génération. Nous n'avons pas observé ce phénomène dans le cadre de nos expériences.

## 4.4 Résumé du quatrième chapitre

Dans ce chapitre, nous avons tenté de clarifier les mécanismes de génération d'harmoniques d'ordres élevés dans le plasma issu de l'ablation d'une cible graphitique. Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, la tâche s'avérait difficile du fait de la multitude d'es-

pèces possiblement présentes dans le milieu. Une étude approfondie des conditions de la création du plasma avait premièrement réduit cette complexité, puis les propriétés du rayonnement harmonique généré sous différentes conditions nous amènent à favoriser le carbone diatomique  $C_2$  comme espèce génératrice la plus probable. En effet, des effets tels qu'une possible résonance ou une efficacité de génération augmentée pour une impulsion longue (due vraisemblablement à la dissociation de l'espèce) nous ont amenés à considérer un mécanisme de génération moléculaire plutôt qu'atomique. Ensuite, nous avons observé une forte similitude de la structure du spectre avec la section efficace de photo-ionisation du  $C_2$ , ainsi que la présence d'un minimum de génération en accord avec la distance interatomique calculée du  $C_2$ . Ces deux derniers résultats laissent penser que  $C_2$  serait l'espèce majoritaire dans le processus de génération des harmoniques d'ordres élevés. Étant donné le manque d'informations sur  $C_3$ , il a été difficile de mener une étude détaillée sur cette molécule. Elle n'est donc pas à exclure. Il sera donc nécessaire de compléter les résultats mentionnés dans ce chapitre.

Nous avons pour cela proposé l'expérience de spectroscopie résolue temporellement par rotation spatio-temporelle du front d'onde du faisceau de génération. Un décalage en longueur d'onde ou une intensité du signal augmentée à un moment spécifique de l'impulsion de génération nous donneront de nouvelles informations. Également, dans l'hypothèse de la dissociation de la molécule au cours de l'impulsion, il devrait être possible de suivre un décalage du minimum de génération, car celui-ci est normalement dépendant de la distance interatomique.

## Références du quatrième chapitre

- [1] K. Kim, I. Alexeev, T. Antonsen, a. Gupta, V. Kumarappan, and H. Milchberg. Spectral redshifts in the intense laser-cluster interaction. *Physical Review A*, 71(1) :4–7, January 2005.
- [2] F. Brandi, F. Giammanco, and W. Ubachs. Spectral Redshift in Harmonic Generation from Plasma Dynamics in the Laser Focus. *Physical Review Letters*, 96(12) :1–4, March 2006.
- [3] X.-B. Bian and A. Bandrauk. Multichannel Molecular High-Order Harmonic Generation from Asymmetric Diatomic Molecules. *Physical Review Letters*, 105(9) :1–4, August 2010.
- [4] X.-B. Bian and A. Bandrauk. Nonadiabatic molecular high-order harmonic generation from polar molecules : Spectral redshift. *Physical Review A*, 83(4) :3–6, April 2011.
- [5] X.-B. Bian and A. Bandrauk. Spectral Shifts of Nonadiabatic High-Order Harmonic Generation. *Applied Sciences*, 3(1) :267–277, March 2013.
- [6] M. Y. Ivanov and P. B. Corkum. Generation of high-order harmonics from inertially confined molecular ions. *Physical Review A*, 48(1), 1993.
- [7] E. Constant, H. Stapelfeldt, and P. B. Corkum. Observation of enhanced ionization of molecular ions in intense laser fields. *Physical review letters*, 76(22) :4140–4143, May 1996.
- [8] D. M. Villeneuve, M. Y. Ivanov, and P. B. Corkum. Enhanced ionization of diatomic molecules in strong laser fields : A classical model. *Physical review. A*, 54(1) :736–741, July 1996.
- [9] M. Y. Ivanov, T. Seideman, P. B. Corkum, F. Ilkov, and P. Dietrich. Explosive ionization of molecules in intense laser fields. *Physical review. A*, 54(2) :1541–1550, August 1996.
- [10] X. B. Bian. Role of dissociations of molecules in redshift of high-order harmonic generation.

- [11] S. Akturk. The general theory of first-order spatio-temporal distortions of gaussian pulses and beams. *Opt. Express*, 13 :8642–8661, 2005.
- [12] S. Akturk. Spatio-temporal couplings in ultrashort laser pulses. *J. Opt.*, 12 :093001–, 2012.
- [13] S. Akturk, X. Gu, E. Zeek, and R. Trebino. Pulse-front tilt caused by spatial and temporal chirp. *Optics express*, 12(19) :4399–410, September 2004.
- [14] H. Vincenti and F. Quéré. Attosecond lighthouses : How to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses. *Physical Review Letters*, 108(11), 2012.
- [15] H. Vincenti, J. A. Wheeler, A. Borot, and S. Monchoce. Attosecond lighthouses from plasma mirrors. 6(December) :829–833, 2012.
- [16] C. Heyl. Noncollinear optical gating. In *Laser Seminar / NCCR MUST Seminar*, 2014.
- [17] T. Bredtmann, S. Chelkowski, and A. Bandrauk. Effect of nuclear motion on molecular high order harmonic pump probe spectroscopy. *The journal of physical chemistry. A*, 116(46) :11398–405, November 2012.
- [18] Robert W. Boyd. *Non linear optics : third edition*. 2007.
- [19] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pépin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve. Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, 432(7019) :867–71, December 2004.
- [20] A. D. Shiner, B. E. Schmidt, C. Trallero-Herrero, P. B. Corkum, J.-C. Kieffer, F. Légaré, and D. M. Villeneuve. Observation of Cooper minimum in krypton using high harmonic spectroscopy. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 45(7) :074010, April 2012.
- [21] A.-T.-Thu Le, R. Lucchese, S. Tonzani, T. Morishita, and C. Lin. Quantitative rescattering theory for high-order harmonic generation from molecules. *Physical Review A*, 80(1) :1–23, July 2009.

- [22] J. Higuët, H. Ruf, N. Thiré, R. Cireasa, E. Constant, E. Cormier, D. Descamps, E. Mével, S. Petit, B. Pons, Y. Mairesse, and B. Fabre. High-order harmonic spectroscopy of the cooper minimum in argon : Experimental and theoretical study. *Phys. Rev. A*, 83 :053401, May 2011.
- [23] A.-T. Le, R. R. Lucchese, and C. D. Lin. High-order-harmonic generation from molecular isomers with midinfrared intense laser pulses. *Phys. Rev. A*, 88 :021402, Aug 2013.
- [24] X. Ren, V. Makhija, A.-T. Le, J. Troß, S. Mondal, C. Jin, V. Kumarappan, and C. Trallero-Herrero. Measuring the angle-dependent photoionization cross section of nitrogen using high-harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 88 :043421, Oct 2013.
- [25] K. T. Kim, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum. Manipulating quantum paths for novel attosecond measurement methods. *Nature Photonics*, 8(3) :187–194, February 2014.
- [26] H. J. Wörner, H. Niikura, J. Bertrand, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve. Observation of Electronic Structure Minima in High-Harmonic Generation. *Physical Review Letters*, 102(10) :103901, March 2009.
- [27] a. Jaroń-Becker, A. Becker, and F. Faisal. Ionization of N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, and linear carbon clusters in a strong laser pulse. *Physical Review A*, 69(2) :1–9, February 2004.
- [28] J. J. Yeh and I. Lindau. Atomic subshell photoionization cross sections and asymmetry parameters :  $1 \leq z \leq 103$ . *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 32(1) :1 – 155, 1985.
- [29] D. E. Parry. Atomic calculation of photoionization cross-sections and asymmetry parameters. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 8(7) :579–579, 1994.
- [30] N. T. Padial. Photoionization of ground state molecular c2. *The Astrophysical Journal*, 1985.
- [31] M. Lein, N. Hay, R. Velotta, J. Marangos, and P. Knight. Interference effects in high-order harmonic generation with molecules. *Physical Review A*, 66(2) :023805, August 2002.

- [32] S. Odžak and D. Milošević. Interference effects in high-order harmonic generation by homonuclear diatomic molecules. *Physical Review A*, 79(2) :023414, February 2009.
- [33] S. Odžak and D. B. Milošević. Molecular high-order harmonic generation : analysis of a destructive interference condition. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 42(7) :071001, April 2009.
- [34] A.-T. Le, X.-M. Tong, and C. Lin. Evidence of two-center interference in high-order harmonic generation from CO<sub>2</sub>. *Physical Review A*, 73(4) :041402, April 2006.
- [35] M. W. Schmidt, K. K. Baldridge, J. A. Boatz, S. T. Elbert, M. S. Gordon, J. H. Jensen, S. Koseki, N. Matsunaga, K. A. Nguyen, S. Su, T. L. Windus, M. Dupuis, and J. A. Montgomery. General atomic and molecular electronic structure system. *Journal of Computational Chemistry*, 14(11) :1347–1363, 1993.
- [36] M. S. Gordon and M. W. Schmidt. *Advances in electronic structure theory : GAMESS a decade later*, pages 1167–1189. Elsevier, Amsterdam, 2005.
- [37] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L’Huillier, and P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 1994.
- [38] P. F. Fougere. Electronic Structure of C<sub>2</sub>. *The Journal of Chemical Physics*, 44(1) :285, 1966.
- [39] E. G. Gamaly A. V. Rode and V. T. Tikhonchuk. Ablation of solids by femtosecond lasers : ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics. *arxiv*, (January) :1–27, 2001.
- [40] S. Mahmood, R. S. Rawat, M. S. B. Darby, M. Zakaullah, S. V. Springham, T. L. Tan, and P. Lee. On the plume splitting of pulsed laser ablated Fe and Al plasmas. *Physics of Plasmas*, 17(10) :103105, 2010.
- [41] T. Kanai, E. Takahashi, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa. Destructive Interference during High Harmonic Generation in Mixed Gases. *Physical Review Letters*, 98(15) :153904, April 2007.

- [42] O. Smirnova, Y. Mairesse, S. Patchkovskii, N. Dudovich, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, and M. Y. Ivanov. High harmonic interferometry of multi-electron dynamics in molecules. *Nature*, 460(7258) :972–7, August 2009.



# Chapitre 5

## APPLICATIONS DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS

### 5.1 Introduction

Comme nous avons pu le voir au cours des quatre premiers chapitres, la génération d'harmoniques peut être un outil extrêmement utile pour obtenir des informations sur la composition d'un milieu, la dynamique réactionnelle à une échelle de temps attoseconde ou bien sonder la structure moléculaire. En effet, lors de la recombinaison de l'électron avec l'ion parent, celui interagit avec son potentiel. Cette interaction est liée à la section efficace de photo-ionisation [1-3]. Elle permet également la reconstruction tomographique l'orbitale moléculaire HOMO [4].

Le rayonnement issu de la génération d'harmoniques d'ordres élevés présente de plus une caractéristique très intéressante. Étant donné la dynamique attoseconde de l'interaction de l'électron avec l'ion parent lors de l'étape d'émission du photon XUV, la conséquence va être la génération d'impulsions lumineuses attosecondes. Cependant, lors de la génération à

partir d'une impulsion infrarouge multi cycles, une impulsion attoseconde sera émise à chaque recombinaison de l'électron avec l'ion parent, c.-à-d., chaque demi-cycle. Cela entrainera la génération d'un train d'impulsions attosecondes. Or, il va être beaucoup plus simple de travailler avec une impulsion attoseconde unique pour réaliser la spectroscopie d'un milieu, par exemple durant une réaction. Un des défis est donc d'isoler une de ces impulsions. Pour cela plusieurs méthodes existent. On peut bien sûr générer grâce à une impulsion ne comportant qu'un seul cycle optique. Il sera nécessaire qu'elle soit stabilisée en phase. Cependant, produire de telles impulsions est très complexe et actuellement, les intensités disponibles sont assez faibles. La méthode que nous décrivons ici est différente (**DOG**) dans le sens où elle n'implique pas la production d'une impulsion à un cycle.

Pour finir, en dépit de l'absence de résultats publiables, nous voulions tout de même exposer une série d'expérience réalisée sur la spectroscopie de la **WDM**. Le terme **WDM** réfère à un état intermédiaire de la matière entre le solide et le plasma. Les théories sont actuellement en défaut pour décrire un tel état, car celui-ci va se comporter à la fois comme un solide et un plasma ionisé. Cette application nous a semblé intéressante, car elle exploitait le caractère intense du rayonnement issu du plasma de carbone.

## 5.2 Génération d'un continuum d'harmoniques d'ordres élevés par la méthode « Double Optical Gating » (**DOG**)

### 5.2.1 Méthode **DOG** : principe et réalisation

**Porte de polarisation** La méthode **DOG** consiste en 2 étapes principales. La première étant de produire une porte de polarisation [5–10]. En effet, il est possible d'utiliser le fait que l'efficacité de génération est fortement liée à l'ellipticité de l'onde de génération. Plus elle sera élevée, moins l'intensité du signal harmonique le sera. Le but d'une porte

de polarisation est donc de produire une impulsion dont la polarisation sera une fonction temporelle. Et idéalement, nous voulons que l'impulsion ne soit polarisée linéairement que pour une durée égale à un demi-cycle optique, c.-à-d., 1.3 fs pour une onde de longueur d'onde centrale égale à 800 nm.

Expérimentalement, cela est réalisé par la production de deux impulsions polarisées circulairement de sens opposés et décalées temporellement. La réalisation pratique est illustrée figure 5.1. Elle consiste en l'utilisation de la différence de vitesse de propagation entre les axes ordinaires et extraordinaires dans un cristal biréfringent. En sortie de ce cristal, il y a deux impulsions polarisées linéairement et décalées temporellement. Les directions de polarisation des deux impulsions sont orthogonales. Ensuite, l'introduction d'une lame d'onde  $\lambda/4$  permet de rendre circulaire gauche et droite les polarisations des deux impulsions. Nous ne détaillerons pas les calculs pour obtenir l'équation décrivant le champ électrique de l'onde. Cette onde dont la polarisation varie au cours du temps va pouvoir être caractérisée par deux champs électriques de polarisations orthogonales,  $E_{drive}$  et  $E_{gate}$ . Comme leurs noms l'indiquent, le premier est l'onde qui sera responsable de la génération et la deuxième celle la porte temporelle de polarisation. Nous supposons une onde d'amplitude  $E_0$ , de fréquence  $\omega_0$ , de phase  $\phi_{CE}$ , de durée d'impulsion  $\tau_p$  et nous appellerons  $T_d$  le délai introduit entre les deux ondes polarisées circulairement :

$$E_{drive} = E_0 \left[ e^{-2 \ln 2 \frac{(t + \frac{T_d}{2})^2}{\tau_p^2}} + e^{-2 \ln 2 \frac{(t - \frac{T_d}{2})^2}{\tau_p^2}} \right] \cos(\omega_0 t + \phi_{CE}) \quad (5.1)$$

$$E_{gate} = E_0 \left[ e^{-2 \ln 2 \frac{(t + \frac{T_d}{2})^2}{\tau_p^2}} - e^{-2 \ln 2 \frac{(t - \frac{T_d}{2})^2}{\tau_p^2}} \right] \sin(\omega_0 t + \phi_{CE}) \quad (5.2)$$

L'ellipticité de l'onde  $\xi(t)$  sera donc définie par :

$$\xi(t) = \frac{E_{gate}(t)}{E_{drive}}(t) \simeq \left| 2 \ln(2) \frac{T_d}{\tau_p^2} t \right| \quad (5.3)$$

Nous allons alors définir une valeur limite de l'ellipticité  $\xi_{lim}$  de l'onde au-delà de laquelle nous considérons que le signal harmonique est suffisamment faible. Généralement, elle est supposée égale à 0.2 du fait d'une réduction du signal harmonique d'un ordre de grandeur pour les ordres harmoniques du 800 nm supérieurs à 20. On a alors une porte de polarisation de durée  $\delta_{tg}$  :

$$\delta_{tg} = \frac{\xi_{lim} \tau_p^2}{\ln(2) T_d} \quad (5.4)$$

Le but est d'obtenir une porte de polarisation suffisamment courte afin de ne générer qu'une seule impulsion attoseconde. Pour cela, nous constatons grâce à l'équation 5.4 qu'il faut soit réduire la durée de l'impulsion de départ, soit introduire un délai plus grand entre les deux impulsions.

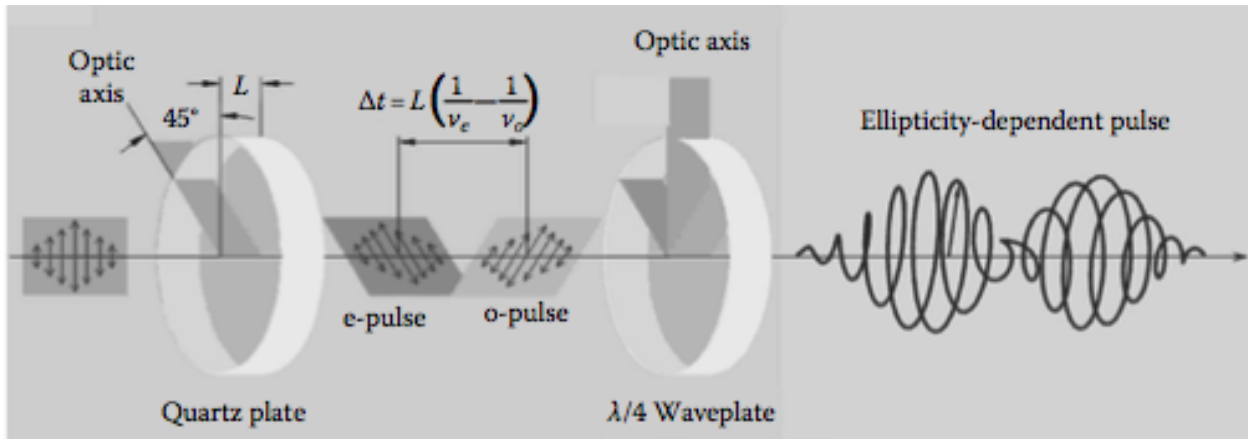


FIGURE 5.1 – Schéma du montage expérimental permettant la production d'une porte de polarisation par l'association d'une lame de quartz biréfringente à une lame quart d'onde. Figure extraite de ??

Le problème majeur de cette technique est la déplétion du niveau fondamental. En effet, puisque les harmoniques ne sont générées que lorsque les deux ondes se superposent, le début de l'impulsion ionise le milieu sans génération. Or si l'impulsion de départ est trop longue, il

va falloir introduire un délai entre les deux impulsions circulaires plus élevé et donc, tous les atomes seront ionisés avant que la polarisation de l'onde ne soit linéaire. En pratique, même si cette durée dépend de l'ionisation du milieu et donc de l'espèce, nous pourrions considérer que la méthode par porte de polarisation nécessite une durée d'impulsion inférieure à 7 fs.

**Rôle de l'introduction de la seconde harmonique : méthode DOG** L'introduction d'une faible (10%-20%) seconde harmonique de l'onde fondamentale permet de briser la symétrie du champ électrique. Il n'y a alors génération qu'une fois par cycle, au lieu de deux dans le cas précédent. La porte de polarisation peut donc cette fois être allongée à 2.6 fs, au lieu de 1.3 fs. Cela réduira d'autant plus le délai imposé entre les deux impulsions circulaires et donc, réduira la déplétion du niveau fondamental. En pratique, cette technique nous permettra de travailler avec des impulsions plus longues, entre 10 fs et 30 fs. Expérimentalement, on introduit un cristal doubleur après la lame quart d'onde introduisant les polarisations circulaires. L'association de la technique par porte de polarisation couplée à l'ajout de la seconde harmonique porte le nom de « Double Optical Gating » [11–14].

### 5.2.2 Montage expérimental

Les expériences ont été réalisées en utilisant le laser MARS [11, 15] au laboratoire « Kansas Light Source » de l'université de l'état du Kansas. Après compression, le laser MARS délivre des impulsions laser d'une durée de 30 fs à un taux de répétition de 1 kHz et 4 mJ d'énergie d'impulsions. Un diagramme schématique du dispositif expérimental est représenté sur la figure 5.2.

Dans le cas de la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans un plasma d'ablation, nous avons besoin de deux impulsions laser. Tout d'abord, une impulsion sous-nanoseconde d'intensité relativement faible est utilisée pour générer le plasma par ablation d'une cible solide. Le plasma en expansion va servir de milieu non linéaire pour la génération des harmoniques. Comme nous l'avons expliqué précédemment, il est nécessaire de laisser le plasma

s'étendre afin que sa densité électronique et sa température diminuent. Généralement, environ 30 ns à 100 ns suffisent. Ensuite, une impulsion laser femtoseconde intense est focalisée dans le plasma préformé pour générer des harmoniques d'ordres élevés. Afin de nous placer dans cette configuration, nous avons modifié la configuration d'origine de l'expérience MARS, en divisant le faisceau laser en deux, avant compression.

Un premier faisceau (120 ps , 2 mJ , 800 nm) est utilisé pour générer le plasma, tandis que le second faisceau est envoyé dans un compresseur pour générer l'impulsion courte responsable de la production des harmoniques. Pour l'impulsion de génération, trois configurations différentes étaient possibles et ont été testées. Tout d'abord, nous avons utilisé l'impulsion simplement comprimée dont les caractéristiques sont 30 fs , 1,4 mJ , 800 nm. Deuxièmement, la dernière impulsion a été comprimée de nouveau jusqu'à une durée de 8 fs par élargissement spectral dans une fibre creuse puis compensation de la dispersion grâce à des miroirs « chirpés ». L'énergie de sortie de l'impulsion finale était de 0,7 mJ à une longueur d'onde centrale de 750 nm. La troisième configuration correspond à l'introduction des optiques pour la méthode DOG telle que décrite plus haut.

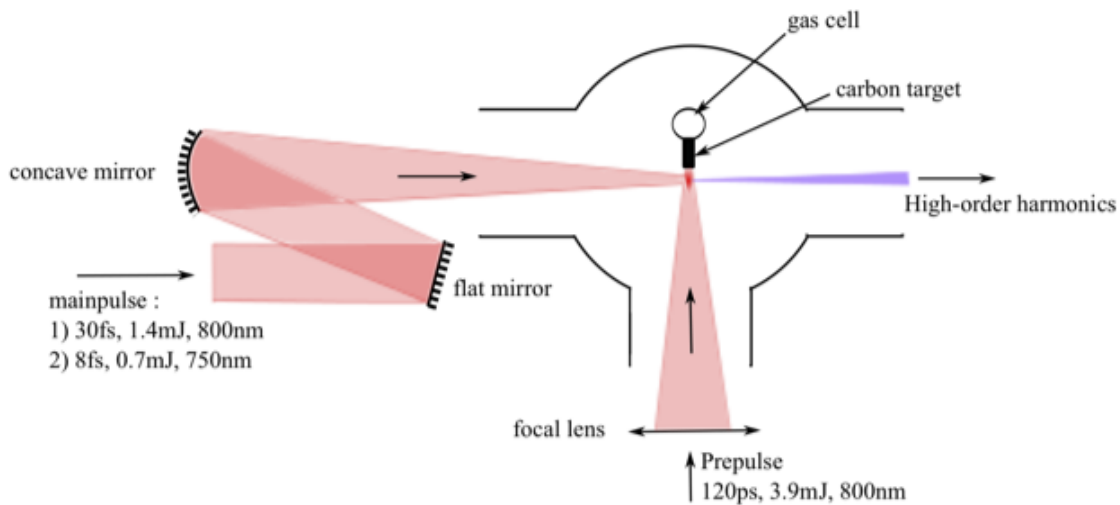


FIGURE 5.2 – Schéma du montage expérimental utilisé lors de la génération des harmoniques à partir de l'argon et du plasma de carbone dans le laboratoire MARS laser.

Pour comparer directement les harmoniques d'ordres élevés générées à partir du gaz et du plasma, nous avons placé la cellule de gaz (capillaire de 1mm de diamètre) et la cible de carbone solide dans la même chambre, de manière simultanée. L'objectif était de pouvoir facilement échanger les cibles sans casser le vide. Pour mesurer l'énergie des harmoniques, nous avons utilisé une photodiode calibrée au silicium (AXUV100, International Radiation Detectors). Deux feuilles d'aluminium minces ont été utilisées afin d'éliminer tout rayonnement issu du laser fondamental infrarouge. Pour la mesure des spectres, les harmoniques d'ordres élevés étaient spectralement dispersées à l'aide d'un spectromètre XUV (équipé d'un réseau Jobin-Yvon flat-field 384 lignes/mm) [16]. Une caméra CCD couplée à un ordinateur était utilisé pour l'acquisition des spectres d'harmoniques.

Une complication rencontrée durant les expériences a été la réduction du taux de répétition du laser permettant d'ablatir la cible de carbone. Généralement, il est possible d'avoir un signal relativement stable pendant environ une minute à un taux d'ablation de 10 Hz. Or, dans le cas d'un laser cadencé à 1 kHz, cela réduit cette durée à 0.6 seconde, ce qui aurait rendu impossible tout alignement. Nous avons donc réduit le taux de répétition de la préimpulsion picoseconde de 1000 impulsions par seconde à 20. Cela a été réalisé expérimentalement au moyen d'un obturateur ultrarapide (Newport ,electronic fast shutter). L'obturateur optique fonctionnait à 10 Hz, cependant la fenêtre d'ouverture minimale de l'obturateur n'était pas assez courte afin de ne laisser passer qu'une seule impulsion. En moyenne, il a été mesuré que deux impulsions étaient transmises toutes les 0.1 seconde. Par conséquent, l'acquisition des données a été réalisée à une fréquence inhabituelle de 20 tirs par seconde, deux tirs séparés de 1 milliseconde à un taux de répétitions de 10 Hz. Il a ainsi été plus aisé d'optimiser le signal. Cependant, les conditions non optimales, notamment en terme de flexibilité de l'ajustement des paramètres de la préimpulsion, ont rendu difficile le travail d'optimisation. Le taux de répétition de l'impulsion principale de génération a lui été conservé à un kilohertz. Les harmoniques d'ordres élevés n'étaient générés qu'en présence du plasma d'ablation néanmoins. Il a été remarqué que, étant donné la proximité de l'impulsion

femtoseconde avec la surface de la cible (environ  $100 \mu m$  dans les conditions de délai de cette expérience), la cible était ablatée également par le faisceau principal de génération. Cela a conduit à une cause supplémentaire d'instabilité du signal.

En résumé, nous avons tenté de modifier le système laser MARS afin d'être le plus compatible possible avec la génération d'harmoniques d'ordres élevés par la méthode plasma. Cependant, à la fois l'intensité de la pré-impulsion insuffisante mais aussi le manque de flexibilité dans l'ajustement des paramètres d'optimisation ont pénalisé l'intensité du signal harmonique issu du plasma de carbone. Les conditions de l'impulsion principale étaient elles dans la gamme de paramètres habituellement utilisés.

### 5.2.3 Résultats

**Comparaison de l'énergie du signal harmonique généré dans l'argon et le plasma de carbone** Les harmoniques générés dans les plasmas ont montré une forte efficacité de génération [17, 18] pouvant aller jusqu'à  $10^{-4}$  pour la cible d'indium [19] ou pour la cible de carbone [20]. Cependant, au moment de l'expérience en 2011, aucune comparaison directe, à notre connaissance, du signal harmonique issu d'une cible gazeuse et d'un plasma d'ablation n'avait été faite. Nous présentons donc la première mesure simultanée de l'efficacité de génération à partir d'un gaz d'argon et d'un plasma d'ablation de carbone.

Il convient tout d'abord de décrire la méthode de mesure de l'énergie du signal harmonique. En effet, lors de la mesure de l'énergie d'une radiation XUV, l'intégrale temporelle de la réponse du détecteur est proportionnelle à cette énergie. Cette intégrale représente la charge de celui-ci, on comprend alors qu'elle caractérise le nombre d'électrons qui ont été créés lors de l'intégration du faisceau avec le détecteur. On pourra connaître l'énergie  $E_\nu$  de l'onde par la formule :

$$E_\nu = \frac{A_\nu E_p}{RQ_p} \quad (5.5)$$



$A_v = \int V(t)dt$  est l'intégrale de la tension obtenue à l'oscilloscope.

$E_p$  est l'énergie  $\hbar\omega_p$  d'un photon associé à la longueur d'onde de la radiation

$Q_p$  est l'efficacité quantique de la photodiode à l'énergie du photon considéré. Ces valeurs sont tabulées lors de la calibration de la photodiode.

$R$  représente l'impédance d'entrée du circuit de mesure, ici l'oscilloscope. Elle est donc égale à  $50 \Omega$

Il a donc fallu adapter la formule ci-dessus au cas d'une onde polychromatique. Un facteur de « poids » a été affecté à chaque harmonique, supposée monochromatique et égale à sa longueur d'onde centrale. Ces facteurs ont été obtenus à partir des spectres mesurés grâce au spectromètre XUV. Nous sommes conscients de la dépendance en longueur d'onde de la réponse d'une MCP. Cependant, cette dépendance sera la même pour l'argon et le plasma de carbone. On n'obtiendra donc sûrement un résultat absolu non exact, mais la comparaison des deux énergies mesurée sera vraisemblablement pertinente. L'énergie  $E_{tot}$  a donc été calculée telle que :

$$E_{tot} = \sum_q \alpha_q \frac{A_v E_{pq}}{R Q_{pq}} \quad (5.6)$$

L'indice  $q$  réfère ci-dessus à l'harmonique  $q$ . Les facteurs de la somme sont exactement les même que ceux décrits précédemment, adapté à la l'harmonique  $q$ . Le résultat final est donc une somme pondérée des contributions de toutes les harmoniques. Les coefficients de pondération ainsi que les autres grandeurs sont donnés dans le tableau 5.1.

La mesure de l'énergie n'a été réalisée qu'avec une impulsion de génération longue. En effet, comme il sera décrit plus tard, l'intensité du continuum d'harmoniques n'a pas permis une mesure de l'énergie générée. Nous avons donc obtenu une énergie de 0.262 nJ pour l'argon et de 2.49 nJ pour le plasma de carbone. Tous d'abord, nous remarquons un facteur de 9.5 entre l'énergie générée par les deux milieux. Nous confirmons donc la plus grande efficacité de génération par la méthode plasma, en particulier dans le cas de la cible de carbone. Ensuite, les énergies mesurées peuvent paraître basses. L'efficacité de génération

q	$\lambda_q$ (nm)	$Q_{pq}$ (%)	$\alpha_q$	
			argon	carbon
11	72.7	1.90	1.24	13.3
13	61.5	2.91	6.18	24.3
15	53.3	3.70	16.8	26.5
17	47.1	4.94	24.2	21.3
19	42.1	5.90	25.8	11.2
21	38.1	6.87	14.2	3.32
23	34.8	7.72	7.37	–
25	32.0	9.49	4.19	–

TABLE 5.1 – Tableau des différentes grandeurs associées à l'équation 5.6

dans le plasma de carbone a pour valeur  $1.8 \times 10^{-6}$ . Nous avons précédemment reporté des valeurs bien supérieures de l'ordre de  $10^{-4}$  [20]. À cela, plusieurs explications sont possibles. Premièrement, comme nous l'avons expliqué plus haut, les conditions d'alignement étaient non optimales. Une ablation de la cible plus rapide, à la fois par la préimpulsion, mais aussi par l'impulsion principale kilohertz, ont rendu le signal très instable. Il a donc été impossible de générer dans les conditions pleinement optimisées. Ensuite, il semble que les filtres d'aluminium présentaient une couche d'oxyde très épaisse. Or celle-ci peut réduire très fortement la transmission des filtres dans les longueurs d'onde les plus basses, celles présentant un intérêt pour cette étude. Ces deux problèmes pourraient expliquer la très faible efficacité de génération lors de ces expériences.

**Mesure de l'énergie réalisée dans le laboratoire ALLS** Une autre mesure de l'énergie des harmoniques générés dans un plasma de carbone a été faite dans le laboratoire ALLS. Les conditions d'optimisation et de mesures étaient donc beaucoup plus adaptées à la technique de génération par plasma d'ablation. De plus, cette nouvelle mesure a été réalisée postérieurement au travail mené sur l'optimisation de tous les paramètres de génération,

comme expliqué dans la partie 3.4. Les conditions de génération ont donc été une préimpulsion de quelques millijoules, et une impulsion principale de  $700 \mu J$ , 45 fs, 800 nm focalisée dans le milieu environ 50 ns après la création du plasma. La mesure de l'énergie a elle été réalisée au moyen d'une photodiode AXUV100al (International Radiation Detector). C'est exactement le même modèle que celui utilisé dans les expériences précédentes, avec un dépôt d'aluminium réalisé sur le capteur de silicium afin de bloquer les basses longueurs d'onde (le fondamental). De plus, contrairement au montage expérimental utilisé dans le laboratoire MARS laser, le miroir de silicium à angle de Brewster permettait une forte réduction de l'intensité de l'impulsion fondamentale. Pour finir, une tension de «bias» a été imposée à la photodiode. En effet, étant donné la très courte durée de l'impulsion XUV, lors du fonctionnement en mode photoélectrique pur, une partie des photons n'interagissent pas avec le capteur. Une tension de «bias» a donc été imposée. Celle-ci ne pouvait pas être supérieure à 60V (valeur imposée par le constructeur) et a été réglé pour que, l'intensité du signal ne soit plus fonction de cette tension. En résumé, la tension de «bias» a été augmentée jusqu'à saturation du signal.

Nous avons donc été capables de mesurer une énergie de 500 nJ pour une impulsion de génération de  $700 \mu J$ . Cela correspond à un coefficient de conversion en énergie d'environ  $7.10^{-4}$  pour l'ensemble des harmoniques. Ensuite, en utilisant les valeurs reportées dans le tableau 5.1, nous avons pu calculer un nombre de photons générés de l'ordre  $10^{11}$ . A fin de comparaison avec le cas des gaz, les valeurs reportées dans le cas du gaz Xénon (potentiel d'ionisation comparable au carbone) sont de l'ordre de  $5.10^{-5}$  ??.

Ce résultat nous apparait très intéressant en terme d'application spectroscopique. En effet, une des limitations actuelles du montage expérimental est la nécessité de travailler à un taux de répétition assez bas afin de ne pas ablater la cible trop rapidement. Cependant, le passage à une ablation stable à haut taux de répétition est tout à fait possible, par exemple par l'utilisation d'une cible en rotation ou d'un ruban de carbone en translation. De plus, la génération d'une impulsion femtoseconde sous-millijoule devient de plus en plus abordable

en terme de coup. Finalement, nous pensons que la génération d’harmonique d’ordres élevés par plasma de carbone peut devenir une source XUV intense facilement accessible.

**Comparaison des spectres pour des durées d’impulsion différentes** Nous allons maintenant présenter une comparaison entre les spectres harmoniques générés à partir de l’argon et du plasma de carbone pour les deux durées d’impulsions différentes mentionnées plus haut (30 fs, 1.4 mJ et 8 fs, 0.7 mJ). Nous tenons également à rappeler que le taux de génération dans le plasma d’ablation était de 20 tirs par seconde alors que celui du gaz était de 1000 tirs par seconde. Les spectres représentés dans la figure 5.3 sont renormalisé en fonction du nombre de coup par image lié au temps d’acquisition de la caméra différent dans les deux cas. Enfin, la configuration du spectromètre XUV ne permettait que d’observer les harmoniques à partir de l’ordre 15.

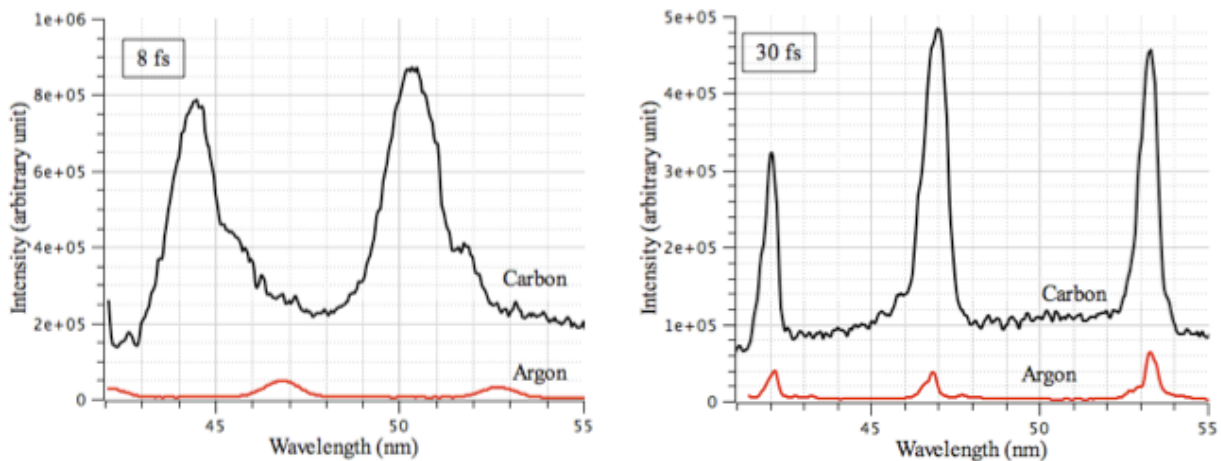


FIGURE 5.3 – Spectres expérimentaux obtenus pour l’argon (rouge) et le plasma de carbone (noir) pour une impulsion de durée égale à 8 fs (gauche) et 30 fs (droite).

Le graphique de droite sur la figure 5.3 représente les spectres obtenus à partir de l’impulsion de 30 fs alors que le graphique de gauche représente ceux obtenus avec l’impulsion de 8 fs. Nous remarquons premièrement un signal clairement plus intense dans le cas du plasma de carbone. Cela confirme la mesure d’énergie effectuée. De plus dans le cas de l’impulsion de 8 fs, nous remarquons un décalage spectral des harmoniques vers les longueurs d’onde

plus courte. Ceci est vraisemblablement dû à l'effet des électrons sur l'impulsion infrarouge lors de sa propagation dans le milieu. En effet, le plasma d'ablation contient une densité non négligeable d'électron libre ainsi qu'une densité de particules vraisemblablement plus élevée que celle du gaz. Néanmoins, aucune valeur de l'indice non linéaire d'un tel plasma n'a été reportée dans la littérature. Mais le fait que l'effet de décalage vers le bleu soit plus notable pour l'impulsion la plus intense semble confirmer l'hypothèse d'un effet dû à l'ionisation du milieu.

**Génération d'un continuum d'harmoniques dans le plasma de carbone** Le dernier résultat présenté à propos de la campagne d'expérience réalisée en collaboration avec l'équipe du Pr Zenghu Chang est la démonstration de la génération d'un continuum d'harmonique. Ce type de continuum est habituellement généré dans le cas de la présence d'une impulsion attoseconde unique [6, 21]. Cependant, aucune reconstruction temporelle de l'impulsion n'a été réalisée. Il nous est donc impossible d'affirmer la génération d'une impulsion attoseconde unique. Nous restons néanmoins convaincus de la forte preuve de la génération d'une telle impulsion.

La figure 5.4 représente, en fonction de la longueur d'onde, pour la partie supérieure le spectre discret issu de l'impulsion de 8 fs et dans sa partie inférieure le continuum XUV lors de l'ajout des optiques DOG dans le trajet du faisceau. Nous observons clairement le passage d'un spectre discret à un continuum. L'intensité a été mesurée entre 17 eV et 25 eV et pour chaque image, les conditions d'acquisition étaient différentes (tension MCP, temps d'acquisition). Il est alors impossible de comparer quantitativement les intensités générées. Nous pouvons tout de même préciser qu'il était évident, et attendu, que l'intensité des spectres continus soit beaucoup plus faible que les spectres discrets, ceci étant dû à la déplétion du niveau fondamental avant l'ouverture de la porte de polarisation.

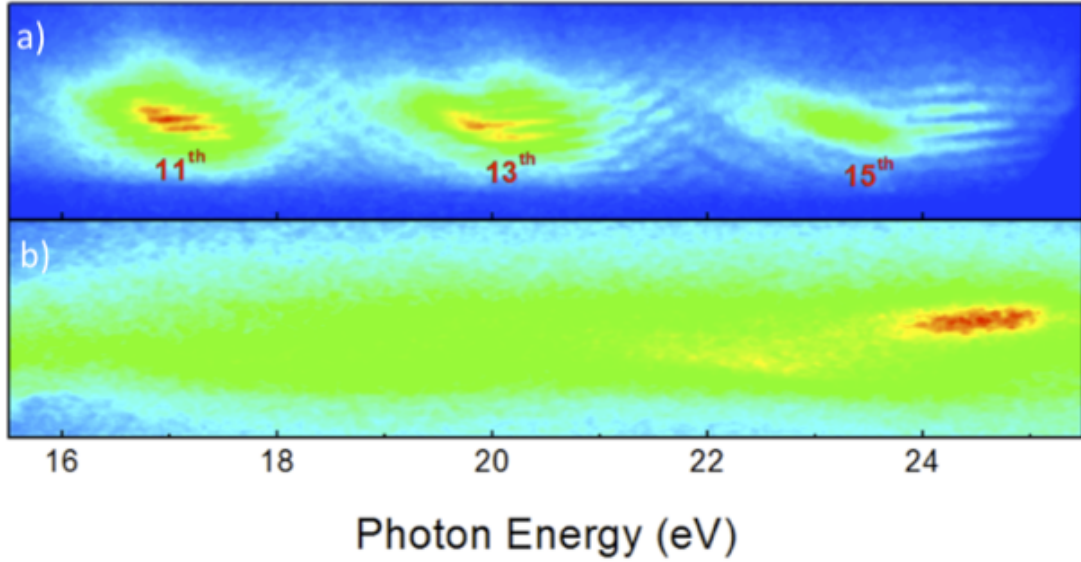


FIGURE 5.4 – Images des spectres issus du plasma de carbone. (haut) Génération à partir d’une impulsion de 8 fs conduisant à un spectre discret. (bas) Génération par la méthode DOG résultant en un continuum XUV.

### 5.3 Première tentative de génération d’un continuum à $1.8 \mu m$ dans le plasma de carbone

#### 5.3.1 Montage expérimental

Le montage expérimental relatif à la première tentative de génération d’un continuum d’harmonique grâce à une impulsion de génération centrée à  $1.8 \mu m$  de longueur d’onde est représenté figure 5.5. Nous avons déjà décrit l’expérience dans la partie relative à l’identification des mécanismes de génération 4.3. Nous rappellerons seulement qu’il consiste en la conversion du 800 nm en  $1.8 \mu m$  grâce au dispositif He-TOPAS, suivi de l’élargissement spectral du faisceau infrarouge par automodulation de phase dans une fibre creuse remplie avec 1 bar d’argon. La compensation de la dispersion en sortie de la fibre est réalisée par propagation dans une pièce de verre (fused silica) dans lequel une onde centrée à  $1.8 \mu m$  de longueur d’onde subit une dispersion négative.

La difficulté essentielle rencontrée dans le cadre de cette expérience a été l'optimisation de la sortie du [He-TOPAS](#). En effet, il fallait premièrement obtenir une énergie suffisante afin d'obtenir, après les pertes par propagation dans la fibre, une intensité suffisante dans le plasma de carbone. Ensuite, afin de minimiser au maximum les pertes dans la fibre, il fallait obtenir un profil spatial en sortie de [He-TOPAS](#) de qualité suffisante. Cela a représenté un vrai défi car il est connu que les propriétés spatio-temporelles des faisceaux issus des amplificateurs paramétriques à superfluorescence sont moins bonnes que ceux basés sur la génération d'un continuum par effet Kerr dans une fenêtre de saphir ou de verre.

Enfin, étant donné la faible stabilité pic à pic du système 10 Hz (fluctuations supérieures à 12-13% pic à pic), la génération de la superfluorescence était très instable résultant en une instabilité globale de la conversion de fréquence. En dépit de ces problèmes, nous avons été en mesure d'obtenir des spectres pour les trois types d'impulsions générées :

1. Impulsion longue avant compression dans la fibre creuse.
2. Impulsion compressée par élargissement spectral puis compensation de la dispersion.
3. Porte de polarisation appliquée à l'impulsion compressée.

Même si les étapes peuvent sembler évidentes, nous allons finalement décrire la méthode d'alignement de la porte de polarisation. Rappelons premièrement que la réalisation expérimentale consiste en l'introduction d'une première lame de quartz dont l'axe optique fait un angle de  $45^\circ$  avec la direction de polarisation de l'onde. Puis, une lame quart d'onde est ajoutée afin de rendre circulaires gauches et droites les polarisations des deux impulsions décalées temporellement créées par la première lame. Nous avons donc tout d'abord recherché l'axe optique de la première lame de quartz. Celui-ci correspond au maximum du signal lorsque l'optique est sur le trajet du faisceau. En effet, lors de l'ajout d'un certain angle entre l'axe optique et la direction de polarisation, l'impulsion sera allongée et sa polarisation ne sera plus entièrement rectiligne. Ces deux changements de paramètres résultent en une diminution de l'efficacité de génération. Une fois l'axe optique identifié, une rotation de la monture de  $45^\circ$  est faite. Cette position est notée puis l'optique ôtée. L'alignement de la

lame quart d'onde est lui encore plus simple puisque une fois celle-ci alignée la polarisation de l'onde doit être circulaire. Cela correspond à une disparition du signal harmonique. La première lame est ensuite ajoutée de nouveau. Le choix de l'épaisseur de la première lame d'onde a été fait grâce à la formule 5.4 en supposant une limite d'ellipticité égale à 0.2, une impulsion de durée égale à 20 fs et de longueur d'onde  $1.8 \mu m$ .

### 5.3.2 Résultats expérimentaux

Malheureusement, au moment de l'expérience le dispositif de mesure de durée d'impulsion FROG n'était pas disponible. Cependant, étant donné la durée initiale en sortie du He-TOPAS d'environ 60 fs, il est peu probable, qu'après élargissement spectral et compression, nous ayons obtenu une impulsion de durée inférieure à 20 fs. Étant donné la longueur d'onde de travail correspondant à une période de 6 fs, nous pouvons attendre une impulsion d'environ 3 à 4 cycles optiques. Cela n'est évidemment pas assez court pour générer une impulsion attoseconde unique.

La figure 5.6 représente les résultats expérimentaux issus des trois impulsions décrites précédemment. Le spectre a) a été généré à partir de l'impulsion avant compression dans la fibre creuse, b) par l'impulsion compressée et enfin c) avec l'ajout d'une porte de polarisation. Comparons tout d'abord les spectres a) et b). Comme nous l'avons décrit plus haut, il était difficile, voire impossible, de réussir à compresser l'impulsion de départ jusqu'à l'obtention d'une impulsion monocycle. Cependant, nous observons clairement le passage d'un spectre entièrement discret (a) à un spectre quasi continu dans la zone de cutoff avec des modulations dans le plateau. C'est un signe d'une part d'un spectre plus large et aussi d'une durée d'impulsion inférieure réduisant le nombre d'impulsions attosecondes dans le train.

On observe ensuite une forte réduction de la divergence des harmoniques. La qualité spatiale du faisceau après passage dans la fibre creuse est améliorée par un effet de filtrage. Les modes spatiaux d'ordres élevés ne sont pas transmis et nous retrouvons en sortie une impulsion avec un profil spatial de Bessel. La sortie du He-TOPAS est elle généralement



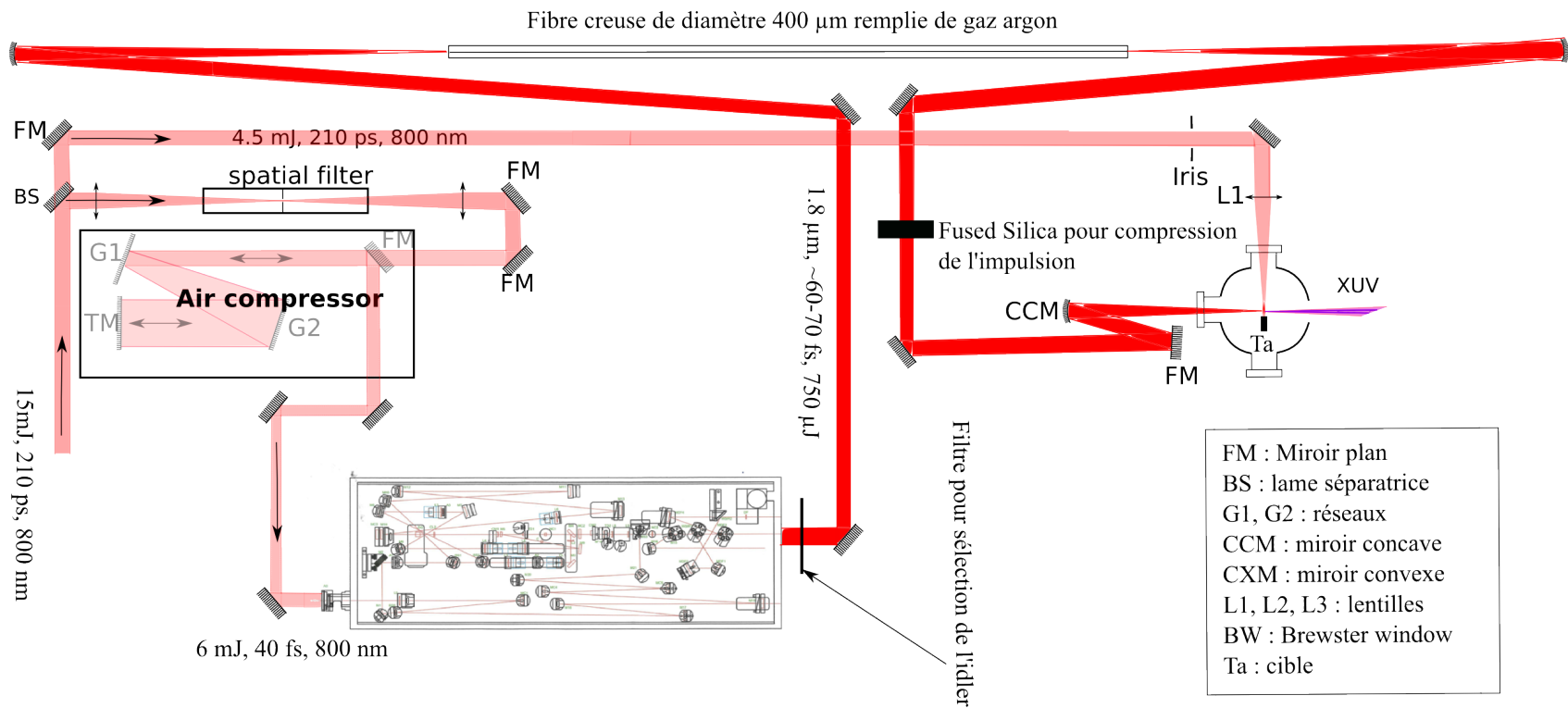


FIGURE 5.5 – Montage expérimental relatif à la génération d'harmoniques d'ordres élevés par une impulsion de 1.8  $\mu\text{m}$  de longueur d'onde centrale élargie par automodulation de phase dans une fibre creuse.

d'assez mauvaise qualité. Il avait été cependant plus efficace d'introduire un iris dans le trajet du faisceau plutôt que de filtrer spatialement celui-ci. Mais les différences de qualité spatiale des deux impulsions (se retrouvant dans la qualité du point focal) sont ce qui semble être la raison principale d'une divergence plus faible due à un meilleur accord de phase dans le milieu. Les intensités des deux impulsions sont comparables voire plus élevée pour l'impulsion élargie spectralement.

Il faut noter que les spectres a) et b) de la figure 5.6 ont été moyennés sur 50 images afin d'obtenir un rapport signal sur bruit de bonne qualité. Étant donné que le but n'était pas de démontrer la génération d'un continuum d'harmonique, il n'y avait pas nécessité de conserver une image sur un seul tir. C'est pour cette raison cependant que le spectre c) est lui une image réalisée sur un tir unique avec introduction d'une porte de polarisation.

Le but de cette expérience est de pouvoir démontrer la faisabilité de la génération d'un continuum d'harmoniques à tir unique dans le laboratoire ALLS. Étant donné la difficulté expérimentale d'obtenir des impulsions ultra-courtes à 800 nm, nous avons fait le choix d'utiliser une longueur d'onde plus élevée. En effet, de par sa plus longue période, le nombre de cycles par impulsion de même durée est évidemment inférieur. Cela semble donc être tout à fait possible. Cependant une grande place reste encore à l'optimisation. Ce résultat est la démonstration d'un premier essai réalisé sur deux semaines. Il nous apparaît donc tout à fait faisable d'obtenir une source attoseconde à tir unique grâce à la méthode de génération par plasma d'ablation. Idéalement, comme présenté dans le travail de Bruno E. Schmidt et al. [22], il est même possible d'obtenir une impulsion infrarouge suffisamment courte pour que la porte de polarisation ne soit plus nécessaire.

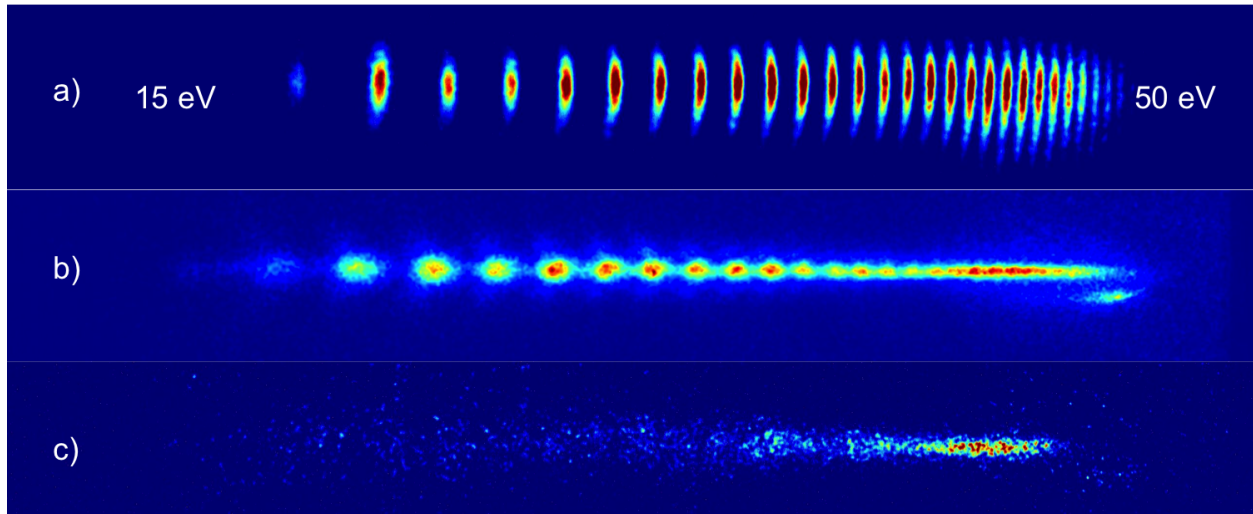


FIGURE 5.6 – Comparaison des différentes images de spectres obtenus avec a) une impulsion infrarouge longue avant passage dans la fibre creuse (moyenne sur 50 images), b) une impulsion compressée par l’élargissement spectral et compensation de la dispersion (moyenne sur 50 images) c) une impulsion courte associée à une porte de polarisation (image d’un tir unique).

## 5.4 Mesure de l’opacité XUV de la « Warm Dense Matter »

Les expériences suivantes ont été réalisées en collaboration avec les professeurs A. Ng et Y. Y. Tsui de l’Université d’Alberta. Dr. M. Reid de l’université de Colombie Britannique du Nord ainsi que S. Kirkwood du CNRC était également impliqué dans le projet. La partie suivante n’a malheureusement pas donné lieu à l’obtention de résultats de qualité suffisante pour être publiés. Néanmoins, il nous est apparu important de reporter le travail effectué, car il a permis d’une part, d’identifier les limitations de la source harmonique pour ce type d’applications, et d’autre part, ce rapport pourra être utilisé comme base de départ pour la poursuite du projet. La physique mise en jeu pour la création et l’étude des plasmas dense (WDM) n’étant pas le cœur de ce projet de thèse, cette partie se concentrera essentiellement sur l’aspect expérimental du projet tout en apportant les informations physiques nécessaires. Aucune description détaillée de la théorie de la WDM, couplant la physique des plasmas à

la matière condensée, ne sera introduite dans ce chapitre.

### 5.4.1 But de l'expérience et motivations du choix de la source harmonique par plasma de carbone

Un état de la matière très mal connu à ce jour, intermédiaire entre le solide et le plasma est nommé « Warm Dense Matter ». Il est dit intermédiaire entre le solide et le plasma, car sa densité est très proche du solide, mais sa température est équivalente à celle rencontrée habituellement dans les plasmas. Il n'y a pas de définition exacte au terme « Warm Dense Matter ». Cependant, la communauté scientifique semble se baser sur deux critères essentiels qui sont :

- Une température proche de l'énergie de Fermi.
- Un coefficient de couplage ion-ion supérieur à 1 :  $\Gamma = \frac{Z^2 e^2}{r_0 k_B \pi} \simeq \frac{E_{ion-ion}}{E_{thermique}} > 1$  avec

$$r_0 = \left( \frac{3Z}{4\pi n_e} \right)^{\frac{1}{3}}$$

Il est d'un grand intérêt d'étudier cet état, car il est rencontré dans de nombreux milieux extrêmes, par exemple, au sein des étoiles, mais aussi, dans les plasmas créés pour la fusion thermonucléaire par confinement inertiel. Cependant les équations d'état de la matière avec de tels paramètres de pression et de température sont très mal connues [23, 24]. Il est donc primordial de pouvoir reproduire de manière contrôlée la **WDM** avec des paramètres précis. Pour cela, plusieurs méthodes sont possibles. Premièrement, le chauffage isochore d'une feuille de métal de quelques centaines d'angströms d'épaisseur par une radiation dans le domaine XUV [25–27]. Ce type de radiation peut par exemple être obtenu dans des installations Free Electron Laser (**FEL**). Également, une autre méthode est le chauffage d'une feuille mince (100-200 Å) par une impulsion laser ultra-courte avec une intensité de l'ordre de  $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ , par exemple celle délivrée par un système laser Ti : Sa [25, 28].

Le système 10 Hz du laboratoire ALLS est donc l'outil adapté pour la création de l'état **WDM**. Ensuite, une fois l'échantillon chauffé, celui-ci commencera son expansion. C'est la

raison pour laquelle une impulsion courte est nécessaire afin de déposer l'énergie dans un temps inférieur au temps caractéristique d'expansion. En effet, après environ dix picosecondes, le caractère **WDM** cessera pour laisser place à un plasma où l'interaction ion-ion devient négligeable. Il sera nécessaire de sonder le métal irradié dans l'intervalle de temps pertinent à cette étude. Ceci a pour le moment essentiellement été réalisé par l'intermédiaire de radiations infrarouges ou visibles [29–31].

Le but de l'expérience était d'obtenir une information sur l'opacité de la **WDM** dans le domaine de longueur d'onde XUV. Nous aurions pu ainsi tester la validité des modèles développés jusqu'ici. La source idéale pour ce type de mesure est le **FEL**. Cependant, leur utilisation présente généralement un coût financier et de plus, il est très difficile d'y obtenir du temps de faisceau. Or, la génération d'harmoniques d'ordres élevés est une source de rayonnement dans la gamme de longueurs d'onde d'intérêt. Étant donné le caractère à tir unique de ces expériences, une source suffisamment brillante est nécessaire. La méthode impliquant un gaz comme milieu non linéaire ne semblait pas fournir une impulsion XUV assez intense. C'est la raison pour laquelle la méthode par plasma d'ablation de carbone a semblé une bonne alternative.

### 5.4.2 Première campagne expérimentale

**Expériences préliminaires** Une première campagne préliminaire a été réalisée afin d'identifier les problèmes majeurs avant la réalisation à proprement dite de la mesure. En effet, une des questions était simplement la possibilité de la réalisation de la mesure, c'est-à-dire, le signal harmonique issu du plasma de carbone était-il assez intense afin de réaliser une mesure en un seul tir avec un contraste suffisant. Nous avons également mené une série de mesure de la stabilité du signal XUV tir à tir. Ce critère était important en raison de la très faible variation d'absorption attendue entre la feuille de métal « froide » et la **WDM** créée par chauffage de la feuille.

Étant donné la faible divergence du faisceau harmonique, il a tout d'abord été décidé de

travailler sans focalisation. Cela permettait de simplifier grandement le système. Le montage expérimental pour l'expérience préliminaire est très semblable au montage 5.8 en présence uniquement du faisceau harmonique. La figure 5.7 représente les spectres harmoniques a, b et c respectivement sans la cible WDM, avec la cible au même gain pour la mesure et avec la cible à gain augmenté. Il est assez évident que le signal est fortement absorbé et qu'une grande partie du faisceau XUV est bloqué par le support de cible. Ce dernier consiste en une plaque métallique percée de plusieurs trous de 600  $\mu\text{m}$  de diamètre, séparés par 5 mm, sur laquelle est déposée une mince feuille d'aluminium d'environ 30 nm d'épaisseur. La préparation des échantillons s'est avérée être une tâche difficile pour laquelle Zhijiang Chen a consacré un certain temps pour nous l'apprendre.

On remarque sur les figures 5.7 b et c que deux cibles consécutives sont irradiées par le faisceau XUV. Nous avons alors émis l'hypothèse d'utiliser cette seconde cible comme référence du signal. Nous remarquons aussi que pour permettre leur irradiation simultanée, chacune des cibles est placée sur l'extrémité du profil spatial. Cependant, dues aux fluctuations d'énergies, et de pointé du faisceau de générations à 800 nm, l'énergie, le profil spatial et le pointé du faisceau XUV fluctuent. L'utilisation de la référence dans la configuration actuelle était impossible.

Ensuite une étude de la stabilité des harmoniques a été réalisée. Nous voulions connaître la stabilité globale du signal XUV tir à tir ainsi que la stabilité relative entre ordres harmoniques. Les fluctuations tir à tir de l'intensité, donc  $\frac{I_{\text{harmonique}}}{I_{\text{moyenne}}}$  montrent une déviation standard de l'ordre de 20% du signal enregistré par la caméra. Cette valeur peut sembler très élevée. Cependant, le système 10 Hz du laboratoire ALLS comporte déjà une stabilité tir à tir assez moyenne, de l'ordre de 12-13 % de fluctuations, alors, étant donné la forte non-linéarité du processus de génération, il paraît compréhensible d'observer cette instabilité. Une optimisation de l'alignement et du système laser nous permettrait de réduire cette valeur, mais il est impossible d'obtenir un signal de stabilité supérieure à la valeur de la variation d'opacité attendue (1-2 %). La nécessité d'une référence s'est alors avérée primordiale.

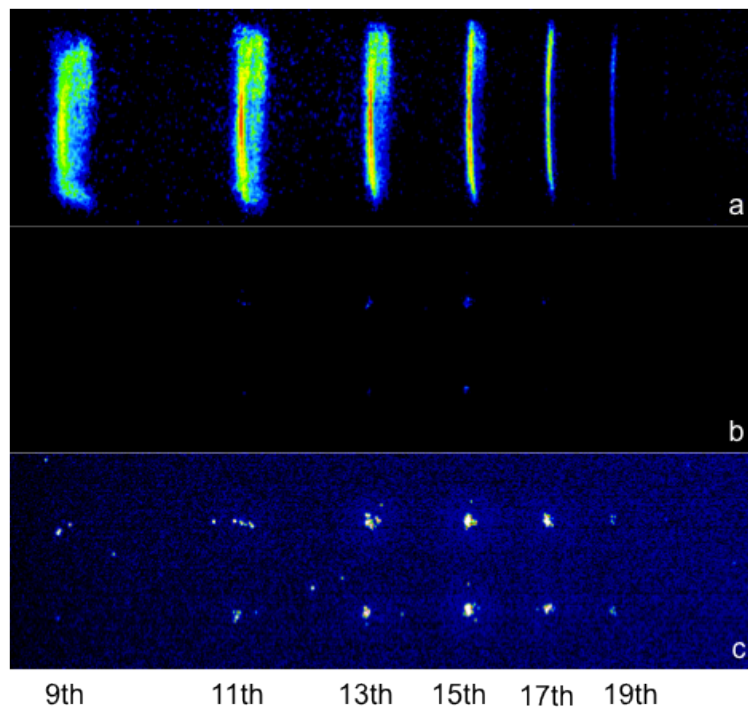


FIGURE 5.7 – a) Spectre d’harmoniques d’ordres élevés sans la cible, b) Spectre d’harmoniques d’ordres élevés en présence de la cible à la même sensibilité de mesure que pour a), c) Spectre d’harmoniques d’ordres élevés en présence de la cible avec augmentation du gain de la [MCP](#)

**Description du montage expérimental** Le montage expérimental est représenté sur la figure 5.8. Cette expérience consiste en l’ajout d’une sonde XUV (généré par harmonique) à un montage déjà complexe de la mesure pompe-sonde de la WDM. Une très grande quantité de données étaient nécessaires à l’acquisition de chaque tir. Elles consistaient en :

- Pompe (800 nm) : Mesure de l’énergie incidente, réfléchi et transmise au moyen de trois photodiodes calibrées.

Imagerie du profil spatial du point focal de la pompe (transmis et réfléchis), nous étions dans une configuration « Top Hat », obtenue par l’imagerie d’un faisceau tronqué, donc avec une intensité constante sur toute la surface du point focal.

- Sonde (400 nm) : Imagerie de la transmission et de la réflexion de l’impulsion sonde collimatée.

Mesure de l’intensité transmise et réfléchi de la sonde par photodiodes.

- Sonde (XUV) : Mesure du spectre transmis.

Ensuite, il y avait nécessité de synchronisation temporelle et de recouvrement spatial des trois faisceaux. Une ligne à délai a été installée sur le trajet du faisceau de pompe afin de réaliser l’acquisition de l’opacité XUV-400nm de la WDM à différent temps après irradiation de la feuille. Étant donné le fait que la position de la cible était modifiée lors du passage sous vide, un nouvel alignement sous vide était nécessaire avant chaque début de mesure.

Un nouveau type de cible avait été introduite avec une distance entre cibles WDM de 2.98 mm. Cette valeur était la distance minimale acceptable pour la préparation de cibles de qualité suffisante. Une densité accrue de cibles par support introduisait généralement une courbure de celui-ci. La cible était placée sur une translation xyz opérée à l’air.

**Analyse critique des résultats** Les barres d’erreurs des résultats étaient beaucoup trop élevées pour en déduire un quelconque changement dans le taux d’absorption XUV entre l’aluminium froid et chauffé. Plusieurs raisons expliquent cet échec quant à la mesure.

1. Le montage était premièrement extrêmement complexe avec trop peu d’automatisa-



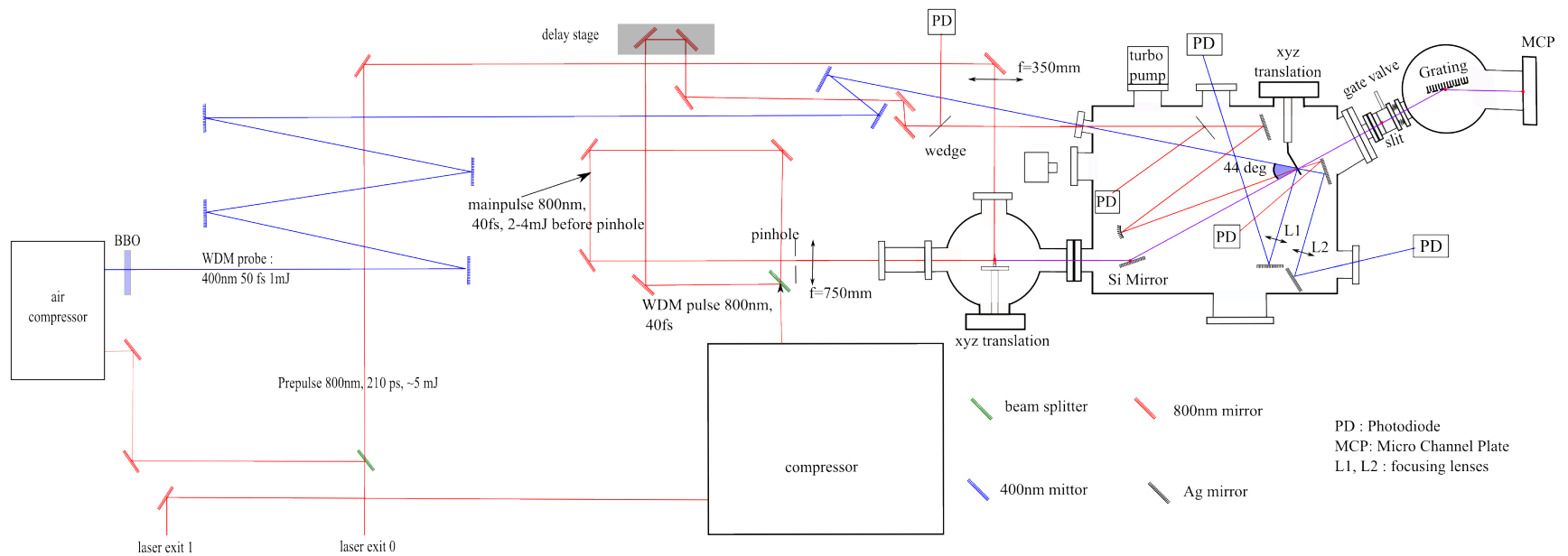


FIGURE 5.8 – Schéma du montage de la première campagne expérimentale relative à la mesure pompe-sonde-sonde (800nm-400nm-XUV) de la conductivité de la WDM

tion. La moyenne journalière d'alignement était d'environ une dizaine d'heures puis de 3 à 4 heures de prise de mesures. Or l'énorme quantité de données à enregistrer à chaque tir impliquait un temps d'acquisition par tir d'environ 20 à 30 minutes. Il a été impossible de faire l'acquisition d'un nombre assez élevé de tirs par paramètre de mesure (délai pompe-sonde, énergie de la pompe) afin d'avoir une statistique de mesure suffisamment bonne.

2. Les cibles d'aluminium, choisies à cause de leur faible absorption dans le domaine XUV et de la disponibilité des informations des équations d'état, comportaient une couche d'oxyde  $\text{Al}_2\text{O}_3$  très importante. Après vérification du taux d'absorption des feuilles utilisées, il s'est avéré que la contribution de l'aluminium était négligeable par rapport à celle de l'oxyde.
3. Ce dernier point rejoint le premier. En dépit d'un rapprochement des cibles, l'utilisation d'une deuxième cible s'est avérée inutile en raison toujours d'une instabilité du pointé de faisceau. En effet, la variation relative d'intensité entre référence et cible était supérieure aux fluctuations totales d'intensité.

A l'issue de cette première campagne expérimentale, d'importantes modifications ont été apportées. Premièrement, il y avait nécessité de trouver une nouvelle technique afin d'obtenir une référence de meilleure qualité. De plus, le premier montage s'est avéré beaucoup trop complexe et donc, il a été décidé de se concentrer sur la mesure exclusive de l'opacité XUV. Pour finir, afin de collecter une quantité plus importante de photons, nous avons décidé de focaliser le faisceau harmonique sur la cible.

### 5.4.3 Deuxième campagne expérimentale

**Montage expérimental et motivations des changements** Comme nous venons de l'énoncer plus haut, de nombreux changements ont été opérés pour la deuxième campagne expérimentale au regard des problèmes rencontrés durant la première. Tout d'abord, il a été décidé de changer de chambre d'expérience pour une chambre de plus grand volume.

Cependant, celle-ci n'était pas préparée pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Il a donc fallu y adapter la chambre de génération ainsi que la partie de détection. Le schéma du montage expérimental est représenté sur la figure 5.10.

Ensuite, au regard de l'extrême complexité de la précédente expérience, nous avons considéré comme plus raisonnable de se concentrer sur la mesure de la transmission XUV et donc supprimer la mesure de transmission et réflexion optique. De plus, étant donné l'oxydation trop importante et inévitable des cibles d'aluminium, nous avons opté pour des cibles en or. Le taux de transmission en fonction de l'énergie de photon est donné dans la figure 5.9. On remarque que celui-ci est inférieur à 10 % sur tout le spectre d'intérêt.

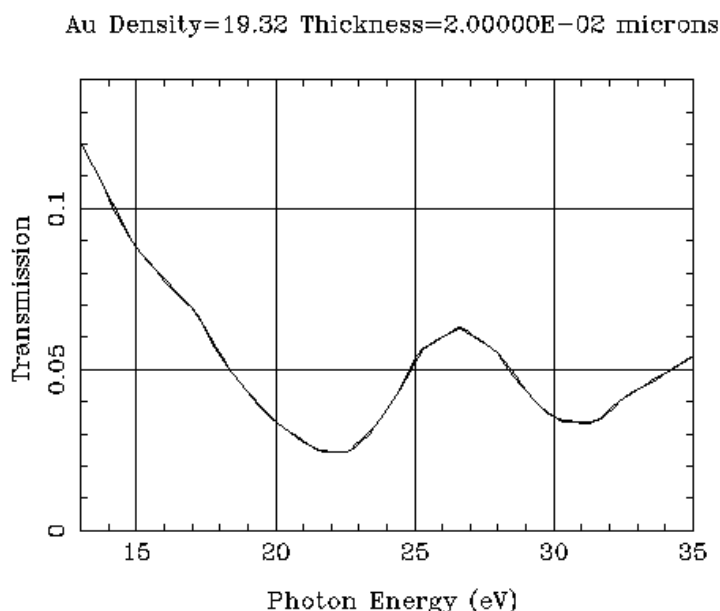


FIGURE 5.9 – Taux de transmission d'une feuille d'or d'épaisseur 20 nm pour la gamme d'énergie considérée dans l'expérience. Graphique généré par le site [http://henke.lbl.gov/optical\\_constants/filter2.html](http://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html)

Enfin, considérant les problèmes de stabilité notamment liés au problème de pointé et la forte absorption de la feuille d'or, un système de focalisation du signal harmonique a été introduit. En effet, le fait de collecter la plus grande partie de l'énergie harmonique sur la cible puis sur le détecteur devait éviter la forte variation d'énergie traversant la cible due à l'instabilité de pointé. Le système de focalisation, en raison de la disponibilité de celui-ci

au laboratoire, a été une paire de miroirs [KB](#). Il est composé de deux miroirs cylindriques, chacun focalisant dans une direction différente, verticale ou horizontale. Ils sont prévus pour opérer à angle rasant (angle rasant d'incidence  $< 6$  mrad).

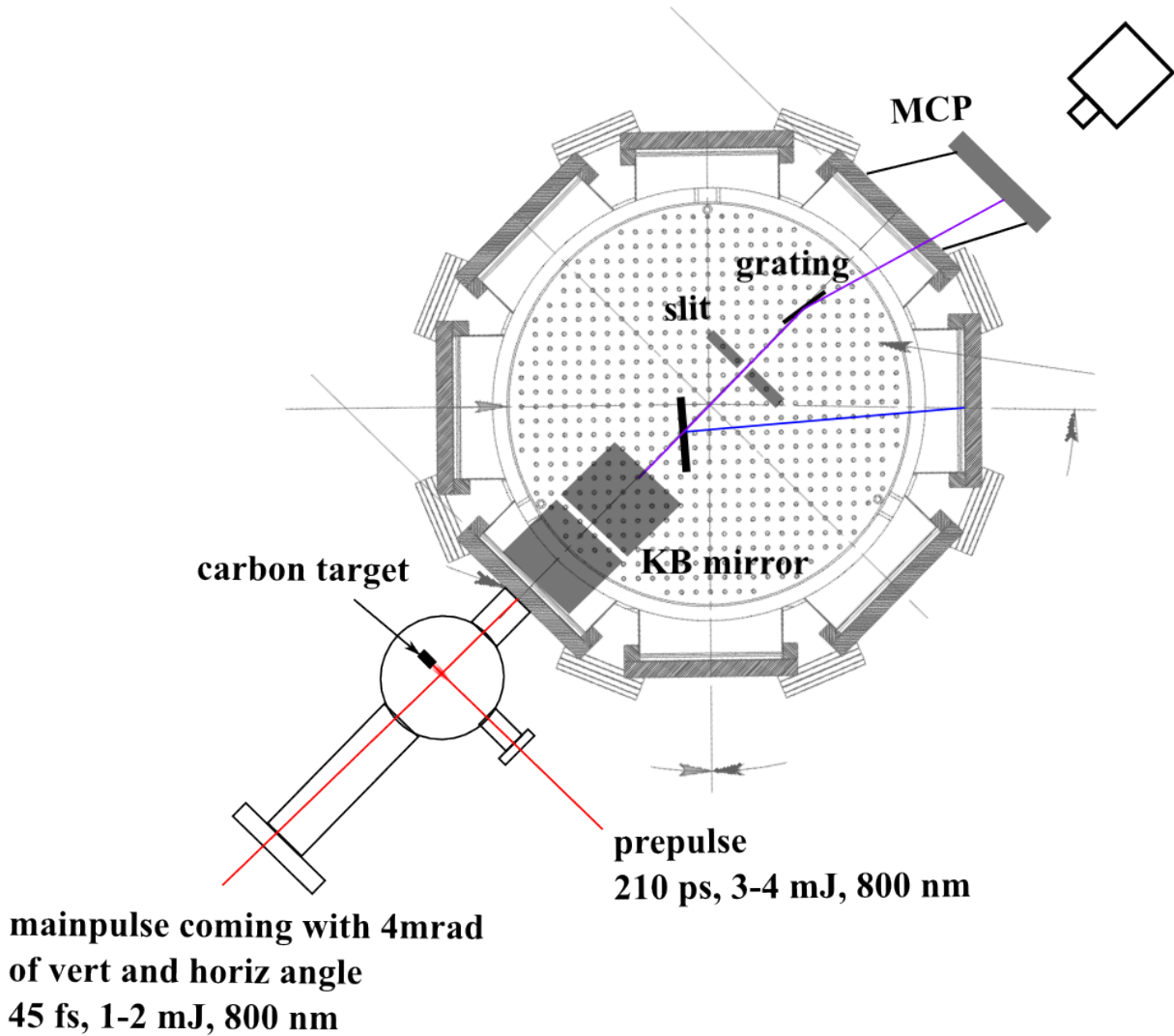


FIGURE 5.10 – Schéma du montage de la deuxième campagne expérimentale relative à la mesure pompe-sonde (800nm-XUV) de la conductivité de la [WDM](#)

Un dernier point était l'obtention d'un signal de référence. Il a été remarqué qu'une partie du signal harmonique n'était pas réfléchié par le premier miroir de focalisation verticale du système [KB](#) avec un angle rasant d'incidence suffisamment faible. Nous avons alors émis la

proposition d'utiliser cette perte comme référence. Cette tâche a impliqué un effort particulier dans l'alignement de l'expérience afin qu'à la fois le faisceau XUV focalisé et la perte soient collectés par le réseau et la MCP du spectromètre. Il a donc fallu contrôler précisément l'angle d'incidence du faisceau harmonique sur le système KB à 4 mrad. Ensuite, le spectromètre XUV a dû être reconstruit à l'intérieur de la chambre d'expérience afin d'être le plus près possible de la cible. Cela a imposé des contraintes de vide qui ont été une limitation de temps, car plusieurs heures étaient nécessaires pour pomper la chambre jusqu'à un vide suffisant pour opérer la MCP.

**Résultats** Un spectre typique obtenu durant cette campagne expérimentale est représenté sur la figure 5.11. La partie supérieure de l'image représente le faisceau focalisé sur la cible. La partie inférieure est la perte sur le premier miroir de focalisation verticale. Un problème rencontré a été l'impossibilité de couper la partie inférieure du support assez proche des cibles. Cela provoquait des déformations qui empêchaient d'obtenir une qualité de surface suffisamment bonne des feuilles d'or une fois déposées sur le support. C'est pour cette raison qu'une grande partie de la perte était bloquée par la partie inférieure du support de cible. Il était évident que le problème de stabilité de pointé allait de nouveau poser problème. Nous avons cependant décidé d'accomplir l'expérience.

Comme prévu, la référence s'est avérée être trop instable pour réaliser une mesure correcte. De plus, même si le signal focalisé sur la cible était cette fois-ci moins fluctuant. Nous nous sommes heurtés de nouveau à la nécessité d'acquérir un trop grand nombre de points par paramètre de mesure. Nous sommes convaincus que ces limitations pourraient être résolues premièrement par une plus grande automatisation du processus d'acquisition et par un travail poussé sur la conception des supports de cible. Tout cela nécessite cependant beaucoup de temps et d'argent. Ces problèmes liés à l'achèvement de mon travail de thèse ont mis en pause ce projet ambitieux.

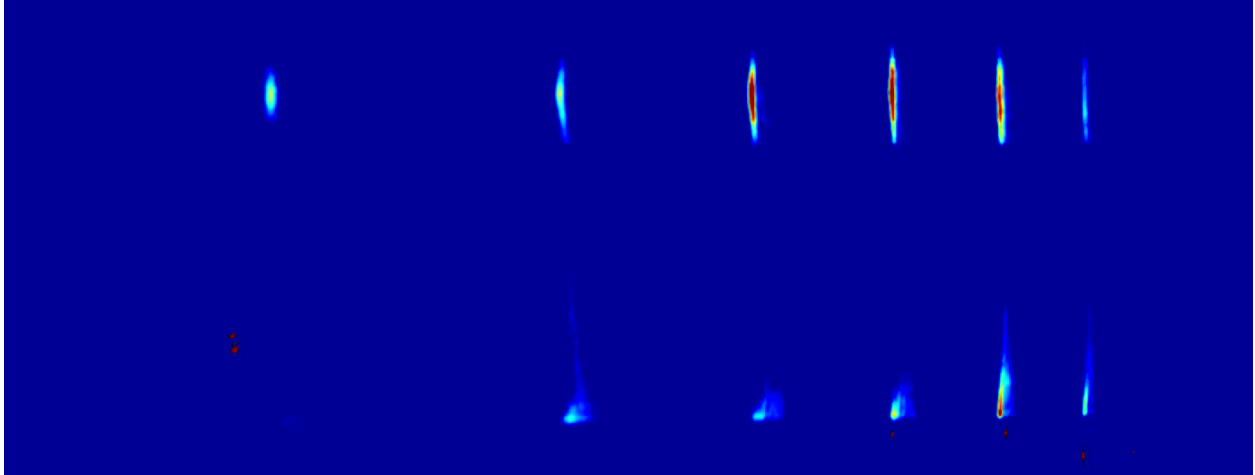


FIGURE 5.11 – Spectre harmonique obtenu lors de la deuxième campagne expérimentale. Le spectre supérieur provient de la partie focalisée sur la cible d’or. La partie inférieure est la perte sur le premier miroir [KB](#). La perte est également bloquée en partie par le support de cible.

#### 5.4.4 Perspectives du projet

**Introduction au nouveau projet** Comme expliqué plus haut, le projet d’utilisation du faisceau XUV harmonique a été stoppé en l’état actuel. Cependant, le Dr A. Ng a émis l’idée qu’étant donné la trop forte instabilité du signal en tant que sonde, celui-ci pourrait être utilisé en tant que pompe. Le but était donc de créer de la [WDM](#) par irradiation d’une cible avec une impulsion XUV créée par génération d’harmoniques d’ordres élevés. Le but était ensuite d’irradier une cible à fort coefficient d’absorption dans la gamme d’énergie considérée, car l’énergie disponible dans le faisceau harmonique est assez limitée. Il est apparu qu’une cible de diamant (ou équivalent tel que Diamond Like Carbon ([DLC](#)) par exemple) pouvait convenir à cette expérience étant donné l’absorption supérieure à 80% (voir figure [5.12](#)). De plus, les résultats obtenus seraient vraisemblablement inédits puisqu’aucune référence à ce type de mesure n’a été trouvée dans la littérature.

**Calculs et conception du projet** Ce projet n’a malheureusement pas eu le temps de se concrétiser. Ce paragraphe fera donc l’objet de la conception du montage incluant les

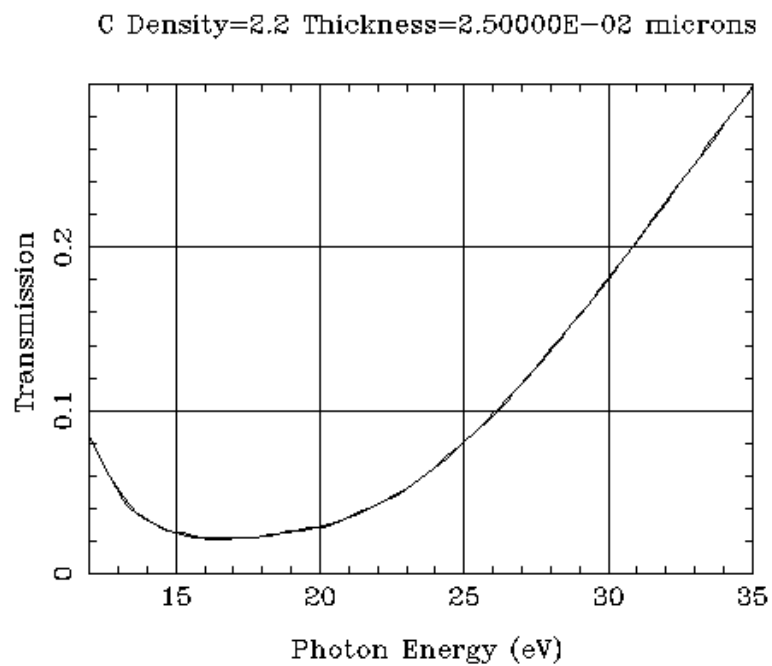


FIGURE 5.12 – Taux de transmission d’une feuille de carbone d’épaisseur 20 nm pour la gamme d’énergie considérée dans l’expérience. Graphique généré par le site [http://henke.lbl.gov/optical\\_constants/filter2.html](http://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html)

paramètres de création de la [WDM](#) sur le diamant. Premièrement, la gamme d'énergie pour laquelle il est intéressant de travailler pour le chauffage des feuilles de carbone se situe entre 1 eV/atome et 4 eV/atome. Cela correspond aux paramètres du faisceau XUV suivant :

- Durée d'impulsion :  $\sim 50$  fs
- Énergie par impulsion avant réflexion sur le système de focalisation : 600 nJ-200 nJ
- Diamètre du point focal sur cible :  $20 \mu\text{m}$

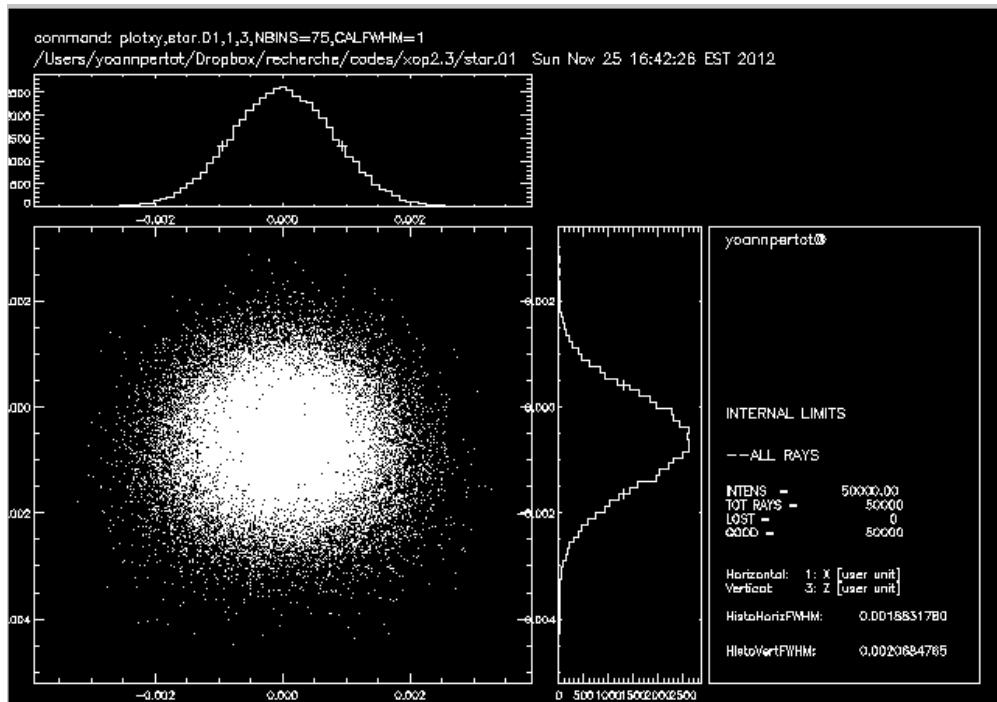


FIGURE 5.13 – Résultat obtenu à partir du logiciel de tracé de rayon « XOP » pour la focalisation du faisceau harmonique par un miroir toroidal avec les caractéristiques décrites.

Le choix pour le système de focalisation a été porté sur un miroir toroidal plutôt que sur le système [KB](#). En effet, il permet un système beaucoup plus compact et il est d'utilisation plus aisée en terme d'alignement. Nous avons alors procédé à des calculs pour le choix du matériau, des rayons de courbures (distances focales) et angles d'incidence. Nous présentons les résultats qui ont mené à un compromis entre les différentes contraintes (d'espace, de qualité et de diamètre du point focal, de taux de réflexion). Les calculs de taux de réflexion en fonction des matériaux dans le domaine XUV ont été réalisés grâce à un code développé



en interne (développé sous python et disponible sur demande). Les calculs de focalisation en fonction des paramètres du miroir toroïdal ont été menés grâce au logiciel « Shadow » développé par l'ESRF et l'APS. Il est disponible gratuitement à l'adresse suivante <http://www.esrf.eu/computing/scientific/xop2.1/shadowvui/>.

- matériau : silicium
- angle d'incidence :  $75^\circ$  ( $15^\circ$  en incidence rasante)
- Distance source-miroir = 272.5 mm
- Distance miroir-image = 80 mm
- Largeur totale à mi-hauteur (FWHM) verticale :  $20.7 \mu\text{m}$
- FWHM horizontale :  $18.8 \mu\text{m}$

Ces résultats ont été calculés pour une source avec les paramètres suivants :

- Diamètre de la source (FWHM) :  $50 \mu\text{m}$  avec profil gaussien
- Bande spectrale : raies d'émission entre 14 eV et 41 eV espacées de 3 eV (harmoniques impaires du faisceau de génération)
- Divergence : 5 mrad
- Polarisation : P (parallèle au plan de la table)
- Source cohérente

Les résultats obtenus sont illustrés sur les figures 5.13 et 5.14. La première figure représente les résultats de la simulation de tracé de rayons par le logiciel « XOP ». Les paramètres de sources cités ci-dessus ont été entrés comme paramètres. Les résultats sont également décrits ci-dessus. On peut remarquer pour finir que la qualité du point focal reste convenable sur les simulations.

Ensuite, la figure 5.14 représente le taux de réflexion du silicium à un angle d'incidence de  $75^\circ$  avec, à des fins de comparaison, celui du carbure de silicium, matériau souvent utilisé dans les miroirs xuv pour les applications spatiales. Si le but est l'optimisation complète de l'expérience avec les harmoniques issues du carbone générés avec un faisceau à 800 nm de longueur d'onde, le choix du silicium semble le plus approprié. Cependant, le taux de

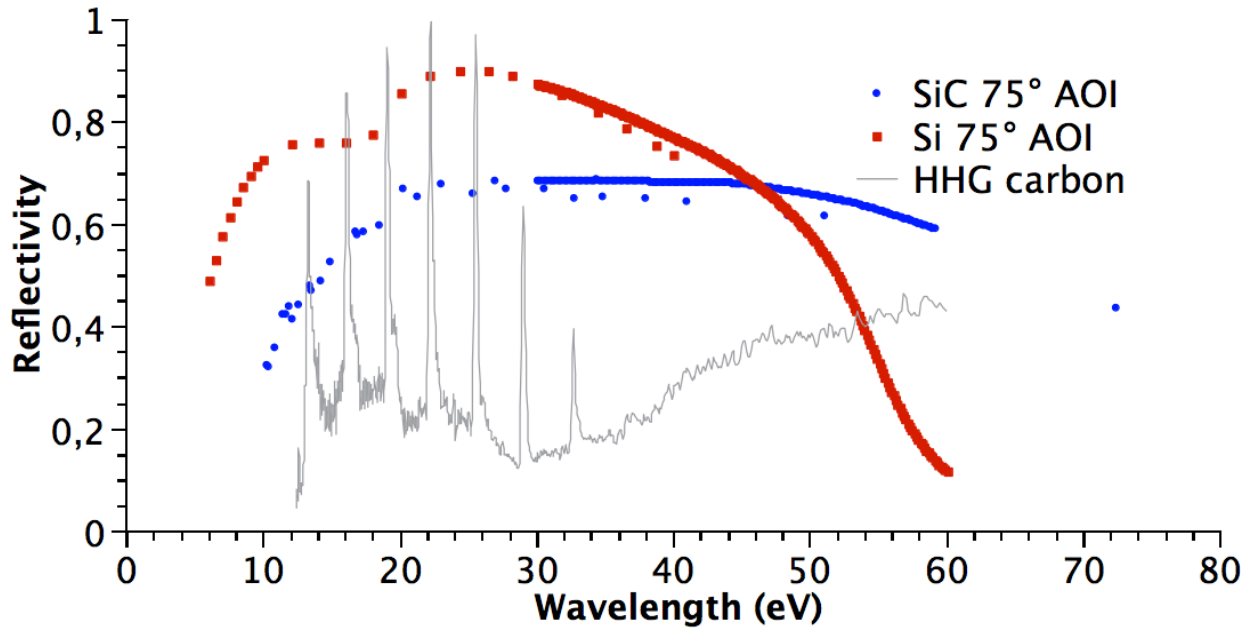


FIGURE 5.14 – Taux de réflexion du silicium et du carbure de silicium en fonction de l'énergie de photon. Le spectre d'harmoniques du carbone est représenté pour indication.

réflexion du SiC devient supérieur à celui du Si à partir de 50 eV environ. En conséquence, si la suite du projet implique l'utilisation de longueur d'ondes plus courtes, l'utilisation du SiC pourrait sembler plus adéquate.

Un premier schéma possible du projet est proposé sur la figure 5.15. Il y a réutilisation de la chambre de génération d'harmonique actuelle, optimisée pour la génération et la détection du signal harmonique. Enfin, le miroir toroïdal de focalisation est placé après le premier de silicium à angle de Brewster. Une autre motivation du choix de 75° comme angle d'incidence sur le miroir toroïdal est le fait qu'il correspond également à l'angle de Brewster. Ainsi, une deuxième atténuation du faisceau fondamental infrarouge permettra de supprimer toute possibilité d'ablatir les feuilles de diamant par le faisceau à 800 nm.

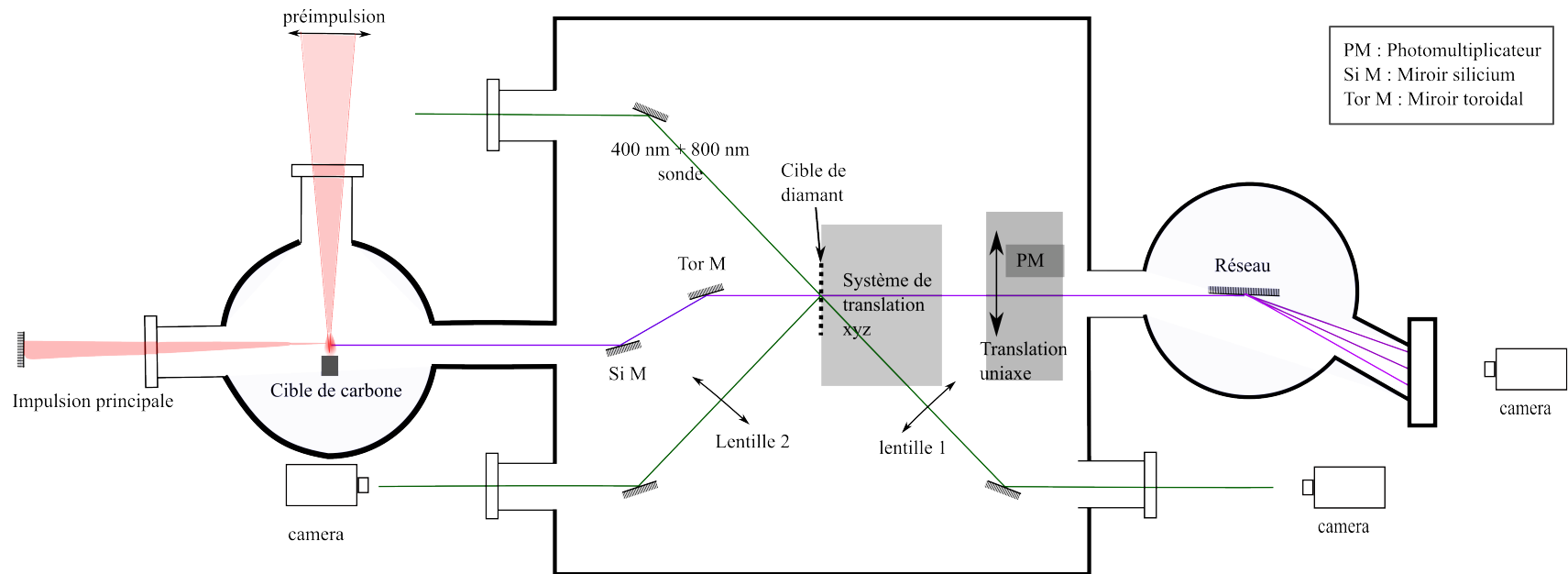


FIGURE 5.15 – Projet de montage expérimental pour la mesure pompe-sonde (XUV-optique) de la WDM créée à partir d'une feuille de diamant

## 5.5 Résumé du cinquième chapitre

Ce dernier chapitre a fait l'objet de la présentation de diverses applications associées à la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans un plasma de carbone. Nous avons tenté d'insister sur les avantages que la méthode par plasma d'ablation pouvait apporter. En effet, cela pourrait permettre la génération d'impulsions attosecondes uniques très intenses grâce à un montage expérimental compact. Il est également possible d'utiliser la grande quantité de photons par impulsion pour réaliser la spectroscopie à tir unique à haute résolution temporelle. Certains milieux, comme la [WDM](#), de part leur caractère transitoire nécessite l'utilisation d'impulsions très courtes et intenses dans le domaine XUV pour les sonder.

Finalement, bien qu'un effort d'optimisation de l'énergie des impulsions harmoniques soi encore nécessaire, il devient envisageable d'utiliser le rayonnement émis par la source XUV comme pompe induisant des effets non linéaires dans un milieu. Cela pourrait être par exemple l'absorption à deux photons ou même, comme expliqué dans le dernier projet, l'ablation de feuilles minces.

## Références du cinquième chapitre

- [1] A. D. Shiner, B. E. Schmidt, C. Trallero-Herrero, H. J. Worner, S. Patchkovskii, P. B. Corkum, J.-C. Kieffer, F. Legare, and D. M. Villeneuve. Probing collective multi-electron dynamics in xenon with high-harmonic spectroscopy. *Nat Phys*, 7(6) :464–467, 06 2011.
- [2] S. Minemoto, T. Umegaki, Y. Oguchi, T. Morishita, A.-T. Le, S. Watanabe, and H. Sakai. Retrieving photorecombination cross sections of atoms from high-order harmonic spectra. *Phys. Rev. A*, 78 :061402, Dec 2008.
- [3] M. Gisselbrecht, D. Descamps, C. Lyngå, A. L’Huillier, C.-G. Wahlström, and M. Meyer. Absolute photoionization cross sections of excited he states in the near-threshold region. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :4607–4610, Jun 1999.
- [4] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pepin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve. Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, 432(7019) :867–871, 12 2004.
- [5] Z. Chang. Chirp of the single attosecond pulse generated by a polarization gating. *Phys. Rev. A*, 71 :023813, Feb 2005.
- [6] Z. Chang. Single attosecond pulse and xuv supercontinuum in the high-order harmonic plateau. *Phys. Rev. A*, 70 :043802, Oct 2004.
- [7] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and M. Y. Ivanov. Subfemtosecond pulses. *Opt. Lett.*, 19(22) :1870–1872, Nov 1994.
- [8] V. T. Platonenko and V. V. Strelkov. Single attosecond soft-x-ray pulse generated with a limited laser beam. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16(3) :435–440, Mar 1999.
- [9] I. J. Sola, E. Mével, L. Elouga, E. Constant, V. Strelkov, L. Poletto, P. Villoresi, E. Benedetti, J.-P. Caumes, S. Stagira, C. Vozzi, G. Sansone, and M. Nisoli. Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating. *Nature Physics*, 2(5) :319–322, 2006.

- [10] O. Tcherbakoff, E. Mével, D. Descamps, J. Plumridge, and E. Constant. Time-gated high-order harmonic generation. *Physical Review A*, 68(4) :2–5, 2003.
- [11] H. Mashiko, S. Gilbertson, C. Li, S. Khan, M. Shakya, E. Moon, and Z. Chang. Double Optical Gating of High-Order Harmonic Generation with Carrier-Envelope Phase Stabilized Lasers. *Physical Review Letters*, 100(10) :1–4, March 2008.
- [12] S. Gilbertson, H. Mashiko, C. Li, S. D. Khan, M. M. Shakya, E. Moon, and Z. Chang. A low-loss, robust setup for double optical gating of high harmonic generation. *Applied Physics Letters*, 92(7) :071109, February 2008.
- [13] X. Feng, S. Gilbertson, H. Mashiko, H. Wang, S. D. Khan, M. Chini, Y. Wu, K. Zhao, and Z. Chang. Generation of Isolated Attosecond Pulses with 20 to 28 Femtosecond Lasers. *Physical Review Letters*, 103(18) :28–31, October 2009.
- [14] Z. Chang. Controlling attosecond pulse generation with a double optical gating. *Physical Review A*, 76(5), November 2007.
- [15] S. Chen, M. Chini, H. Wang, C. Yun, H. Mashiko, Y. Wu, and Z. Chang. Carrier-envelope phase stabilization and control of 1 khz, 6 mj, 30 fs laser pulses from a ti :sapphire regenerative amplifier. *Appl. Opt.*, 48(30) :5692–5695, Oct 2009.
- [16] T. Kita, T. Harada, N. Nakano, and H. Kuroda. Mechanically ruled aberration-corrected concave gratings for a flat-field grazing-incidence spectrograph. *Appl. Opt.*, 22(4) :512–513, Feb 1983.
- [17] L. McDonagh, R. Wallenstein, R. Knappe, and A. Nebel. High-efficiency 60 w tem00 nd :yvo4 oscillator pumped at 888 nm. *Opt. Lett.*, 31(22) :3297–3299, Nov 2006.
- [18] R. A. Ganeev, M. Suzuki, M. Baba, H. Kuroda, and T. Ozaki. Strong resonance enhancement of a single harmonic generated in the extreme ultraviolet range. *Opt. Lett.*, 31(11) :1699–1701, Jun 2006.

- [19] R. A. Ganeev, H. Singhal, P. A. Naik, V. Arora, U. Chakravarty, J. A. Chakera, R. A. Khan, I. A. Kulagin, P. V. Redkin, M. Raghuramaiah, and P. D. Gupta. Harmonic generation from indium-rich plasmas. *Phys. Rev. A*, 74 :063824, Dec 2006.
- [20] L. B. Elouga Bom, Y. Pertot, V. R. Bhardwaj, and T. Ozaki. Multi- $\mu\text{j}$  coherent extreme ultraviolet source generated from carbon using the plasma harmonic method. *Opt. Express*, 19(4) :3077–3085, Feb 2011.
- [21] Z. Chang. *Fundamentals of Attosecond Optics*. CRC Press Taylor and Francis, 2011.
- [22] B. E. Schmidt, A. D. Shiner, M. Giguère, P. Lassonde, C. Trallero-Herrero, J-C. Kieffer, P. B. Corkum, D. M. Villeneuve, and F. Légaré. High harmonic generation with long-wavelength few-cycle laser pulses. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 45(7) :074008, 2012.
- [23] K. Widmann, T. Ao, M. E. Foord, D. F. Price, A. D. Ellis, P. T. Springer, and A. Ng. Single-state measurement of electrical conductivity of warm dense gold. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :125002, Mar 2004.
- [24] B. Barbrel, M. Koenig, A. Benuzzi-Mounaix, E. Brambrink, C. R. D. Brown, D. O. Gericke, B. Nagler, M. Rabec le Gloahec, D. Riley, C. Spindloe, S. M. Vinko, J. Vorberger, J. Wark, K. Wünsch, and G. Gregori. Measurement of short-range correlations in shock-compressed plastic by short-pulse x-ray scattering. *Phys. Rev. Lett.*, 102 :165004, Apr 2009.
- [25] A. Ng, T. Ao, F. Perrot, M.W.C. Dharma-Wardana, and M.E. Foord. Idealized slab plasma approach for the study of warm dense matter. *Laser and Particle Beams*, 23(04) :527–537, December 2005.
- [26] R. W. Lee, S. J. Moon, H.-K. Chung, W. Rozmus, H. A. Baldis, G. Gregori, R. C. Cauble, O. L. Landen, J. S. Wark, A. Ng, S. J. Rose, C. L. Lewis, D. Riley, Jean-Claude Gauthier, and Patrick Audebert. Finite temperature dense matter studies on next-generation light sources. *Journal of the Optical Society of America B*, 20(4) :770, 2003.

- [27] Y. Ping, A. A. Correa, T. Ogitsu, E. Draeger, E. Schwegler, T. Ao, K. Widmann, D.F. Price, E. Lee, H. Tam, P.T. Springer, D. Hanson, I. Koslow, D. Prendergast, G. Collins, and a. Ng. Warm dense matter created by isochoric laser heating. *High Energy Density Physics*, 6(2) :246–257, June 2010.
- [28] A. Forsman, A. Ng, G. Chiu, and R. M. More. Interaction of femtosecond laser pulses with ultrathin foils. *Phys. Rev. E*, 58 :R1248–R1251, Aug 1998.
- [29] Y. Ping, D. Hanson, I. Koslow, T. Ogitsu, D. Prendergast, E. Schwegler, G. Collins, and a. Ng. Dielectric function of warm dense gold. *Physics of Plasmas*, 15(5) :056303, 2008.
- [30] Z. Chen, V. Sametoglu, Y. Y. Tsui, T. Ao, and a. Ng. Flux-Limited Nonequilibrium Electron Energy Transport in Warm Dense Gold. *Physical Review Letters*, 108(16) :165001, April 2012.
- [31] Z. Chen, B. Holst, S. Kirkwood, V. Sametoglu, M. Reid, Y. Tsui, V. Recoules, and a. Ng. Evolution of ac Conductivity in Nonequilibrium Warm Dense Gold. *Physical Review Letters*, 110(13) :135001, March 2013.



# CONCLUSION

L'ensemble du travail mené durant cette thèse de doctorat s'est essentiellement concentré sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés à partir d'une cible de graphite. Nous avons tenté d'en comprendre les mécanismes de génération, impliquant vraisemblablement les molécules de carbone diatomique. L'ensemble de ce manuscrit a permis d'exposer les intérêts certains que présente cette cible, telles une très forte efficacité de génération ou la possibilité d'étudier la dynamique moléculaire au sein des plasmas d'ablation. Il était déjà admis que la génération d'harmoniques d'ordres élevés était un outil puissant pour la spectroscopie moléculaire dans les gaz. Ce travail nous mène à considérer son utilité dans les plasmas également.

De plus, la contribution probable des molécules de carbone diatomiques montre l'intérêt de la formation de dimères au sein du milieu. Si nous envisageons de le transposer à d'autres types de cibles. Il serait alors potentiellement possible d'associer de fortes efficacités de génération à des énergies de photons élevées. En effet, leur explosion durant le processus de génération ainsi que l'augmentation de leur section efficace de photo-ionisation par rapport à l'espèce isolée serait des mécanismes potentiellement utiles pour une augmentation d'efficacité. La formation de dimères à partir d'espèces à fort potentiel d'ionisation induirait nécessairement un « cutoff » plus élevé. Nous pourrions finalement utiliser des alliages ou mélanges carbonés induisant la formation aisée de molécules au sein du milieu. L'espèce  $C_2$  est un radical qui a une forte tendance à se lier à d'autres espèces, et donc, il est envisageable de modifier légèrement le comportement de  $C_2$  par l'introduction d'un troisième atome.

Nous avons démontré la possibilité d'utiliser la génération d'harmoniques par plasma pour la génération d'un continuum XUV, généralement le signe de la production d'une impulsion attoseconde unique. Un travail de caractérisation temporelle et d'énergie reste à faire. Cependant, étant donné les énergies élevées obtenues dans le cas des trains d'impulsions, nous pourrions penser qu'il sera possible d'accroître l'intensité d'une impulsion attoseconde unique. Même dans le cas de la génération d'un train d'impulsions, la résolution temporelle est de l'ordre de la dizaine de femtosecondes, fonction de la durée de l'impulsion fondamentale infrarouge. Cela reste d'une utilité indéniable pour la spectroscopie de milieux transitoires, tels la [WDM](#). Certains détails techniques restent néanmoins à résoudre. Il faudrait être capable de générer un signal stable pour une plus longue durée grâce à l'utilisation d'une cible en mouvement. Mais aussi, grâce à un contrôle plus fin des conditions d'ablation, de pointé de faisceau et de stabilité d'énergie, nous pourrions améliorer grandement la stabilité tir à tir.

Je conclurai en espérant que ce mémoire de thèse sera un document utile pour la poursuite du travail entamé. Il pourra être un exposé de l'état des connaissances, mais aussi une base propice à la critique et la recherche de nouvelles pistes dans le développement de la source harmonique par plasma d'ablation.

# Chapitre 6

## ANNEXES

### 6.1 Détails du calcul du moment dipolaire dans le cadre du modèle de Lewenstein dans le cas d'une résonance

Comme nous l'avons dit dans la partie 4.2.2, l'investigation de l'effet d'une résonance sur le spectre d'émission harmonique consiste à résoudre l'équation de Schrödinger :

$$i \frac{\partial \Psi(t)}{\partial t} = [H_0 - zE(t)] \Psi(t) \quad (6.1)$$

Dans la quelle on suppose que  $\Psi(t)$  peut s'écrire sous la forme :

$$\Psi(t) = e^{-iE_0 t} \left[ a_0(t) |0\rangle + a_1(t) |1\rangle e^{-i(E_1 - E_0)t} + \int d^3v b(v, t) |v\rangle \right] \quad (6.2)$$

Où  $a_0(t)$ ,  $a_1(t)$  et  $b(v, t)$  sont les amplitudes des niveaux  $|0\rangle$ ,  $|1\rangle$  et  $|v\rangle$ .  $E_0$ ,  $E_1$  et  $E_v$  sont les valeurs propres des états respectifs  $|0\rangle$ ,  $|1\rangle$  et  $|v\rangle$ , donc leur énergie. Les différentes amplitudes  $a_0(t)$ ,  $a_1(t)$  et  $b(v, t)$  sont obtenus par projection de l'équation de Schrödinger sur les états correspondant en supposant un champ électrique  $E(t)$  polarisé linéairement selon la direction z. On obtient alors :

$$\begin{aligned}
\dot{a}_0(t) &= iE(t)e^{i(E_0-E_1)t}a_1(t)\langle 0|z|1\rangle + iE(t)\int d^3vb(v,t)\langle 0|z|v\rangle \\
\dot{a}_1(t) &= iE(t)e^{i(E_1-E_0)t}a_0(t)\langle 1|z|0\rangle + iE(t)\int d^3vb(v,t)\langle 1|z|v\rangle e^{i(E_1-E_0)t} \\
\dot{b}(v,t) &= -i\left(\frac{v^2}{2} - E_1\right)b(v,t) + iE(t)a_0(t)\langle v|z|0\rangle + iE(t)e^{i(E_0-E_1)t}a_1(t)\langle v|z|1\rangle - E(t)\frac{\partial b(v,t)}{\partial v_z}
\end{aligned} \tag{6.3}$$

En intégrant la dernière équation de 6.3, on a :

$$\begin{aligned}
b(v,t) &= i\int_0^t dt' E(t') \left[ a_0(t')d_0(v(t) + A(t) - A(t')) + a_1(t')e^{i(E_0-E_1)t}d_1(v(t) + A(t) - A(t')) \right] \\
&\quad \times e^{\left(-i\int_{t'}^t dt'' \frac{[v(t)+A(t)-A(t'')]^2}{2} - E_0\right)}
\end{aligned} \tag{6.4}$$

Avec  $d_0(v) = \langle v|z|0\rangle$  et  $d_1(v) = \langle v|z|1\rangle$ . En utilisant l'expression ci-dessus pour  $b(t)$  et en l'intégrant aux équations donnant  $\dot{a}_0(t)$  et  $\dot{a}_1(t)$  dans 6.3 puis en effectuant l'approximation du point selle, on aura :

$$\begin{aligned}
\dot{a}_0(t) &= iE(t)e^{i(E_0-E_1)t}a_1(t)\langle 0|z|1\rangle - E(t)\int_0^t dt' \left(\frac{\pi}{\epsilon + i\frac{t-t'}{2}}\right)^{\frac{3}{2}} E(t')[a_0(t')d_0(p_{st} - A(t')) + \\
&\quad a_1(t')d_1(p_{st} - A(t'))] \exp\left(-i\int_{t'}^t dt'' \frac{[p_{st} - A(t'')]^2}{2} - E_0\right) d_0^*(p_{st} - A(t))
\end{aligned} \tag{6.5}$$

$$\begin{aligned}
\dot{a}_1(t) &= iE(t)e^{i(E_1-E_0)t}a_0(t)\langle 1|z|0\rangle - E(t)e^{i(E_1-E_0)t}\int_0^t dt' \left(\frac{\pi}{\epsilon + i\frac{t-t'}{2}}\right)^{\frac{3}{2}} E(t')[a_0(t')d_0(p_{st} - A(t')) + \\
&\quad a_1(t')e^{i(E_1-E_0)t'}d_1(p_{st} - A(t'))] \exp\left(-i\int_{t'}^t dt'' \frac{[p_{st} - A(t'')]^2}{2} - E_0\right) d_1^*(p_{st} - A(t))
\end{aligned} \tag{6.6}$$

Avec  $p_{st} = \frac{1}{t-t'} \int_{t'}^t dt'' A(t'')$ . Les coefficients  $a_0(t)$  et  $a_1(t)$  vont ensuite pouvoir être obtenus numériquement. Finalement, le moment dipolaire  $d(t) = \langle \Psi(t) | z | \Psi(t) \rangle$  pourra s'écrire :

$$\begin{aligned}
d(t) = 2\Re( & \\
& e^{i(E_0-E_1)t} a_0^*(t) a_1(t) \langle 1|z|0 \rangle + \\
& i \int_0^t dt' \left( \frac{\pi}{\epsilon + i\frac{t-t'}{2}} \right)^{\frac{3}{2}} E(t') [a_0(t') d_0(p_{st} - A(t')) + a_1(t') e^{i(E_0-E_1)t'} d_1(p_{st} - A(t'))] \\
& \times \exp \left( -i \int_{t'}^t dt'' \frac{[p_{st} - A(t'')]^2}{2} - E_0 \right) [a_0^*(t') d_0^*(p_{st} - A(t')) + a_1^*(t') e^{i(E_1-E_0)t'} d_1^*(p_{st} - A(t'))] \\
& )
\end{aligned} \tag{6.7}$$

Le dipole  $d(t)$  peut être divisé en 5 termes comme décrit dans la partie 4.2.2 tel que :

$$\begin{aligned}
d(t) = 2\Re[ & \underbrace{d_1(t)}_{\text{transition résonante } \langle 0|z|1 \rangle} + \underbrace{d_2(t)}_{\text{ionisation depuis } |0\rangle} + \underbrace{d_3(t)}_{\text{ionisation depuis } |0\rangle} \\
& + \underbrace{d_4(t)}_{\text{ionisation depuis } |1\rangle} + \underbrace{d_5(t)}_{\text{ionisation depuis } |1\rangle} ] \\
& \text{recombinaison vers } |0\rangle \quad \text{recombinaison vers } |1\rangle \quad \text{recombinaison vers } |0\rangle \quad \text{recombinaison vers } |1\rangle
\end{aligned} \tag{6.8}$$

Nous allons donner ici les expressions de ces 5 termes :

$$d_1(t) = e^{i(E_0-E_1)t} a_0^*(t) a_1(t) \langle 1|z|0 \rangle \tag{6.9}$$

$$\begin{aligned}
d_2(t) = & i \int_0^t dt' \left( \frac{\pi}{\epsilon + i\frac{t-t'}{2}} \right)^{\frac{3}{2}} E(t') a_0(t') d_0(p_{st} - A(t')) \\
& \times \exp \left( -i \int_{t'}^t dt'' \frac{[p_{st} - A(t'')]^2}{2} - E_0 \right) a_0^*(t') d_0^*(p_{st} - A(t'))
\end{aligned} \tag{6.10}$$

$$\begin{aligned}
d_3(t) = & i \int_0^t dt' \left( \frac{\pi}{\epsilon + i \frac{t-t'}{2}} \right)^{\frac{3}{2}} E(t') a_0(t') d_0(p_{st} - A(t')) \\
& \times \exp \left( -i \int_{t'}^t dt'' \frac{[p_{st} - A(t'')]^2}{2} - E_0 \right) a_1^*(t') e^{i(E_1 - E_0)t} d_1^*(p_{st} - A(t'))
\end{aligned} \tag{6.11}$$

$$\begin{aligned}
d_4(t) = & i \int_0^t dt' \left( \frac{\pi}{\epsilon + i \frac{t-t'}{2}} \right)^{\frac{3}{2}} E(t') a_1(t') d_1(p_{st} - A(t')) e^{i(E_0 - E_1)t'} \\
& \times \exp \left( -i \int_{t'}^t dt'' \frac{[p_{st} - A(t'')]^2}{2} - E_0 \right) a_0^*(t') d_0^*(p_{st} - A(t'))
\end{aligned} \tag{6.12}$$

$$\begin{aligned}
d_5(t) = & i \int_0^t dt' \left( \frac{\pi}{\epsilon + i \frac{t-t'}{2}} \right)^{\frac{3}{2}} E(t') a_1(t') d_1(p_{st} - A(t')) e^{i(E_0 - E_1)t'} \\
& \times \exp \left( -i \int_{t'}^t dt'' \frac{[p_{st} - A(t'')]^2}{2} - E_0 \right) a_1^*(t') e^{i(E_1 - E_0)t'} d_1^*(p_{st} - A(t'))
\end{aligned} \tag{6.13}$$

## 6.2 Élargissement spectral dans un système à fibre creuse

Cette annexe a pour but de donner les détails du calcul de l'élargissement spectral d'une impulsion par propagation dans une fibre creuse remplie avec un gaz noble. Tout d'abord, il conviendra de donner des méthodes rapides afin de pouvoir connaître approximativement les caractéristiques de la fibre à choisir ainsi que l'élargissement attendu. Ensuite, nous expliquerons le traitement exact par la résolution numérique de l'équation de propagation grâce à un algorithme de type "split-step fourier transform" à une dimension.

### 6.2.1 Ordres de grandeurs : choix rapide des paramètres de l'expérience

Dans cette section, nous allons donner quelques ordres de grandeurs et formules analytiques simples permettant de réaliser un choix dans les paramètres des différentes parties de

l'expérience. Le traitement suivant est basé sur le travail de C. Vozzi & al. [1]. En effet, lors de la propagation d'une impulsion intense dans un milieu d'indice non linéaire  $\kappa_2$ , l'auto-modulation de phase, liée à l'effet Kerr, va induire un élargissement spectral de l'impulsion d'origine. Dans le cas de l'expérience proposée dans ce travail de thèse, le but est d'obtenir un élargissement spectral suffisant pour sonder le milieu aux longueurs d'ondes proches de 800 nm. Cependant, élargir le spectre de l'impulsion a un autre avantage, qui est d'ailleurs généralement le but premier de ce montage, qui est la possibilité de générer des impulsions ultra-courtes [2–4]. En sortie de fibre, le spectre de l'impulsion peut être considérablement élargi. Or, selon les propriétés de la transformée de Fourier, plus un spectre est large, plus courte sera l'impulsion correspondante. Le processus d'élargissement du spectre introduit néanmoins de la dispersion et donc, il est nécessaire de compenser l'ordre 2 introduit dans la phase spectrale afin d'obtenir l'impulsion ultra-courte. Ceci est généralement réalisé au moyen d'une paire de réseau ou de miroirs "chirpés" [5, 6]. La compensation de la phase permet alors de compresser l'impulsion jusqu'à quelques femtosecondes.

gaz	Argon	Néon	Hélium
$\kappa_2$ à 1 bar en $cm^2/W$	$1.09 \times 10^{-19}$	$0.94 \times 10^{-20}$	$0.37 \times 10^{-20}$

TABLE 6.1 – Tableau des indices non linéaires  $n_2$  de trois gaz nobles à pression atmosphérique

Afin de choisir les bons paramètres, il convient de fonctionner par étapes. Voici la méthode utilisée pour ce travail de thèse :

1. Premièrement, il faut choisir l'énergie nécessaire à la réalisation de l'expérience. Dans le travail présent, environ 3 millijoules étaient nécessaires en sortie de fibre. Compte tenu d'un coefficient de couplage généralement de l'ordre de 60%, cela veut dire que 5 millijoules seront nécessaire en entrée de fibre.
2. Cette énergie va définir la pression maximale qu'il sera possible d'introduire dans le système. En effet, afin de réduire le plus possible le transfert d'énergie du mode

fondamental vers les modes élevés, il va falloir éviter tout effet d'autofocalisation dans la fibre. La valeur de l'indice non linéaire va ainsi définir une puissance critique  $P_{cr}$  à ne pas dépasser :

$$P_{cr} = \frac{\lambda_0^2}{2\kappa_2 p} \quad (6.14)$$

Avec  $\lambda_0$  la longueur d'onde de l'impulsion,  $\kappa_2 p$  l'indice non linéaire du gaz à la pression  $p$ .

En définissant  $\frac{P_0}{P_{cr}} = 0.3$  la valeur limite afin que l'impulsion en entrée de puissance  $P_0$  ne soit pas affectée par l'autofocalisation durant la propagation dans la fibre, on trouve comme pression maximale admise :

$$p_{max} = \frac{\lambda_0^2}{\kappa_2 P_0} \quad (6.15)$$

Ainsi, dans le cas d'une impulsion de durée 40 fs et d'énergie 5 mJ, les valeurs de la pression maximale pour les 3 gaz cités plus haut sont :

gaz	Argon	Néon	Hélium
pression maximale en bar	0.75	8.7	22.1

TABLE 6.2 – Tableau des pressions maximales admises dans la fibre en fonction du type de gaz dans les paramètres de l'expérience.

Cependant, les contraintes expérimentales impliquent une pression maximale de l'ordre de 5 bars. Nous pouvons alors concevoir que le néon apparait déjà comme le choix le plus judicieux.

3. Cette pression maximale prémunie seulement le système contre les effets d'autofocalisation durant la propagation. Cependant, un autre effet extrêmement limitant pour l'expérience est l'ionisation du milieu. En effet, celle-ci doit être évitée afin de prévenir tout risque de filamentation nuisant fortement au couplage avec la fibre. La valeur



minimum du rayon de la fibre creuse est calculé grâce au modèle ADK 1.2.2 qui permet de connaître le taux d'ionisation du milieu et donc la variation d'indice liée à l'augmentation du nombre d'électrons libres. La variation d'indice due à l'ionisation du milieu  $\Delta n_p$ , indice plasma, doit être très inférieure à l'indice non linéaire du milieu à intensité  $I$  et pression  $p$  donnée  $\Delta n = \kappa_2 p I$  :

$$\Delta n_p = \frac{w_p^2}{2w_0^2} \text{ avec } w_p^2 = \frac{e^2 n_e}{m_e \epsilon_0} \quad (6.16)$$

On aura  $w_0 = \frac{2\pi c}{\lambda_0}$ ,  $n_e$  est la densité électronique calculée grâce au modèle ADK et  $m_e$  est la masse de l'électron. C. Vozzi & al. donne une formule d'ajustement du calcul numérique. Ils montrent que le rayon minimum  $a_{min}$  de la fibre creuse peut être connu par la formule suivante, fonction de l'énergie d'entrée  $E_0$ , de la durée de l'impulsion  $T_0$  et d'une constante  $a_{gaz}$  liée au type de gaz :

$$a_{min} = A_{gaz} T_0^{-0.45} E_0^{0.51} \quad (6.17)$$

Cela correspond aux valeurs suivantes dans le cas précis d'une impulsion de durée 40 fs et d'énergie d'entrée 5 millijoules :

gaz	Argon	Néon	Hélium
rayon minimum de la fibre en $\mu\text{m}$	336	214	188

TABLE 6.3 – Tableau des rayons minimum de la fibre en fonction du type de gaz dans les paramètres de l'expérience.

- Grâce au calcul des pressions maximales et du rayon minimum de la fibre, il va être possible d'en déduire la valeur du facteur  $F$  caractérisant l'élargissement spectral donné par :

$$F = \left( 1 + \frac{4}{3\sqrt{3}} \phi_m^2 \right)^{\frac{1}{2}} \text{ avec } \phi_m = \gamma P_0 L_{eff} \text{ et } L_{eff} = \frac{1 - e^{-\alpha L}}{\alpha} \quad (6.18)$$

La grandeur  $L$  représente la longueur de la fibre. Elle vaut 1 mètre et est limitée essentiellement par la capacité des constructeurs à produire des fibres creuses plus longues de qualité suffisantes. Le facteur  $\alpha$  est défini par :

$$\alpha = 2 \left( \frac{2.405}{2\pi} \right)^2 \frac{\lambda_0^2}{2a^3} \left( \frac{\nu^2 + 1}{\sqrt{\nu^2 - 1}} \right) \text{ avec } \nu = \frac{n_{verre}}{n_{gaz}} \simeq 1.5 \text{ et } a \text{ le rayon de la fibre} \quad (6.19)$$

Le tableau 6.4 récapitule les valeurs du facteur d'élargissement spectral pour les paramètres de l'expériences :

gaz	Argon	Néon	Hélium
Élargissement spectral F	39	55.5	28.4

TABLE 6.4 – Tableau des facteurs d'élargissement spectral en fonction du type de gaz dans les paramètres de l'expérience.

Nous concluons que le gaz qui semble le plus adéquate pour l'élargissement spectral de l'impulsion infrarouge est le néon. Il sera alors possible de travailler à la pression maximale imposée par les contraintes expérimentales, soit 5 bars. À cette pression, un diamètre de fibre de l'ordre de 200  $\mu\text{m}$  sera nécessaire afin d'éviter toute filamentation en entrée de fibre. Évidemment, ces paramètres devront être ajustés lors de l'expériences mais ils sont une bonne base de départ pour le choix des différents paramètres de l'expérience. Cependant, même si nous avons l'information sur le facteur d'élargissement spectral, les formules analytiques simples citées plus haut ne donnent pas d'informations sur la forme du spectre ainsi que la phase de l'impulsion après propagation. Il est nécessaire de résoudre exactement l'équation de propagation afin de les obtenir.

## 6.2.2 Résolution exacte de l'équation de propagation

Le calcul exact du spectre (amplitude et phase) en sortie de la fibre creuse requiert la résolution numérique de l'équation de propagation. Celle-ci prend la forme suivante à une dimension [7] :

$$\frac{\partial U}{\partial z} + \frac{\alpha}{2}U + \frac{i}{2}\beta_2 \frac{\partial^2 U}{\partial T^2} - \frac{1}{6}\beta_3 \frac{\partial^3 U}{\partial T^3} = i\gamma P_0 \left[ |U|^2 U + \frac{i}{w_0} \frac{\partial}{\partial T} (|U|^2 U) \right] \quad (6.20)$$

Nous conservons volontairement les mêmes équations que l'article de C. Vozzi & al. pour une référence plus aisée. Certaines des grandeurs de l'équation 6.20 ont déjà été définie dans la section précédente. Le champs électrique  $E_0(r, z, t)$  initial en entrée de la fibre est défini par :

$$E_0(r, z, t) = F_0(r) \sqrt{P_0} \exp(iw(t - v_g z)) \quad (6.21)$$

$F_0(r)$  est le profil radial de l'impulsion à l'entrée et  $P_0$  sa puissance crête. Durant la propagation, le champs électrique sera défini dans le référentiel lié à l'impulsion grâce au changement de variable  $T = t - v_g z$  et ainsi, le champs électrique durant la propagation sera noté  $E(r, z, T) = F(r) \sqrt{P_0} U(z, T)$ . Les coefficients  $\beta_i$  sont défini par :

$$\begin{aligned} \beta_2(w_0) &= \frac{1}{c} \left[ 2 \frac{dn}{dw}(w_0) + w_0 \frac{d^2 n}{dw^2}(w_0) \right] \\ \beta_3(w_0) &= \frac{1}{c} \left[ 3 \frac{d^2 n}{dw^2}(w_0) + w_0 \frac{d^3 n}{dw^3}(w_0) \right] \end{aligned} \quad (6.22)$$

L'équation 6.20 ne peut pas être résolue analytiquement. Il est donc nécessaire de procéder numériquement. Pour cela, plusieurs schémas de résolution sont possibles. Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons décidé d'utiliser un algorithme de type « Split Step Fourier Transform ». Il consiste en l'utilisation du très efficace algorithme de transformée de Fourier discrète. L'équation sera résolue alternativement dans l'espace des fréquences pour la partie

linéaire et temporellement pour la partie non linéaire. Précisons comment se déroule le calcul. Tout d'abord, l'équation 6.20 peut être écrite de la manière suivante :

$$\frac{\partial U}{\partial z} = (\hat{D} + \hat{N}) U \quad (6.23)$$

Avec,

$$\begin{aligned} \hat{D} &= \frac{1}{6}\beta_3 \frac{\partial^3}{\partial T^3} - \frac{i}{2}\beta_2 \frac{\partial^2}{\partial T^2} - \frac{\alpha}{2} \\ \hat{N} &= i\gamma P_0 \left[ 1 + \frac{i}{w_0} \frac{\partial}{\partial T} \right] |U|^2 \end{aligned} \quad (6.24)$$

Nous laisserons le lecteur se référer au traitement réalisé dans le livre [7] mais l'amplitude du champ va être calculée de proche en proche avec un pas d'espace que nous appellerons  $h$ . Il va alors suivre :

$$U(z+h, T) = \exp\left(\frac{h}{2}\hat{D}\right) \exp\left(\int_z^{z+h} \hat{N}(z') dz'\right) \exp\left(\frac{h}{2}\hat{D}\right) \quad (6.25)$$

La résolution sous la forme 6.25 est appelée « Symmetrized Split-step Fourier method » [8]. Elle est illustrée dans le schéma 6.1.

1. La grandeur  $U(z, T)$  est propagée jusqu'à la position  $z + \frac{h}{2}$  grâce à la multiplication de la transformée de Fourier  $\hat{T}F(U(z, T))$  par l'opérateur linéaire  $\exp(\frac{h}{2}\hat{D})$ , le résultat est noté  $U^-(z + \frac{h}{2}, w)$ .
2. Ensuite, l'opérateur non linéaire  $\exp(\int_z^{z+h} \hat{N}(z') dz')$  est multiplié par la transformée de Fourier inverse de l'amplitude  $U^-$ . Son résultat est noté  $U^+(z + \frac{h}{2}, T)$ . Nous expliquerons ensuite comment évaluer le facteur  $\int_z^{z+h} \hat{N}(z') dz'$ .
3. Puis enfin, l'opération de propagation jusqu'à  $z + h$  est opérée de la même manière que dans 1). Nous obtenons, par transformée de Fourier inverse,  $U(z + h, T)$ .

Il faut cependant évaluer le facteur  $\int_z^{z+h} \hat{N}(z') dz'$ . Dans l'algorithme de type symétrique,

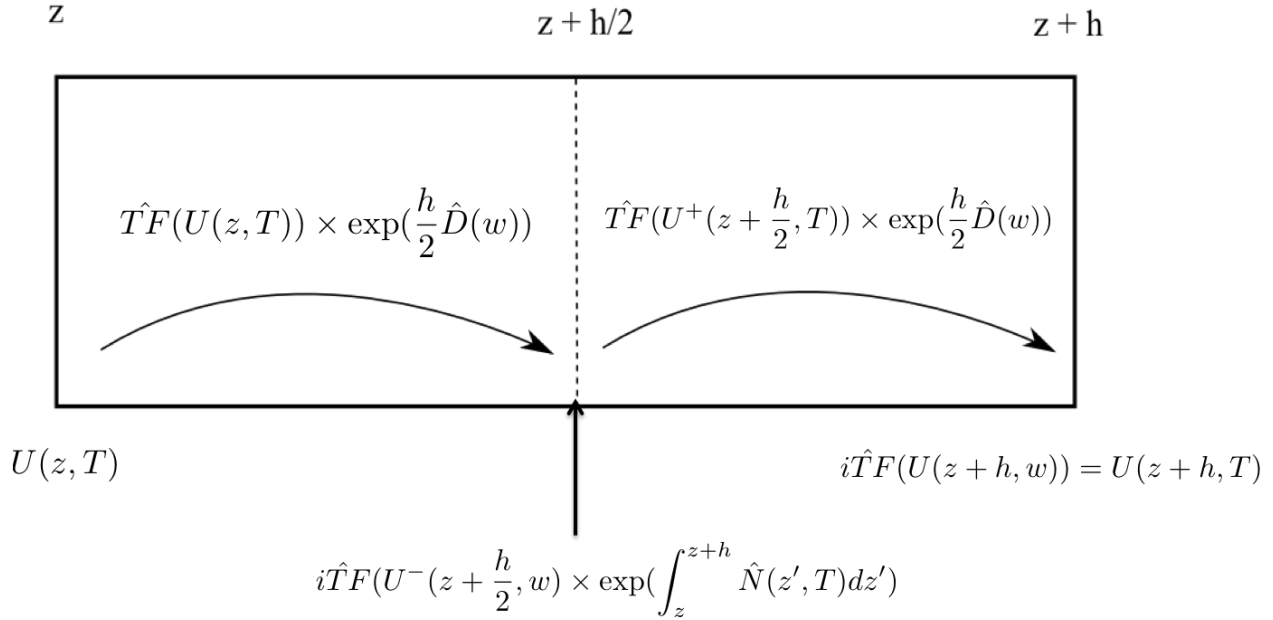


FIGURE 6.1 – Illustration de l’algorithme appelé « Split Step Fourier ».

cela est réalisé par la méthode des trapèzes tel que :

$$\int_z^{z+h} \hat{N}(z') dz' = \frac{h}{2} [\hat{N}(z) + \hat{N}(z + h)] \quad (6.26)$$

En début d’intervalle, la valeur de  $\hat{N}(z + h)$  n’est pas encore connue. On impose alors que  $\hat{N}(z + h) = \hat{N}(z)$ . On réalise ensuite l’algorithme décrit précédemment, puis avec  $U(z + h, T)$ , nous en déduisons une nouvelle valeur de  $\hat{N}(z + h)$ . Cette opération est répétée jusqu’à ce qu’une conditions soit satisfaite, typiquement, dès que la différence entre l’ancienne valeur de  $\hat{N}(z + h)$  et la nouvelle est suffisamment faible. Cette méthode induit une erreur d’ordre 2 en  $h$ .

L’équation 6.20 n’est qu’à une dimension et ne considère donc pas le profil radial de celle-ci. La fibre creuse est cependant similaire à n’importe quel guide d’onde et donc, son mode fondamental est définit par la fonction [9] :

$$F(r) = J_0^2\left(\frac{2.405r}{a}\right) \quad J_0 \text{ est la fonction de Bessel d'ordre 0.} \quad (6.27)$$

La figure 6.2 représente le spectre (amplitude phase) ainsi que la forme temporelle de l'impulsion après propagation dans une fibre de 1 mètre de longueur. Les simulations ont été réalisées avec les paramètres suivants :

rayon fibre	longueur fibre	$\lambda$	durée d'impulsion
200 $\mu\text{m}$	1 m	800 nm	40 fs
pression (néon)	énergie entrée	h	pas de temps
2.2 bars	5 mJ	1 mm	0.5 fs

TABLE 6.5 – Paramètres utilisés pour la résolution numérique de l'équation 6.20

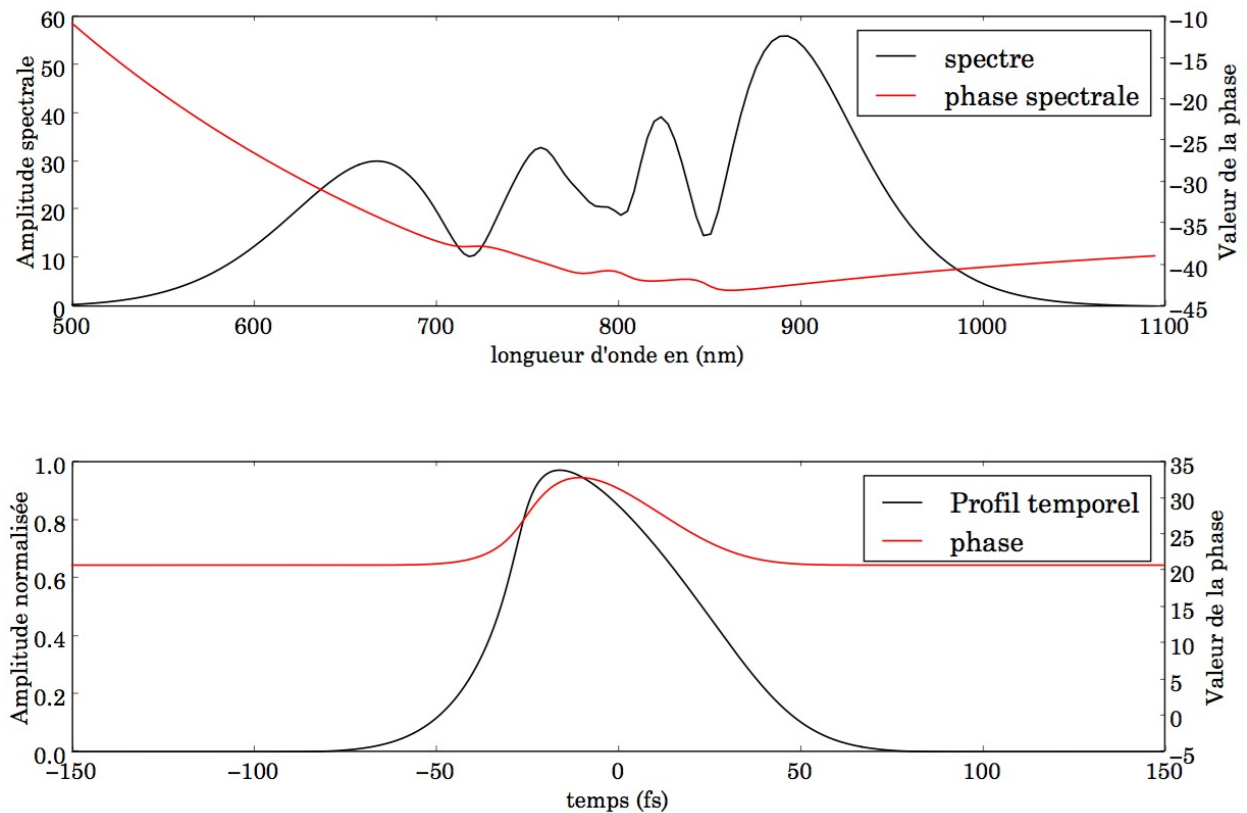


FIGURE 6.2 – (haut) Amplitude et phase spectrale de l'impulsion après propagation (bas) Amplitude et phase temporelle de l'impulsion en sortie de fibre

On remarque clairement que la phase spectrale, aussi bien que l'amplitude spectrale, présentent des irrégularités assez fortes. Il est possible de compenser correctement l'ordre 2

acquis durant la propagation ainsi que le processus d'élargissement spectral mais cependant, l'impulsion compressée ne sera pas "limitée par la transformée de Fourier".

## 6.3 Modelage d'une impulsion dans son plan de Fourier, montage dit "4f"

### 6.3.1 Principe du montage

Le but initial d'un montage dit « 4f » est de pouvoir mettre en forme temporellement une impulsion ultra courte en modifiant de manière complexe son amplitude spectrale mais en conservant la phase telle qu'elle est en entrée du dispositif. Pour cela, il faut se mettre dans la configuration dit « 4f » [10]. Un schéma de principe du montage est présenté dans la figure 6.3. Le faisceau, issu de la sortie de la fibre dans notre cas, est tout d'abord diffracté par le premier réseau. Les différentes longueurs d'ondes sont ensuite collimatées puis focalisées par la deuxième lentille sur le deuxième réseau. Ce dernier recombina toutes les longueurs d'onde ensemble afin de retrouver une impulsion courte. Le plan de Fourier, où le masque sera appliqué, se situe à égale distance des deux lentilles, c'est-à-dire à une distance focale.

Mathématiquement, ce montage revient à réaliser tout d'abord la transformée de Fourier de l'impulsion en entrée  $\hat{S}(w) = \mathcal{F}(S(t))$ . Ensuite, le masque appliqué dans le plan de Fourier consiste à multiplier le signal spectral par la fonction de transmission de celui-ci  $\hat{S}_{modifié}(w) = \hat{M}(w)\hat{S}(w)$  où  $\hat{M}(w)$  est la fonction de transmission du masque. Dans le cas d'un dispositif d'un modulateur spectral à cristaux liquides, cette fonction peut prendre environ n'importe quelle forme arbitraire  $\hat{A}(w) \exp(i\Delta\varphi(w))$ . Dans le cadre de ce travail de thèse, étant donné le fait que le but était seulement une sélection spectrale,  $\hat{M}(w)$  est une fonction rectangle de l'amplitude spectrale, laissant la phase de l'onde incidente inchangée. Enfin, le signal recombina correspond à la transformée de Fourier inverse du signal spectral modulé par le masque, donc le produit de convolution des équivalents temporels des fonctions

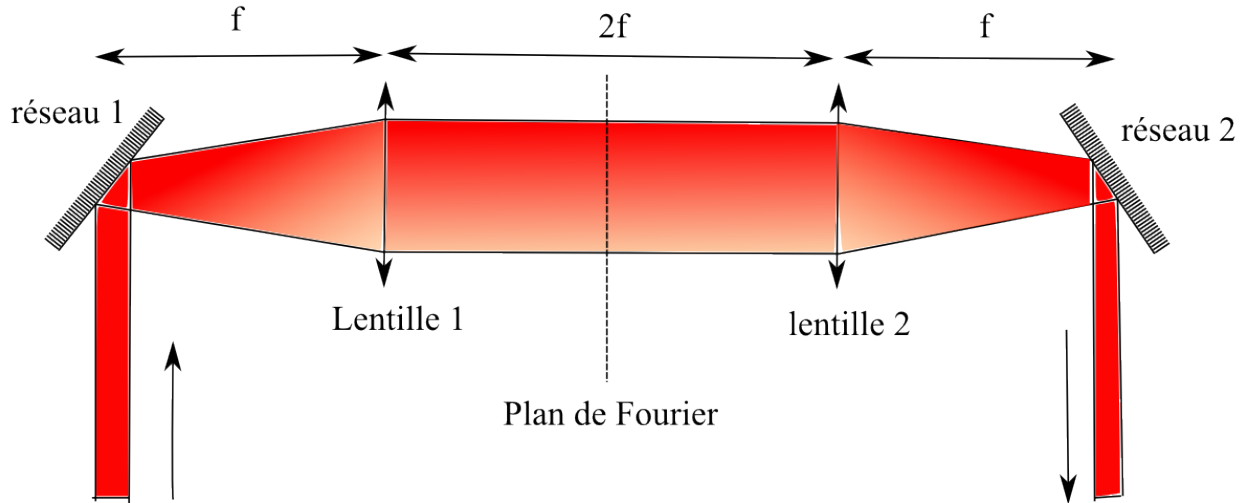


FIGURE 6.3 – Schéma de principe d'un montage 4f. Le masque spectral est appliqué dans le plan de Fourier.

$\hat{S}(w)$  et  $\hat{M}(w)$ .

### 6.3.2 Mise en oeuvre dans le laboratoire

Expérimentalement, il est impossible d'utiliser le montage décrit dans la figure 6.3. En effet, le spectre en entrée du montage sera très large. Cela implique donc à la fois une large gamme spectrale ainsi que une extension spatiale du spectre élevée. La première contrainte empêche l'utilisation de lentille. En effet, celles-ci introduisent des aberrations chromatiques. Même des lentilles dites achromatiques ne sont pas parfaites. Il va donc être nécessaire d'utiliser des miroirs. Ensuite, la deuxième contrainte, l'extension spatiale sur le système de focalisation, nous impose de travailler avec une distance focale suffisamment grande afin que les aberrations sphériques soient négligeables. Le critère  $\frac{f}{d} = 10$  a été retenu,  $f$  étant la distance focale du miroir et  $d$  la largeur du faisceau diffracté sur le miroir.

De plus, afin de vérifier les critères et considérations énoncés ci-dessus, une simulation du montage a été réalisée avec le logiciel Zemax [11]. La géométrie retenue est celle décrite dans [12]. Une vue de dessus du montage est représenté sur la figure 6.4. En effet, les contraintes d'espace du laboratoire ont imposé une géométrie non linéaire. La distance focale choisie est



de 500 mm afin d'éviter les aberrations sphériques et donc, comme son nom l'indique, le montage a une extension de  $4f$ , ici 2 m. La géométrie introduite dans [12] permet de réduire considérablement la longueur du montage en "repliant" le faisceau sur lui-même grâce à l'utilisation de deux miroirs plan supplémentaires. Ainsi, les dimensions spatiales n'excèdent pas  $f \times f$ . Les réseaux sont montés sur translations afin de pouvoir ajuster le critère  $4f$ .

Afin de conserver une extension spatiale du spectre dans le plan de Fourier raisonnable, celle-ci a été fixée à environ 5 cm. En effet, cela a permis de conserver une résolution spectrale suffisante pour notre application tout en gardant un prix raisonnable pour les optiques utilisées. En effet, 2 pouces de diamètre est une dimension standard. Dans ce but, les caractéristiques des réseaux sont les suivantes :

- Type : réseau blazé à 750 nm (angle blazé de  $13^\circ$ )
- dispersion : 600 lignes/mm

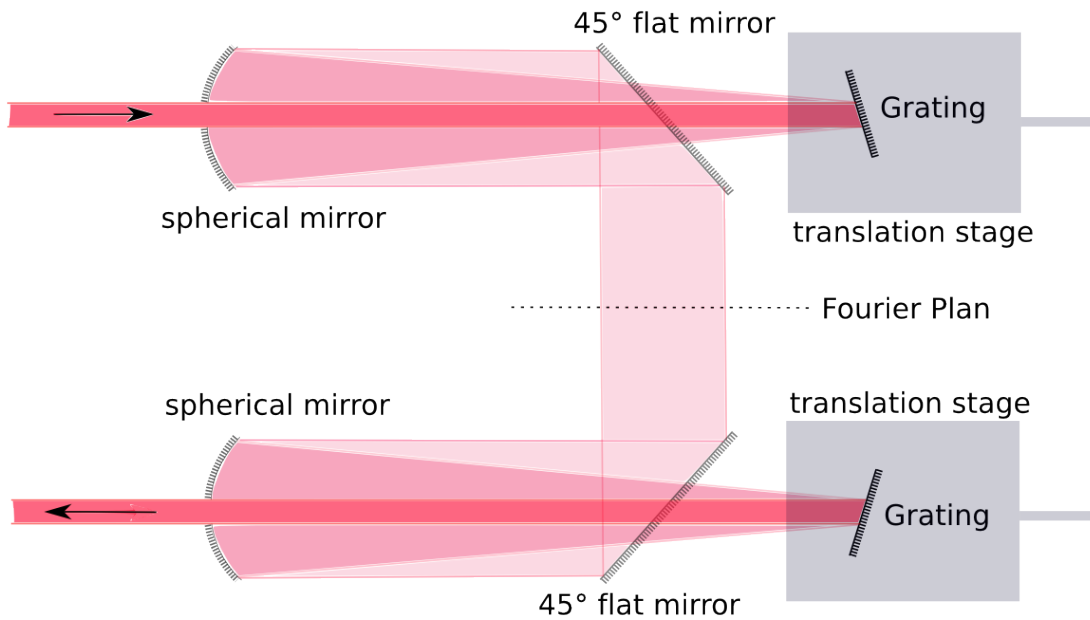


FIGURE 6.4 – Vue de dessus du montage  $4f$ . Plus le faisceau est foncé et opaque plus celui-ci est proche de l'observateur placé au-dessus.

La procédure d’alignement suivie est décrite de manière générale dans [13]. La mesure de la durée d’impulsion par la méthode SPIDER ainsi que celle d’un champ lointain ont permis d’ajuster ensuite finement les paramètres d’espacement réseau ainsi que leurs angles. L’espacement permettant de se placer dans la configuration 4f afin de ne pas introduire de dispersion supplémentaire et l’orientation des réseaux sont cruciaux afin de ne pas introduire de dispersion spatiale. Cela se traduirait par l’impossibilité de focaliser spatialement toutes les longueurs d’ondes en un même point. Ce dernier point est du à l’introduction d’angle du front d’onde par rapport à la direction de propagation.

### 6.3.3 Modélisation numérique

Dans le but d’obtenir une idée plus précise des propriétés de l’impulsion en sortie du montage 4f, la résolution mathématique des étapes décrites dans 6.3.1 a été introduite dans le code ayant calculé la propagation dans la fibre creuse, introduisant l’élargissement spectral par automodulation de phase. Comme expliqué plus haut, cela revient à multiplier par la fonction du masque la transformée de Fourier du spectre d’origine. Dans notre cas, étant donné la sélection spectrale assez fine nécessaire, la compensation de la dispersion introduite durant la propagation dans la fibre n’améliorera pas nettement la durée de l’impulsion.

Les résultats numériques de la reconstruction de l’impulsion après passage dans le montage 4f sont présentés dans la figure 6.5. Ils correspondent à une fenêtre spectrale de 50 nm de largeur dont la longueur d’onde centrale a été modifiée. Trois valeurs sur l’ensemble du spectre ont été calculées afin de donner un aperçu des changements de l’impulsion de sortie en fonction du masque. De plus, aucune compensation de la dispersion n’a été introduite.

On remarque que la durée de l’impulsion centrée à 700 nm semble être inférieure aux impulsions centrées à 800 nm et 900 nm. Cela a été remarqué expérimentalement, il était nécessaire de sélectionner une gamme spectrale plus grande pour les longueurs d’onde les plus élevées afin d’égaliser les durées d’impulsions mesurées par la méthode SPIDER. Également, l’impulsion centrée à 800 nm montre une évolution temporelle plus complexe, comportant des

préimpulsions notamment. Dans le cas précis de ce calcul, aucun ajustement de la pression pour obtenir un spectre et une phase plus homogène dans la fenêtre de sélection n'a été faite. Cependant, cela s'est avéré nécessaire durant l'expérience. Néanmoins, comme expliqué dans la partie 4.2.2, il a été extrêmement difficile de se placer dans des conditions exactement similaires pour chaque fenêtre spectrale.

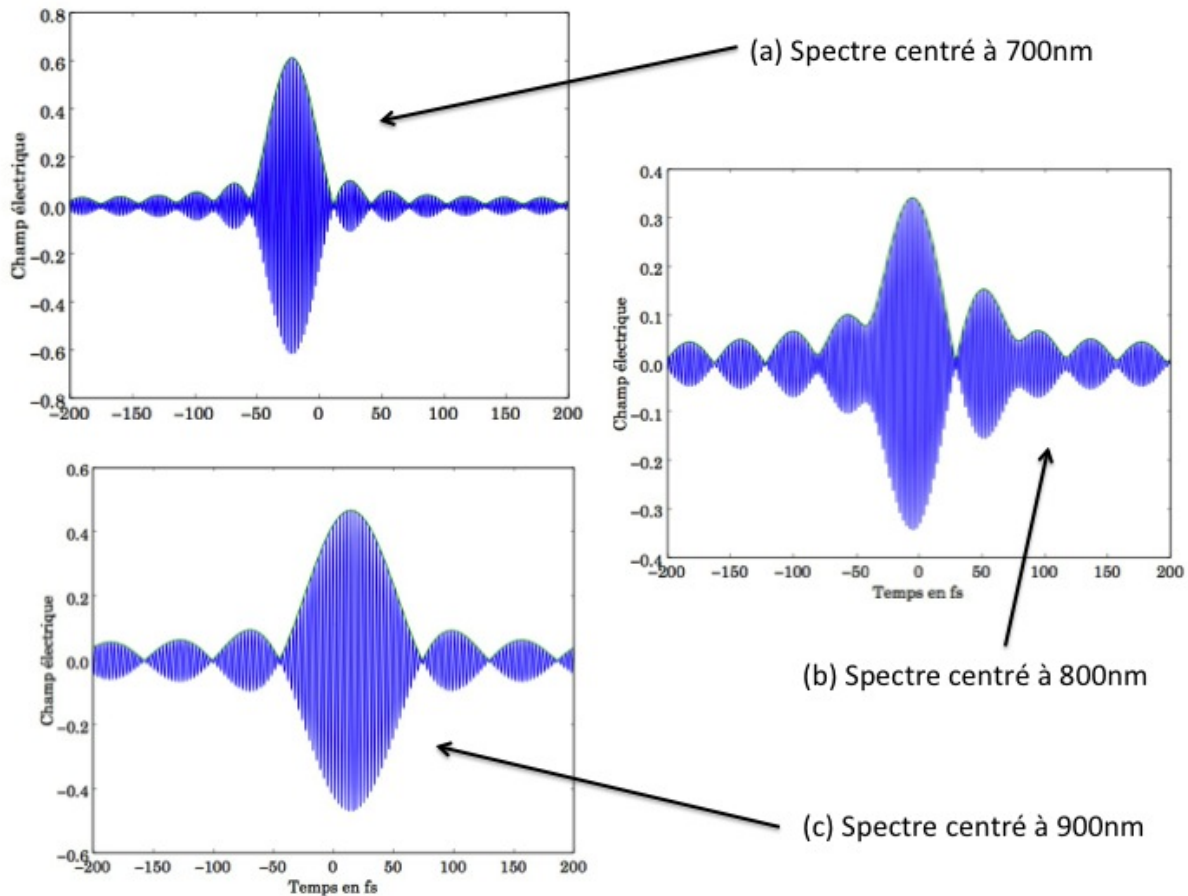


FIGURE 6.5 – Reconstruction de l'impulsion dans le domaine temporel après modelage dans le montage 4f. (a) fenêtre spectrale centrée sur 700 nm de largeur 50 nm, (b) fenêtre spectrale centrée sur 800 nm de largeur 50 nm, (c) fenêtre spectrale centrée sur 900 nm de largeur 50 nm

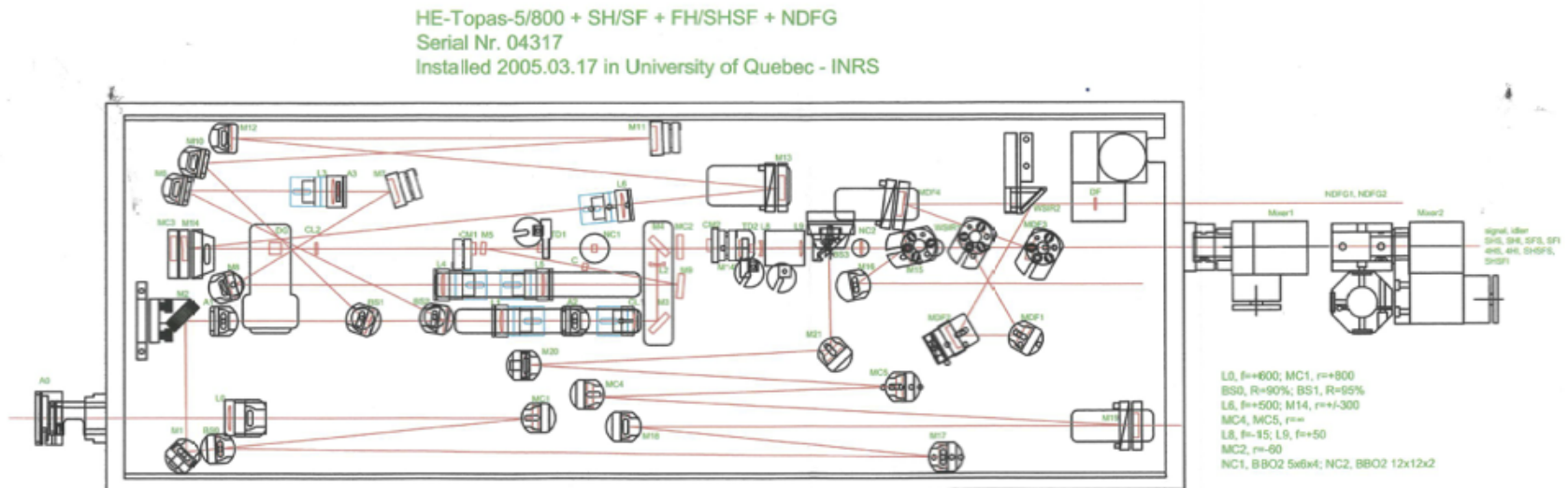


FIGURE 6.6 – Schéma du dispositif He-TOPAS. Il est composé d'un cristal BBO pour les 5 premiers étages puis un deuxième cristal BBO plus grand dédié au 6<sup>ème</sup> et dernier étage d'amplification. Les trois premiers passages dans le premier cristal servent à la génération et l'auto-amplification du signal.

## Références des annexes

- [1] C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, and S. De Silvestri. Optimal spectral broadening in hollow-fiber compressor systems. *Applied Physics B*, 80(3) :285–289, December 2004.
- [2] D. Faccio, A. Grün, P. K. Bates, O. Chalus, and J. Biegert. Optical amplification in the near-infrared in gas-filled hollow-core fibers. 34(19) :2918–2920, 2009.
- [3] S. Hädrich, J. Rothhardt, T. Eidam, J. Limpert, and A. Tünnermann. High energy ultrashort pulses via hollow fiber compression of a fiber chirped pulse amplification system. *Opt. Express*, 17(5) :3913–3922, Mar 2009.
- [4] K. F. Mak, J. C. Travers, N. Y. Joly, A. Abdolvand, and P. St. J. Russell. Two techniques for temporal pulse compression in gas-filled hollow-core kagom&#xe9; photonic crystal fiber. *Opt. Lett.*, 38(18) :3592–3595, Sep 2013.
- [5] V. Yakovlev and G. Tempea. Optimization of chirped mirrors. pages 21–23, 2002.
- [6] S. O. Yakushev, I. A. Sukhoivanov, O. V. Shulika, V. V. Lysak, and S. I. Petrov. Modeling and simulation of interaction of the ultrashort laser pulse with chirped mirror for structure design improvement. 9(8) :2384–2390, 2007.
- [7] Govind P. Agrawal. *Nonlinear Fiber Optics : third edition*.
- [8] J. A., Jr. Fleck, J. R. Morris, and M. D. Feit. Time-dependent propagation of high energy laser beams through the atmosphere. *Applied physics*, 10(2) :129–160, 1976.
- [9] E. A. J. Marcatili and R. A. Schmeltzer. Hollow Metallic and Dielectric Waveguides for ong Distance Optical Transmission and Lasers. *The Bell System Technical Journal*, page 1783, 1964.
- [10] O. E. Martinez. Matrix formalism for pulse compressors. *Quantum Electronics, IEEE Journal of*, 24(12) :2530–2536, Dec 1988.
- [11] [https ://www.radiantzemax.com/en](https://www.radiantzemax.com/en).

- [12] A. Präkelt, M. Wollenhaupt, A. Assion, Ch. Horn, C. Sarpe-Tudoran, M. Winter, and T. Baumert. Compact, robust, and flexible setup for femtosecond pulse shaping. *Review of Scientific Instruments*, 74(11) :4950–4953, 2003.
- [13] A. M. Weiner. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators. *Review of Scientific Instruments*, 71(5) :1929–1960, 2000.