

---

# Physique des lasers XUV

## OFI en mode injecté

Ce chapitre a pour but de présenter les bases physiques pour la réalisation d'un laser XUV OFI en mode injecté. Dans un premier temps, nous nous intéresserons à l'interaction laser-gaz en champ fort avant de décrire les processus impliqués dans la génération d'harmoniques d'ordre élevé et les propriétés de ce type de source. Ensuite, nous décrirons comment fonctionne l'amplificateur à krypton nickeloïde à 32,8 nm en appuyant sur les spécificités propres au schéma dit OFI. Nous en profiterons pour présenter les différents codes numériques utilisés pour expliquer les résultats expérimentaux.

## 2.1 Interaction laser-gaz en champ fort

### 2.1.1 Atomes en champ intense

La production des sources XUV que nous décrivons dans ce manuscrit est le résultat de l'interaction d'un faisceau laser intense avec un milieu gazeux.

Le champ coulombien « vu » par l'électron d'un atome d'hydrogène sur l'état fondamental est approximativement égal à  $5.10^9$  V/cm. La relation entre l'intensité laser et le champ électrique dans le cas d'une polarisation linéaire s'écrit :

$$I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c E^2 \quad (1)$$

où  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide et  $c$  la vitesse de la lumière.

Le champ coulombien dans un atome d'hydrogène correspond alors à un éclairage de  $3,5 \cdot 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ . Cette valeur est souvent considérée comme « l'unité atomique d'intensité ».

Avec le développement des lasers de haute puissance, le domaine de la physique en champ fort a rapidement évolué et il est maintenant possible d'exposer des atomes à des champs électromagnétique laser qui sont bien au dessus des champs coulombiens des atomes eux-mêmes. Dans la région où le champ laser est comparable au champ de liaison des électrons dans les atomes, de nombreux phénomènes influant sur les processus d'ionisation ont été étudiés de façon intensive. Les sources XUV étudiées dans ce manuscrit étant produites dans des milieux gazeux ionisés par les lasers intenses, nous nous attacherons dans une première partie à décrire les processus d'ionisation impliqués.

## 2.1.2 Ionisation

### 2.1.2.1 Les différents types d'ionisation

Selon l'éclairage du laser, trois différents types de mécanismes d'ionisation peuvent se produire : l'ionisation multiphotonique, l'ionisation par effet tunnel et l'ionisation par suppression de barrière.

Pour un éclairage relativement faible (typiquement inférieur à  $10^{13} \text{ W/cm}^2$ ), **l'ionisation multiphotonique** prédomine [57]. Ce processus, illustré sur la Figure 2.1 se réalise si l'atome ou l'ion absorbe simultanément un nombre suffisant de photons pour lui permettre d'acquérir une énergie égale à son énergie de liaison. Le taux d'ionisation sera alors proportionnel à l'intensité du laser.

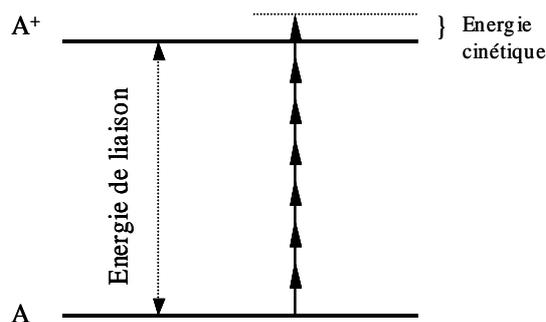


Figure 2.1 : Représentation schématique de l'ionisation multiphotonique d'un atome en absorbant sept photons.

L'ionisation par effet tunnel est prédominante pour des éclaircements supérieurs à  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. La barrière de potentiel à franchir pour ioniser l'atome est abaissée par le champ électromagnétique du laser infra-rouge (voir Figure 2.2). Cette barrière peut être suffisamment basse au moment du maximum de l'impulsion pour que la probabilité de franchir cette barrière par effet tunnel devienne non nulle. Deux conditions sont donc nécessaires pour l'ionisation par effet tunnel : il faut un fort éclairciment pour perturber le potentiel de l'atome ainsi qu'un temps de traversée de l'électron suffisamment court devant la période de l'oscillation laser.

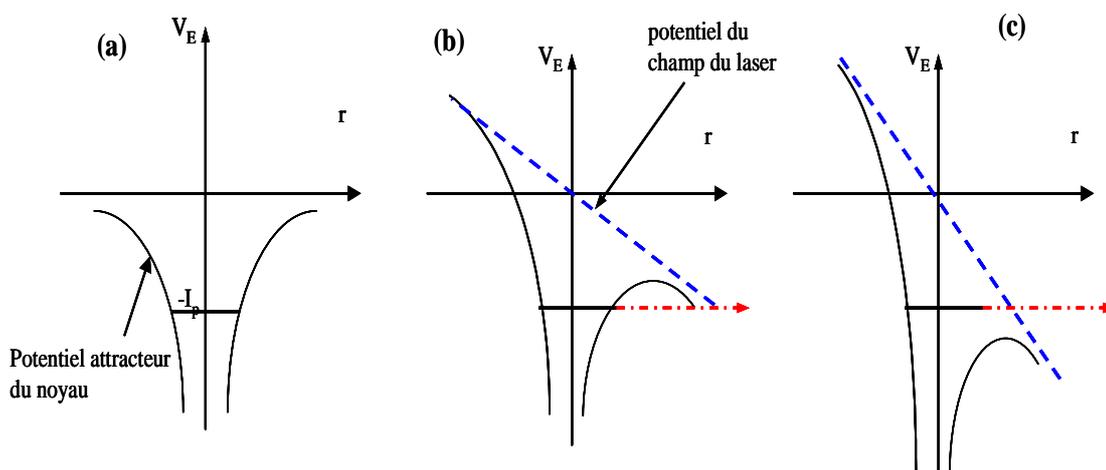


Figure 2.2: Variation du potentiel lié l'électron à son atome sous l'effet du champ du laser. (a) au repos : pas de champ appliqué sur l'atome, l'électron est piégé dans un puits de potentiel. (b) ionisation tunnel : l'électron franchit la barrière de potentiel. (c) Suppression de la barrière : l'électron n'est soumis à aucun potentiel de l'atome et se trouve dans le continuum.

Pour des éclairagements encore plus importants, le champ du laser est bien plus élevé que le champ qui lie l'électron au noyau. L'électron sera ionisé extrêmement facilement. Nous parlons ici du **régime de suppression de barrière** ou encore modèle BSI « Barrier Suppression Ionisation ». L'éclairage nécessaire pour supprimer la barrière de potentiel se calcule avec l'équation suivante, selon que l'on soit en polarisation circulaire (Cir) ou linéaire (Lin) :

$$I_{BSI} = A \frac{I_p^4}{Z^2} \quad [W / cm^2] \quad (2)$$

Avec  $A = 3,8.10^9$  pour une polarisation linéaire et  $A=8.10^9$  pour une polarisation circulaire.

où  $I_{BSI}$  est l'éclairage de suppression de barrière,  $I_p$  le potentiel d'ionisation, exprimé en eV, de l'atome considéré et  $Z$  la charge de l'ion obtenu.

A partir de cette équation et des potentiels d'ionisation calculés (Tableau 2-1) pour le xénon et le krypton, nous présentons sur la Figure 2.3 l'éclairage nécessaire pour obtenir les différents degrés d'ionisation des deux gaz jusqu'à la dixième ionisation. Dans le contexte qui nous intéresse ici, c'est-à-dire ioniser huit fois le krypton, il faut à la fois un éclairage laser de l'ordre de  $1,36.10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$  et une polarisation circulaire. Nous expliquerons par la suite l'influence de la polarisation du laser de pompe sur la création du milieu amplificateur.

Egalement, nous observons dans les deux cas, un écart d'intensité important entre la huitième et la neuvième ionisation, ce qui illustre bien la relative stabilité des ions lasants que nous souhaitons produire. En effet, entre l'intensité nécessaire pour ioniser huit fois le xénon ou le krypton et celle pour atteindre la neuvième ionisation, il existe au moins un facteur 5 pour le xénon et 9 pour le krypton.

Par sa simplicité, le modèle BSI constitue une première approximation permettant d'estimer l'éclairage nécessaire pour créer une espèce ionique bien définie. Toutefois, il surestime l'éclairage nécessaire pour atteindre le degré d'ionisation voulu et, par conséquent, l'énergie cinétique des électrons. Nous verrons que cette énergie dépend de l'intensité au moment de l'ionisation. Pour obtenir des valeurs plus réalistes, il faut donc calculer les taux d'ionisation par effet tunnel.

Etat de charge	Kr	Xe
1	$4p^6$ 14	$5p^6$ 12,13
2	$4p^5$ 24,36	$5p^5$ 21,21
3	$4p^4$ 36,95	$5p^4$ 32,12
4	$4p^3$ 53	$5p^3$ 38,3
5	$4p^2$ 65	$5p^2$ 51,5
6	$4p^1$ 78	$5p^1$ 64,2
7	$4s^2$ 111	$5s^2$ 91,4
8	$4s^1$ 123	$5s^1$ 106,6
9	$3d^{10}$ 230,9	$4d^{10}$ 175,2
10	$3d^9$ 275	$4d^9$ 196,2

Tableau 2-1 : Potentiel d'ionisation (eV) des dix premiers états d'ionisation dans le cas du krypton et du xénon.

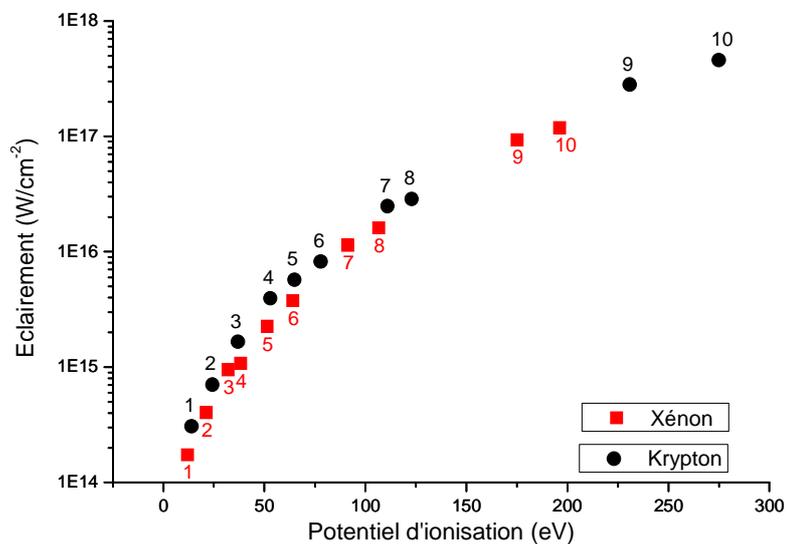


Figure 2.3: Eclairement nécessaire pour obtenir les différents degrés d'ionisation dans le krypton (rond noir) et le xénon (carré rouge).

### 2.1.2.2 Paramètre de Keldysh

Le paramètre de Keldysh [58] permet de savoir quel est, parmi l'ionisation multiphotonique et l'ionisation par effet tunnel, le régime qui prédomine. Ce paramètre s'écrit :

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (3)$$

avec

$$U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2} \quad (4)$$

où  $U_p$  est le potentiel pondérateur du laser correspondant à l'oscillation d'un électron de masse  $m$ , de charge  $q$ , soumis à un champ électrique  $E$  de pulsation  $\omega$  et  $I_p$  le potentiel de première ionisation du gaz.

Ce paramètre sans dimension  $\gamma$  permet de comparer le potentiel d'ionisation de l'électron ( $I_p$ ) et le potentiel pondérateur du laser ( $U_p$ ). Si  $\gamma \gg 1$ , le potentiel atomique domine le potentiel laser et, par conséquent, l'ionisation sera de nature multiphotonique. Dans le cas contraire, si  $\gamma \ll 1$ , le champ coulombien sera modifié par le champ du laser et, dans ce cas, le processus d'ionisation par effet tunnel sera prédominant.

### 2.1.2.3 Taux d'ionisation tunnel

Pour mieux comprendre ces différents phénomènes d'ionisation, il est important de calculer les taux d'ionisation. La formule la plus souvent utilisée pour les gaz rares, tel le krypton, est celle dite « ADK » pour « Ammosov, Delone, Krainov » [59]. Le calcul est relativement complexe à cause de l'utilisation de potentiels issus de la méthode du défaut quantique adaptée au cas des atomes lourds. La dépendance des nombres quantiques  $l, m, n$  pouvant varier d'un auteur à un autre, il est précisé que les taux ADK qui seront utilisés par la suite sont issus de l'article de Delone *et Al.* [60]. Ces valeurs corrigées des taux ADK sont données en polarisation linéaire et surtout éliminent la dépendance problématique en  $l, m$  et  $n$ . La formule pour calculer ces taux s'écrit alors :

$$W_{lin} = \sqrt{\frac{3n^* E}{\pi Z^3} \frac{E D^2}{8\pi Z}} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^* E}\right) \quad (5)$$

avec  $n^* = \frac{Z}{\sqrt{2I_p}}$  et  $D = \left(\frac{4e Z^3}{E n^{*4}}\right)^{n^*}$  (6)

$Z$  est la charge de l'ion produit,  $n^*$  le nombre quantique effectif principal et  $E$  est l'amplitude du champ laser reliée à l'intensité par :

$$E(V/m) = \sqrt{8\pi \cdot 10^{-7} c I(W/m^2)} \quad (7)$$

Le passage du taux d'ionisation linéaire à celui du taux d'ionisation circulaire se fait par la formule suivante :

$$W_{circ} = W_{lin} \sqrt{\frac{\pi E_0}{3E}} \quad (8)$$

Les taux ADK permettent de calculer la probabilité d'ionisation d'un atome soumis à une impulsion laser de durée et d'intensité fixées. Les équations d'évolution des populations atomiques et ioniques sont données par :

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_0(t)}{dt} &= -W_0(t)\rho_0(t) \\ \frac{d\rho_1(t)}{dt} &= -W_1(t)\rho_1(t) + W_0(t)\rho_0(t) \\ &\dots\dots\dots \\ \frac{d\rho_i(t)}{dt} &= -W_i(t)\rho_i(t) + W_{i-1}(t)\rho_{i-1}(t) \end{aligned} \quad (9)$$

$W_i$  et  $\rho_i$  sont respectivement les taux d'ionisation et la densité ionique d'un atome  $i$  fois ionisé.

L'ionisation est très rapide pour les plasmas créés par des impulsions laser femtosecondes. Quand l'éclairement du laser dépasse  $10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>, l'ionisation s'effectue sur le front montant de l'impulsion. La Figure 2.4 nous montre l'évolution de l'état de charge d'un atome de krypton lors de son interaction avec un laser d'une durée d'impulsion de 30 fs (à mi-hauteur) et un éclairement maximal égal à  $1.10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>.

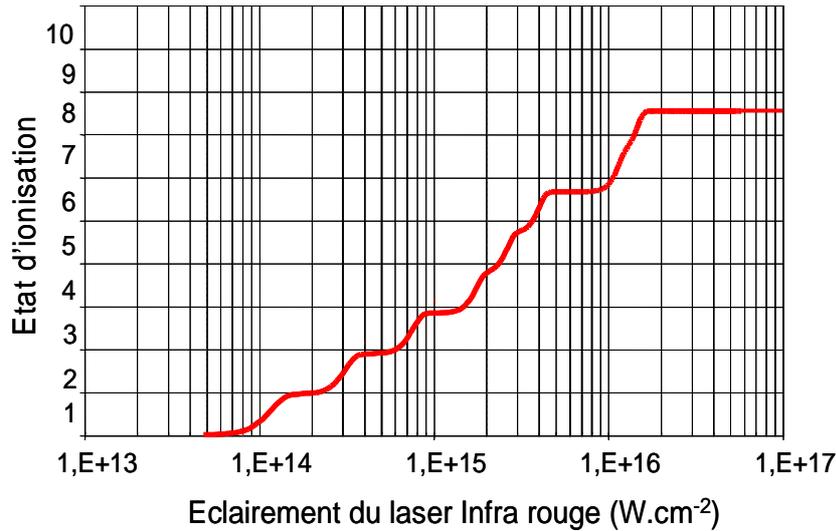


Figure 2.4 : Evolution de l'état de charge du krypton en fonction de l'éclairement du laser infra rouge.

### 2.1.3 Influence de la polarisation sur la distribution énergétique des électrons

Au cours de l'ionisation, l'électron libéré peut acquérir une énergie supérieure à l'énergie suffisante pour se détacher de l'atome (supérieure à son énergie de liaison). L'ionisation est alors au dessus du seuil de liaison plus communément appelé « ATI » pour « Above Threshold Ionisation ». L'électron est soumis au champ électrique  $E$  du laser infrarouge d'intensité  $I$  qui s'écrit pour une polarisation quelconque sous la forme :

$$E = E_{0x} \cos(\omega t)x + E_{0y} \sin(\omega t)y \quad (10)$$

avec

$$E_{0x} = \sqrt{\frac{2I\phi}{\epsilon_0 c}} \quad E_{0y} = \sqrt{\frac{2I(1-\phi)}{\epsilon_0 c}} \quad (11)$$

$\phi$  correspond à la polarisation du champ :  $\phi = 0$  pour une polarisation linéaire et  $\phi = 1/2$  pour une polarisation circulaire. L'amplitude du champ peut donc s'écrire comme suit :

$$E = E_0 \sqrt{\frac{1}{2} + (\phi - \frac{1}{2}) \cos(2\omega t)} \quad (12)$$

En considérant que l'enveloppe temporelle qui génère l'impulsion est lentement variable devant l'oscillation du champ électrique c'est-à-dire que nous considérons  $E_0$  comme une

constante, nous pouvons déterminer la vitesse des électrons et donc leur énergie cinétique en négligeant les effets magnétiques.

$$E_c(t) = \frac{e^2 E_0^2}{2m\omega^2} (\phi \cos^2(\omega t) + (1-\phi) \sin^2(\omega t)) \quad (13)$$

L'énergie cinétique des électrons s'écrit de deux façons, selon que nous soyons en polarisation circulaire ou en polarisation linéaire.

$$E_c(t) = \frac{e^2 E_0^2}{2m\omega^2} \sin^2(\omega t) \quad \phi = 0 \text{ (Polarisation linéaire)} \quad (14)$$

$$E_c(t) = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2} \quad \phi = 1/2 \text{ (Polarisation circulaire)}$$

Comme le montre l'équation (14), le taux d'ionisation est maximal en polarisation linéaire, lorsque  $E(t)$  est maximal, c'est à dire  $\omega t = 0$  [ $\pi$ ]. Or, à cet instant, l'énergie cinétique des électrons est égale à zéro. En revanche, en polarisation circulaire, l'énergie cinétique est presque constante sur tout le cycle optique.  $E_0$  est fonction du temps, la valeur de l'énergie cinétique dépend donc du moment d'ionisation. La Figure 2.5 montre la distribution en énergie des électrons pour différents états de polarisation calculée pour un éclairement du laser infrarouge égal à  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>. Cet éclairement permet d'obtenir une population majoritaire de krypton ionisé 8 fois dans la tache focale du faisceau laser. L'énergie cinétique des électrons ionisés par effet tunnel est marquée, dans le cas d'une polarisation circulaire, par une distribution continue comprise entre 0 et 2000 eV environ. La distribution autour de ces énergies moyennes n'est aucunement maxwellienne et la notion de température perd son sens avec ce type de distribution à plusieurs maxima. Par ailleurs, la distribution des énergies cinétiques correspond à celle d'un plasma figé après le passage de l'impulsion. Cependant elle varie peu pendant les quelques picosecondes (ps) qui succéderont à la création du plasma, moment où, comme nous le verrons par la suite, les gains seront les plus forts.

Pour favoriser l'excitation collisionnelle de l'état fondamental  $^1S_0 3d^{10}$  vers le niveau supérieur  $^1S_0 3d^9 4d$  de l'ion lasant Kr IX, il est nécessaire que les électrons aient une énergie cinétique supérieure à 145 eV (représentée en trait pointillé noir sur la Figure 2.5). Or, nous constatons qu'en polarisation linéaire les électrons ne possèdent pas assez

d'énergie pour permettre le pompage de la transition laser. Il est donc indispensable que la polarisation du laser de pompe soit circulaire, tout au plus légèrement elliptique, pour favoriser un fort pompage.

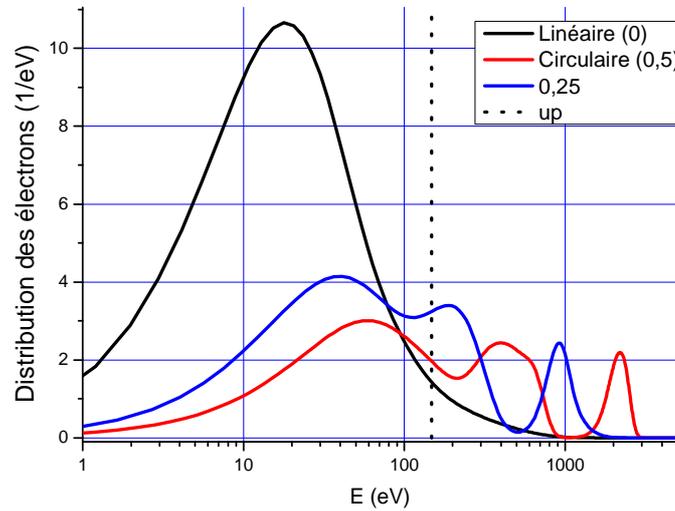


Figure 2.5 : Distribution énergétique des électrons pour différents états de polarisation du laser calculée pour un éclairement du laser infrarouge égal à  $10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>.

## 2.1.4 Propagation et réfraction d'un laser intense dans un milieu gazeux

Nous allons commencer par introduire quelques notions indispensables pour l'étude d'un plasma obtenu par la focalisation d'un laser. Nous étudierons comment se propage un faisceau dans le vide puis dans un milieu gazeux. Nous finirons par l'étude de la réfraction qui joue un rôle important dans la propagation d'un laser dans un plasma.

### 2.1.4.1 Propagation du faisceau gaussien dans le vide

Considérons un faisceau monochromatique se propageant dans le vide. La fonction du champ électrique  $\vec{E}$  associé à cette onde est une solution de l'équation d'Helmholtz :

$$\nabla^2 \vec{E} + k^2 \vec{E} = 0 \quad (15)$$

avec  $k = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}$ . Pour le cas des lasers, les rayons amplifiés sont concentrés autour de l'axe qui définit la cavité (Oz). L'onde est dite paraxiale et s'écrit sous cette forme :

$$\vec{E} = U(r, z) e^{ikz} \vec{u} \quad (16)$$

L'équation d'Helmholtz peut s'écrire alors, dans le repère cylindrique, de cette manière :

$$\left[ \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + 2ik \frac{\partial}{\partial z} \right] U(r, z) = 0 \quad (17)$$

Une solution de cette équation est dite celle des ondes paraboloides et nous pouvons écrire le champ complexe du faisceau  $E(r, z)$  dans le mode gaussien fondamental sous cette forme :

$$E(r, z) = E_0 \frac{W_0}{W(z)} e^{-\frac{r^2}{W^2(z)}} e^{-i \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right) + ikz} e^{i \frac{kr^2}{2R(z)}} \quad (18)$$

où la première partie de l'exponentielle exprime l'amplitude, la deuxième et la troisième représentent successivement la phase longitudinale et radiale.  $W(z)$  est la largeur transverse du faisceau.  $R(z)$  est le rayon de courbure du front d'onde. Ils sont définis ainsi :

$$R(z) = \frac{z^2 + z_R^2}{z} \quad (19)$$

$$W(z) = W_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad (20)$$

où  $W_0$  dit waist est le rayon du faisceau à  $z = 0$ , il définit la distance à l'axe pour laquelle l'amplitude du champ est divisée par  $e$  sur l'axe. En fait, la diffraction naturelle de l'onde conduit à une taille non nulle du faisceau au foyer (à  $z = 0$ ) contrairement à ce que prévoit l'optique géométrique (voir Figure 2.6).  $z_R$  est la longueur de Rayleigh qui est définie comme étant la distance de propagation au bout de laquelle  $I(z)$  diminue d'un facteur 2.  $z_R$  est la longueur caractéristique de variation suivant  $z$  du rayon et de l'intensité du faisceau sur l'axe, elle se calcule par la relation suivante (dans le cas d'un faisceau non diaphragmé) :

$$z_R = \frac{\pi W_0^2}{\lambda} \quad (21)$$

Expérimentalement, le faisceau de pompe est gaussien et collimaté. Il est focalisé avec une optique de focalisation de longueur focale  $f$  et de diamètre  $D$ . Le rayon de la tache focale est donné par :

$$W_0 = \frac{1,22 \lambda f}{D} \quad (22)$$

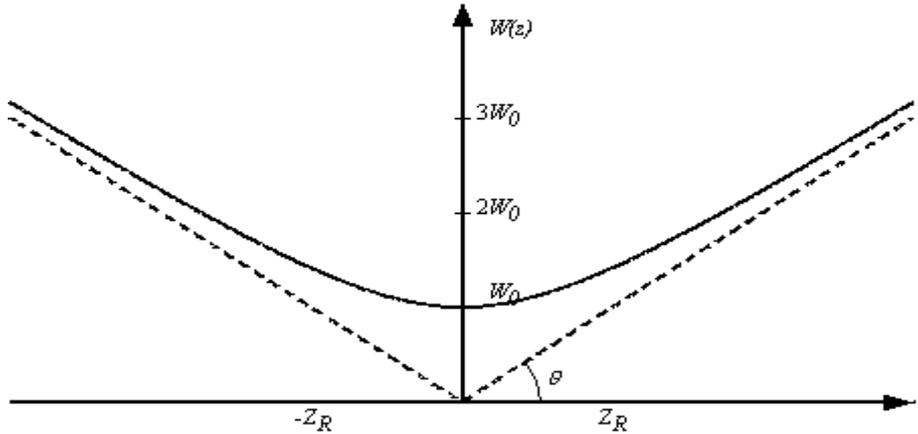


Figure 2.6 : Evolution du rayon d'un faisceau gaussien autour du foyer

#### 2.1.4.2 Propagation du faisceau gaussien dans le milieu gazeux

Afin de décrire la propagation du faisceau laser dans le milieu gazeux, il faut reprendre les équations de Maxwell dans le cas d'un milieu homogène (pas d'axe privilégié) en tenant compte du courant induit par le mouvement des électrons dans le plasma. Nous considérons que le milieu global est neutre et donc de densité  $\rho = 0$ .

L'équation de propagation (dite équation inhomogène d'Helmholtz) est alors :

$$\nabla E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial J}{\partial t} \quad (23)$$

avec  $\frac{\partial J}{\partial t} = \frac{e^2}{m} n_e(r, z, t) E$  où  $n_e(r, z, t)$  est la densité électronique dépendant du temps et de

l'intensité du laser et  $\mu_0$  est la permittivité du vide.

En faisant le changement de variable suivant :  $\tau = t - z/c$ , et en posant  $E(r, z, t) = a(r, z, \tau) e^{i(kz - \omega t)}$ , nous obtenons dans le cas de l'approximation paraxiale et de l'approximation de l'enveloppe lentement variable :

$$2ik \left( \frac{\partial a}{\partial z} - \frac{2}{c} \frac{\partial^2 a}{\partial \tau \partial z} \right) + \nabla_{\perp}^2 a = k^2 \frac{n_e}{n_c} a \quad (24)$$

avec  $\nabla_{\perp}^2$  le laplacien transverse et  $n_c$  est la densité critique du plasma donnée par

$$n_c = \frac{\omega^2 m_e}{\mu_0 c^2 e^2} \text{ où } m_e \text{ et } e \text{ sont respectivement la masse et la charge d'un électron.}$$

La densité électronique dépend de l'intensité du champ et donc du temps et des coordonnées spatiales. Cette équation présente alors un terme non linéaire. Les variations spatiales et temporelles de la densité électronique sont à l'origine de plusieurs phénomènes physiques qui modifient la propagation du champ, ainsi que la forme temporelle de l'impulsion laser [61]. Nous nous intéresserons ici seulement à l'effet spatial sur la propagation.

### 2.1.4.3 Réfraction

Lorsque le laser interagit avec le gaz, du fait de la géométrie de pompage et de la présence d'un milieu fortement ionisé, le gradient de densité électronique produit une variation de l'indice de réfraction dans le plan transverse à l'axe de propagation.

L'indice de réfraction dans un plasma de densité électronique ( $n_e$ ) dépend de la pulsation propre du plasma ( $\omega_p$ ) et de celle de l'onde incidente ( $\omega$ ) qui l'a créé. Il est donné par :

$$n^2 = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad (25)$$

avec 
$$\omega_p^2 = \frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_e} \quad (26)$$

et 
$$\omega^2 = \frac{n_c e^2}{\epsilon_0 m_e} \quad (27)$$

$n_c$  est la densité critique à partir de laquelle le rayonnement ne peut plus se propager. A partir de ces trois équations, l'indice de réfraction s'écrit alors :

$$n^2 = 1 - \frac{n_e}{n_c} \quad (28)$$

Nous travaillons avec un milieu de densité électronique de l'ordre de  $n_e \approx 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . A partir de l'équation (27), nous pouvons calculer la densité critique pour le laser de pompage et celle pour le laser X. Pour le pompage, nous allons utiliser un laser titane saphir ( $\lambda \approx 800\text{nm}$ ), nous avons donc  $n_c = 1,75 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . Pour le laser X dans le xénon ( $\lambda = 41,8\text{nm}$ ), nous avons  $n_c = 6,4 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ . Dans les deux cas,  $n_e \ll n_c$  (la dispersion de vitesse de groupe que peut entraîner l'indice de réfraction par rapport au vide est par conséquent négligeable). Le développement limité au premier ordre de l'équation (28) donne :

$$n = 1 - \frac{1}{2} \frac{n_e}{n_c} \quad (29)$$

Cette équation n'est valable que dans le cas d'un plasma homogène. En réalité, nous devons prendre en compte l'inhomogénéité du plasma qui dépend principalement de la distribution spatiale de l'intensité. L'indice de réfraction  $n(r, \theta, z)$  dépend alors de la position  $\vec{r}(r, \theta, z)$  du rayon dans le plasma ( $z$  est l'axe de propagation). Nous prenons le cas simple d'un profil de densité électronique parabolique et nous supposons que sur la longueur de Rayleigh (zone qui nous intéresse), l'intensité (et donc la densité électronique) ne dépend pas de  $z$ . En prenant la symétrie cylindrique, l'équation (28) s'écrit alors :

$$n(r) = 1 - \frac{1}{2} \frac{n_e(r)}{n_c} \quad (30)$$

Plus généralement, la trajectoire d'un rayon se propageant dans un milieu inhomogène d'indice de réfraction  $n(x, y, z)$  peut se déterminer à partir de l'approximation classique :

$$\frac{d}{ds} \left( n \frac{d\vec{r}}{ds} \right) = \vec{\nabla} n(x, y, z) \quad (31)$$

où 
$$ds = \sqrt{(dx)^2 + (dy)^2 + (dz)^2} \quad (32)$$

En supposant que le profil de densité ne dépend que du paramètre transverse, cette équation s'écrit alors:

$$n(r) \frac{d^2 r}{dz^2} = \frac{dn(x)}{dr} \quad (33)$$

#### 2.1.4.4 Effet de la réfraction sur la propagation

En se propageant dans un milieu avec un profil d'indice de réfraction minimal sur l'axe, la vitesse de phase est plus petite sur les bords. Cela conduit à une courbure du front de phase et donc à une divergence du faisceau. Le plasma se comporte alors comme une lentille divergente qui déplace le foyer et augmente la taille  $w_0$  du faisceau comme le montre la Figure 2.7. Par conséquent, la longueur de Rayleigh est plus courte et l'intensité maximale dans le plan focal diminue. Deux types de réfraction se présentent alors. Le premier concerne le faisceau du laser X qui peut s'éloigner de la région où le gain est maximal. Le deuxième concerne le faisceau de pompage qui, pendant sa propagation, va créer, au niveau des pieds du front avant de l'impulsion, le gradient de densité qui va le défocaliser. Comme le montre l'équation (25), cet effet est moins critique pour les plus courtes longueurs d'onde. Il est plus important de deux ordres de grandeur pour le faisceau infrarouge.

Pour évaluer l'effet de la réfraction, Rankin *et al* [62] ont défini la condition décrite ci-après. La longueur du plasma au bout de laquelle la phase de l'impulsion sur l'axe change de  $\pi/2$  est :

$$L_D = \frac{\lambda n_c}{2 n_e} \quad (34)$$

Si cette distance est inférieure à la longueur de Rayleigh alors la réfraction doit être prise en considération. A partir de l'équation (21) nous pouvons écrire :

$$\frac{n_c}{n_e} > \frac{\lambda^2}{2\pi w_0^2} \quad (35)$$

Le waist  $w_0$  est de l'ordre de 30  $\mu\text{m}$ . Cette inégalité n'est vérifiée que pour le laser de pompe à 800 nm. La réfraction du laser X dans notre cas (un milieu dilué de quelques millimètres de longueur) jouera un rôle très limité. En revanche, la réfraction du laser de pompe aura de conséquences néfastes sur la formation du milieu amplificateur. Elle constitue en effet une limitation majeure pour le pompage longitudinal.

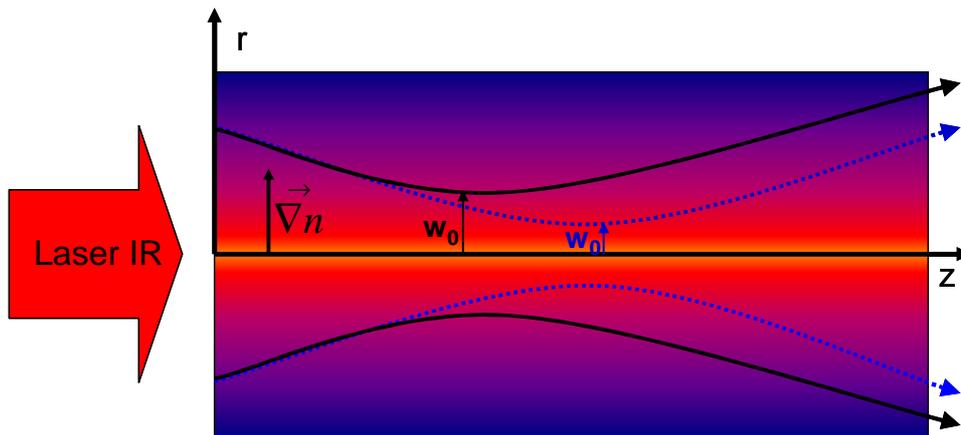


Figure 2.7 : Réfraction et propagation du laser infrarouge dans un plasma à fort gradient. Le faisceau est défocalisé (traits noirs) par rapport à sa position de focalisation dans le vide (Traits en pointillés bleus).

#### 2.1.4.5 Simulations numériques de la propagation du laser de pompe

Nous venons de voir que la propagation linéaire d'impulsions femtosecondes peut être décrite de façon analytique. L'introduction d'effets non-linéaires telle que la dispersion électronique due à l'ionisation, ne permet plus de résolution analytique. Par conséquent, nous avons eu recours à une résolution numérique de l'équation de propagation.

Nous avons utilisé pour cela un code de propagation nommé OFI-PROP et développé par G. Maynard du LPGP [63]. Dans ce code inspiré des travaux de S. C. Rae [64] et qui constitue une partie du code COFIXE, le calcul du transport du faisceau IR est utilisé pour déterminer une table d'intensité  $I_{\max}(r, z)$  qui sera utilisée par la suite par un code collisionnel-radiatif. Le transport du faisceau IR étant étroitement lié au processus d'ionisation par le champ laser, les atomes de krypton deviennent de plus en plus ionisés au fur et à mesure que le faisceau laser se propage dans le milieu gazeux. Comme la probabilité d'ionisation dépend de l'éclairement laser, le laser interagit avec un plasma inhomogène dans les deux directions (transverse et longitudinale). Dans la gamme de pression considérée ici, les pertes d'énergie dues à l'ionisation ont été négligées. De plus, l'éclairement du laser (dans le plasma) étant inférieur à  $10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$ , les effets non linéaires relativistes ont aussi été négligés.

Dans le code OFI-PROP [65], le transport du laser IR dans le krypton est calculé dans l'approximation paraxiale, en géométrie cylindrique, en résolvant l'équation (24).

Le front montant de l'impulsion laser  $n(r, z, \tau)$  croît avec le temps du fait de l'ionisation séquentielle des atomes de krypton mais reste, dans la gamme de densité étudiée ici, toujours inférieur à  $n_c$ . L'ionisation est ici considérée dans l'approximation tunnel en utilisant les taux ADK moyennés pour calculer les probabilités d'ionisation [cf § 2.1.2].

Les paramètres d'entrée sont la densité atomique, le waist du faisceau, la polarisation, la position du point de focalisation, l'éclairement maximal et la durée de l'impulsion laser. De plus, il est possible de définir les profils temporel et spatial de l'impulsion laser.

La Figure 2.8 montre une série de carte d'ionisation calculée par OFI-PROP pour différentes densités de krypton comprises entre 5 et 50 mbar. L'éclairement maximal du laser infrarouge est ici de  $8 \cdot 10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$ , la polarisation du laser est circulaire et le laser est focalisé 3,5 mm après la face d'entrée de la cellule. Nous observons très clairement que les effets de réfraction prennent de l'importance quand nous augmentons la densité atomique. Ceci occasionne un déplacement du foyer vers la face d'entrée de la cellule de gaz. En conséquence, la zone amplificatrice, ici en rouge, raccourcit quand nous augmentons la pression du gaz dans la cellule, laissant la place à une zone moins ionisée qui peut devenir absorbante pour le laser à 32,8 nm (37,8 eV). Cette zone plasma (ici en bleue) est essentiellement peuplée d'ions Kr neutre,  $\text{Kr}^{1+}$ ,  $\text{Kr}^{2+}$ ,  $\text{Kr}^{3+}$ . Compte tenu des potentiels d'ionisation de ces états de charge présentés dans le Tableau 2-1, ils sont absorbants à la longueur d'onde qui nous intéresse. Nous tiendrons compte de cette zone absorbante quand nous confronterons les résultats expérimentaux aux calculs dans le chapitre suivant. Cependant, ce code ne permet pas de suivre l'évolution hydrodynamique du plasma en fonction du temps. Il nous renseigne seulement sur l'état du plasma juste après le passage du laser. Comme nous le verrons par la suite, les moments de forte amplification se produisent 3 ps après la création du plasma et nous pouvons considérer, que dans cette échelle de temps, l'état du plasma est stationnaire.

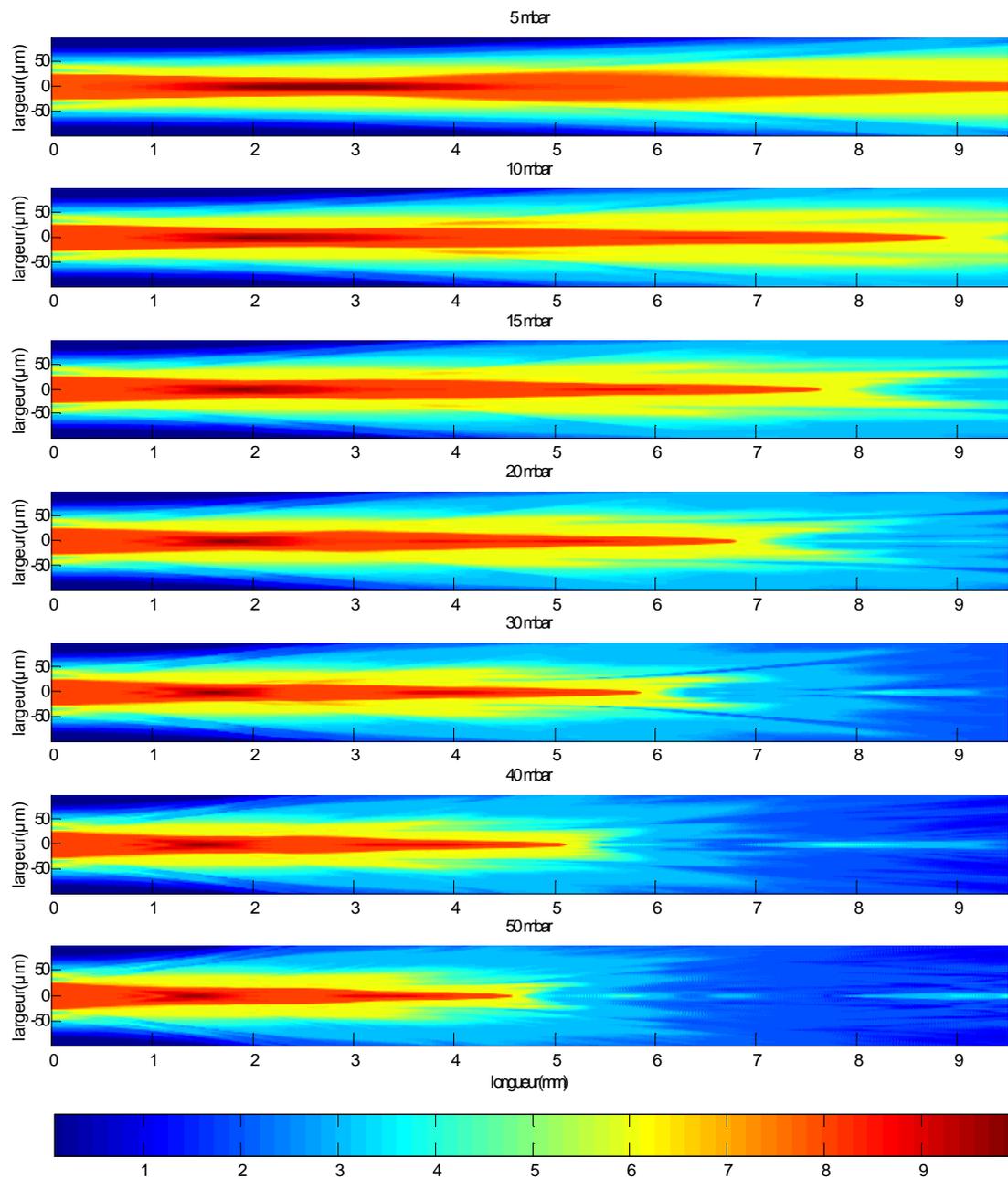


Figure 2.8 : Carte d'ionisation calculée par le code OFI-PROP pour différentes densités de krypton. L'échelle en couleur en bas correspond aux degrés d'ionisation.

## 2.2 La physique des harmoniques d'ordre élevé

L'étude de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans des gaz rares est devenue, depuis une quinzaine d'années, un sujet majeur de l'interaction d'impulsions lasers intenses avec un atome. D'immenses progrès ont été réalisés aussi bien sur le plan théorique qu'expérimental. Ici, nous nous contenterons de présenter les bases de la physique impliquée dans la réalisation de cette source. Nous rappellerons aussi les propriétés spatiales et temporelles de la source qui seront utiles à la compréhension des expériences présentées dans ce manuscrit.

### 2.2.1 Le principe

Il y a deux aspects à considérer dans la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Tout d'abord, d'un point de vue microscopique, la source de l'émission est due à la réponse fortement non linéaire d'un atome soumis à un champ laser intense. Egalement, d'un point de vue macroscopique, le champ harmonique mesuré aux cours des expériences est la superposition cohérente des champs émis par tous les atomes du milieu générateur. Ainsi la description théorique de la génération d'harmoniques est à la fois le calcul de la réponse de l'atome unique ainsi que l'accord de phase entre le champ harmonique et la polarisation induite par le champ laser et l'absorption du champ harmonique par le gaz lui-même.

#### 2.2.1.1 Réponse de l'atome unique

Le rayonnement harmonique provient de l'interaction fortement non linéaire entre un champ laser intense et les atomes d'un gaz ou d'un solide. Ce processus a été démontré pour la première fois en 1969 dans un milieu gazeux [66]. Il existe plusieurs façons de décrire le phénomène de génération d'harmoniques d'ordre élevé mais c'est le modèle dit « semi classique » qui est le plus souvent utilisé [67]. Cette description a été proposée par Corkum et al. en 1993 [68] et généralisée par Lewenstein et al. en 1994 [69] dans le cadre de la mécanique quantique.

Ce processus se décompose en trois étapes :

### Etape 1 : Ionisation par effet tunnel induite par le laser

L'abaissement de la barrière de potentiel au maximum du champ électrique du laser permet une probabilité d'ionisation par effet tunnel non nulle (voir Figure 2.9). L'électron issu de l'ionisation entre dans un état du continuum avec une vitesse nulle et se trouve près du noyau (modèle Strong Field Approximation). Ce phénomène peut se produire deux fois par cycle optique du fait de l'inversion du sens du champ du laser [59]. Ce qui explique que nous observons seulement les harmoniques séparées de  $2\omega$ .

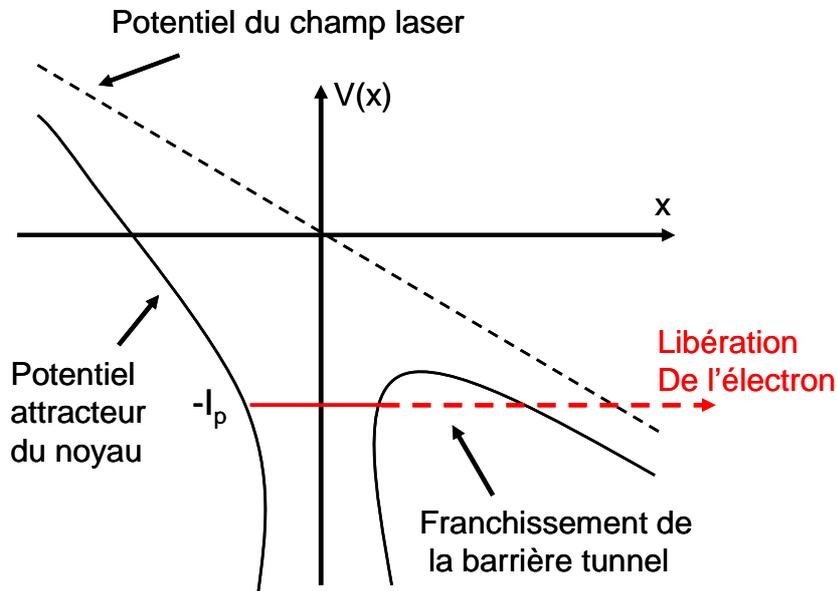


Figure 2.9 : Mécanisme d'ionisation par effet tunnel en présence d'un fort champ électrique laser oscillant.

### Etape 2 : Accélération dans le continuum par le champ du laser

L'électron libéré est accéléré par le champ laser et ne ressent pratiquement plus l'effet du potentiel attracteur du noyau (qui est alors négligé dans l'approximation de champ fort). Il acquiert une énergie cinétique dont la valeur dépend de son instant d'ionisation et de l'instant de sa recombinaison. Sa probabilité de recombinaison à l'ion parent s'exprime par la condition de retour de la trajectoire au voisinage de l'ion qui dépend de l'instant d'ionisation. En polarisation linéaire, l'électron est accéléré toujours dans la

même direction. Seul le sens de variation du champ électrique change, ce qui rend possible un retour au point initial.

### Etape 3 : Recombinaison radiative et émission d'un photon harmonique

Arrivé à proximité du noyau, l'électron a une probabilité non nulle de se recombiner à son ion parent en émettant un rayonnement harmonique. L'énergie de ce rayonnement est égale à la somme du potentiel d'ionisation de l'électron et de son énergie cinétique acquise pendant son passage dans le continuum.

Ce modèle en trois étapes permet de rendre compte des caractéristiques d'un spectre harmonique, c'est-à-dire l'existence d'un plateau suivi d'une coupure vers les ordres harmoniques élevés. En effet, la loi de coupure du plateau harmonique peut être expliquée par le fait que l'énergie maximale acquise par un électron est bornée. Ce maximum correspond à  $3,17.U_p$  où  $U_p$ , donné par la formule ci-dessous, est le potentiel pondéromoteur de l'électron dans le champ laser.

$$U_p(eV) = 5,945 \cdot 10^{-14} I(W/cm^2) \quad (36)$$

L'énergie maximale des harmoniques est la somme de cette énergie maximale ajoutée à l'énergie de liaison de l'atome. Nous en déduisons l'ordre maximum de la coupure donné par l'équation suivante:

$$N_{\max} = (I_p + 3,17 U_p) / E_\omega \quad (37)$$

Où  $I_p$  est le potentiel d'ionisation et  $E_\omega$  est l'énergie du photon laser (à la pulsation  $\omega$ ).

L'énergie maximale des harmoniques dépend linéairement de l'intensité laser et dépend du gaz utilisé. Nous utilisons préférentiellement des gaz rares pour générer des harmoniques d'ordre élevé car ils ont les plus grands potentiels d'ionisation et sont simples d'utilisation. Pour notre expérience, nous souhaitons générer une harmonique à la longueur d'onde adaptée au milieu amplificateur, c'est à dire à 32,8 nm. Nous avons donc choisi l'argon qui possède une bonne efficacité de conversion dans cette gamme de longueur d'onde (de l'ordre de  $10^{-5}$  pour H25).

Le rayonnement harmonique, une fois émis par les atomes, se propage dans le milieu gazeux. Une bonne efficacité de génération est obtenue quand les champs émis par les dipôles sont en phase les uns avec les autres (accord de phase). Ils peuvent ainsi interférer

constructivement pour engendrer le champ total. De nombreux effets peuvent influencer le déphasage, comme la géométrie du faisceau laser et le taux d'ionisation.

### 2.2.1.2 Réponse macroscopique

L'efficacité de conversion des harmoniques d'ordre élevé dépend aussi fortement de la réponse macroscopique du milieu générateur. L'émission harmonique macroscopique est optimisée quand l'accord de phase est atteint, c'est à dire quand la différence de phase entre le champ généré et le champ générateur est minimisée au cours de la propagation le long du milieu générateur. Cet accord de phase s'écrit :

$$\vec{\delta k} = \vec{k}_q - q\vec{k} - \vec{K} \quad (38)$$

Où  $\vec{k}$  est le vecteur d'onde du laser fondamental,  $\vec{k}_q$  est le vecteur d'onde de l'harmonique q considérée et  $\vec{K}$  correspond au vecteur d'onde associé à la phase du dipôle atomique calculée lors de la réponse de l'atome unique.

La focalisation du laser introduit un déphasage géométrique (connu sous le nom de phase de Gouy) qui cause une modification du vecteur d'onde  $\vec{k}$  [70]. La relation de dispersion  $k = n \omega/c$  permet d'introduire l'indice du milieu qui dépend de la dispersion atomique, ainsi que la dispersion électronique.

Enfin, la réabsorption des harmoniques par le milieu générateur lui-même peut être un facteur limitant l'efficacité de génération des harmoniques [71].

## 2.2.2 Propriétés des harmoniques d'ordre élevé

### Efficacité de génération et gamme spectrale

Comme nous l'indique la loi de coupure, les photons les plus énergétiques sont produits dans les gaz rares légers. Cependant, l'efficacité de conversion dans les gaz rares plus lourds est plus importante. Le choix du gaz générateur dépend donc étroitement de la gamme spectrale d'intérêt. A titre illustratif la Figure 2.10 montre trois spectres harmoniques obtenus avec 3 gaz différents : le néon, l'argon et le xénon. Dans la gamme

spectrale qui va nous intéresser tout au long de ce manuscrit, nous nous sommes concentrés sur l'argon qui a une bonne efficacité de conversion autour de 30 nm.

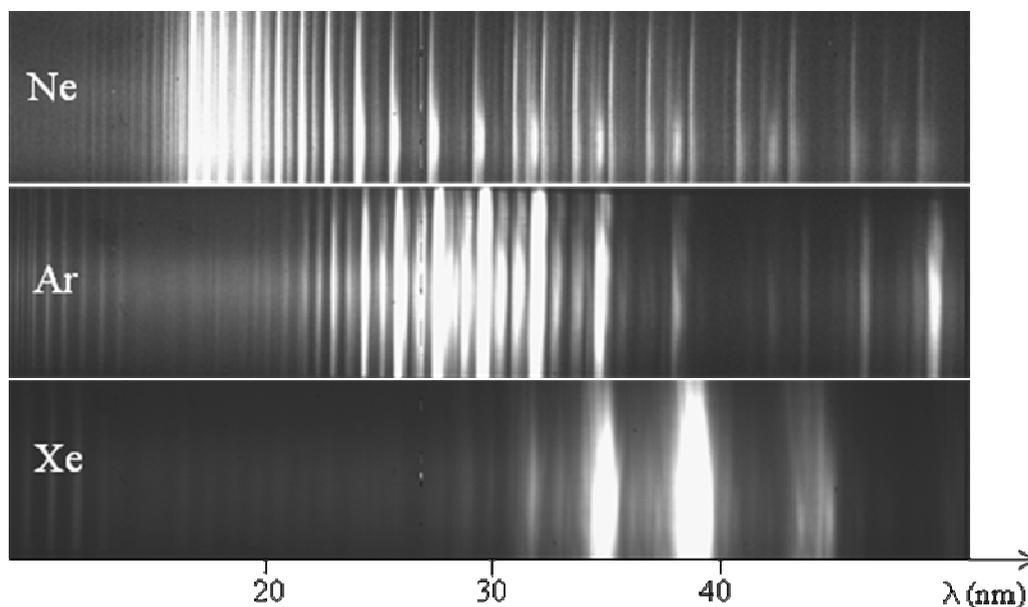


Figure 2.10 : Spectres d'harmoniques d'ordre élevé réalisés dans 3 gaz différents (figure tirée de la thèse de S. Kazamias).

**Le profil spatial** du faisceau harmonique est généralement circulaire avec une divergence de l'ordre du milliradian. Cependant il peut fortement dépendre de la manière dont l'accord de phase est obtenu dans le milieu générateur [72, 73]. Quand le laser est focalisé avant le milieu générateur, le profil spatial est plus étroit alors que, quand le faisceau laser générateur est focalisé après le milieu gazeux, le faisceau harmonique est moins collimaté et montre un creux d'intensité au centre du profil.

**Le front d'onde** des sources harmoniques a été relativement peu étudié. Toutefois les quelques analyses réalisées montrent que le front d'onde des sources harmoniques est généralement de bonne qualité [74]. Comme le montre la Figure 2.11, des variations moyennes de front d'onde de l'ordre de  $\lambda/7$  à 32 nm ont été mesurées avec un faisceau harmonique présentant un peu d'astigmatisme.

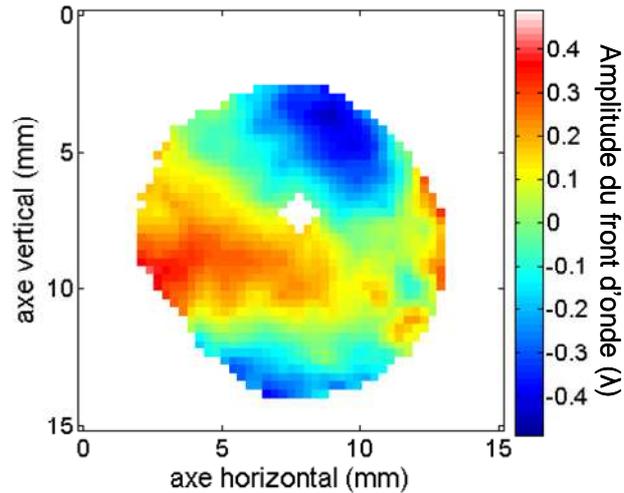


Figure 2.11 : Mesure de front d'onde d'une source harmonique d'ordre élevé.

**La cohérence spatiale** des harmoniques a été mesurée par de nombreux groupes à l'aide de différents diagnostics tels que les doubles fentes de Young ou des interféromètres [75, 76, 77]. Même si la cohérence spatiale du faisceau peut être altérée pour des hautes intensités laser, elle reste généralement excellente.

Grâce au modèle à trois étapes, nous montrons aussi que les harmoniques sont émises sous forme d'un **train d'impulsions attosecondes** ( $as = 10^{-18}$  s), dont l'écart entre deux impulsions est égal au demi cycle du laser fondamental (1,3 fs). La mesure de la structure temporelle des impulsions a été rendue possible grâce à la méthode RABBITT [78] ("Reconstruction of Attosecond harmonic Beating By Interference of Two-photon Transitions") utilisant un spectromètre à électrons. Une première expérience avec cette méthode a permis de mesurer des impulsions d'une durée de 250 as considérant 5 harmoniques du plateau bloquées en phase [79]. Lors de la reconstruction du train d'impulsions à la limite de Fourier, nous pouvons calculer la durée des impulsions en fonction du nombre  $N$  d'harmoniques bloquées en phase :  $T/(2N)$  où  $T$  est la période du laser infrarouge = 2,67 fs. Cependant, il a été démontré que les impulsions attosecondes présentent une dérive de fréquence quadratique qui élargit considérablement la durée des impulsions attosecondes [80, 81], dû au fait que les différentes harmoniques du plateau ne sont pas émises au même instant. Par contre, les harmoniques de la coupure étant toutes en phase ne subissent pas de dérive de fréquence.

L'intérêt de cette source est de pouvoir sonder la dynamique des électrons à une échelle temporelle proche du temps atomique [82] (durée correspondant à une rotation de l'électron de Bohr autour du noyau d'hydrogène). Pour les applications, il est préférable de disposer d'une seule impulsion attoseconde intense. Pour générer une impulsion unique, différentes équipes ont proposé plusieurs schémas [83] : utilisation d'un laser de très courte durée dont la phase de la porteuse est bloquée [84], utilisation d'une porte de polarisation avec des impulsions laser plus longues [85], l'utilisation de deux lasers à des fréquences différentes [86, 87], ou encore le combiné des deux méthodes [88]. Nous recherchons aussi à diminuer la durée de l'impulsion attoseconde en s'affranchissant de la dérive de fréquence intrinsèque par : le filtrage des harmoniques de la coupure [89], l'utilisation d'un filtre métallique qui compense la dérive intrinsèque pour les harmoniques du plateau [90], ou encore l'utilisation d'un miroir à dérive de fréquence à des longueurs d'onde XUV [91, 92].

**La cohérence temporelle** des harmoniques d'ordre élevé a été mesurée en 1998 [93]. En mesurant simultanément la durée de l'émission et son spectre, les mesures ont montré que  $\Delta\nu\Delta\tau \approx 2$ , résultat proche de la limite de Fourier, ce qui prouve que la cohérence temporelle des harmoniques est relativement bonne.

## 2.3 L'amplificateur à 32,8 nm dans le krypton nickeloïde

Comme nous l'avons indiqué dès le chapitre 1, la spécificité du laser étudié au cours de cette thèse est qu'il fonctionne non pas en mode ASE, comme c'est le cas pour la plupart des lasers XUV par plasma-laser, mais en mode injecté. Comme nous le verrons par la suite, ceci influe fortement sur le transfert radiatif et sur les propriétés optiques du rayonnement. Toutefois, afin de mieux comprendre les spécificités du régime injecté il est nécessaire de décrire le fonctionnement de l'amplificateur OFI en régime ASE. Le régime injecté sera plus amplement décrit dans les chapitres suivants quand nous présenterons les résultats expérimentaux.

### 2.3.1 Pompage collisionnel dans le krypton nickeloïde

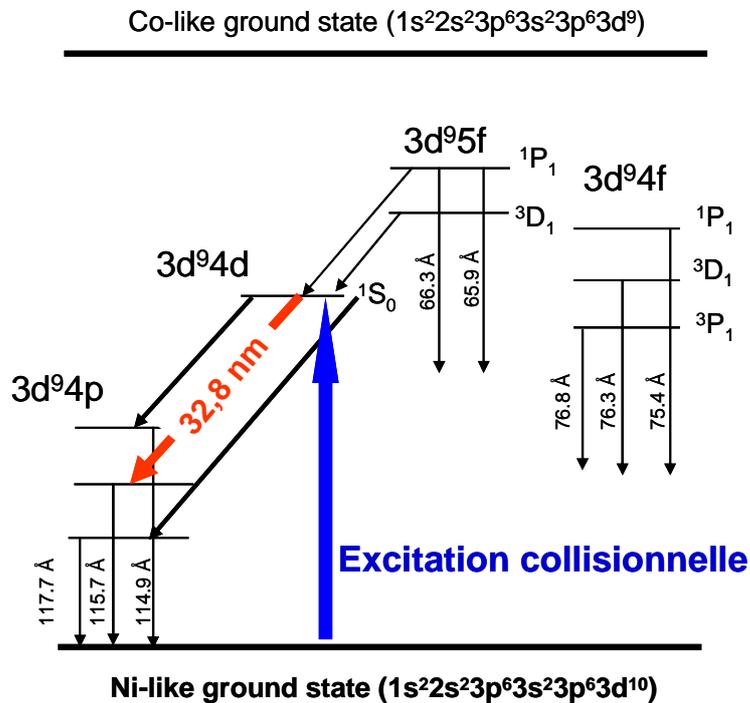


Figure 2.12 : Schéma de représentation de l'inversion de population du Krypton nickeloïde.

Un schéma simplifié des niveaux atomiques du krypton nickeloïde est présenté sur la Figure 2.12. Les excitations collisionnelles vers les différents niveaux s'effectuent à partir du niveau fondamental  $^1S_0 3d^{10}$ . Le niveau  $4d$  est un état métastable et le niveau  $4p$  se dépeuple plus rapidement par désexcitation radiative. Une inversion de population peut être obtenue entre les niveaux  $^1S_0 3d^9 4d$  et  $^1P_1 3d^9 4p$ . L'excitation collisionnelle de l'état fondamental  $^1S_0 3d^{10}$  vers le niveau supérieur  $^1S_0 3d^9 4d$  nécessite des électrons ayant une énergie cinétique supérieure ou égale à 145 eV.

Dans ce schéma de pompage, deux conditions doivent être réalisées simultanément : il faut créer un plasma ayant le bon état d'ionisation et générer des électrons suffisamment énergétiques pour pomper le niveau supérieur de la transition laser. Pour répondre à ces deux conditions, il faut que le laser infrarouge délivre un éclairement supérieur à  $5 \cdot 10^{16} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$  et soit en polarisation circulaire ou elliptique.

### 2.3.2 Emissivité et coefficient de gain

Un rayonnement provenant d'une transition atomique peut être caractérisé par deux grandeurs spectrales : l'émissivité  $j(\nu)$  et le gain  $g(\nu)$ .

**L'émissivité** est la densité spectrale d'énergie rayonnée produite par unité de volume et par unité de fréquence :

$$j(\nu) = N_2 h \nu A(\nu) \quad (\text{W cm}^{-3} \text{Hz}^{-1}) \quad (39)$$

avec  $h$  la constante de Planck,  $\nu$  la fréquence de l'émission,  $N_2$  la population du niveau supérieur de la transition atomique et  $A(\nu)$  le coefficient d'Einstein qui exprime la probabilité de l'émission spontanée par intervalle de fréquence. Ce coefficient peut s'écrire comme le produit de la probabilité totale  $A$  de l'émission spontanée de la transition entre les deux niveaux et de la fonction normalisée  $\Phi(\nu)$  donnant le profil de raie, comme suit :

$$A(\nu) = \Phi(\nu) A \quad (40)$$

avec  $\Phi(\nu)$  vérifiant :

$$\int_0^{+\infty} \Phi(\nu) d\nu = 1 \quad (41)$$

**Le gain**  $g(\nu)$  renseigne sur les qualités amplificatrices du milieu et est défini par :

$$g(\nu) = \left( N_2 - \frac{g_2}{g_1} N_1 \right) \frac{c^2}{8\pi \nu^2} A \Phi(\nu) \quad (\text{cm}^{-1} \text{Hz}^{-1}) \quad (42)$$

où  $g_2$  et  $g_1$  sont respectivement les dégénérescences des niveaux supérieur et inférieur.

Pour nous permettre de calculer l'émissivité et le coefficient de gain de notre amplificateur plasma à 32,8 nm nous utiliserons sur un code collisionnel-radiatif qui permet de calculer la dépendance temporelle des paramètres qui contribuent à l'amplification XUV. Le plasma généré par OFI évolue essentiellement à cause des collisions électron-ion et électron-électron. Sur une petite échelle de temps, les collisions électron-ion peuplent les états excités de l'ion lasant et notamment les niveaux inférieurs et supérieurs de la transition laser. L'ionisation des ions  $\text{Kr}^{8+}$  par collision électron-ion met fin à l'amplification en faisant disparaître l'ion lasant. Dans un premier temps, le code calcule la distribution énergétique des électrons selon un modèle proposé par Pert [94]. La

distribution des électrons est calculée en un point sur l'axe du faisceau laser en fonction du temps à partir du passage du laser ( $t = 0$ ). Pour les données atomiques, nous avons considéré 128 niveaux de  $\text{Kr}^{8+}$ . Les taux de collisions [95] ainsi que les données atomiques du krypton ont été calculés par un code appelé « superstructure » [96]. Ainsi, le code utilise ces données pour calculer le coefficient de gain et l'émissivité. Il permet aussi de calculer l'intensité de saturation et la largeur de raie dont nous parlerons par la suite. Les paramètres d'entrée de ce code sont la densité atomique du Krypton et les paramètres du laser infrarouge sont : l'éclairement, la durée d'impulsion, la longueur d'onde et la polarisation du laser de pompe.

A titre illustratif, la Figure 2.13 montre l'évolution du coefficient de gain calculé dans un cas typique après le passage du laser infrarouge ( $t = 0$ ). Cet exemple a été calculé à une pression de 20 mbar et avec des paramètres du laser infrarouge proches des valeurs expérimentales tels que :  $I_{\text{max}}=10^{17} \text{ W/cm}^{-2}$ , durée= 30 fs et polarisation circulaire. Nous observons, sur cet exemple, que le gain augmente rapidement, atteint son maximum ( $150 \text{ cm}^{-1}$ ) autour de 3 picosecondes après la création du plasma, puis diminue lentement : les collisions des électrons-ions conduisent à une surionisation du plasma et détruisent le milieu amplificateur.

Les mesures que nous présenterons dans les chapitres suivant seront intégrées temporellement. En conséquence, les gains mesurés seront plus proches des valeurs du coefficient de gain moyennées dans le temps. En régime ASE, nous pourrions considérer alors le gain dit effectif qui est de l'ordre de  $G_{\text{eff}} \approx 40 \text{ cm}^{-1}$  dans le cas de la Figure 2.13.

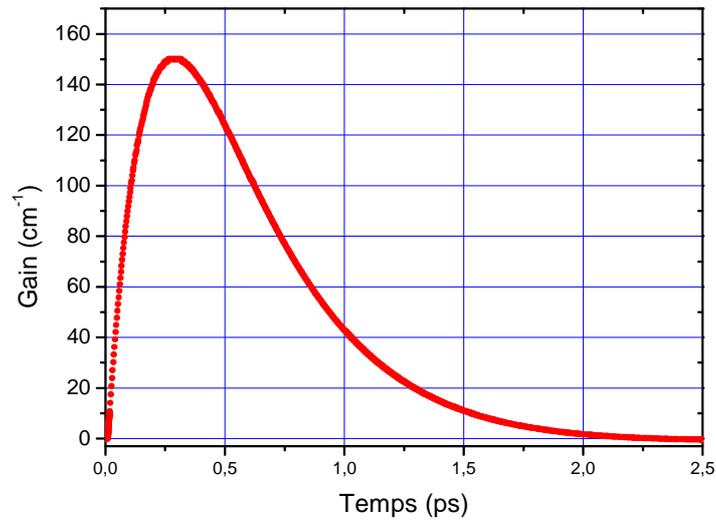


Figure 2.13 : Evolution du facteur du gain après le passage du laser infrarouge. Ce calcul a été réalisé pour une pression de krypton de 20 mbar et avec des paramètres du laser infrarouge proches des valeurs expérimentales:  $I_{\max} = 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>, durée= 30 fs et polarisation circulaire.

### 2.3.3 Transfert radiatif

Nous cherchons maintenant à décrire l'amplification de l'émission laser XUV au cours de sa propagation le long d'une colonne de plasma. Pour cela nous calculons l'intensité du rayonnement le long de cette colonne. Nous considérons un milieu amplificateur homogène de forme cylindrique de longueur  $L$  et de rayon  $a$  avec la condition  $a < L$  (Figure 2.14). Le rayonnement est émis selon un angle solide  $\Omega = \frac{\pi a^2}{L^2}$ ; nous négligeons pour le moment l'effet de réfraction du rayonnement X.

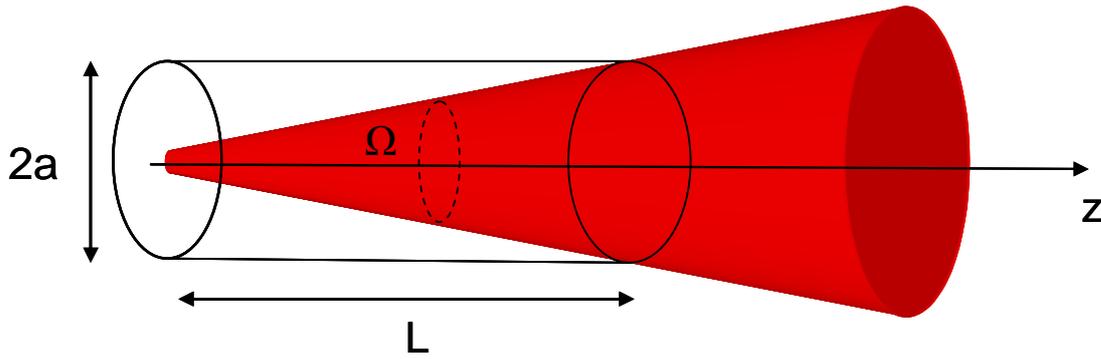


Figure 2.14 : Géométrie simplifiée pour définir l'intensité produite par un milieu actif.

L'intensité de rayonnement émis à la fréquence  $\nu$  est dépendant des processus d'absorption et d'émission stimulée et suit l'équation de transfert radiatif. Elle s'écrit sous la forme :

$$\frac{dI(z, \nu)}{dz} = j(\nu) + g(\nu)I(z, \nu) \quad (43)$$

En intégrant l'équation précédente, nous obtenons l'intensité spectrale  $I(z, \nu)$  émise à la fréquence  $\nu$  à la sortie du milieu amplificateur en petit signal (sans saturation), soit :

$$I(L, \nu) = \frac{j(\nu)}{g(\nu)} \left( e^{g(\nu)L} - 1 \right) \quad (44)$$

Cette expression montre que l'intensité croît de façon exponentielle avec la longueur du plasma dans le cas d'un gain positif, c'est-à-dire avec une inversion de population entre les niveaux 1 et 2. Nous avons vu que les coefficients du gain  $g(\nu)$  et d'émissivité  $j(\nu)$  décrivent les processus d'absorption et d'émission du plasma mais dépendent également du profil de raie  $\Phi(\nu)$ . Cependant, nous pouvons approximer  $\nu$  par la fréquence centrale  $\nu_0$  dans les expressions de l'émissivité (39) et du gain (42). En effet, les largeurs spectrales des transitions sont inférieures de plusieurs ordres de grandeur à la fréquence de rayonnement émis. Nous considérons donc l'égalité suivante :

$$\frac{j(\nu)}{g(\nu)} = \frac{j_0}{g_0} \quad (45)$$

où  $j_0$  et  $g_0$  sont respectivement l'émissivité et le gain au centre de la raie. L'intensité émise (45) devient :

$$I(L, \nu) = \frac{j_0}{g_0} \left( e^{g_0 L} - 1 \right) \quad (46)$$

Lindford *et al.* [97] ont donné une expression analytique de l'intensité totale dans le cas de profil de raie quelconque. Dans le cas d'une raie gaussienne, celle-ci peut s'écrire :

$$I(L) = \frac{\sqrt{\pi} j_0 \left[ e^{g_0 L} - 1 \right]^{3/2}}{2 \sqrt{\ln 2} g_0 L e^{g_0 L}} \quad (47)$$

Cette formule est une très bonne approximation pour des produits gain ( $g_0 L$ ) longueur supérieurs à 3 comme c'est le cas dans les lasers XUV pompés par excitation collisionnelle. La croissance exponentielle de l'intensité permet d'obtenir un laser XUV intense sur des longueurs assez courtes (sur une dizaine de millimètres). Le terme  $g_0 \cdot L$  montre un rétrécissement du profil par le gain. Cependant, contrairement à ce qu'exprime la formule de Lindford, l'intensité ne croît pas indéfiniment en fonction de la longueur du milieu amplificateur. En effet, à partir d'une certaine intensité, l'émission stimulée diminue l'inversion de population et donc le gain laser. Nous rentrons alors dans un régime de saturation.

### 2.3.4 Régime de saturation

Le régime de saturation se produit lorsqu'il y a une diminution de l'inversion de population et, par conséquent, une chute du coefficient de gain. En effet, à partir d'une longueur du milieu amplificateur assez grande, le dépeuplement du niveau supérieur par l'émission stimulée et le peuplement du niveau de la transition lasante sont en équilibre, ce qui entraîne une diminution du gain (voir Figure 2.15). Introduisons l'intensité correspondant à ce régime que nous appellerons intensité de saturation. Elle est définie comme l'intensité pour laquelle le gain (ou l'inversion de population) est diminué de moitié. Le gain s'écrit alors :

$$G(\nu) = \frac{G_0(\nu)}{1 + \frac{\bar{I}}{I_s}} \quad (48)$$

où  $\bar{I}$  est l'intensité moyennée sur le profil spectral  $\phi(\nu)$  :  $\bar{I} = \int_0^{+\infty} \phi(\nu) I(\nu) d\nu$  et  $I_s$  est l'intensité de saturation qui s'écrit sous la forme :

$$I_s = \frac{h \nu}{\sigma \tau_r} \quad (49)$$

où  $\tau_r$  est le temps de recouvrement du gain, et  $\sigma$  la section efficace définie par :

$$\sigma = \frac{\lambda^2 A}{8\pi \Delta\nu} \quad (50)$$

avec  $A$  le coefficient d'Einstein et  $\Delta\nu$  la largeur à mi-hauteur du profil de raie.

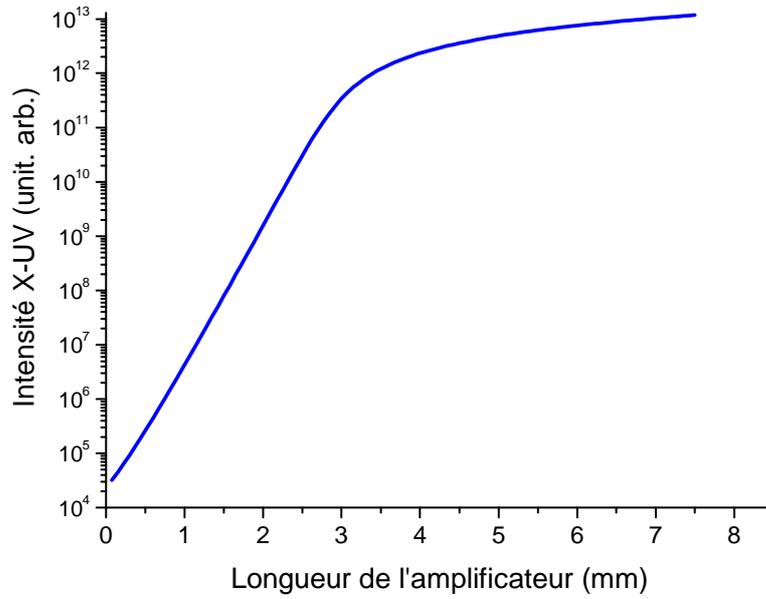


Figure 2.15 : Intensité intégrée spectralement d'un laser XUV en fonction de la longueur de l'amplificateur. Le gain max est ici de  $80 \text{ cm}^{-1}$ , valeur correspondant à une mesure du gain de la transition 4d-4p [48]. La saturation intervient ici pour une longueur légèrement inférieure à 2 mm.

La résolution de l'équation de transfert radiatif nous permet de définir un produit gain-longueur dans le cas où l'intensité de saturation serait égale à l'intensité émise :

$$(g.L)_{sat} = \ln\left(\frac{4\pi \Delta N}{\Omega N_2 A \tau_r}\right) \quad (51)$$

où  $\Omega$  est l'angle solide et  $\Delta N = N_2 - N_1$ .

Nous pouvons voir dans cette équation que la valeur de  $(g.L)_{sat}$  dépend de la géométrie du milieu et des caractéristiques atomiques du milieu. De plus, le régime de saturation est caractérisé par une croissance linéaire de l'intensité.

### 2.3.5 Largeur spectrale

La largeur spectrale du rayonnement émis est déterminée par deux sources d'élargissement spectral :

- L'élargissement homogène
- L'élargissement inhomogène

**L'élargissement homogène** affecte tous les émetteurs de la même manière. Il est déterminé par la durée de vie des différents niveaux intervenant dans la transition. Cette durée de vie est limitée par la désexcitation spontanée de l'émetteur et aussi par les collisions des électrons. Le profil spectral homogène prend une forme de type Lorentzien :

$$\phi(\nu, \nu_0) = \frac{2}{\pi \Delta \nu_L} \frac{1}{1 + \frac{4(\nu - \nu_0)^2}{(\Delta \nu_L)^2}} \quad (52)$$

où  $\nu_0$  est la fréquence centrale et  $\Delta \nu_L$  la largeur spectrale exprimée en unité de fréquence.

L'élargissement homogène a été calculé à l'aide du code COFIXE qui prend en compte la nature non maxwellienne de la distribution d'énergie des électrons. Nous obtenons dans le cas du krypton  $\Delta \lambda_L = 5 \text{ m}\text{\AA}$ .

De manière générale, **l'élargissement inhomogène** est causé par le fait que tous les émetteurs ne rayonnent pas à la même fréquence centrale  $\nu_0$ . Il existe deux types d'élargissements inhomogènes, l'élargissement Doppler et l'élargissement Stark.

**L'élargissement Doppler** est lié à l'agitation thermique des ions émetteurs et conduit à un profil spectral gaussien :

$$S(\nu, \nu_0) = \frac{1}{\Delta \nu_D} \left( \frac{4 \ln 2}{\pi} \right)^{1/2} \exp \left( \frac{-4 \ln 2 (\nu - \nu_0)^2}{(\Delta \nu_D)^2} \right) \quad (53)$$

où  $\nu_0$  est la fréquence centrale et  $\Delta \nu_D$  la largeur spectrale définie par :

$$\Delta \nu_D = \frac{2k_b \nu_0 \sqrt{2 \ln 2}}{c M_p} \sqrt{\frac{T_i (eV)}{A(g)}} \quad (54)$$

avec  $M_p$  la masse du proton et  $A$  le nombre de masse,  $k_b$  la constante de Boltzman et  $c$  la vitesse de la lumière.

Dans le cas des plasmas OFI, l'élargissement Doppler est introduit par les ions rapidement chauffés (quelques centaines de fs) qui résultent de l'ionisation par le champ du laser. Des travaux théoriques ont en effet montré que le plasma OFI est produit dans un état où d'importantes corrélations entre les ions existent [98]. Le plasma se détend rapidement avec un temps égal à la période du plasma (sur quelques centaines de fs). Pour les conditions de l'amplificateur OFI, la température atteinte par les ions après cette relaxation est égale à  $T_i = 6$  eV. Nous prenons en compte cet effet en supposant un élargissement non homogène conduisant à un profil spectral gaussien  $S(\nu, \nu_0)$  et il a été calculé, toujours dans le cas du krypton, un  $\Delta\nu_D = 7\text{ m}\text{\AA}$ .

**L'élargissement Stark** est dû au champ électrique extérieur à l'ion créé par son environnement qui en modifie les niveaux d'énergies. Comme cet environnement dépend de chaque ion, l'effet statistique conduit à un élargissement global. C'est un effet qui croît avec la densité. Les ions et les électrons créent un champ électrique  $F$  au point où se trouve chaque ion rayonnant. Des simulations réalisées avec le code Pim-Pam-Poum [99] nous ont montré que l'effet Stark ionique peut être négligé (voir Figure 2.16). Cet effet ne devient significatif qu'à très haute densité.

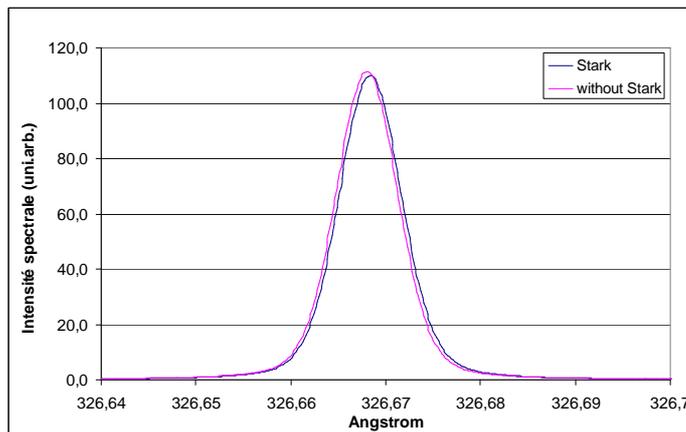


Figure 2.16 : Largeur spectrale calculée avec le code Pim-pam-poum avec et sans effet Stark pour une pression de 30 mbar de krypton. La composante homogène est sous-estimée car la distribution non maxwellienne des électrons n'est pas prise en compte dans le code.

L'élargissement inhomogène est donc principalement dominé par l'effet Doppler. Les deux types d'élargissements coexistent pour le calcul de la largeur spectrale de l'harmonique amplifiée. L'évolution du profil spectral en fonction de la longueur d'amplification a été calculée suivant Koch *et al.* [100] en résolvant l'équation différentielle ci-dessous :

$$\frac{dI(\nu, z)}{dz} = \left( \frac{j(\nu_0)}{\Phi(\nu_0)} + \frac{G_0 I(\nu, z)}{\phi(\nu_0)} \right) \times \int_0^\infty \frac{S(u) \phi(\nu, u)}{1 + \frac{1}{I_{sat}} \int I(\nu', z) \phi(\nu', u) d\nu'} du \quad (55)$$

$j(\nu_0)$  est la densité de puissance de l'émission spontanée,  $I_{sat}$  est l'intensité saturation,  $G_0$  le gain petit signal, et  $\Phi$  le profil de Voigt résultant de la convolution du produit des profils homogène et inhomogène  $\phi$  et  $S$ .

L'évolution de la largeur de la raie 4d-4p (à mi-hauteur) en fonction de la longueur d'amplification est représentée sur la Figure 2.17 pour un fonctionnement en régime ASE. Dans le domaine où l'amplification est exponentielle, la largeur de raie avant amplification est divisée par un facteur de l'ordre de  $\sqrt{g.L}$  où  $g.L$  et le produit gain-longueur effectif. Cette évolution prend fin lorsque la saturation de l'amplification devient importante. Comme le montre la Figure 2.17, dans le régime de saturation, la largeur de la raie amplifiée peut augmenter avec la longueur du plasma si la température ionique, qui détermine l'élargissement Doppler de la transition, est élevée. Le calcul a été réalisé pour trois températures ioniques (6, 24 et 54 eV) avec un gain de  $80 \text{ cm}^{-1}$  (valeur expérimentale [48]), une largeur homogène égale à  $\Delta\lambda_H = 5 \text{ m\AA}$  (calculée par le code de physique atomique) et sur une longueur de 7,5 mm. Nous observons que le rélargissement de la raie par la saturation est très important pour une température ionique de 54 eV ( $\Delta\lambda_D = 21 \text{ m\AA}$ ) alors qu'aucun rélargissement par la saturation n'est observé pour une température de 6 eV, ceci en raison de l'importante contribution de l'élargissement homogène.

Avec les valeurs de la contribution homogène et inhomogène calculées précédemment avec le code de physique, la résolution de l'équation (55) donne une largeur spectrale à mi-hauteur de  $2,8 \text{ m\AA}$  (courbe en noire) en régime ASE.

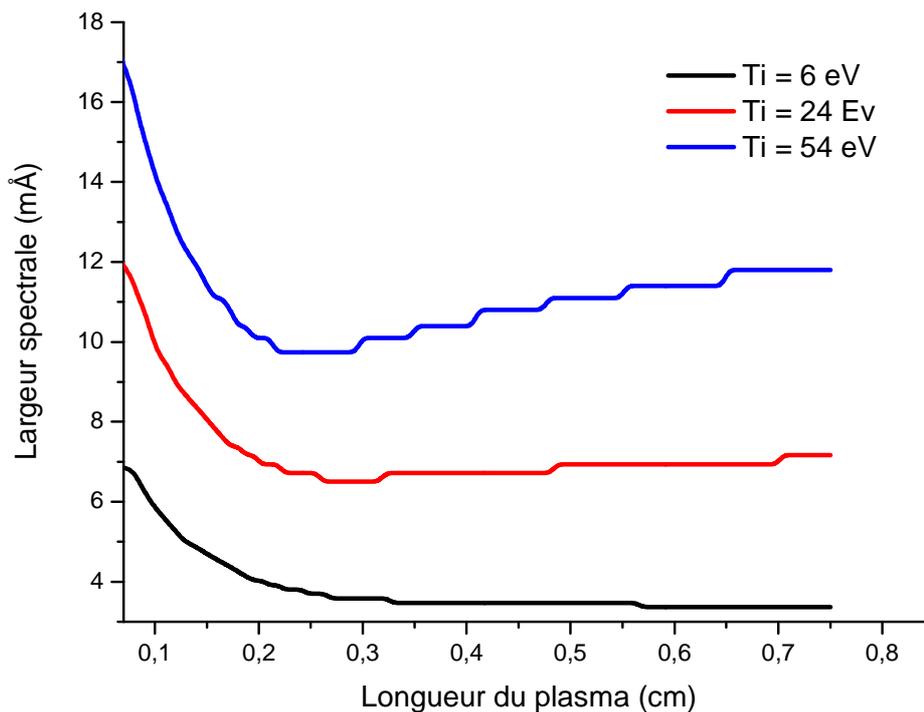


Figure 2.17 : Evolution de la largeur à mi-hauteur de la raie à 32,8 nm, calculée en fonction de la longueur d'amplification. :  $g_0 = 80 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\Delta\lambda_H = 5 \text{ mÅ}$ . Trois températures ioniques différentes, correspondant à trois élargissements Doppler différents, sont considérées.

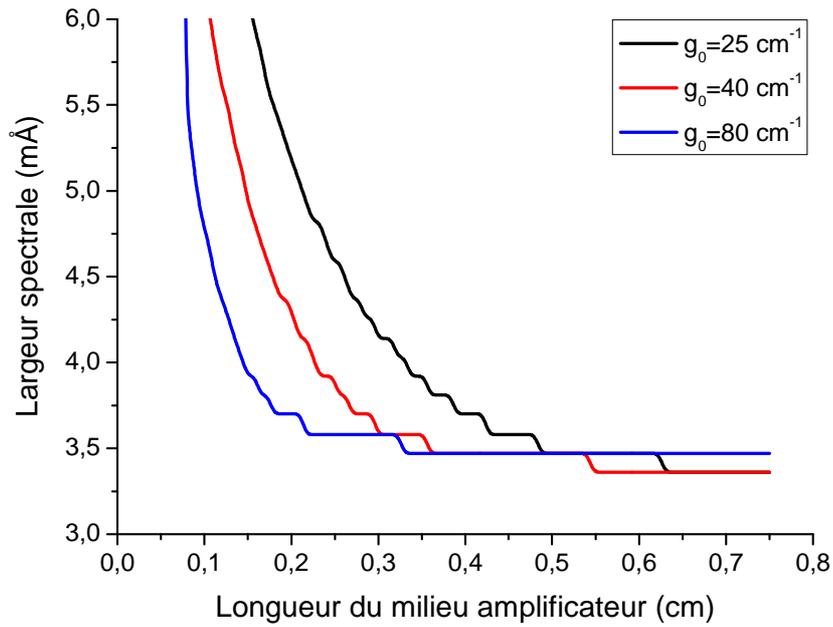
### Cas spécifique du laser en mode injecté

La prise en compte de l'évolution de la largeur spectrale au cours de l'amplification prend une grande importance pour l'amplification d'harmonique par un plasma de laser XUV. En effet, comme nos mesures le confirmeront dans le chapitre 4, la largeur spectrale du gain est bien plus étroite que la largeur spectrale du faisceau harmonique d'injection. Ainsi, le calcul du rayonnement amplifié doit non seulement dépendre du coefficient de gain et de l'intensité de saturation mais aussi du niveau d'intensité de l'harmonique injectée et surtout de sa largeur spectrale.

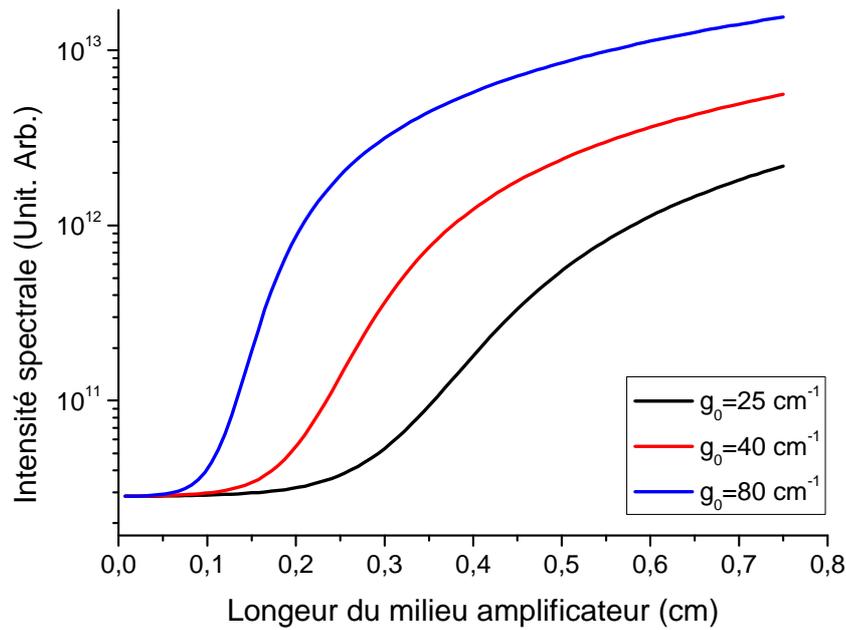
Afin de quantifier l'influence de ces différents paramètres sur l'amplification des harmoniques par notre amplificateur plasma, nous avons adapté le modèle de l'équation (55). Pour cela, l'émission spontanée a été négligée et l'énergie de l'harmonique injectée a

été calculée par rapport à l'intensité de saturation de telle sorte à obtenir une amplification proche de celle mesurée expérimentalement. Pour le calcul nous avons pris une valeur de la largeur spectrale de l'harmonique autour de 0,1 nm.

L'évolution de la largeur spectrale (à mi-hauteur) de la transition 4d-4p en fonction de la longueur d'amplification est représentée sur la Figure 2.18(a). Le calcul a été réalisé pour trois valeurs de gain : 80, 40 et 25  $\text{cm}^{-1}$ . Dans les trois cas, le calcul montre que la largeur spectrale diminue rapidement avec la longueur de l'amplificateur jusqu'à ce que le régime de saturation soit atteint. Comme nous pouvions nous y attendre, plus la valeur du gain est élevée plus vite le régime de saturation sera atteint. Ensuite, la largeur spectrale diminue très lentement avec la longueur. Notons qu'aucun rélargissement par la saturation n'est observé en raison de l'importante contribution de l'élargissement homogène. La Figure 2.18 (b), nous montre l'évolution de l'intensité de l'harmonique amplifiée en fonction de la longueur du plasma. Contrairement à la courbe de gain de l'émission ASE (Figure 2.15), l'amplification de l'harmonique ne devient significative qu'à partir d'une certaine longueur de plasma (de 1 à 2 mm pour les coefficients de gain considérés ici). Cette longueur de plasma sur laquelle il n'y a pas d'amplification sera d'autant plus importante que le gain petit signal sera grand. Ce retard à l'amplification est dû au fait que le faisceau injecté a une largeur spectrale beaucoup plus grande que celle du gain. Une infime fraction de cette énergie initiale est donc amplifiée. Pour que sa contribution à l'énergie totale soit significative, il faut une amplification importante. Nous reviendrons sur ce point dans les prochains chapitres.



(a)



(b)

Figure 2.18 : (a) Evolution de la largeur à mi-hauteur de la raie à 32,8 nm, calculée pour trois valeurs de gain (25, 40, 80  $\text{cm}^{-1}$ ) en fonction de la longueur d'amplification. (b) Intensité intégrée spectralement d'un laser XUV en fonction de la longueur de l'amplificateur pour les mêmes valeurs de gain.