

# Contrôle spectral actif des harmoniques

En tant que source de photons XUV ultracourte en vue d'applications, les harmoniques présentent l'avantage sur le laser X par exemple de couvrir une large bande spectrale, à travers les différents ordres harmoniques du plateau. Or, les ordres harmoniques nominaux correspondent à des fréquences qui sont des multiples impairs de la fréquence du laser excitateur. Pour le laser infrarouge que nous avons utilisé, les énergies de photons d'harmoniques consécutives sont séparées d'environ 3eV. L'intérêt de la démonstration du contrôle spectral des harmoniques est de montrer qu'on peut jouer sur la longueur d'onde des harmoniques et idéalement être capable de déplacer une harmonique donnée de 1,55 eV dans un sens et dans l'autre pour pouvoir couvrir ainsi toutes les longueurs d'ondes du domaine XUV, comme le peuvent déjà les installations synchrotron.

Comme nous l'avons vu précédemment, l'optimisation des harmoniques est relativement complexe en ce sens qu'elle implique des phénomènes couplés spatialement et temporellement, tant au niveau macroscopique que microscopique. De nombreux auteurs ont déjà souligné l'importance de l'élargissement spectral des harmoniques dû entre autres, au rôle de la phase atomique et de l'ionisation progressive du milieu [1],[2],[3]. Des démonstrations expérimentales de la possibilité de réduire cet élargissement ont été réalisées en vue d'obtenir des harmoniques distinctes les unes des autres, et brillantes spectralement, y compris dans la gamme spectrale proche de la coupure. Dans les références [2] et [3] notamment, ce contrôle de l'émission harmonique est obtenu en pré-compensant le chirp induit lors de la génération des harmoniques, par un chirp sur le laser infrarouge. Enfin, le groupe de H. Kapteyn et M. Murnane aux Etats-unis a obtenu des résultats importants de contrôle de l'émission harmonique, par utilisation d'un algorithme génétique pilotant un contrôle spectral du laser excitateur [4] et [5]. Ils ont ainsi été capables d'optimiser de façon préférentielle une seule harmonique du spectre : la brillance spectrale de l'harmonique 27 est augmentée d'un facteur 8 alors que pour les ordres harmoniques adjacents l'augmentation est seulement de 2. Ce résultat est toutefois assez controversé car il n'a pu être redémontré expérimentalement par les équipes concurrentes.

Les études précédentes se concentrent essentiellement sur la brillance spectrale ou le caractère discret des spectres, mais assez peu sur la valeur effective de la longueur d'onde centrale d'une harmonique. Notre optimisation de la génération d'harmoniques s'est fixé cet objectif en utilisant un algorithme génétique pilotant un contrôle actif de la phase et l'amplitude spectrales du laser infrarouge.

Dans une première partie, nous exposerons les processus physiques qui peuvent induire une modification spectrale de l'émission harmonique. Nous présenterons ensuite le dispositif expérimental qui nous a permis d'obtenir un contrôle spectral des harmoniques, pour conclure par une comparaison des résultats expérimentaux avec les prédictions de notre code, ayant ici pour conditions initiales les formes temporelles de l'impulsion laser infrarouge correspondant à l'optimisation.

## **6.1. Physique des décalages spectraux des harmoniques**

De nombreux effets entrant dans la génération d'harmoniques sont susceptibles d'induire une variation temporelle de la phase du champ qui se construit progressivement dans le milieu

gazeux. Cette variation temporelle a des conséquences dans le domaine spectral et explique l'élargissement ou le décalage spectral des harmoniques.

Dans le cas de la configuration longue focale définie au chapitre 3, un champ qui se propage peut s'écrire sous la forme (convention Siegman):

$$E(z,t) = |E| \exp(i \mathbf{j}(z,t)) = |E| \exp(-ik(t)z + i \mathbf{w}(t)t) + c.c. \quad (6.1)$$

$\mathbf{j} = -kz + \mathbf{w}t$  est la phase spatio-temporelle du champ ;  $\frac{\mathbf{j}}{t}$  définit localement la pulsation du champ.

Dans les cas pour lesquels  $k$  dépend du temps, on observe un décalage spectral par rapport à la fréquence centrale  $\omega$  tel que :

$$d\mathbf{w} = -\frac{\mathbf{j}}{t}(kz) \quad (6.2)$$

Ce décalage peut s'ajouter à un éventuel décalage dû à la variation en temps de la fréquence centrale du laser, appelée également « chirp ».

C'est ainsi qu'on peut exprimer le décalage spectral d'une harmonique à partir de l'expression du champ. En reprenant les conclusions du chapitre 3, on peut écrire localement la phase du champ harmonique résultant de la propagation sur une longueur  $z$  de la polarisation à la fréquence  $q\omega$  :

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_q &= d\mathbf{k} \cdot z + q\mathbf{w}t \\ \mathbf{j}_q &= \mathbf{a}l(z,t) + \frac{q\mathbf{w}}{c} z \left( \frac{n_e}{2n_c} - d n_{at} \right) + q \arctan(z/z_0) + q\mathbf{w}t \quad (6.3) \\ \text{il suit : } d\mathbf{w} &= \mathbf{a} \frac{\mathbf{j}l}{t} + \frac{q\mathbf{w}(t)}{c} z \left( \frac{1}{2n_c} \frac{\mathbf{j}n_e}{t} - \frac{\mathbf{j}}{t} d n_{at} \right) \end{aligned}$$

Nous allons par la suite expliciter chacun des termes apparaissant dans l'équation (6.3) et montrer son influence sur les spectres harmoniques obtenus. En pratique, le champ harmonique en sortie résulte de l'intégrale des termes de propagation sur toute la longueur du milieu. On obtient le spectre harmonique total en faisant la transformée de Fourier du champ harmonique dépendant du temps. Les résultats théoriques présentés sont issus du code de propagation 1D adapté de la sorte au domaine spectral.

### 6.1.1. Importance de la pulsation instantanée du laser

Les harmoniques étant par nature des sous-multiples impairs de la longueur d'onde du laser, la méthode la plus évidente pour contrôler la longueur d'onde des harmoniques est d'accorder le laser infrarouge, ou tout au moins de faire varier au cours de l'impulsion, la valeur de sa fréquence centrale. C'est le premier effet d'un contrôle de l'amplitude et de la phase spectrales du laser.

Les impulsions ultracourtes utilisées pour générer des harmoniques sont caractérisées par un spectre relativement large lié à la grande largeur spectrale du gain du cristal de Titane Saphir. Le laser que nous utilisons est centré sur 800 nm avec une largeur totale d'environ 30 nm comme le montre la figure suivante.

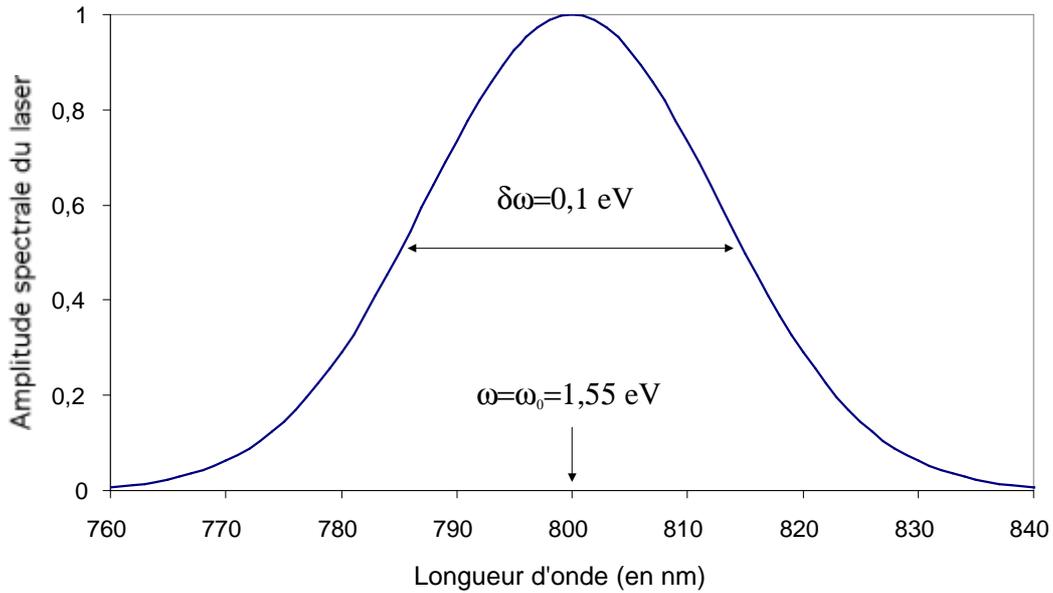


Figure 6.1 : Amplitude spectrale caractéristique d'un laser femtoseconde basé sur l'amplification par un cristal de Titane:Saphir.

Les figures suivantes montrent alors l'excursion par rapport à l'ordre harmonique à la fréquence nominale, comptée en unité d'ordre harmonique, qu'il est possible d'atteindre en générant les harmoniques successives par les différentes fréquences présentes dans l'impulsion laser de pompe. Le zéro de l'axe des abscisses correspond à la longueur d'onde centrale de 800 nm soit 1,55 eV, tandis que le maximum de décalage vaut  $\delta\omega/2=0,05$  eV et correspond aux deux longueurs d'onde extrêmes du spectre c'est-à-dire 785 et 815 nm.

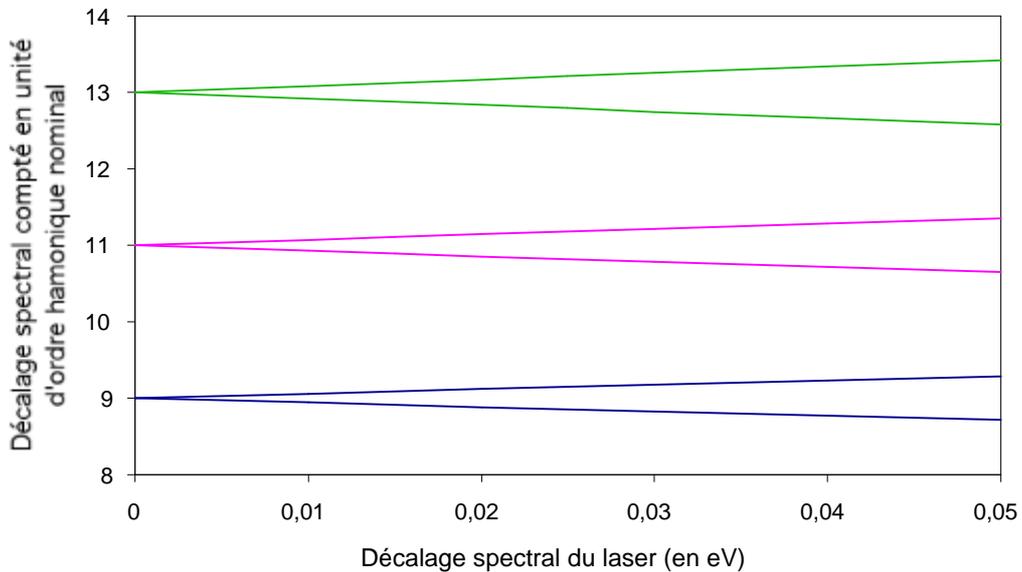


Figure 6.2 : Variation de la fréquence des harmoniques 9, 11, 13 générées par les différentes fréquences présentes dans l'impulsion laser, en unité d'ordre harmonique nominal.

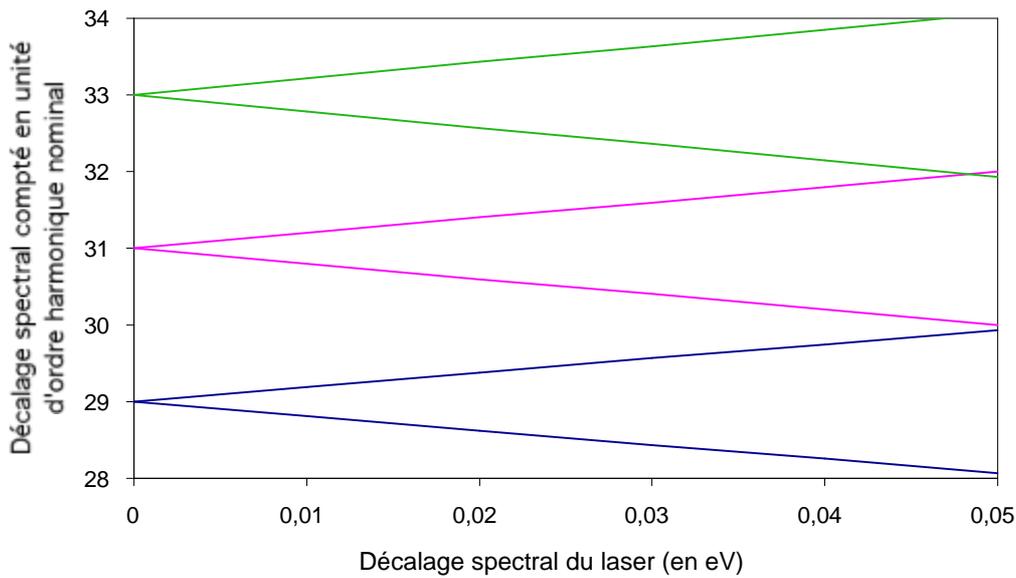


Figure 6.3 : Variation de la fréquence des harmoniques 29, 31, 33 générées par les différentes fréquences présentes dans l'impulsion laser, en unité d'ordre harmonique nominal.

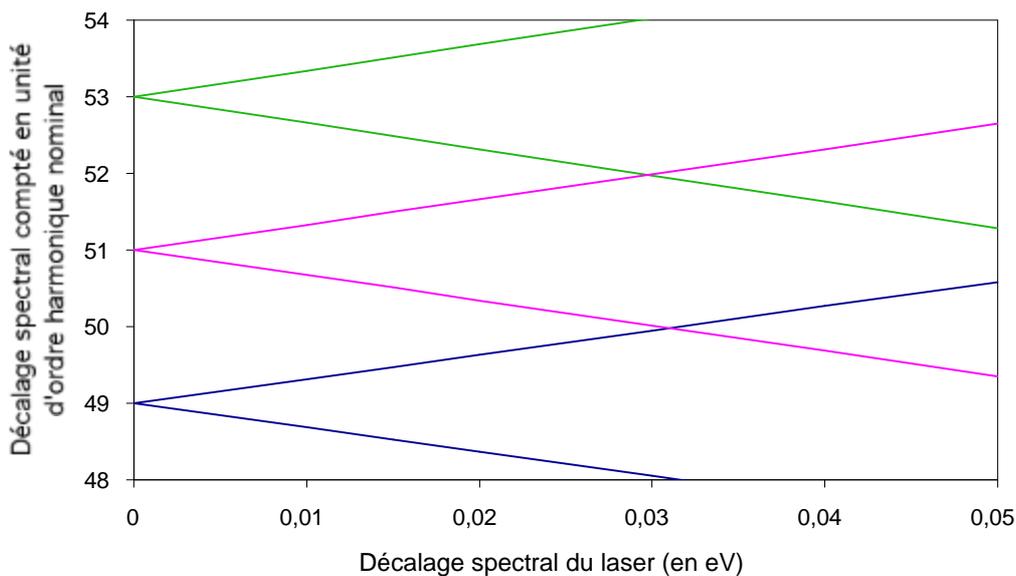


Figure 6.4 : Variation de la fréquence des harmoniques 49, 51, 53 générées par les différentes fréquences présentes dans l'impulsion laser, en unité d'ordre harmonique nominal.

Les trois figures précédentes permettent de comprendre qu'il peut y avoir accordabilité totale des harmoniques si deux harmoniques successives peuvent aboutir à la même longueur d'onde, l'une en étant décalée vers le bleu et l'autre vers le rouge. Cette accordabilité sera d'autant plus facile à atteindre que l'ordre harmonique sera élevé et que la largeur spectrale du laser sera importante.

En effet, si l'on note  $\omega_0$  la fréquence centrale du laser et  $\delta\omega$  sa largeur spectrale à mi-hauteur, il y aura recouvrement de deux harmoniques successives d'ordre  $q$  et  $q+2$  si :

$$q(\omega_0 + d\omega/2) = (q+2)(\omega_0 - d\omega/2) \quad (6.4)$$

c'est-à-dire si :

$$q + 1 = 2 \frac{\omega}{d\omega_0} \quad (6.5)$$

Dans nos conditions expérimentales, la valeur de  $q$  qui permettrait un recouvrement vaut 29. Nous pouvons donc conclure dès à présent qu'un simple chirp du laser ne sera pas capable de permettre l'accordabilité totale des harmoniques les plus intenses générées dans l'argon (ordres 21,23,25), alors que ce sera plus aisé dans le néon et pratiquement impossible dans le xénon. Cependant, on peut amplifier cet effet de décalage spectral dû au laser par un jeu sur les conditions de génération d'harmoniques elles-mêmes qui induisent également des décalages spectraux.

### 6.1.2. Influence de l'ionisation sur le spectre harmonique

Comme nous l'avons vu dans le chapitre sur l'accord de phase, l'indice d'un gaz est modifié par l'ionisation progressive du milieu :  $n$  diminue et avec lui le module de  $k$ . Ceci induit un « décalage vers le bleu » ( $\delta\omega > 0$ ), de la fréquence d'un faisceau laser se propageant dans un milieu en cours d'ionisation [6]. En présence d'une intensité suffisante pour ioniser le milieu, le spectre des harmoniques présente donc une forme caractéristique très asymétrique avec un élargissement vers les fréquences élevées. La figure (6.5) présente les résultats du code utilisé pour prédire les spectres harmoniques produits à différentes intensités laser : pour  $I=10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> dans l'argon, le taux d'ionisation maximal sera quasiment nul alors que pour une intensité de  $5 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, pratiquement tous les atomes seront ionisés au maximum de l'impulsion. Les autres conditions de génération ont été choisies pour minimiser l'influence des autres effets de décalages spectraux : pression assez faible, pas de phase atomique et faible longueur de cellule.

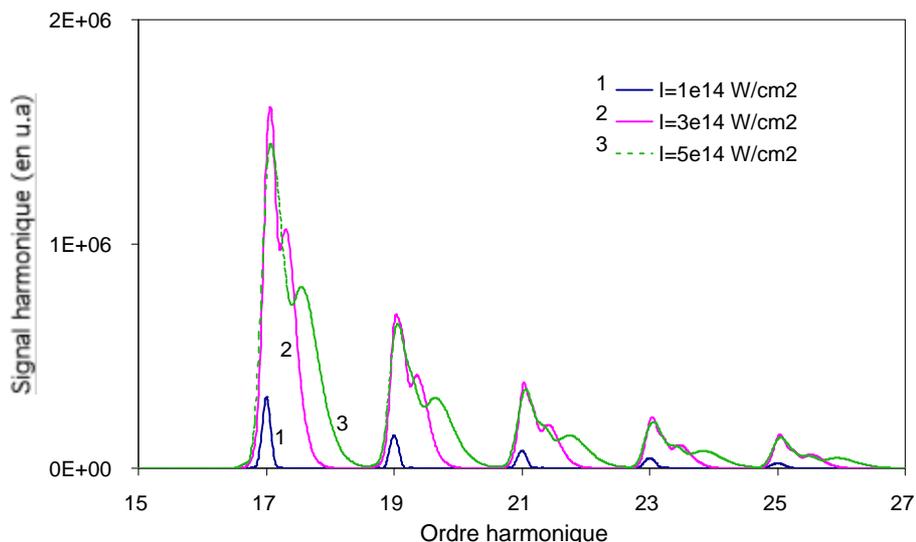


Figure 6.5 : Etude théorique de l'effet de l'intensité sur un spectre harmonique généré dans l'argon (pression 10 torr, chemin 1, longueur de cellule placée au foyer : 1 mm, longueur de Rayleigh 15 mm et une durée d'impulsion de 30 fs.)

### 6.1.3. Rôle de la phase du dipôle suivant le chemin quantique

Les deux effets évoqués dans les parties ci-dessus sont liés aux caractéristiques du laser infrarouge et à son interaction avec le milieu gazeux, tandis que l'effet du chemin quantique est intimement lié au processus même de génération d'harmoniques. Il provient de la variation temporelle de la phase du paquet d'onde électronique dans son parcours dans le continuum. Le rôle de la phase atomique dépendra du fait que l'émission harmonique aura lieu sur le front montant ou descendant de l'impulsion [1] : sur le front montant le décalage induit sera vers le bleu tandis que sur le front descendant, on observera un décalage vers le rouge si toutefois le milieu n'est pas trop ionisé à ce moment. Cet effet est visible dans l'équation (6.3) : le décalage vers le bleu sera observé pour  $dI/dt > 0$  et un décalage vers le rouge sera observé dans le cas contraire. Cette remarque est valable pour la contribution au rayonnement harmonique provenant du deuxième chemin quantique. En revanche les harmoniques issues du premier chemin quantique et dont la phase atomique est négligeable ne seront pas élargies par ce phénomène (représentées en bleu sur les figures suivantes). La figure (6.6) représente le spectre harmonique généré par une impulsion de faible intensité ( $10^{14} \text{ W/cm}^2$ ), de telle sorte que l'argon n'est pas ionisé : on observe comme on s'y attend un élargissement symétrique du rayonnement harmonique provenant du deuxième chemin quantique.

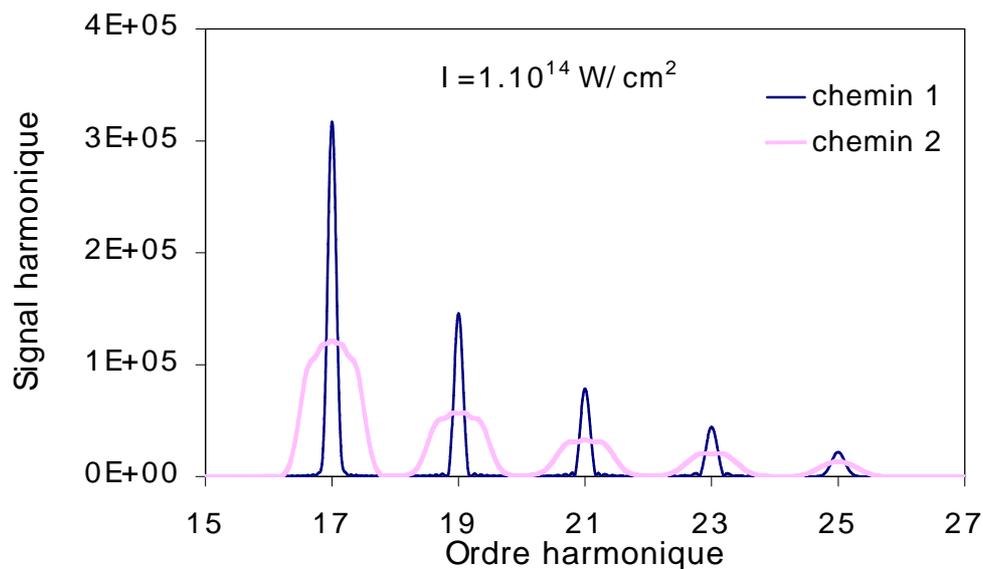


Figure 6.6: Etude théorique de l'importance de la phase atomique sur l'allure du spectre résultant dans l'argon (pression 10 torr,  $I=1.10^{14} \text{ W/cm}^2$ , longueur de cellule 1 mm, au foyer du laser)

En revanche, dans le cas de la figure (6.7), l'élargissement n'est plus symétrique et le décalage vers le bleu est plus important. Les harmoniques sont alors générées essentiellement sur le front montant. Avec une intensité de  $2.10^{14} \text{ W/cm}^2$ , choisie comme condition de la figure, l'impulsion est capable d'induire une forte ionisation du milieu, et lors du passage du front descendant de l'impulsion dans le milieu, le nombre d'émetteurs d'harmoniques (les atomes neutres) a diminué, tandis que l'accord de phase s'est dégradé, ce front contribuera donc peu à l'émission harmonique totale.

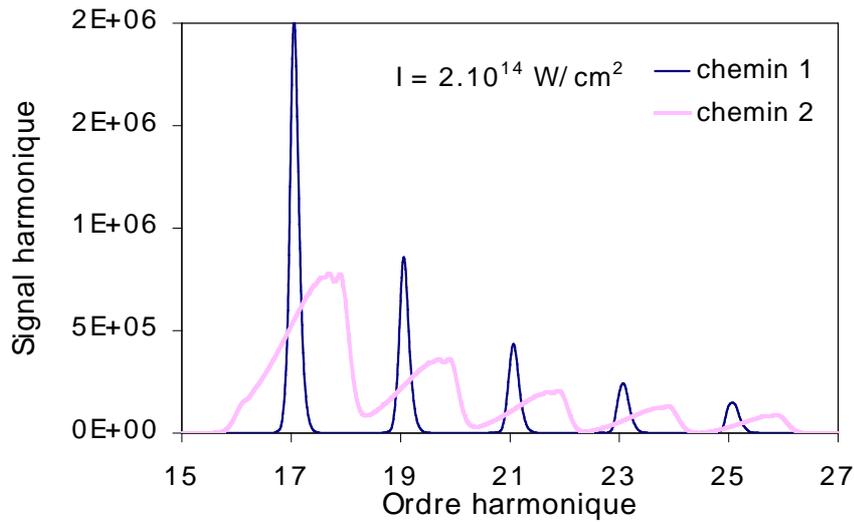


Figure 6.7: Etude de l'importance de la phase atomique sur l'allure du spectre résultant dans l'argon (pression 10 torr,  $I=2.10^{14} \text{ W/cm}^2$ , longueur de cellule 1 mm, au foyer du laser)

On a ainsi pu montrer que l'importance du décalage spectral est liée non seulement à la phase spectrale du laser mais aussi aux conditions de génération d'harmoniques elles-mêmes dans un milieu en cours d'ionisation. De plus, le deuxième chemin quantique, par la dépendance de sa phase avec l'intensité permet d'atteindre une plus grande gamme spectrale. Cela explique certainement pourquoi notre expérience de génération d'harmoniques en propagation libre du laser se prête mieux à la démonstration de l'accordabilité des harmoniques que l'expérience faite en capillaires par l'équipe de Bartels et al. [4]. Dans leur cas de figure, l'intensité est assez faible et la propagation guidée du laser interdit la présence d'un gradient de phase atomique privilégiant le chemin 2. Nous avons choisi de notre côté de démontrer l'accordabilité des harmoniques de l'argon qui présentent le nombre de photons le plus important. L'étude précédente montre qu'un simple chirp n'est pas capable d'obtenir complètement cette accordabilité, c'est pourquoi nous avons utilisé un algorithme génétique qui s'est révélé très efficace pour la recherche de conditions laser adaptées à notre étude et aux conditions de génération d'harmoniques que nous avons choisies.

## 6.2. Montage expérimental en vue de l'accordabilité des harmoniques

Nous présentons sur le schéma de principe de la figure suivante (6.8) le dispositif expérimental que nous avons utilisé. Un dispositif de contrôle actif de la phase spectrale du laser infrarouge « dazzler » est placé dans la chaîne laser après l'étireur et avant les étages d'amplification. Le faisceau laser ainsi modifié est focalisé dans notre cellule de gaz. Nous avons choisi une courte longueur de cellule et une faible pression de gaz afin de pouvoir mieux interpréter les résultats expérimentaux. Le diaphragme est fermé pour optimiser les flux de photons comme cela a été présenté dans le chapitre 5. Les spectres harmoniques ainsi produits sont recueillis après le spectrographe à transmission sur une caméra CCD et l'analyse de ces spectres par le logiciel qui contrôle l'algorithme génétique permet d'évaluer la progression vers la solution du problème initialement posé. Des ordres sont alors renvoyés sur le dispositif de contrôle spectral du laser et une nouvelle boucle d'optimisation peut commencer.

Avant de présenter les résultats de l'optimisation par algorithme génétique, nous allons exposer le principe de fonctionnement du dispositif de contrôle spectral du laser ainsi que la philosophie sur laquelle repose l'algorithme génétique proprement dit.

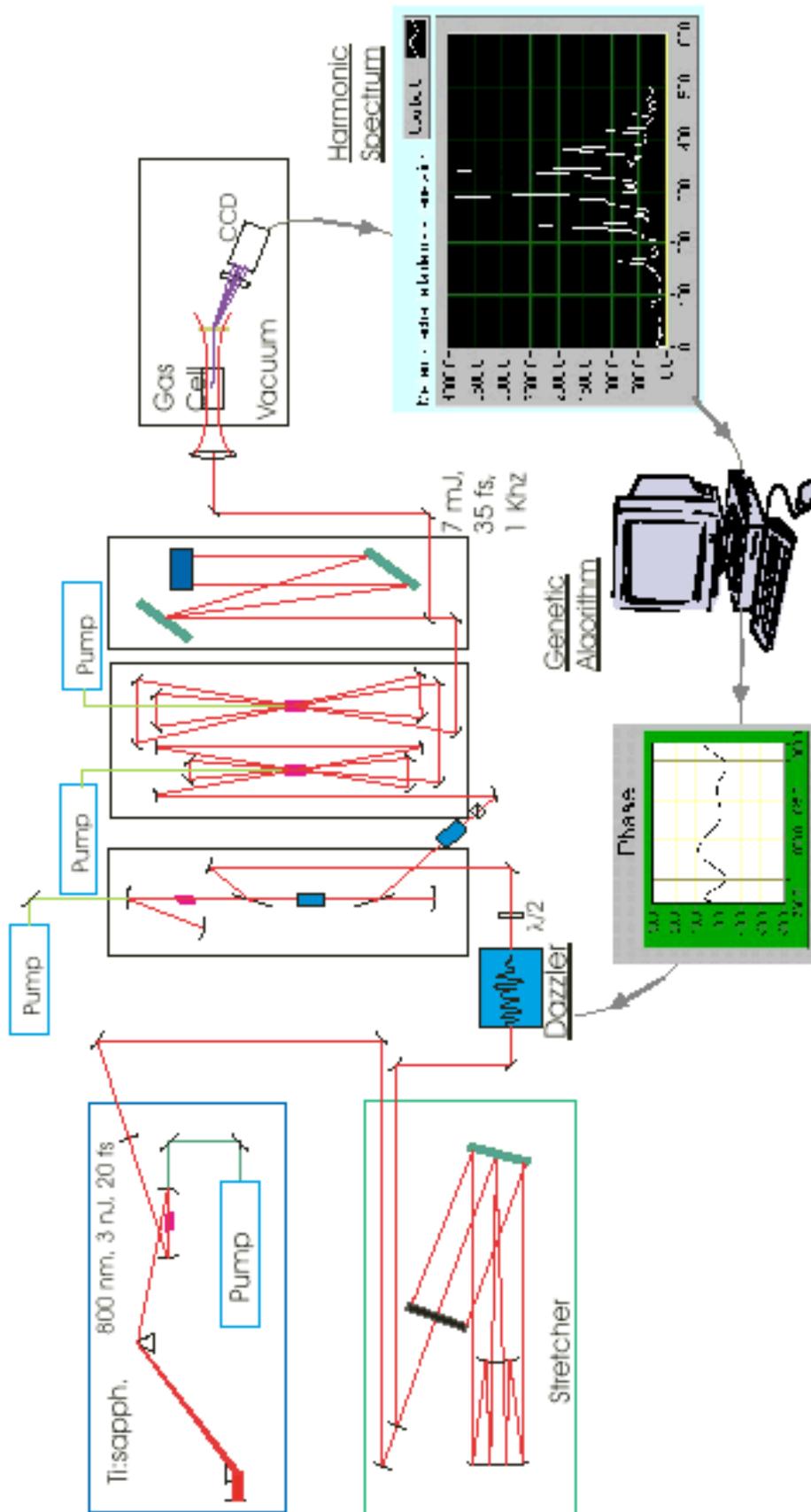


Figure 6.8 : Schéma de principe de la boucle expérimentale d'optimisation des harmoniques par l'algorithme génétique image issue de la référence [7]

### 6.2.1. Le dazzler : ou comment contrôler la phase spectrale du laser

Le dazzler est un appareil mis au point par la société Fastlite [8], c'est un « filtre acousto-optique dispersif programmable », de sigle AOPDF en Anglais. Cet appareil permet d'induire efficacement des modifications sur la phase et l'amplitude spectrales d'un laser. Il est très utilisé sur les chaînes très hautes puissances basées sur le principe de l'amplification à dérives de fréquences (CPA) car il permet d'en améliorer les caractéristiques spectrales et donc temporelles [9], [10].

#### 6.2.1.1. Principe de fonctionnement

Concrètement, le dazzler se compose d'un cristal biréfringent de  $\text{TeO}_2$  (dioxyde de Tellure) sur lequel est disposé un transducteur capable d'induire des ondes acoustiques se propageant dans le cristal. Ces ondes peuvent être totalement contrôlées par voie électronique en amplitude et en phase via le transducteur.

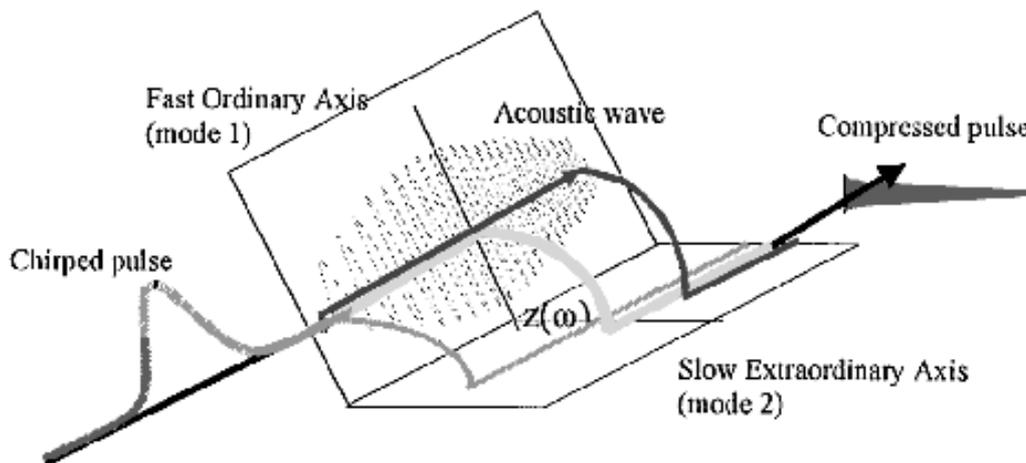


Figure 6.9 : schéma de principe du fonctionnement d'un dazzler (image Fastlite extraite de la référence [9]).

Une impulsion laser étirée en fréquence se propage alors dans le cristal suivant l'axe rapide (indice ordinaire), les ondes acoustiques forment un réseau de Bragg capable de diffracter l'onde lumineuse vers l'axe extraordinaire (lent). L'endroit du cristal pour lequel se produit la diffraction est lié à l'accord de phase entre l'onde lumineuse et l'onde acoustique et sera différent pour chaque longueur d'onde du spectre du laser car la période de l'onde acoustique n'est pas homogène dans le cristal. En sortie de milieu, la phase acquise par une longueur d'onde donnée dépendra de la proportion de trajet qu'elle aura parcouru sur l'axe extraordinaire : si la polarisation est passée très tôt sur l'axe lent, on observera un plus fort retard spectral. On comprend ainsi qu'un bon contrôle de l'onde acoustique se propageant dans le cristal permet d'induire n'importe quelle forme de phase spectrale. L'amplitude spectrale est quant à elle liée à l'amplitude de l'onde acoustique au moment de l'accord de phase pour une longueur d'onde donnée. Ce contrôle de la phase et l'amplitude spectrale du laser a des applications pratiques très intéressantes pour la qualité de l'émission laser en sortie des chaînes de très haute puissance et explique pourquoi de très nombreux laboratoires dans le monde ont fait l'acquisition de ce dispositif.

### 6.2.1.2. Utilisation sur les chaînes de puissance CPA

Une des particularités des chaînes de puissance CPA est leur très large bande spectrale qui autorise ainsi la formation d'impulsions ultracourtes dans le domaine femtoseconde. De nombreuses distorsions de la phase et de l'amplitude spectrales dues au passage dans les cristaux (rétrécissement par le gain) et les optiques auront des conséquences très néfastes sur les intensités crêtes atteintes par ces lasers. Une possibilité très puissante d'améliorer les caractéristiques temporelles de l'impulsion en sortie est de précompenser les effets de la chaîne d'amplification sur les dépendances spectrales de l'impulsion.

La figure suivante montre la régularisation et l'élargissement du spectre d'un laser haute puissance par un dazzler, comme on s'y attend la traduction de cet effet sur la durée de l'impulsion est très satisfaisant car un spectre élargi donnera une impulsion plus courte par simple transformée de Fourier.

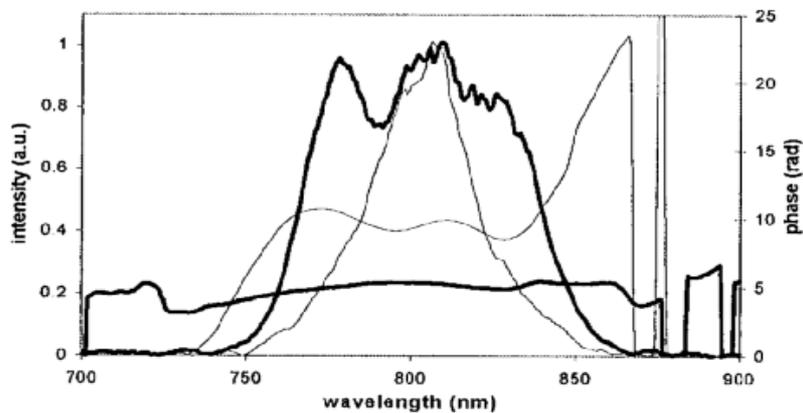


Figure 6.10 : En gris, amplitude et phase spectrale d'un laser de puissance non retravaillé par dazzler. En noir, effet du dazzler sur la phase et l'amplitude (image Fastlite extraite de la référence [9]).

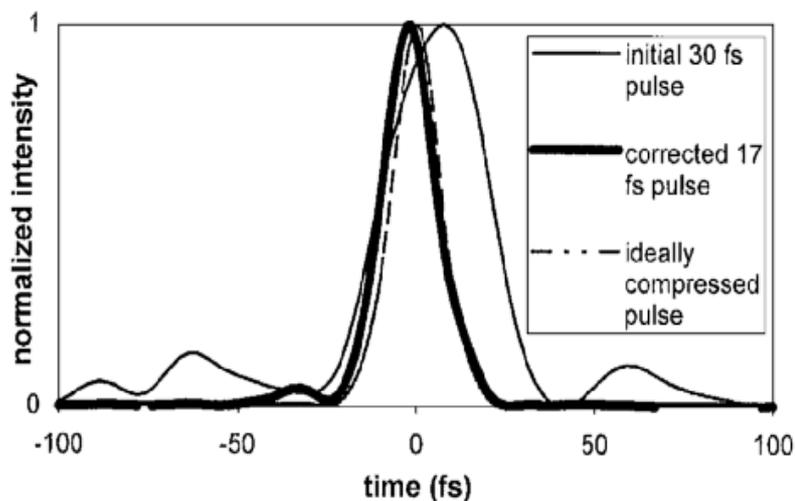


Figure 6.11 : Résultat de l'action du dazzler sur la forme temporelle de l'impulsion (image Fastlite extraite de la référence [9]).

Le laser très haute puissance du LOA (salle jaune) comporte un dispositif de ce type placé en permanence entre l'étireur et le premier étage d'amplification. Par contre, l'utilisation d'un dazzler pour contrôler la phase et l'amplitude spectrales du laser kHz du LOA (salle rouge) est plus récente et l'appareil n'est pas installé en permanence sur la chaîne. Lors de l'installation, nous avons d'abord constaté une légère amélioration de la durée d'impulsion (2 à 3 fs) donc une augmentation de la puissance du laser due à un bon réglage du dazzler. Aucune perte d'énergie n'a été constatée.

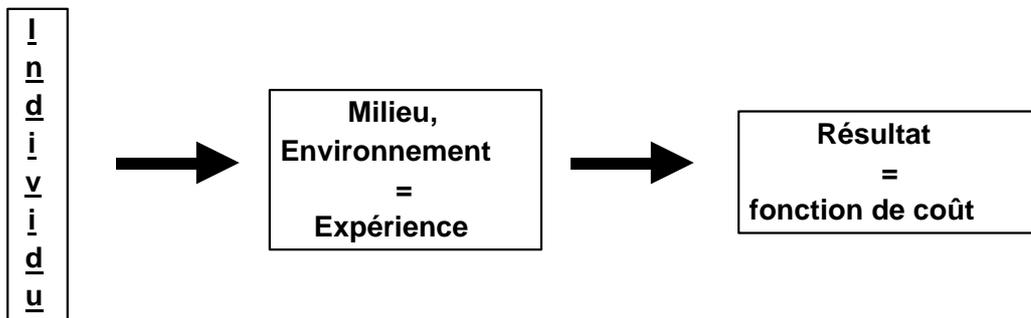
Dans le but de contrôler spectralement les harmoniques, le dazzler a été utilisé comme moyen simple et efficace de modifier la phase et l'amplitude spectrale du laser avant sa focalisation dans la cellule. Nous verrons ultérieurement que l'allure spectro-temporelle des solutions proposées par l'algorithme n'a plus de raison particulière de ressembler à celle d'une impulsion en limite de Fourier.

## 6.2.2. L'algorithme génétique

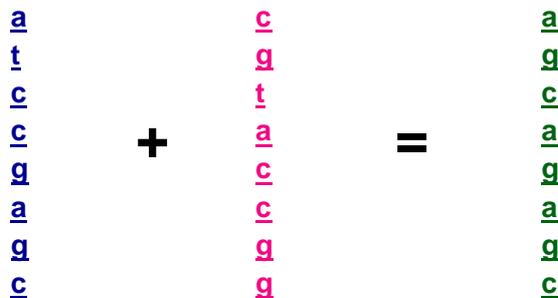
### 6.2.2.1. Principe général

L'algorithme génétique est un algorithme très efficace de recherche de paramètres d'optimisation pour un problème complexe [11]. Il est basé sur une analogie avec la théorie de l'évolution dans la nature : seuls les individus qui possèdent un patrimoine génétique qui leur permet de bien s'adapter au milieu qui les entoure pourront se reproduire et propager leur code génétique, les autres étant amenés à disparaître. L'analogie va même plus loin puisque des « mutations » génétiques sont introduites en vue d'explorer aléatoirement d'éventuelles autres solutions.

Concrètement, on considère un problème complexe non soluble analytiquement et l'on définit un espace à  $n$  dimensions contenant l'ensemble des variables du problème, on cherchera alors le vecteur à  $n$  composantes qui va constituer la meilleure solution du problème. Ce vecteur sera un « individu » et ses  $n$  composantes seront chacune un « gène ». À chaque individu, on pourra attribuer un scalaire (une note), dit aussi « variable d'adaptation » ou « fonction de coût » qui traduira sa capacité à produire de bons résultats dans le milieu qui l'entoure. Il sera alors facile de comparer plusieurs individus entre eux suivant les notes qu'ils auront obtenues au test d'adaptation au milieu.



La première étape de l'algorithme consiste à générer une première population, c'est-à-dire un ensemble d'individus répartis aléatoirement sur tout l'espace. Chacun de ses individus est testé sur le problème (expérimentalement ou numériquement) pour lui attribuer une valeur qui permet un classement et la sélection des meilleurs candidats. On forme une deuxième génération de la même taille que la première en ne retenant que les individus qui ont atteint une certaine valeur de la variable d'adaptation et en les reproduisant entre eux. La reproduction de deux individus pour en donner un troisième se fait en attribuant aux « enfants » le gène de l'un de leurs parents : chaque composante du vecteur « enfant » sera aléatoirement la composante du vecteur « père » ou celle du vecteur « mère ».

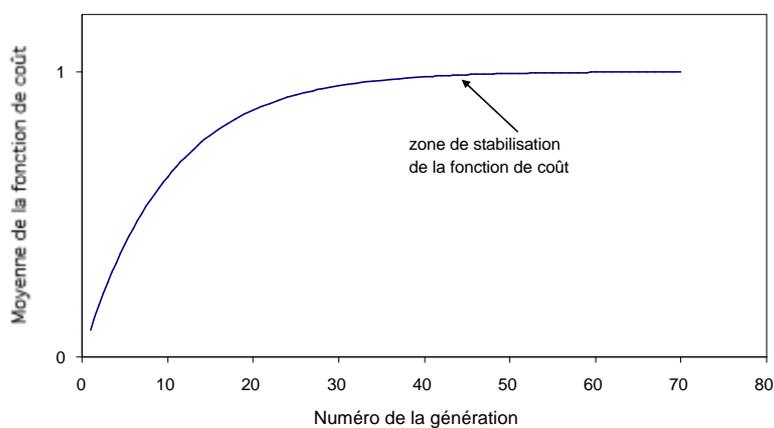


Normalement, on forme ainsi une génération mieux adaptée au problème, et l'on renouvelle l'opération de sélection autant de fois que nécessaire.

Il est possible qu'un tel algorithme converge vers une solution seulement localement optimisée et ignore des parties de l'espace qui pourraient apporter une meilleure réponse au problème. On évite ce travers en allant explorer de nouvelles régions de l'espace, tout en continuant à converger vers une solution. En pratique on introduit à doses très faibles (un pour

mille par exemple), des mutations génétiques, c'est-à-dire qu'on attribue à un gène d'un individu choisi au hasard dans la population (un mutant), une valeur aléatoire et non plus une valeur issue de ses parents. Si ce mutant s'avère mieux adapté au milieu, ses propres enfants auront des chances d'appartenir à la même zone de l'espace des solutions et la population migrera en quelques générations vers le maximum global.

Suivant la complexité du problème et le nombre de variables à optimiser, cet algorithme peut converger en quelques dizaines de générations pour les cas de physique expérimentale que nous étudions. La boucle d'optimisation étant théoriquement infinie, il faut définir une condition de sortie et choisir le meilleur individu de la dernière génération comme solution. On peut par exemple calculer la valeur moyenne de la fonction de coût et imposer que celle-ci ne varie pas plus de quelques pour cents en dix générations. Ce sera alors la condition de sortie de boucle.



*Figure 6.12 : Evolution typique de la valeur moyenne de la fonction de coup par génération calculée par un algorithme génétique, on voit la convergence du signal et la nécessité de définir une condition de sortie de boucle.*

Si le principe de cet algorithme est relativement simple et utilise un vocabulaire intuitif emprunté à la biologie, le choix de la variable d'adaptation est très important et sa pertinence aura un effet notable sur la rapidité de convergence du programme et le résultat obtenu.

Cet algorithme a été appliqué expérimentalement à la génération d'harmoniques par l'équipe de H. Kapteyn et M.Murnane [4] pour améliorer sélectivement le flux d'une harmonique par rapport à ses voisines. Cette expérience a été modélisée par Christov et collaborateurs dans la référence [5] par l'utilisation d'un algorithme génétique théorique permettant de comprendre les raisons de l'optimisation expérimentale démontrée dans la référence [4]. Enfin, L. Roos et collaborateurs dans la référence [12] ont utilisé un algorithme génétique exclusivement théorique pour rechercher des conditions de génération d'harmoniques optimales pour certaines caractéristiques de l'émission (brillance spectrale, nombre de photons...) en faisant varier la pression, la longueur du milieu, la nature du gaz, etc. Ces derniers paramètres ne seraient pas très aisés à inclure dans une boucle d'algorithme génétique expérimental, contrairement à des paramètres contrôlables de façon totalement électronique.

### 6.2.2.2. Conception de la boucle d'algorithme génétique pour notre expérience

Nous pouvons désormais présenter le concept de la boucle d'optimisation basée sur un algorithme génétique qui nous a permis de montrer l'accordabilité des harmoniques dans notre configuration. Ainsi que nous l'avons vu précédemment, la définition de la fonction de coût est le point crucial dans la conception d'une boucle d'algorithme génétique.

La condition initiale du processus d'optimisation correspond à une impulsion en limite de Fourier, c'est-à-dire de durée minimale. Les réglages optimaux du dazzler sont déterminés par une mesure de l'impulsion au moyen d'un SPIDER (voir chapitre 2). Une première génération est ensuite fabriquée aléatoirement et testée sur les harmoniques. Les spectres correspondant à chaque forme d'impulsion sont enregistrés par la caméra CCD. On a accès au nombre de coups par pixel, un pixel représentant une longueur d'onde harmonique calibrée. Le pixel 300 correspond à l'harmonique 25 et l'ordre harmonique croît avec le numéro de pixel.

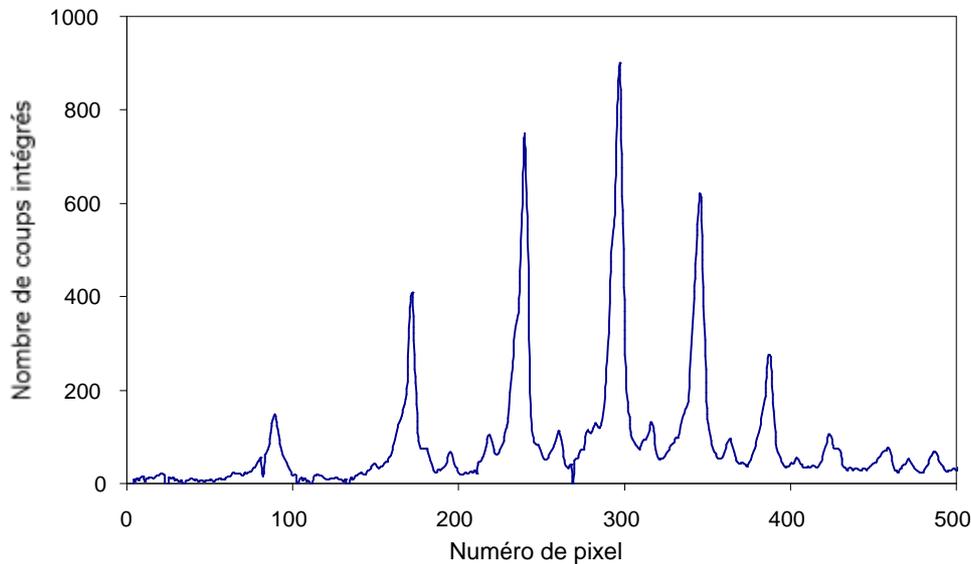


Figure 6.13 : Allure typique de spectre harmonique en fonction du numéro de pixel

La fonction de coût la plus rudimentaire qui se puisse imaginer consiste à prendre pour valeur le nombre de coups intégrés sur un pixel et à chercher à optimiser cette valeur. Les résultats obtenus ne sont pas très satisfaisants. Le flux a pu être multiplié par 1,5 au plus. De plus, cette définition ne se prête pas idéalement au contrôle spectral.

La fonction de coût qui a finalement permis d'obtenir les résultats les plus satisfaisants est la suivante, (les lettres C et P représentent respectivement des coûts et des poids relatifs) :

$$C = P_{total} C_{total} + P_{finesse} C_{finesse} + P_{amplitude} C_{amplitude} + P_{position} C_{position}$$

Cette définition très générale de la fonction de coût permet d'optimiser avec le même algorithme différentes caractéristiques du rayonnement harmonique. Le nombre de photons compris dans tout le spectre d'une part, la finesse et l'amplitude spectrale d'une harmonique donnée

d'autre part, et enfin sa longueur d'onde. Il suffit pour cela de donner un poids relatif différent à chaque terme de la fonction de coût totale. On note donc P le degré de priorité associé à chacun des paramètres efficacité totale, finesse, amplitude, position. Par exemple, si  $P_{\text{finesse}}$  est grand par rapport à  $P_{\text{amplitude}}$  ou  $P_{\text{position}}$ , on cherchera plutôt à améliorer la finesse (la largeur spectrale) du pic harmonique étudié (donc sa brillance spectrale si le nombre de photons maximal est maintenu), en accordant moins d'importance à l'amplitude de celui-ci ou sa position précise. Un contrôle spectral des harmoniques reviendra à prendre  $P_{\text{position}}$  très grand. Remarquons aussi qu'il n'est pas raisonnable d'imposer des degrés de priorité importants et égaux à tous les paramètres. Le code n'a alors aucune chance de converger convenablement.

- Le terme  $C_{\text{total}}$  est simplement l'addition du nombre de coups intégrés sur tout le spectre. Il permet de ne pas prendre en considération des spectres « aberrants » présentant uniquement du bruit et qui seraient le fruit d'instabilités du laser par exemple.

- Le terme  $C_{\text{finesse}}$  permet de caractériser la brillance, on s'intéresse à la largeur spectrale d'une harmonique. Il est défini comme suit :

$$C_{\text{finesse}} = \frac{1}{1 + \frac{(\text{finesse fit} - \text{finesse cible})^2}{\sigma_{\text{finesse}}}}$$

Les coefficients finesse cible et  $\sigma_{\text{finesse}}$  sont imposés à l'avance. Le premier traduit l'objectif de finesse imposé et le deuxième caractérise l'écart-type toléré. Si  $\sigma_{\text{finesse}}$  est grand, un écart non nul entre la finesse réelle et la finesse cible n'aura pas une grande influence sur la valeur de la fonction de coût associée. Par contre, si  $\sigma_{\text{finesse}}$  est très faible, l'écart à l'optimum sera très critique. Enfin, finesse fit est la mesure de la largeur spectrale à  $1/e^2$  d'une harmonique obtenue par un ajustement par une gaussienne sur une fenêtre du spectre centrée sur la longueur d'onde cible.

-Par analogie, la valeur de  $C_{\text{amplitude}}$  est :

$$C_{\text{amplitude}} = \frac{1}{1 + \frac{(\text{amplitude mesurée} - \text{amplitude cible})^2}{\sigma_{\text{amplitude}}}}$$

L'amplitude est ici tout simplement le nombre de coups intégrés par pixel.

-Enfin, la fonction de coût associée à l'accordabilité est :

$$C_{\text{position}} = \exp \left[ - \left( \frac{\text{position mesurée} - \text{position cible}}{\sigma_{\text{position}}} \right)^2 \right]$$

La position mesurée est la valeur du pixel central issue de l'ajustement gaussien également utilisé pour calculer la largeur spectrale. Dans le cas de la position, la fonction de coût a une forme gaussienne et non plus lorentzienne comme c'était le cas pour les fonctions de coût de l'amplitude et de la finesse. L'intérêt est que la fonction gaussienne décroît beaucoup plus rapidement que la lorentzienne pour des valeurs éloignées du maximum. On évite ainsi de donner trop d'importance à des pics qui correspondraient aux ordres harmoniques voisins de celle que l'on souhaite optimiser.

La série d'optimisation que nous allons aborder dans la suite du chapitre correspond aux valeurs suivantes :

- $P_{\text{total}}=10^{-2}$
- $P_{\text{finesse}}=40$ , finesse cible=0 pixel ,  $\sigma_{\text{finesse}}=5$  pixels
- $P_{\text{amplitude}}=25$ , amplitude cible=2000 coups,  $\sigma_{\text{amplitude}}=300$  coups
- $P_{\text{position}}=100$ , position cible variable pour chaque lancement du programme (run),  
 $\sigma_{\text{position}}=15$  pixels

Il apparaît donc clairement qu'elle était conçue pour « déplacer » un pic harmonique déterminé à l'avance.

La fonction de coût ayant été déterminée, l'algorithme génétique peut travailler en vue de son optimisation. L'espace des variables (les « gènes ») est ici de dimension 12. On représente en effet la phase spectrale du laser par 12 grandeurs : d'une part, les termes de deuxième et troisième ordres du développement de Taylor en fréquence de cette phase ainsi que 10 autres paramètres issus de l'interpolation polynomiale d'ordre 10 de la variation de la phase sur l'intervalle  $[-\pi, \pi]$ .

### 6.3. Résultats expérimentaux de contrôle spectral

Différentes configurations de la fonction de coût ont été étudiées en vue d'optimiser l'un des paramètres suivants : la finesse spectrale, l'amplitude spectrale et la position spectrale (la longueur d'onde centrale de l'harmonique). Les résultats les plus satisfaisants ont été obtenus pour le contrôle spectral. Nous présentons une série de 14 optimisations (des runs en anglais) correspondant à 14 longueurs d'onde centrales cibles séparées de 5 pixels sur la CCD.

#### 6.3.1. Gamme d'accordabilité

Nous avons ainsi montré que nous étions capables de déplacer l'harmonique 25 dans l'argon jusque pratiquement la longueur d'onde des harmoniques consécutives.

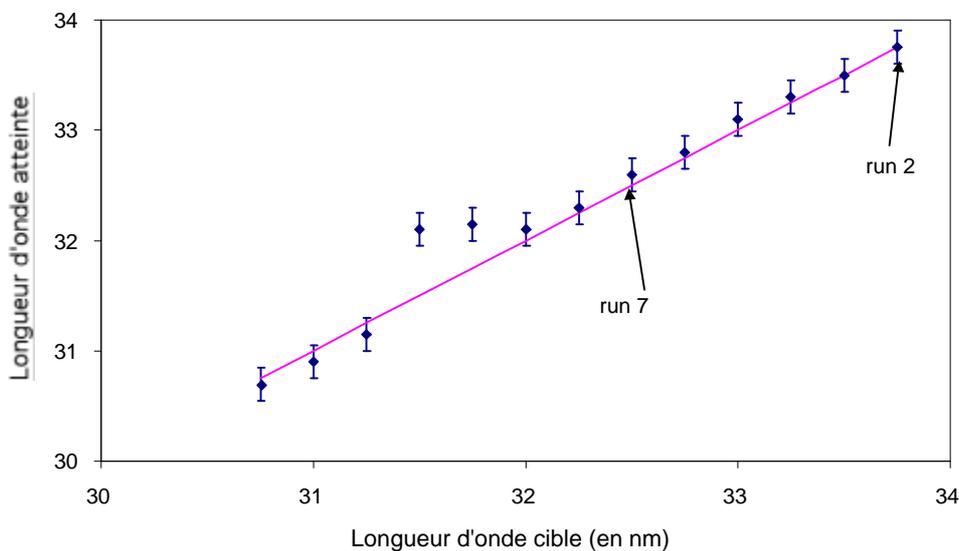


Figure 6.14 : Evolution de la longueur d'onde atteinte par une harmonique du spectre expérimental en fonction de la longueur d'onde cible imposée comme condition initiale à l'algorithme génétique, les runs 2 et 7 sont choisis comme exemple pour la suite de la présentation.

On observe que le contrôle spectral est très satisfaisant surtout si l'on considère que les conditions de générations d'harmoniques n'ont pas été modifiées en fonction de la longueur d'onde cible. Seules les modifications induites par le contrôle spectral du laser via le dazzler sont utilisées dans cette série. L'harmonique 25 nominale correspond à une longueur d'onde de 32,16 nm si l'on considère la longueur d'onde centrale du spectre du laser infrarouge (804 nm). On remarque dans la courbe présentée ci-dessus un léger désaccord (« gap ») entre les points expérimentaux et l'objectif fixé : certaines longueurs d'onde n'ont pas été atteintes par l'optimisation avec l'algorithme génétique. Ce gap se trouve vers des longueurs d'onde plus courtes que la longueur d'onde nominale de l'harmonique 25 (vers le bleu par rapport à H25). On suppose que les trois premiers points correspondent à un décalage vers le rouge de l'harmonique 27. Les points situés après le gap proviennent plutôt de l'harmonique 25 décalée vers le rouge.

### 6.3.2. Allure des spectres optimisés

Il est alors intéressant d'étudier les spectres correspondant aux meilleurs individus de la dernière génération de l'algorithme génétique d'optimisation de la position spectrale. On remarque d'abord que les amplitudes optimisées sont différentes et proviennent du fait que la boucle était lancée avec une priorité moindre accordée à l'amplitude par rapport au spectre. Il se trouve que l'amplitude maximale est obtenue pour l'harmonique nominale (32 nm). Il n'est pas étonnant que le fait de déplacer une harmonique par rapport à sa position nominale ne se fasse pas sans perte d'efficacité. En effet, la phase spectrale induite est susceptible de rallonger la durée d'impulsion et donc de diminuer l'intensité du dipôle atomique. On remarque aussi que les harmoniques correspondant à des longueurs d'onde assez éloignées de la longueur d'onde nominale sont plus larges spectralement que celles qui s'en rapprochent. La brillance spectrale (nombre de photons compris dans une largeur spectrale déterminée) est donc réduite.

Les pics harmoniques présentent une forme triangulaire orientée vers le rouge. Cela explique probablement pourquoi les longueurs d'onde décalées vers le bleu sont assez difficiles à atteindre par l'algorithme génétique dans nos conditions laser. Nous avons montré dans le paragraphe 6.1 qu'un décalage vers le bleu traduit une ionisation forte et rapide du milieu et/ou une forte phase atomique, or l'intensité laser est assez peu importante dans les conditions de diaphragmation fortes utilisées ici (ouverture 11 mm). Un fort décalage vers le bleu par rapport à l'harmonique nominale aurait pu être observé pour des intensités laser plus importantes et une longueur de Rayleigh diminuée. Rappelons que les différents runs ont été lancés pour des conditions de génération d'harmoniques semblables à chaque fois, ceci pouvant expliquer la présence du « gap » présenté ci-dessus.

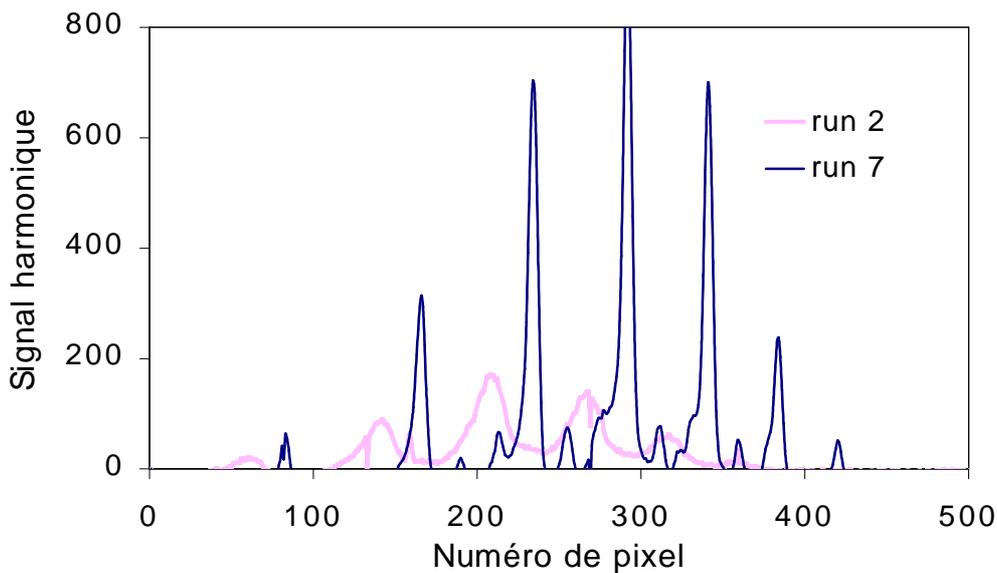


Figure 6.15 : Deux spectres harmoniques correspondant à des conditions d'optimisation de positions spectrales différentes : le run 2 correspond à 33,8 nm tandis que le run 7 correspond à 32,7 nm. Les nombres de pixels croissants correspondent à des ordres harmoniques croissants.

### 6.3.3. Évaluation de l'optimisation au cours des générations successives

On peut avoir des renseignements supplémentaires sur le fonctionnement de l'algorithme génétique dans ces deux conditions en regardant l'évolution de la fonction de coût au cours des générations (figure (6.16)).

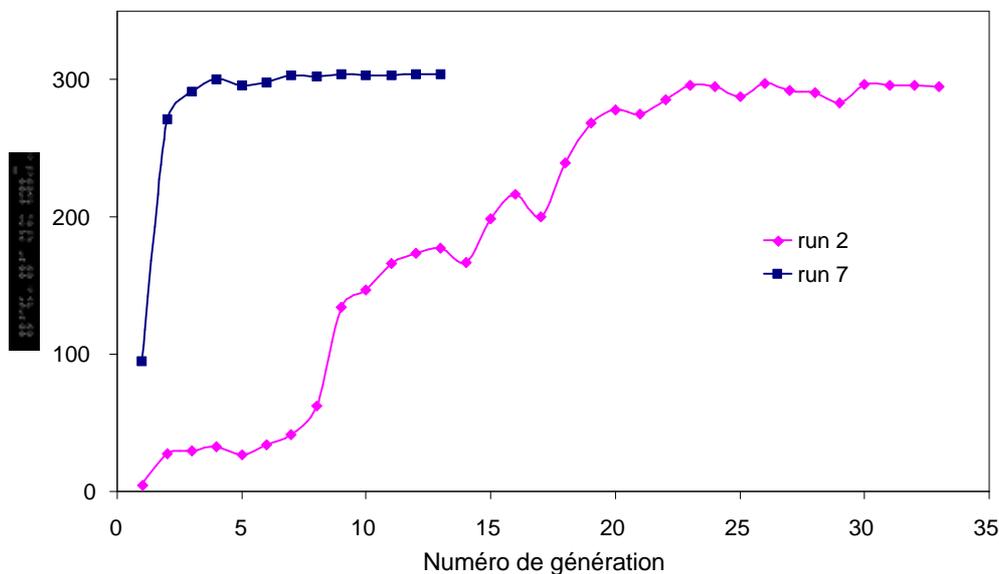


Figure 6.16 : Evolution de la valeur de la fonction de coût au cours des générations successives pour deux conditions d'optimisations différentes. Le run 7 correspond à une longueur d'onde harmonique proche de la valeur nominale tandis que le run 2 correspond à un fort décalage vers le rouge.

On remarque immédiatement sur la figure précédente, que les deux conditions d'optimisation imposées à la boucle aboutissent à la même valeur de la fonction de coût mais en des temps différents. Pour le run 7 qui correspond à une longueur d'onde très proche de l'harmonique nominale, la valeur initiale de la fonction de coût est déjà élevée et la valeur maximale est atteinte en moins de 10 générations. Pour le run 2 qui correspond à un décalage fort vers le rouge, l'optimisation se fait sur un nombre de générations plus grand (plus de 30) car la valeur initiale de la fonction de coût est très faible. Les conditions initiales, c'est-à-dire une impulsion en limite de Fourier, de durée 30 fs, sont très éloignées de la configuration finale et les modifications à induire par le dazzler sont plus complexes comme le montre le paragraphe suivant.

#### 6.3.4. Modifications induites par le dazzler sur la phase et l'intensité temporelles du laser infrarouge

On s'intéresse alors aux « gènes » des meilleurs individus de la dernière génération des runs 7 et 2. Les deux conditions d'optimisation correspondent à des impulsions laser très différentes dans le domaine spectral et temporel.

Les formes temporelles de l'impulsion laser sont reconstruites à partir des données de commandes du dazzler, traitées par un programme basé sur les transformées de Fourier qui permet de passer du domaine spectral au domaine temporel.

Comme on s'y attend le run 2 donne lieu à une forme temporelle de l'impulsion très complexe alors que l'impulsion du run 7 est de durée moindre avec une forme plus régulière. Nous remarquons sur la figure (6.17) que la durée d'impulsion laser est dans tous les cas beaucoup plus grande que celle couramment utilisée (30 fs).

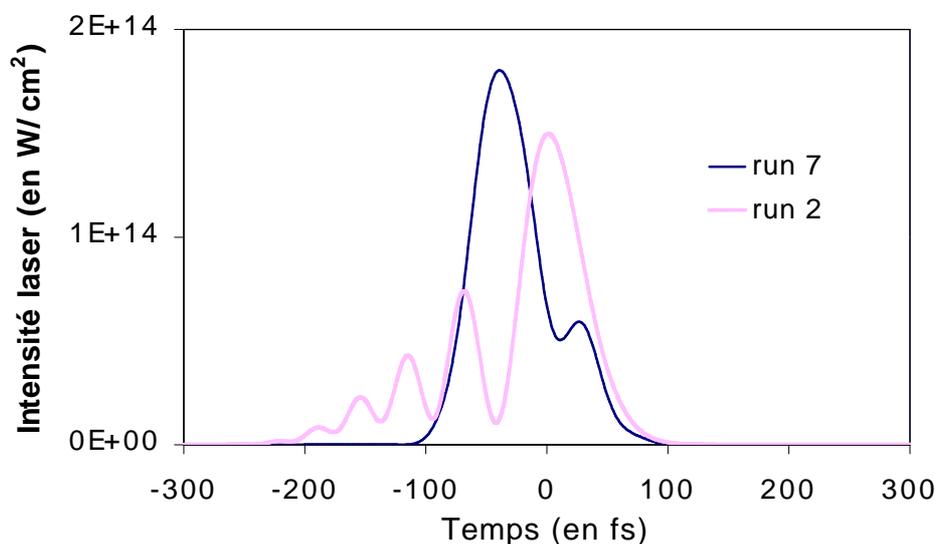


Figure 6.17 : Variation de l'intensité laser pour deux impulsions type correspondant aux runs 7 et 2 d'optimisation de l'algorithme génétique.

L'allure de la phase temporelle du laser est représentée figure (6.18) pour les runs 2 et 7.

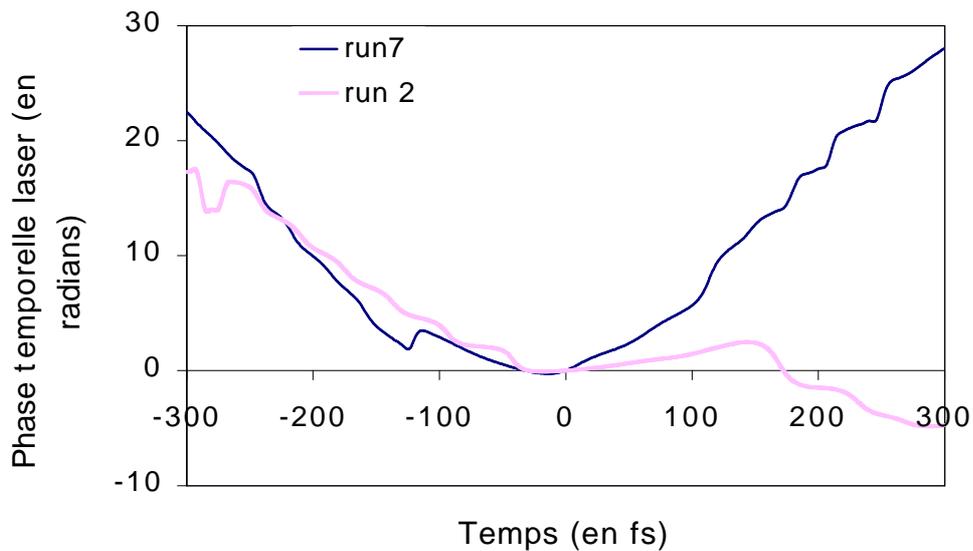


Figure 6.18 : Variation de la phase temporelle du laser pour deux impulsions type correspondant aux runs 7 et 2 d'optimisation de l'algorithme génétique.

### 6.3.5. Comparaison avec les prédictions du code

Le code unidimensionnel est alors adapté pour être capable de donner le spectre harmonique correspondant à ces conditions laser différentes. La variation en temps de l'intensité permet d'évaluer les taux d'ionisation ainsi que l'importance du dipôle et de la phase atomique. La phase temporelle du champ laser infrarouge entre dans le calcul de la phase temporelle du champ harmonique déduite des considérations précédentes, cette dernière est représentée pour les runs 2 et 7 sur les deux figures suivantes :

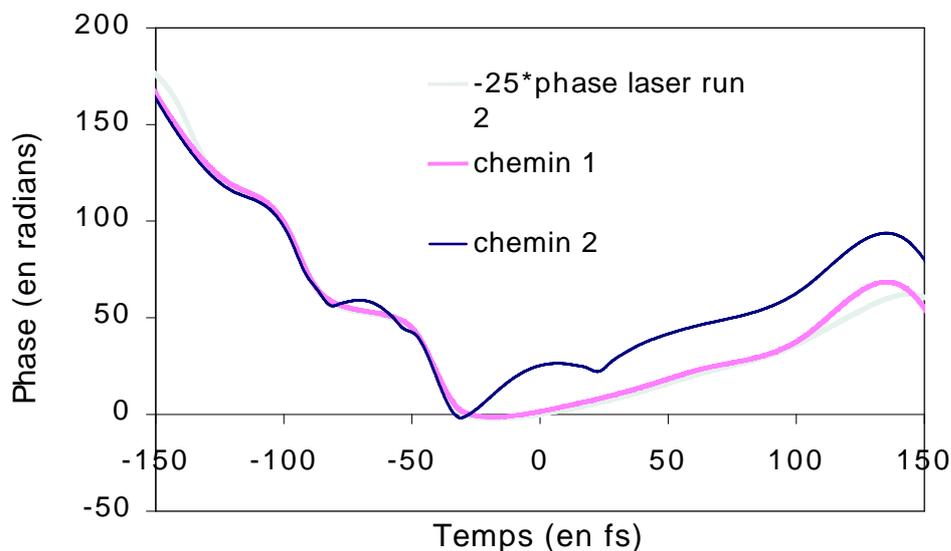


Figure 6.19 : Variation de la phase temporelle du champ de l'harmonique 25 induite par les conditions laser du run 2. On différencie la contribution des deux chemins quantiques et on compare avec la phase temporelle du laser infrarouge.

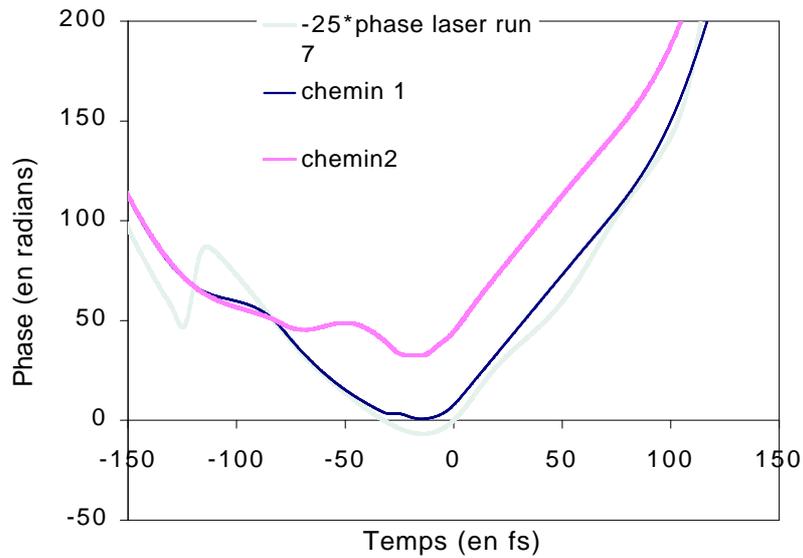


Figure 6.20 : Variation de la phase temporelle du champ de l'harmonique 25 induite par les conditions laser du run 7. On différencie la contribution des deux chemins quantiques et on compare avec la phase temporelle du laser infrarouge.

Finalement le spectre harmonique est la transformée de Fourier du champ comme fonction du temps (voir figure (6.21)).

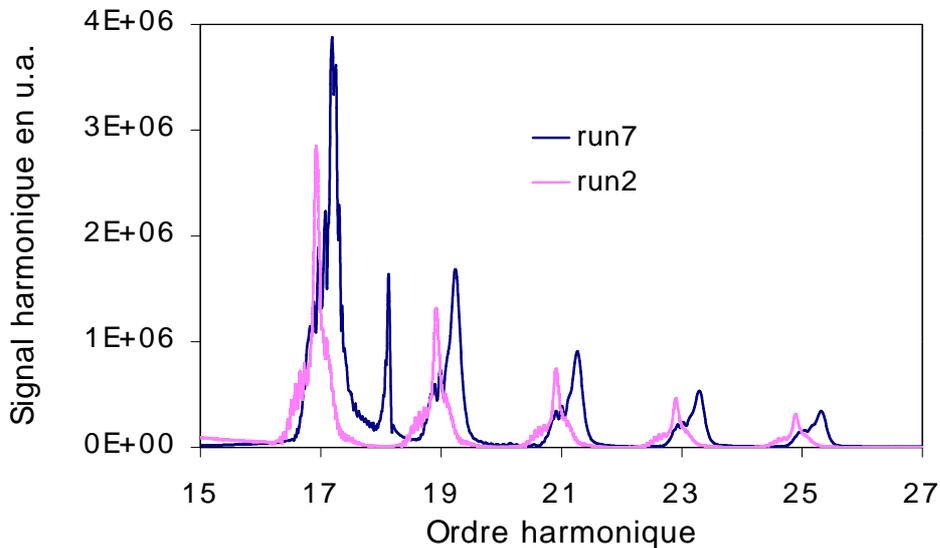


Figure 6.21 : Spectres harmoniques obtenus par le calcul pour deux formes particulières du champ laser incident présentées sur la figure précédente. Les conditions de génération étaient une cellule de 1mm remplie d'argon à une pression de 10 torr et placée 10 mm après le foyer du laser. La longueur de Rayleigh était de 17 mm et correspondait à une diaphragme de 11 mm d'ouverture.

Le code permet de reproduire assez fidèlement la forme globale des pics harmoniques, en particulier leur élargissement vers le rouge caractéristique d'une impulsion assez peu intense. Il existe cependant un léger décalage des valeurs précises des harmoniques nominales. Ceci est probablement lié à la grande largeur spectrale des lasers femtoseconde, notamment lors de leur propagation dans un milieu en cours d'ionisation, ainsi qu'à la difficulté de calibration en longueur d'onde des spectres présentés. Enfin, les autres runs réalisés aboutissaient à des conditions laser différentes qui ne permettaient pas toujours de reproduire aussi fidèlement le résultat au moyen du code unidimensionnel. C'est là tout l'intérêt d'un algorithme génétique qui permet de trouver les solutions optimales malgré la très grande complexité du problème, difficilement modélisable par un code.

#### **6.4. Conclusion du chapitre**

Nous avons démontré dans ce chapitre la possibilité de modifier à volonté la longueur d'onde des harmoniques générées en configuration longue focale dans une courte cellule d'argon (1 mm). L'utilisation d'un algorithme génétique s'est révélée un moyen très efficace et rapide d'obtention de la meilleure solution au problème posé. Il est donc possible d'obtenir une source de rayonnement harmonique accordable dans la gamme spectrale XUV, moyennant un contrôle spectral du laser infrarouge et éventuellement une modification des conditions de génération d'harmoniques. Nous avons cependant mis en évidence le fait que la brillance spectrale d'une harmonique est d'autant meilleure que sa longueur d'onde est proche de la longueur d'onde nominale. De même l'optimisation des conditions laser en sera considérablement facilitée.

Cette méthode relativement aisée de contrôle spectral de la génération d'harmoniques semble une solution technologique très prometteuse dans le cadre de l'optimisation des caractéristiques de la source harmonique en vue des spécifications d'applications ultérieures.

#### **6.5. Références**

- [1] Salières et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 5544 (1998)
- [2] Chang et al., Phys. Rev. A Rapid Communications **58**, R30, (1998)
- [3] Lee et al., Phys. Rev. Lett. **87**, 243902 (2001)
- [4] Bartels et al., Nature, **406** 164 (2000)
- [5] Christov et al., Phys. Rev. Lett., **86** 5458 (2001)
- [6] Wahlström et al., Phys. Rev. A, **49** , 4709 (1993)
- [7] Reitze et al., Compte-rendus de la conférence Ultrafast 2002
- [8] Documentation de la société Fastlite disponible sur le site <http://www.fastlite.com/>
- [9] Verluise et al., Optics Letters, **25** 8, 575 (2000)
- [10] Verluise et al. J. Opt. Soc. Am. B, **17** 1, 138 (2000)
- [11] Albert et al., Optics Letters, **25** 1 , 52 (2000)
- [12] Roos et al., J. Phys.B.,**34** (2001)