

# Étude directe de l'accord de phase par la mise en évidence de franges de Maker le rôle des chemins quantiques

## 4.1. Introduction

Nous présentons dans ce chapitre les premières mesures expérimentales réellement probantes de franges d'accord de phase pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Ces figures d'interférence, dites aussi « franges de Maker » [1] sont la manifestation du lien entre la longueur de déphasage et la longueur du milieu. Elles avaient été décrites pour la première fois par l'équipe du CEA Saclay dans les références [1] et [2] et mesurées expérimentalement sur les harmoniques 7 et 13 avec un contraste assez faible comme le montre la figure ci-dessous :

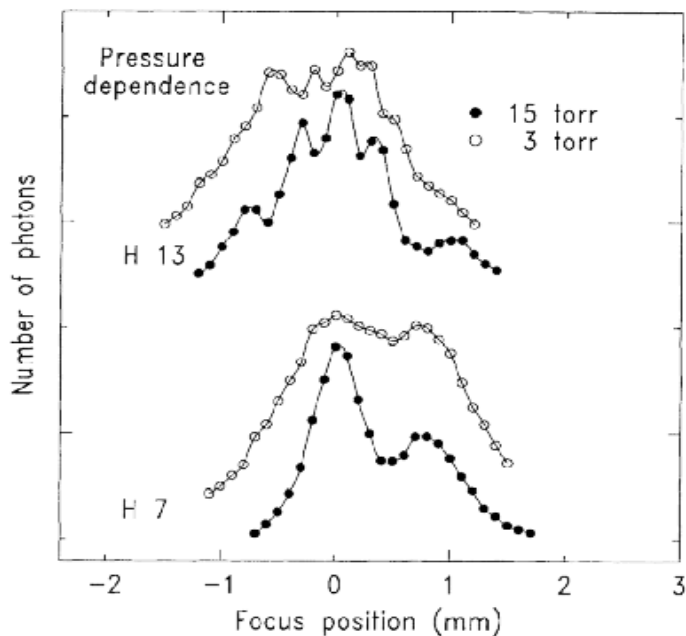


Figure 4.1 : Détection expérimentale de franges d'accord de phase pour les harmoniques 7 et 13 générées dans le xénon en configuration courte focale. Cette figure est extraite de la référence [1], les données sont représentées en coordonnées linéaires.

Depuis, les conditions de génération d'harmoniques n'ont plus permis d'observer de nouveau ce phénomène. Nos conditions de focalisation douce et de basse pression, avec une cellule placée avant le foyer ont permis de mettre en évidence des franges exceptionnellement contrastées (un facteur supérieur à 100 est mesuré entre le signal le plus faible et le plus élevé pour les harmoniques hautes dans l'argon). Le signal harmonique en tant que fonction de la longueur de cellule présente des minima et des maxima séparés par définition par une longueur de déphasage. La figure 4.2, montre la détection de ces franges pour l'harmonique 25 générée dans l'argon, l'incertitude expérimentale seule ne permet pas d'expliquer de telles variations du signal harmonique.

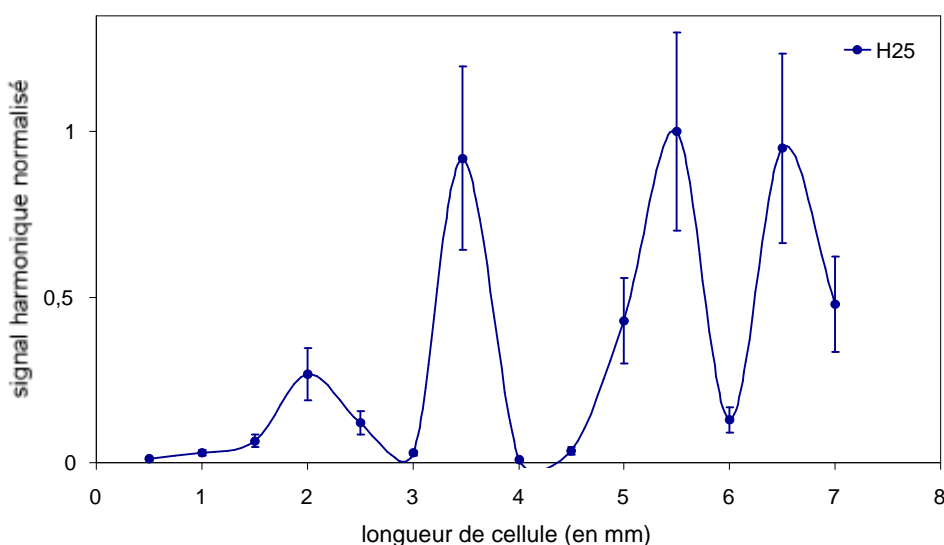


Figure 4.2 : Détection expérimentale de franges d'accord de phase pour l'harmonique 25 généré dans 15 torr d'argon en configuration longue focale. L'entrée de la cellule de longueur variable est placée 2 mm avant le foyer, les données sont représentées en coordonnées linéaires pour faciliter la comparaison avec la figure 4.1, une incertitude expérimentale de 30% est admise à cause du caractère instable de la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

L'intérêt majeur de la détection de ces franges est qu'elle permet de connaître la valeur effective précise de la longueur de déphasage, ce qui est rarement possible expérimentalement. On peut ainsi déduire de l'évolution des franges, en fonction notamment de la position cellule-foyer, l'influence de ce paramètre sur l'accord de phase. Dans une première partie, après avoir étudié précisément les conditions nécessaires d'existence de franges d'interférence nous insisterons sur la contribution spécifique des deux chemins quantiques principaux à l'accord de phase.

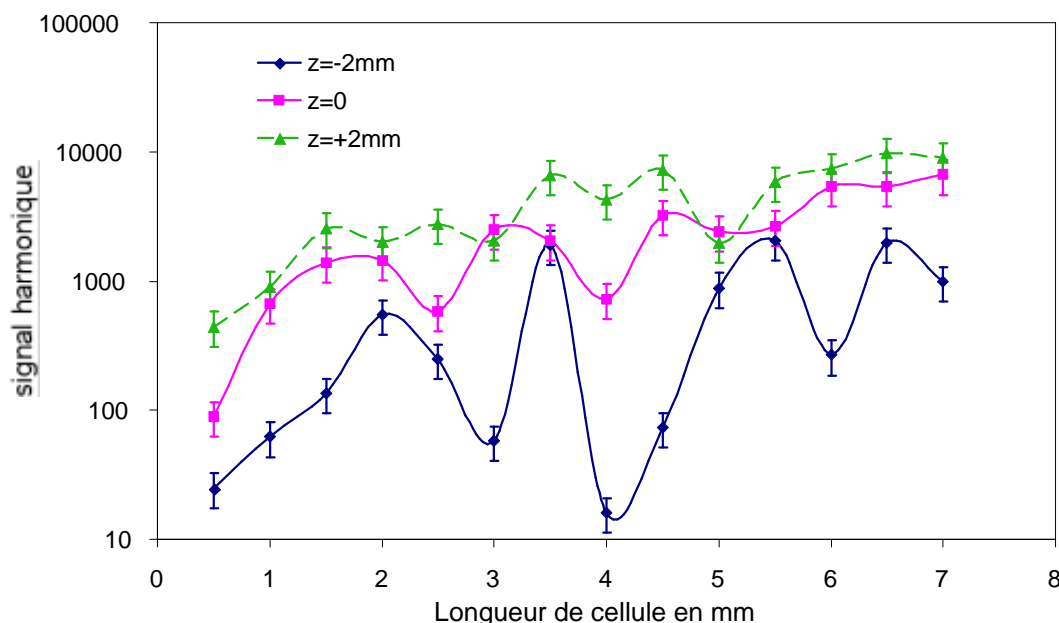
Nous étudierons dans une deuxième partie l'influence de la longueur d'absorption sur le contraste des franges et validerons de la sorte notre modèle de description des franges.

#### **4.2. Mise en évidence expérimentale d'effets de cohérence dans la génération d'harmoniques**

L'étude de la variation du signal harmonique en fonction de la longueur de milieu est tout à fait adaptée à notre montage expérimental car il est possible de faire varier aisément la longueur de la cellule. Dans une région pour laquelle le signal harmonique n'est pas optimisé, c'est-à-dire quand la longueur de déphasage est nettement inférieure à la longueur du milieu, des franges d'accord de phase avec un contraste excellent ont été observées. Cette condition correspond dans notre cadre expérimental à une entrée de la cellule placée avant le foyer du laser. Le contraste est d'environ 100 pour l'harmonique 25 générée dans l'argon comme le montre la figure 4.3 représentée en coordonnées logarithmiques.

La longueur de déphasage apparente dans ces conditions est d'environ 0,75 mm, étant donné que deux minima consécutifs de la courbe correspondent à trois points expérimentaux soit 1.5 mm. Notons en effet qu'une condition requise pour « résoudre » la variation du signal

harmonique en fonction de la longueur est que le pas de mesure soit inférieur à la moitié de la longueur de déphasage. La longueur maximale du milieu doit également être supérieure à quatre fois la longueur de déphasage de telle sorte que deux oscillations au minimum soient détectables. Notre courbe expérimentale met quant à elle en évidence 3 minima locaux.



*Figure 4.3 : Variation du signal de l'harmonique 25 dans l'argon en fonction de la longueur de cellule pour différentes positions relatives de l'entrée de la cellule par rapport au foyer, 2 mm avant, 2 mm après et au foyer. La pression dans la cellule est de 15 torr, le diamètre du diaphragme est de 12 mm. On rappelle que z positif correspond à une cellule placée après le foyer du laser.*

La figure (4.3) permet de mettre en évidence un changement de comportement notable des franges au passage du foyer. Lorsque le signal est optimisé en plaçant la cellule après le foyer, les franges ont un contraste très diminué, voire disparaissent et la croissance du signal avec la longueur du milieu devient quasi quadratique, ce qui traduit un meilleur accord de phase. La figure (4.4) correspond quant à elle à une cellule placée 16 mm après le foyer du laser : on observe bien une croissance quadratique du signal de l'harmonique 23 suivie d'une saturation vers 6 mm de longueur de milieu, ce qui permet de démontrer que la longueur de déphasage est bien supérieure à la longueur d'absorption dans ces conditions (6 mm contre 1,5 mm). Nous montrons ainsi que la génération d'harmoniques se fait dans ce cas en limite d'absorption, contrairement au cas présenté dans la figure (4.3) pour laquelle  $z=-2$  mm aboutit à une longueur de déphasage nettement inférieure à la longueur d'absorption pour l'harmonique 25 (0,75 mm contre 2,7 mm).

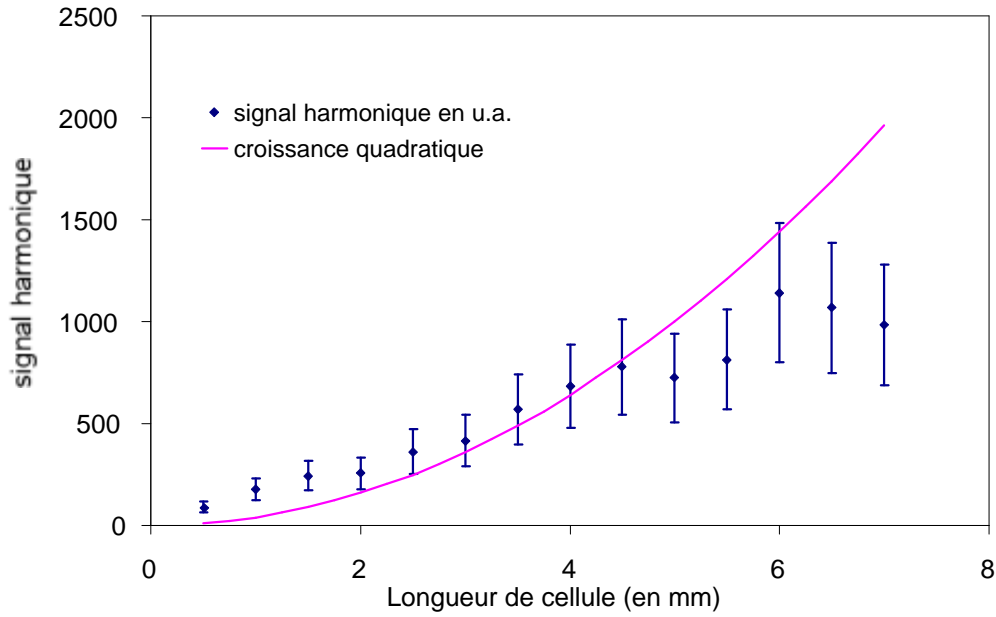


Figure 4.4 : Variation du signal de l'harmonique 23 générée dans l'argon pour une cellule placée 16 mm après le foyer. Les autres paramètres de génération sont identiques à ceux de la figure 4.3

L'accroissement de la longueur de déphasage peut également se lire sur la courbe de la figure (3.21) du chapitre 3 donnant la variation du signal harmonique en fonction de la position cellule-foyer. Nous avons démontré que l'optimisation du signal pour les  $z$  positifs est due à la contribution positive du deuxième chemin quantique.

### 4.3. Condition nécessaire d'existence des franges d'accord de phase

L'observation d'un tel contraste de franges est assez surprenante compte tenu de la complexité spatio-temporelle du mécanisme de génération d'harmoniques. L'existence même de telles franges exige donc des conditions qui garantissent que la longueur de déphasage soit bien fixée, ceci pour éviter un brouillage des franges au sens du vocabulaire des interférences.

#### 4.3.1. Aspect spatial : la variation de la phase de propagation, cadre théorique

Nous reprenons ici quelques définitions importantes évoquées dans la partie accord de phase du chapitre 3. L'observation de franges d'accord de phase est liée, comme nous l'avons vu, à l'existence même d'une longueur de déphasage homogène à un instant donné sur toute la longueur du milieu, en l'occurrence la cellule. En effet, reprenons la formule (3.24) qui donne le flux harmonique instantané en sortie de milieu :

$$N_{out}(t) \propto \left| \int_0^{l_{med}} d_q(z) \exp\left(\frac{z - l_{med}}{2l_{abs}}\right) \exp(i\mathbf{j}_q(t, z)) dz \right|^2 \quad (4.1)$$

Dans le cas où le dipôle est constant dans le milieu et où la phase est linéaire par rapport à  $z$  et s'écrit  $\pi z/l_\pi$ , le résultat de l'intégrale fait apparaître logiquement des franges d'interférences de période  $2l$  :

$$N_{out} \propto d_q^2 \frac{4l_{abs}^2}{1 + 4p^2 \frac{l_{abs}}{l_p^2}} \left( 1 + \exp\left(\frac{-l_{med}}{l_{abs}}\right) - 2 \cos\left(\frac{pl_{med}}{l_p}\right) \exp\left(\frac{-l_{med}}{2l_{abs}}\right) \right) \quad (4.2)$$

Dans le cas où  $l_\pi$  est non constante dans le milieu, il y a brouillage des franges. Le contraste sera en effet fortement détérioré en présence de variations trop importantes de la longueur de déphasage au sein de la cellule.

À titre d'illustration, nous avons choisi trois variations de phase différentes par rapport à la position dans la cellule, notée  $z$ . La première correspond à une phase totalement linéaire, donc à une longueur de déphasage constante. Les deux autres formes de phases choisies comme exemple correspondent respectivement à une croissance quadratique et sous-linéaire (racine carrée) de la phase, pour lesquelles la longueur de déphasage varie avec la position. Ces allures de variation de la phase peuvent correspondre à des cas expérimentaux, dépendant notamment de la position cellule-foyer.

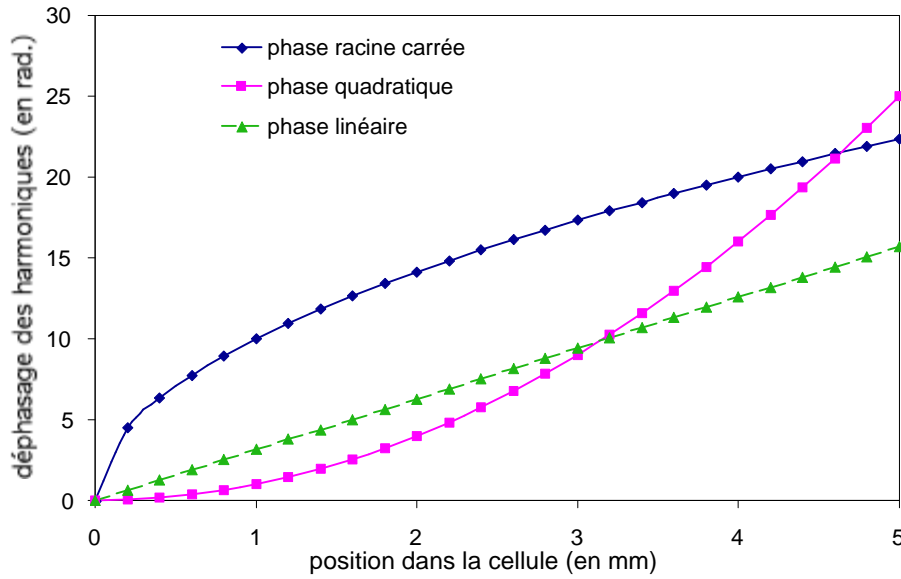


Figure 4.5 : Représentation de trois variations heuristiques de la phase des harmoniques en fonction de la coordonnée à l'intérieur de la cellule. ( $\mathbf{j}(z)=\mathbf{p}z$  en trait continu,  $\mathbf{j}(z)=z^2$  en trait pointillé,  $\mathbf{j}(z)=10 \cdot z^{1/2}$  en croix superposées sur trait continu)

On étudie alors l'influence de la variation spatiale de la phase sur le contraste des franges en calculant le nombre de photons harmoniques en fonction de la longueur de milieu d'après l'équation (4.1) en négligeant la variation suivant  $z$  du dipôle atomique. Les résultats du calcul sont présentés sur la figure 4.6.

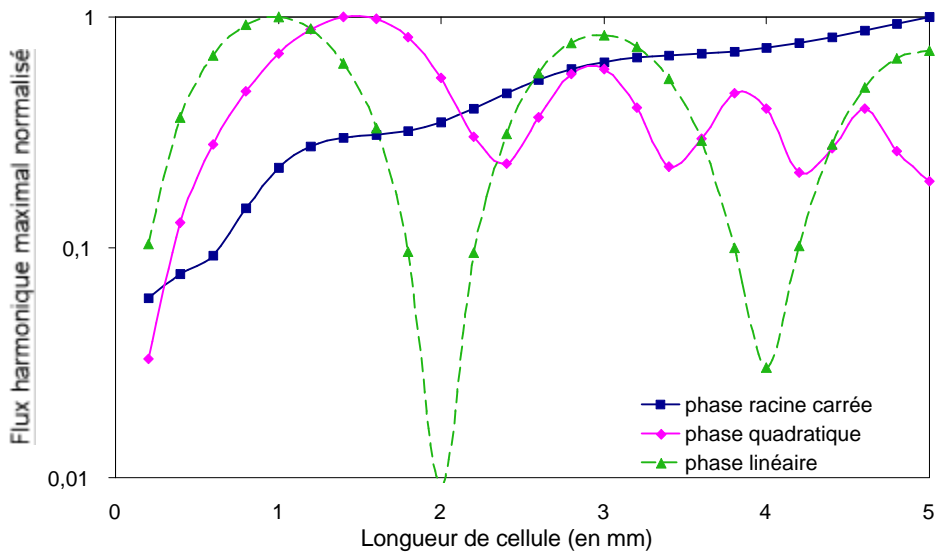


Figure 4.6 : Influence de la forme de la phase sur le flux de photons harmoniques en sortie de cellule en fonction de la longueur du milieu (les croix représentent une phase racine carrée, le trait continu une phase linéaire, et les pointillés une phase quadratique).

Il apparaît ici clairement que le meilleur contraste de franges est obtenu pour une phase linéaire des harmoniques c'est-à-dire une longueur de déphasage fixe. Dans le cas contraire, c'est-à-dire pour une variation sous-linéaire ou quadratique de la phase, de légères oscillations du signal sont observables mais leur contraste est très inférieur.

Ces résultats nous permettent de rappeler deux propriétés différentes de la phase ayant une influence distincte sur la variation du signal harmonique en sortie de milieu de longueur variable. D'une part, le contraste est pour une grande partie lié à la linéarité de la phase (dérivée seconde nulle), d'autre part le nombre de photons en sortie de milieu est essentiellement lié à la dérivée première de la phase : si celle-ci tend vers une valeur nulle ( $\delta k=0$ ), l'accord de phase est optimisé par une longueur de déphasage qui tend vers l'infini.

#### 4.3.2. Processus physiques induisant une phase non linéaire

Une étude des phénomènes conduisant à la détermination de la phase de propagation des harmoniques est nécessaire pour comprendre dans quelles conditions de génération, des franges d'accord de phase sont théoriquement observables.

Le chapitre 3 a permis d'expliciter clairement tous les termes entrant dans le calcul du déphasage entre le faisceau harmonique et le rayonnement infrarouge:

- le déphasage dû à l'ionisation par modification des dispersions atomique et électronique
- le déphasage dû à la phase de focalisation du laser
- le déphasage dû à la phase atomique

La longueur de déphasage est reliée à l'inverse du gradient de ces grandeurs. Elle sera clairement définie si et seulement si les gradients sont homogènes dans toute la cellule. On s'intéresse au terme du premier ordre dans le développement linéaire du gradient spatial de la phase des harmoniques et on rappelle que :

$$\begin{aligned}
dk_{\text{dispersion électronique}} &= \frac{q\omega}{c} \frac{rP_{\text{ionisation}}}{2n_c}(t) \\
dk_{\text{dispersion atomique}} &= -\frac{q\omega}{c} dn_{\text{at}}(1 - P_{\text{ionisation}}) \\
dk_{\text{Gouy}} &= \frac{q/z_0}{1 + (z/z_0)^2} \\
dk_{\text{phase atomique}} &= a \frac{\mathcal{I}(t)}{\mathcal{I}z} = -a \frac{2I_0 z / z_0^2}{(1 + (z/z_0)^2)^2}
\end{aligned} \tag{4.3}$$

$P_{\text{ionisation}}$  est le taux d'ionisation au sein du milieu,  $\rho$  la densité du milieu (proportionnelle à la pression),  $n_c$  la densité critique,  $\omega$  la pulsation du laser,  $q$  l'ordre harmonique. L'intensité est supposée suivre la loi des faisceaux gaussiens pour une longueur de Rayleigh  $z_0$  et une intensité maximale  $I_0$ .

Le terme d'ordre 1 en  $z$  dans l'expression des  $\delta k$  dus aux dispersions électronique et atomique sera négligeable devant l'ordre 0 si le taux d'ionisation est constant dans le milieu. Si on suppose que ce taux varie comme une certaine puissance ( $\nu$ ) de l'intensité, il sera constant si  $z \ll z_0$ . En effet :

$$P_{\text{ionisation}} \propto I^\nu \Rightarrow P_{\text{ionisation}} \propto \frac{I_0^\nu}{(1 + (z/z_0)^2)^\nu} \approx I_0^\nu (1 - \nu(z/z_0)^2) \tag{4.4}$$

De même,  $\delta k_{\text{Gouy}}$  sera constant si et seulement si  $z \ll z_0$ .

On peut donc établir une condition nécessaire pour l'observation de franges d'accord de phase : la longueur de Rayleigh doit être grande par rapport à la longueur de cellule. Les trois figures suivantes permettent de confirmer ce résultat de façon explicite. On y représente la variation spatio-temporelle du déphasage au sein d'une cellule de 5 mm dont l'entrée est placée au foyer du laser, pour trois longueurs de Rayleigh différentes et une intensité laser constante ( $3.10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>). La variation des taux d'ionisation suit les lois ADK et on néglige la phase atomique, on représente le déphasage toutes les femtosecondes de 0 à 100 fs, chaque courbe représente un instant de l'impulsion. La référence de phase est prise en sortie de milieu. Seul le cas correspondant à une grande longueur de Rayleigh permet de mettre en évidence une variation linéaire du déphasage avec  $z$  au voisinage du meilleur accord de phase.

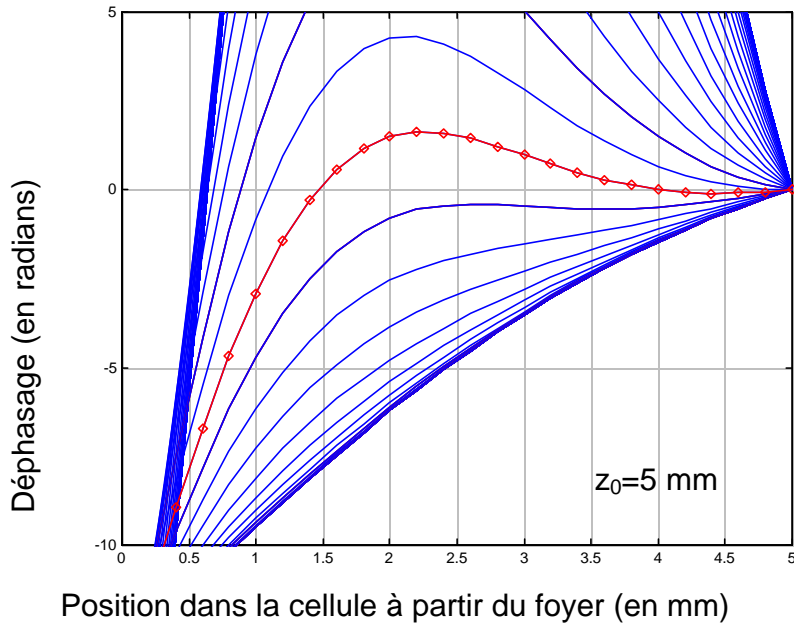


Figure 4.7 : Variation spatiale du déphasage entre l'harmonique 25 générée dans l'argon et le faisceau infrarouge. L'entrée de la cellule est placée au foyer du laser ( $z=0 \text{ mm}$ ), l'intensité vaut  $3.10^{14} \text{ W/cm}^2$ , la pression est de 20 torr et la longueur de Rayleigh de 5 mm. L'instant de meilleur accord de phase en fin de cellule est représenté par les losanges.

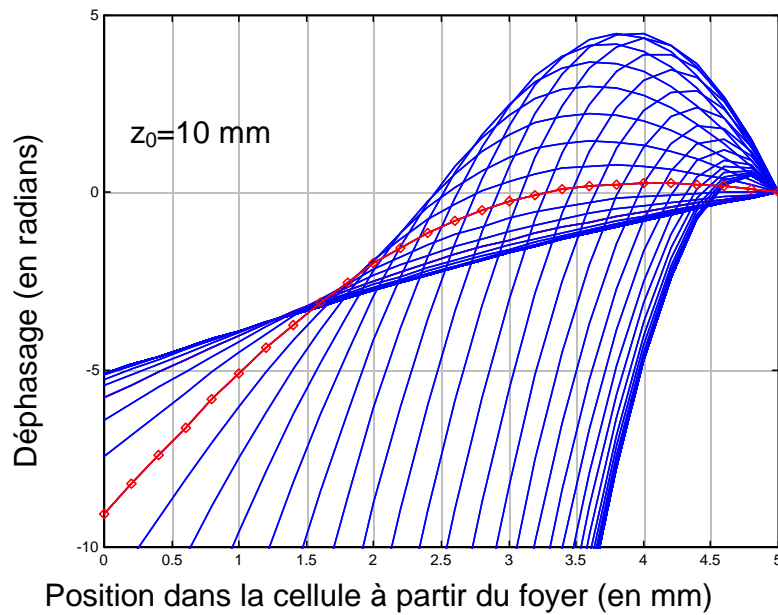


Figure 4.8 : Variation spatiale du déphasage entre l'harmonique 25 générée dans l'argon et le faisceau infrarouge. L'entrée de la cellule est placée au foyer du laser ( $z=0 \text{ mm}$ ), l'intensité vaut  $3.10^{14} \text{ W/cm}^2$ , la pression est de 20 torr et la longueur de Rayleigh de 10 mm. L'instant de meilleur accord de phase en fin de cellule est représenté par les losanges.



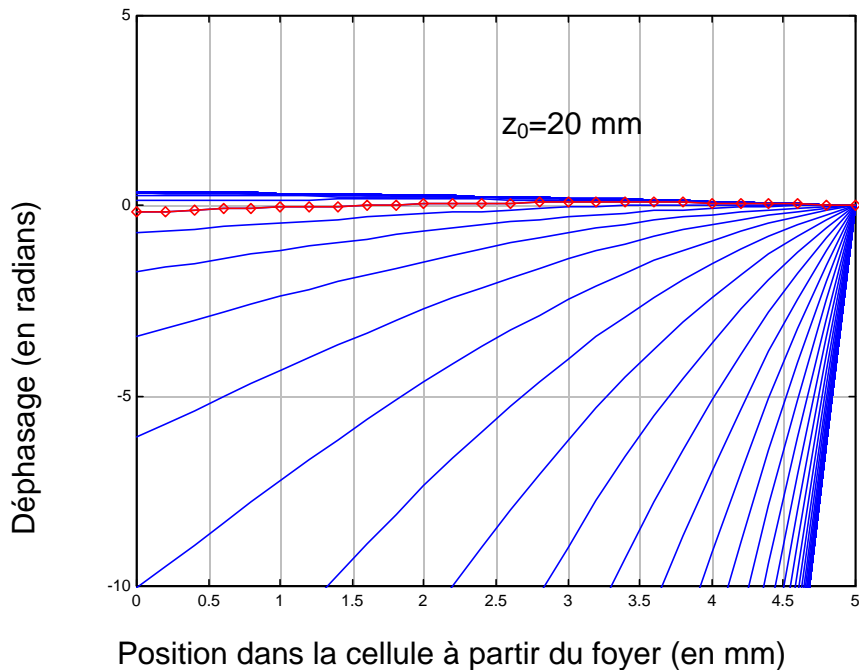


Figure 4.9 : Variation spatiale du déphasage entre l'harmonique 25 générée dans l'argon et le faisceau infrarouge. L'entrée de la cellule est placée au foyer du laser ( $z=0$  mm), l'intensité vaut  $3 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, la pression est de 20 torr et la longueur de Rayleigh de 20 mm. L'instant de meilleur accord de phase en fin de cellule est représenté par les losanges.

Par contre, le terme de gradient de phase atomique d'ordre le moins élevé en  $z$  est linéaire, donc sa variation au premier ordre est impossible à négliger, à moins que le terme de phase atomique tout entier soit négligeable devant les autres paramètres. On rappelle que c'est le cas du chemin 1 pour lequel  $\alpha$  est très faible. Ces conclusions sont en accord avec une remarque faite dans la référence [4]. Les auteurs avaient remarqué que leur code de simulation tridimensionnel permettait de voir des franges d'accord de phase uniquement lorsque la phase atomique liée au dipôle était négligée.

Cela explique que nous avons observé des franges très contrastées dans le cas où la cellule était placée avant le foyer, zone de prédominance du chemin 1. En effet, l'influence d'une forte phase atomique provenant du chemin 2 est dans ce cas contre-productive car le gradient de l'intensité détériore l'accord de phase sur l'axe. Le nombre de photons produits dans ces conditions est négligeable par rapport au nombre de photons produits en ne considérant que le premier chemin quantique. Par contre, si la cellule est placée après le foyer, les conclusions sont inversées et c'est le deuxième chemin quantique qui contribuera le plus au flux de photons.

On conclut ainsi que la configuration « longue focale » est une condition requise pour l'observation de ces franges (les mesures ont été faites pour un diaphragme de 12 mm de diamètre qui garantit une longueur de Rayleigh de 14 mm minimum). De plus, comme nous l'avons vu précédemment, le rôle de la phase atomique est minimisé en plaçant la cellule avant le foyer. Il est rare que toutes ces conditions nécessaires soient réunies dans une même expérience, ce qui

expliquerait pourquoi nous sommes les premiers à avoir observé des franges de Maker aussi contrastées.

#### 4.3.3. Vérification de nos hypothèses par le calcul des phases correspondant à l'instant du maximum de flux harmonique dans les conditions expérimentales

Notre code 1D est ici utilisé pour déterminer le flux de photons harmoniques dépendant du temps. Le maximum de flux est obtenu pour un instant dans l'impulsion correspondant à une certaine valeur de l'intensité laser et de l'ionisation dans le milieu. Quatre cas spécifiques sont alors comparés : pour une cellule courte placée 2 mm après le foyer ( $z=2\text{mm}$ ), on analyse séparément les cas des chemins 1 et 2. On fait de même pour la même cellule placée 2 mm avant le foyer ( $z=-2\text{ mm}$ ).

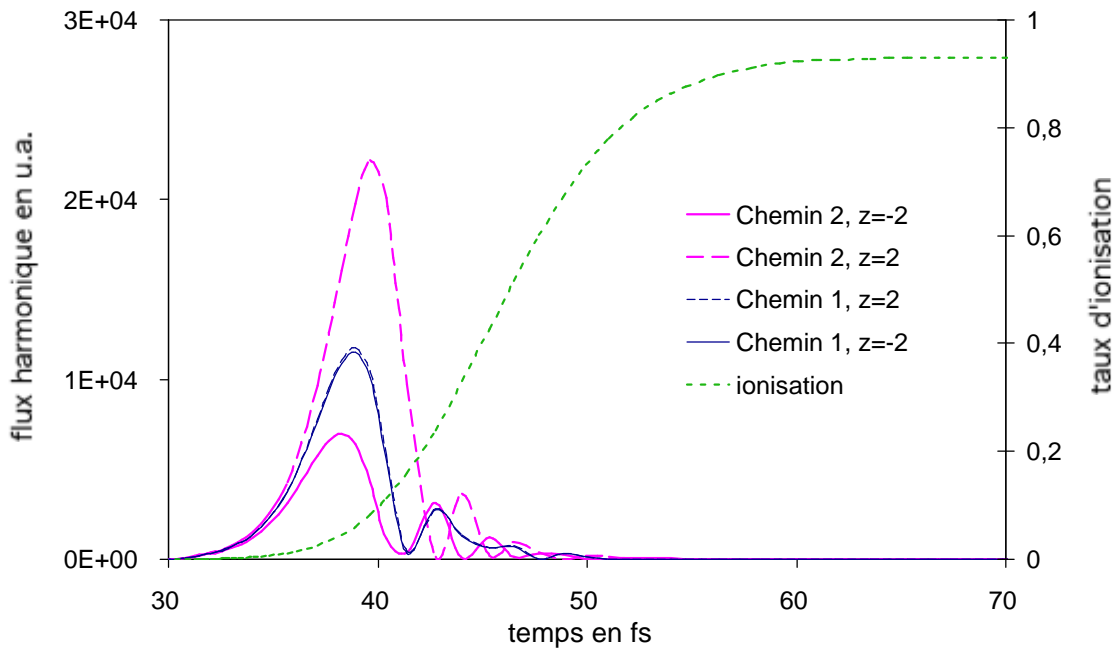


Figure 4.10 : Variation du flux de l'harmonique 25 dans l'argon en fonction du temps pour les deux chemins quantiques et pour deux positions de la cellule symétriques par rapport au foyer. Les conditions utilisées dans le code sont un diaphragme de 12 mm, une cellule de 1 mm et une pression de 15 torr. Le maximum de l'impulsion est centré sur 50 fs. Le taux d'ionisation est représenté en pointillés sur l'axe de droite.

La figure (4.10) permet d'abord de comparer les nombres de photons produits : dans le cas du chemin 2 ce nombre dépend fortement de la position de la cellule par rapport au foyer, tandis que le chemin 1 est indifférent à ce paramètre. Cela corrobore les conclusions du chapitre 3 selon lesquelles l'accord de phase est obtenu plus tard dans l'impulsion et est de meilleure qualité pour le chemin 2 que pour le chemin 1, dans le cas  $z$  positif. Le taux d'ionisation qui permet d'obtenir le maximum de flux correspond à 4 % environ.

Avec les valeurs de taux d'ionisation et d'intensité données par le maximum de flux harmonique, il est possible de reconstruire l'évolution du déphasage dans la cellule.

La figure suivante représente la variation spatiale du déphasage au sein d'une cellule de longueur 5 mm au moment du maximum du flux pour les deux chemins quantiques de part et d'autre du foyer.

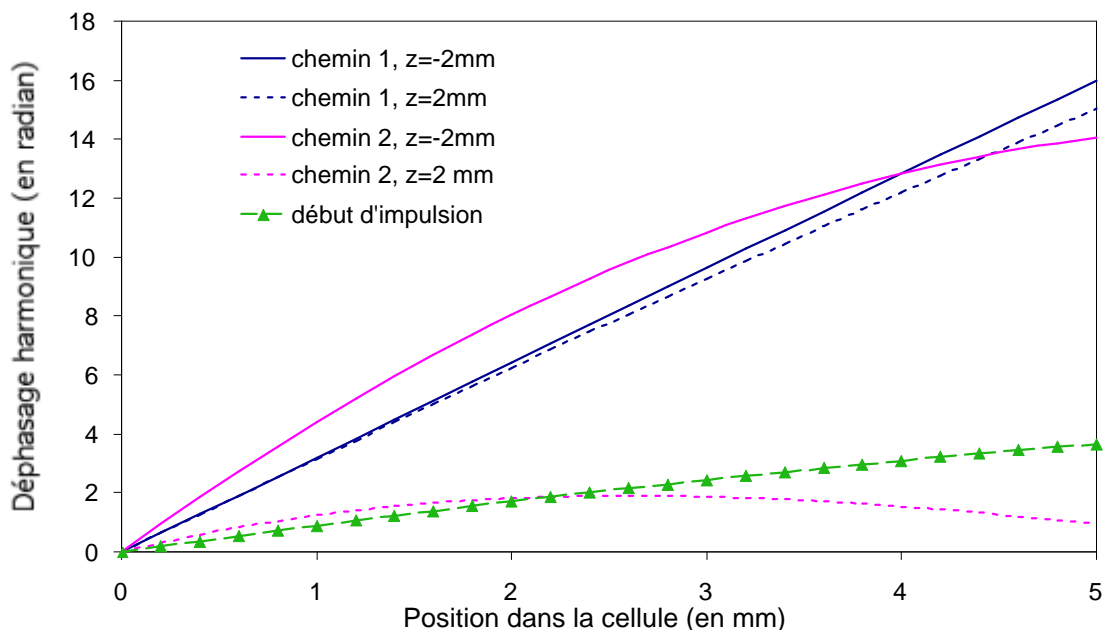


Figure 4.11 : Variation spatiale de la phase de l'harmonique 25 dans l'argon prise au moment du maximum de flux dans les conditions de la figure précédente, on différencie les deux chemins quantiques pour deux positions de cellule différentes.

On remarque tout d'abord que la phase induite par le premier chemin quantique est quasiment indifférente au signe de  $z$ , la position de la cellule par rapport au foyer. De plus, la variation de cette phase est bien linéaire dans nos conditions expérimentales. Le cas du deuxième chemin quantique est radicalement différent : la phase ne présente jamais de variation linéaire en  $z$ , que l'accord de phase soit bon comme dans le cas  $z$  positif, ou qu'il soit mauvais comme dans le cas  $z$  négatif. On met ainsi en évidence le fait que la variation du gradient de la phase atomique avec  $z$ ,  $y$  compris dans le cas d'une focalisation douce ne permet pas de définir une longueur de déphasage constante dans le milieu.

Cette figure permet de prouver que les franges observées expérimentalement dans le cas d'une cellule placée 2 mm avant le foyer sont bien issues de la contribution du chemin 1. La disparition des franges lorsque la cellule est placée après le foyer provient de la contribution du chemin 2 pour lequel la longueur de déphasage n'est pas constante dans le milieu tout en restant toujours supérieure à celle qui provient du chemin 1 (figure (4.11) : courbe en pointillés gris).

Nous avons donc établi des conditions nécessaires d'observation de franges d'accord de phase contrastées. La longueur de Rayleigh doit être grande devant la longueur de milieu et l'on doit se placer dans des conditions qui permettent de négliger le rôle du gradient de phase atomique. Tout cela permet de garantir que la longueur de déphasage est constante dans le milieu à un instant donné. Ces conditions ne sont pas des conditions suffisantes : il peut en outre exister des raisons temporelles de brouillage des franges, comme le montrent les résultats issus du code unidimensionnel.

#### 4.4. Le brouillage des franges et les limites du code unidimensionnel

##### 4.4.1. Brouillage temporel

Jusqu'à présent l'étude des franges a porté exclusivement sur l'instant du maximum de flux harmonique. Une étude complète nécessite de considérer tous les instants de l'impulsion qui contribuent à l'émission d'harmoniques. L'intégration temporelle est réalisée par le code avec les conditions initiales correspondant à l'expérience. On constate alors une forte diminution du contraste théorique obtenu, comme le montre la figure (4.12). On reproduit uniquement qualitativement le changement de comportement au passage du foyer, des effets de déphasage sont cependant décelables dans le cas  $z$  négatif.

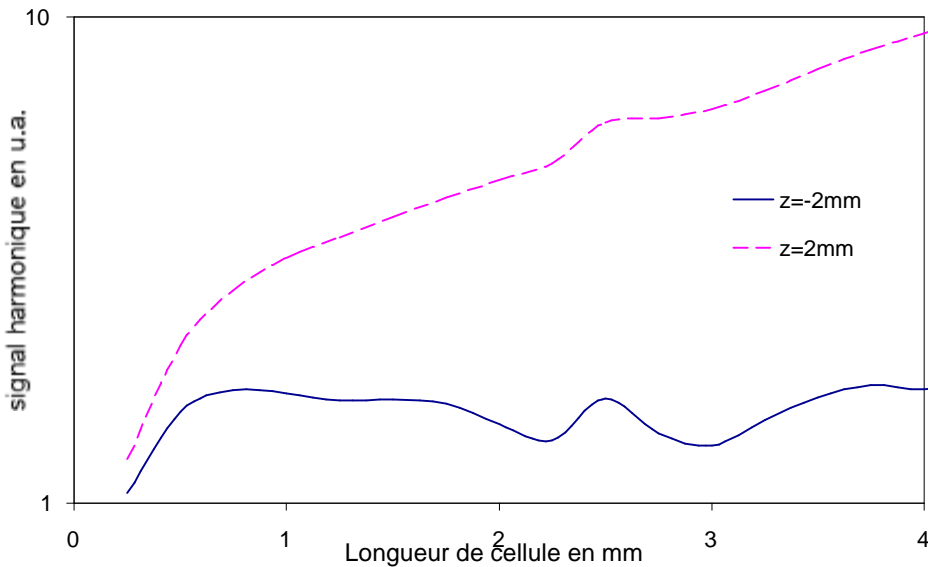


Figure 4.12 : Variation du signal de l'harmonique 25 dans l'argon en fonction de la longueur de cellule. Les valeurs proviennent du calcul par le code unidimensionnel avec comme conditions les valeurs expérimentales utilisées pour les figures précédentes. En trait continu, le signal harmonique pour une cellule placée 2 mm avant le foyer et en pointillé pour une cellule placée après le foyer.

Les contributions des deux chemins quantiques au flux de photons harmoniques sont sommées. Le léger rebond observé sur la courbe en pointillés, comme dans les résultats expérimentaux provient de l'addition du signal du chemin 1 qui induit une légère modulation au signal prédominant du chemin 2.

Du point de vue du code unidimensionnel, la perte de lisibilité des franges provient de la forte dépendance temporelle de la longueur de déphasage. Si le maximum de flux est obtenu à un instant tel que la longueur de déphasage correspond à la demie période des franges observées, les instants précédant ce maximum correspondent à une longueur de déphasage plus grande et ceux