L'émission X : un outil et une sonde pour l'interaction laser - agrégats

Christophe Prigent

▶ **To cite this version:**

Christophe Prigent. L'émission X : un outil et une sonde pour l'interaction laser - agrégats. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2004. Français. NNT : . tel-00008159

HAL Id: tel-00008159
https://theses.hal.science/tel-00008159

Submitted on 20 Jan 2005

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ PARIS VI – PIERRE ET MARIE CURIE

École Doctorale : la Physique de la particule au solide, modèles et expériences

THÈSE

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PARIS VI

Spécialité : Physique expérimentale des atomes et des molécules

par

Christophe PRIGENT

L'émission X : un outil et une sonde pour l'interaction laser – agrégats

Soutenue le 7 décembre 2004 devant le jury composé de :

M[r] Philippe BALCOU, Chargé de recherche CNRS	Rapporteur
M[r] Fabien DORCHIES, Chargé de recherche CNRS	
M[me] Sylvie JACQUEMOT, Ingénieur de l'armement	Rapporteur
M[r] Alfred MAQUET, Professeur P6	Président du jury
M[r] Didier NORMAND, Ingénieur CEA	
M[r] Éric SURAUD, Professeur Toulouse	
M[me] Dominique VERNHET, Directrice de recherche CNRS	Directeur de thèse

À ma petite sœur Alizée,
À nos actes manqués ...
...et les miens d'autant plus... !...

Remerciements :

À ma petite sœur, Alizée, avec toute mon affection …

Un jour, ma petite sœur me demanda pourquoi la mer montait et descendait tous les jours. Aussitôt, en bon étudiant en Physique que j'étais et avec pleins de théories en tête, j'essayais de lui dire que la Lune attirait la mer en pensant, en moi – même, Loi de l'attraction universelle de Newton, Théorème de Gauss pour expliquer le fait qu'il y a deux marées par jour, etc….. Mais cette explication ne semblait pas la convaincre (et pour cause !!), elle me demanda alors pourquoi la Lune attirait la mer, et là, je fus totalement désarmé car après tout comme nous l'a appris Gaston Bachelard, la Science ne répond pas aux « pourquoi » mais aux « comment ». Elle répondit alors à sa propre question en disant, avec l'innocence d'une enfant de trois ans, que c'était tout simplement pour donner à boire aux étoiles…Je fut alors véritablement impressionné par cette explication et je me suis demandé, pourquoi les explications d'une enfant de trois ans ne seraient – elles pas meilleures que celles des physiciens quand elles sont aussi belles que celle là ! Et après tout, le travail d'un physicien n'est – il pas de trouver des explications simples et élégantes à des phénomènes complexes …

Maintenant que le « pavé » est fini (et cela n'est pas peu dire ! c'est maintenant sûr il n'y aura pas d'autres tomes…), il est venu le temps d'écrire les remerciements « rituels » qui se placeront au début de ce manuscrit et qui resteront, pour la plupart des personnes qui l'auront entre les mains, les seules et uniques pages qui seront véritablement lues (je ne conseil à personne de tout lire d'une traite sous peine d'avoir une migraine prolongée … !).

En premier lieu, je tiens à remercier tous les membres du jury qui ont bien voulu lire ce travail (cela relève déjà d'un challenge) et y apporter leur point de vue critique et constructif. Je suis ainsi reconnaissant à Sylvie Jacquemot et Philippe Balcou d'avoir rapporté sur ce travail dans un délai qui fut plutôt court et avec un manuscrit, somme toute, assez fragmentaire et d'y avoir porté autant d'attention. Je souhaite également remercier Didier Normand d'avoir participé à ce jury et d'avoir toujours montré beaucoup d'intérêt pour ces études en accordant, notamment, du temps de faisceaux sur le LUCA pour nos différentes campagnes d'expériences ainsi que de m'avoir permis d'obtenir une bourse CFR au CEA afin de mener à bien ce travail. Je profite également de cette occasion pour adresser un grand merci à toute la *LUCA's team* (Olivier Gobert, Pierre Meynadier et Michel Perdrix) pour tout ce qu'ils ont faits afin de mener à bien ces différentes campagnes d'expériences et pour leurs compétences : qu'aurions – nous fait sans vous ? Je voudrais également remercier Eric Suraud d'avoir pu participer à ce jury malgré ces nombreuses occupations et de m'avoir accueilli à Toulouse pour que je puisse appréhender la nouvelle version du code nanoplasma mis au point par son équipe. J'en profite ainsi pour remercier Fernand Spiegelman qui a permis, par le GDR « agrégats », une coopération entre l'équipe de l'interaction particules matière et l'équipe d'Eric Suraud de Toulouse. Cette coopération m'a véritablement permis de comprendre le modèle nanoplasma et a ainsi permis à toute l'équipe, d'une manière générale, de faire évoluer notre compréhension de l'interaction laser – agrégats. Je remercie Fabien Dorchies d'avoir participé à ce jury ; la complémentarité des différentes approches est toujours enrichissante pour faire avancer la recherche. Enfin, je suis particulièrement honoré qu'Alfred Maquet ait présidé ce jury et je souhaite lui témoigner aujourd'hui toute ma reconnaissance d'avoir initié un étudiant de DEA à l'interaction laser – matière par ces connaissances.

Dans un second temps, tout travail de recherche ne peut se mener à bien que dans un environnement scientifique et humain enrichissant, c'est pourquoi je voudrais remercié ici Claudine Noguera de m'avoir accueilli dans son laboratoire (à l'époque le GPS mais aujourd'hui l'INSP…) pour effectuer cette thèse et de m'avoir toujours témoigné une grande

attention. La bonne ambiance de l'équipe dans laquelle l'étudiant « tombe » pour faire sa thèse est cruciale pour pouvoir travailler efficacement, c'est pourquoi je veux ici remercier toute l'équipe des interactions particules – matière pour tout ce qu'ils m'ont appris pendant ces (presque !) 4 années ; en effet, que serait un thésard sans les connaissances des séniors … ? Tout d'abord, je tiens à remercier Dominique Vernhet de m'avoir accueilli dans l'équipe, d'avoir dirigé cette thèse et de m'avoir accordé du temps pour mener à bien ce travail ; Dominique, trouves ici l'expression de ma gratitude devant le travail achevé : nous y sommes finalement parvenus et ne gardons que le résultat final qui est, au bout du compte, pas si mal. Je souhaite également remercier Jean – Pierre Rozet pour ce qu'il m'a appris et pour le reste aussi. Enfin, un grand merci à Emily Lamour de m'avoir supporté (et c'est déjà beaucoup !!), pour toutes nos crises de rire (moi, avec mon rire agricole et toi, avec ton rire de marquise …. et peut être bientôt de duchesse … ?), nos discussions sérieuses (ne sommes – nous que de la chimie ?? et Dieu dans tout ça ?? et sur la Physique bien évidemment !) et d'autres moins sérieuses (nos délires quoi !!) : bref, pour sa présence lors de ces années qui fut véritablement un pilier pour la concrétisation de ce qui n'était pour moi qu'un rêve et qui est maintenant devenu une réalité … Les « bedazées » passées avec Fabien (comprend qui pourra) ont également fait partie des bons moments de cette dernière année, alors un grand merci à lui !! L'environnement particulièrement agréable qui s'est créé à Boucicaut (a contrario de celui de Jussieu ?…) avec nos pauses café si conviviales m'ont également permis de « dépressuriser » des vicissitudes de ces derniers mois : alors, un grand merci à Charlotte (j'ai appris de nombreuses choses pour mon mariage maintenant, peut être ne manque t – il plus que l'essentiel !!), à Geoffroy (quelle culture ! j'aurais au moins appris que Véronèse était un peintre italien du XVI^{ème} siècle et non le dernier film américain à la mode), à l'équipe des non – pocahontas (Anne, Arnaud, ma cousine Marie – Anne, MF et le dernier venu Carlos…pour toutes les discussions que nous avons eues) et à tous les autres qui y sont venus et qui ont pu participer à notre salon de Philosophie du midi… !!

Pour finir, et d'une manière un peu plus « personnelle », je voudrais adresser un grand merci aux caennais qui m'ont mis le pied à l'étrier dans ce monde de la recherche et grâce auxquels j'ai pu arriver au GPS, un jour de février 2001, par hasard (hein, Lamri et Mehdi ??) … Du point de vue (très) personnel, je ne ferais qu'une seule incartade à ma règle, mais je tiens ici véritablement à exprimer toute mon affection à lolo et à mag pour tout ce que nous avons fait ensemble depuis plusieurs années (en tout bien tout honneur, il va de soit) : ce travail n'aurait certainement pas abouti sans votre aide (souvenons – nous d'un certain coup de fil du 21 novembre 2004 … parole, parole, parole…rien que des mots …), je vous revaudrais cela, à vous de jouer maintenant ! C'est une façon de parler bien évidemment !

Oups, l'esprit de concision n'est décidemment pas mon fort et après un manuscrit de plus de 350 pages, je m'aperçois que les remerciements font également 2 pages en simple interligne… je manque décidément de recul et je vais donc m'arrêter ici, en oubliant certaines personnes mais l'exhaustivité n'est point de ce monde (le choix des personnes que l'on remercie reste toujours cornélien…) : alors, simplement merci à tous ceux que j'ai pu croiser (tant du point de vue personnel que professionnel) pendant ces 3 années et avec qui j'ai pu avoir de bons et de mémorables moments (qui a dit que la Physique c'était que du sérieux ? faut aussi savoir rigoler !) et un non – merci sincère à ceux que je n'ai pas revu depuis de nombreuses années ; j'y suis arrivé en dépit de votre absence … ceux qui doutent peuvent toujours essayer de me joindre : s'ils ont mon numéro, c'est déjà un bon point !! Et comme il est écrit dans les films, toute ressemblance avec des personnes existantes ou ayant existées ne serait qu'une pure coïncidence …

Bonne lecture à tous, et n'oubliez pas que tout cela est à consommer avec modération,
l'abus de thèse est dangereux pour la santé …

Sommaire général du manuscrit

INTRODUCTION.....1

CHAPITRE I| L'INTERACTION LASER INTENSE – AGRÉGATS DE GAZ RARE : ÉTATS DES CONNAISSANCES 5

A] INTRODUCTION : LES EXPERIENCES PIONNIÈRES..... 8
B] MÉCANISMES FONDAMENTAUX..... 13
C] ÉTUDES DE LA PRODUCTION D'IONS ET D'ÉLECTRONS..... 24
D] ÉTUDES DE LA GÉNÉRATION DE RAYONS X DURS..... 76

CHAPITRE II| DÉMARCHE EXPÉRIMENTALE : CONTROLE ET OPTIMISATION DES PARAMÈTRES SUR L'ÉMISSION X 105

A] INTRODUCTION..... 108
B] LA LASER..... 110
C] LE JET D'AGRÉGATS..... 136
D] LA DÉTECTION X..... 161
E] OPTIMISATION DU RECOUVREMENT SPATIAL DE L'IMPULSION LASER ET DU JET D'AGRÉGATS..... 185

CHAPITRE III| MÉTHODE D'ANALYSE DES SPECTRES X 191

A] INTRODUCTION..... 193
B] DÉTECTEURS Si(Li)..... 194
C] SPECTROMÈTRE CRISTALLIN..... 217
D] TAUX ABSOLU DE PHOTONS X..... 230

CHAPITRE IV| PRÉSENTATION DES RÉSULTATS ET DISCUSSIONS.....231

A] INTRODUCTION..... 234
B] MODÈLE DYNAMIQUE D'IONISATION EN COUCHE INTERNE..... 235
C] EFFET DE LA POLARISATION..... 245
D] EFFET DE L'ÉCLAIREMENT LASER *VIA* L'ÉNERGIE PAR IMPULSION 253
E] EFFET DE LA TAILLE DES AGRÉGATS *VIA* LA PRESSION..... 270
F] EFFET DE LA DURÉE D'IMPULSION..... 284
G] EFFET DE LA LONGUEUR D'ONDE..... 307

CONCLUSION & PERSPÉCTIVES.....319
ANNEXES.....331
BIBLIOGRAPHIE.....345
LISTE DES FIGURES & DES TABLEAUX.....357

Introduction

"On peut voir trois principaux objets dans l'étude de la vérité :
l'un, de la découvrir, quand on la cherche,
de la démontrer quand on la possède
le dernier, de la discerner d'avec le faux quand on l'examine"
Blaise Pascal (1623 – 1662)
Philosophe / Mathématicien - Physicien

Depuis leur découverte dans le milieu des années 50, les agrégats atomiques ont ouvert tout un nouveau domaine de recherche pour les physiciens et les chimistes. Cet intérêt pour les agrégats découle de leur position intermédiaire dans l'arrangement de la matière entre les atomes isolés et le solide. De part leur structure, les agrégats possèdent en effet une densité atomique locale élevée (de l'ordre de celle d'un solide) alors qu'en moyenne la densité atomique d'un jet d'agrégats est de plusieurs ordres de grandeur inférieure et se rapproche en cela d'une cible gazeuse. Ceci a permis initialement d'étudier l'évolution des propriétés physiques et chimiques d'un atome isolé à une structure plus massive. A titre d'exemple, pour les agrégats métalliques, il a été découvert, dans le domaine optique, l'oscillation collective des électrons libres qui est responsable de l'absorption géante observée dans les spectres d'absorption.

Durant la dernière décennie, les études concernant l'interaction laser – agrégats ont été étendues à des intensités laser dépassant 10^{14} W/cm^2, avec des impulsions laser ayant une durée de l'ordre de quelques dizaines de *fs* jusqu'à 1 *ps* grâce au développement des sources laser de grande puissance. Dans ce régime de perturbation électronique intense de la matière des effets totalement nouveaux ont été observés avec les agrégats comme la production d'ions fortement multichargés et rapides, l'éjection d'électrons énergétiques ou encore la production de rayonnement X dur et intense. Ceci traduit, en fait, un renforcement du couplage entre le rayonnement électromagnétique incident et la matière en présence d'agrégats.

Suite aux premières expériences réalisées par l'équipe concernant l'émission X issue de l'interaction laser intense – agrégats de gaz rare, nous avons voulu étudier d'une manière systématique l'influence des différents paramètres susceptibles de modifier l'émission X comme l'intensité laser, la longueur d'onde, la durée d'impulsion, la taille et la nature des agrégats. La spectroscopie X, de part l'étude des transitions associées à des configurations électroniques ayant une durée de vie comprise entre quelques femtosecondes et quelques centaines de femtosecondes, est un outil extrêmement intéressant pour étudier la dynamique temporelle de l'interaction et pour mettre en évidence la compétition entre les différents processus : elle constitue, de ce point de vue, une sonde temporelle du même ordre de grandeur voir plus courte que la durée de l'impulsion laser.

Ce mémoire de thèse s'articule de la façon suivante :

- Chapitre I : après un récapitulatif des expériences pionnières concernant l'interaction laser intense – agrégats et les mécanismes fondamentaux intervenant dans la dynamique de l'interaction, un état des connaissances "critique" est présenté concernant à la fois les

expériences réalisées en spectroscopie d'électrons et d'ions et également en spectroscopie X. En particulier, les premiers résultats expérimentaux obtenus en spectroscopie d'ions et d'électrons sont revisités à la lumière des dernières avancées expérimentales et théoriques dans le domaine de l'interaction laser – agrégats. Pour chacune de ces observables, les résultats expérimentaux présentés sont confrontés aux différentes approches théoriques qui ont été avancées afin de tenter d'expliquer la dynamique de l'interaction laser – agrégats et notamment le modèle nanoplasma qui constitue à l'heure actuelle le modèle le plus élaboré pour tenter de décrire cette dynamique.

- Chapitre II : une description détaillée du dispositif utilisé lors des différentes campagnes d'expériences réalisées pendant ce travail de thèse est présentée dans ce chapitre. Les méthodes expérimentales afférentes y sont aussi exposées. En particulier, nous développerons comment les différents paramètres influant sur l'émission X (ceux du laser et ceux du jet pulsé d'agrégats) ont été contrôlés. Les techniques de détection X seront également exposées et nous finirons ce chapitre par la description des expériences ayant permis l'optimisation spatiale de l'impulsion laser avec le "pulse" d'agrégats.
- Chapitre III : un des points importants du travail de thèse présenté dans ce manuscrit était d'extraire des résultats quantitatifs et en particulier des taux absolus de photons X. Ce chapitre est donc consacré aux méthodes d'analyse des spectres X qui ont été mises au point.
- Chapitre IV : dans ce dernier chapitre, il sera tout d'abord présenté le modèle dynamique d'ionisation en couche interne développé par l'équipe et qui a motivé, plus spécifiquement, ce travail de thèse. Ensuite, les résultats expérimentaux obtenus lors des différentes campagnes d'expériences sont présentés. Plus particulièrement, nous avons étudié comment évolue l'émission X (taux de photons X et distribution en état de charge des ions émetteurs) en fonction des différents paramètres comme l'état de la polarisation du laser, l'éclairement, la taille des agrégats, la durée d'impulsion ainsi que la longueur d'onde du laser. Ces résultats seront discutés à partir du modèle dynamique d'ionisation en couche interne mais seront également confrontés aux tendances du modèle nanoplasma. En particulier, ce modèle ne pouvant pas expliquer la création de lacunes en couche interne, nous avons étudié l'évolution de la température électronique extraite de ce code en fonction des différents paramètres.

La conclusion présentera un résumé succinct des résultats marquants obtenus pendant ce travail de thèse mais aussi toute une série de perspectives qui en découlent tant au niveau expérimental que théorique.

Chapitre I

L'interaction laser intense – agrégats de gaz rare :

État des connaissances

"Nous ne percevons, pratiquement que par le passé :
le présent pur étant l'insaisissable progrès du passé rongeant l'avenir"
Henri Bergson (1859 – 1941)
Prix Nobel de Littérature 1927

Plan détaillé du Chapitre

CHAPITRE I : L'INTERACTION LASER INTENSE – AGRÉGATS DE GAZ RARE : ÉTAT DES CONNAISSANCES 5

A] INTRODUCTION : LES EXPÉRIENCES PIONNIÈRES 8

A-1] GENERATION D'UN RAYONNEMENT X INTENSE 8
A-2] PRODUCTION D'IONS MULTICHARGES RAPIDES 10
A-3] MISE EN EVIDENCE DE LA PRESENCE D'EFFETS COLLECTIFS 11

B] MÉCANISMES FONDAMENTAUX 13

B-1] IONISATION PAR EFFET DE CHAMP 13
B-1-a) Ionisation par suppression de la barrière coulombienne 14
B-1-b) Ionisation multiphotonique 15
B-1-c) Ionisation par effet tunnel 16
B-2] ACCELERATION DES ELECTRONS DANS LE CHAMP LASER 18
B-3] IONISATION COLLISIONNELLE 19
B-3-a) Section efficace d'ionisation dans le formalisme de Lotz 20
B-3-b) Discussion de l'approximation de Lotz 20

C] ÉTUDES DE LA PRODUCTION D'IONS ET D'ÉLÉCTRONS 24

C-1] CONTEXTE THEORIQUE : LE MODELE NANOPLASMA 24
C-1-a) Calcul des taux d'ionisation collisionnelle 24
1°) Contribution thermique 25
2°) Contribution du champ laser 26
C-1-b) Le chauffage par Bremsstrahlung Inverse 29
1°) Phénomène de résonance 31
2°) Champ électrique et taux de chauffage par BI à la résonance 31
3°) Champ électrique à l'intérieur de l'agrégat hors des résonances 33
4°) Modèle nanoplasma standard 34
C-1-c) Présentation d'un code nanoplasma modifié 34
C-1-d) Dynamique de l'agrégat 37
1°) Équation fondamentale du nanoplasma 37
2°) Pressions régnant à l'intérieur de l'agrégat 38
3°) Évolution de la densité électronique 40
4°) Épaisseur de peau et champ électrique à l'intérieur de l'agrégat 40
5°) Dynamique d'ionisation 42
6°) Évolution de la température électronique 44
7°) Influence de la taille et de l'éclairement laser sur la dynamique 46
7°-i) Influence de la taille des agrégats 47
7°-i) Influence de l'éclairement laser 47
C-2] CONFRONTATION EXPERIENCES – THEORIES 51
C-2-a) La spectroscopie d'électrons 51
1°) Distribution énergétique des électrons 51
1°-i) Confrontation des différents travaux expérimentaux 51
1°-ii) Confrontation avec le modèle nanoplasma 54
2°) Distribution angulaire des électrons 56
2°-i) Confrontation des différents travaux expérimentaux 56
2°-ii) Effet lié à la polarisation de surface 58
3°) Evolution de l'émission électronique avec la durée d'impulsion 60
4°) Bilan sur la spectroscopie d'électrons 61
C-2-b) La spectroscopie d'ions 62
1°) Évolution de l'énergie maximale des ions 62
1°-i) Influence de la taille des agrégats 63
1°-ii) Influence de l'éclairement laser 64
2°) Explosion anisotrope des agrégats 66
2°-i) Confrontation des différents travaux expérimentaux 66
2°-ii) Confrontation avec des modèles de dynamique moléculaire 68
3°) Mécanismes d'explosion des agrégats 69
3°-i) Confrontation des différents travaux expérimentaux 70
3°-ii) Confrontation avec les modèles 72

4°) Bilan sur la spectroscopie d'ions 74

D] ÉTUDES DE LA GÉNÉRATION DE RAYONS X DURS 76

D-1] INTRODUCTION 76
D-1-a) Présentation générale 76
D-1-b) Ignition Ionization Model (IIM) 76
1°) Présentation succincte du modèle 77
2°) Résultats 77
3°) Conclusion 79
D-2] AGREGATS DE KRYPTON ET DE XENON 79
D-2-a) Agrégats de krypton : étude des X_L 79
1°) Expériences qualitatives : Travaux de C. Rhodes et collaborateurs 79
2°) Expériences quantitatives : Résultats de la thèse de S. Dobosz 81
2°-i) Influence de l'éclairement laser 81
2°-ii) Influence de la taille des agrégats 82
1°-ii) Polarisation 82
D-2-b) Agrégats de xénon : étude des X_L et mouvement collectif et cohérent des électrons 85
1°) Production de multiples lacunes en couche 2p 85
2°) Effets de la longueur d'onde 87
3°) Effets de l'intensité laser 90
D-3] AGREGATS D'ARGON 92
D-3-a) Présentation des résultats expérimentaux 92
1°) Évolution avec l'éclairement laser *via* l'énergie par impulsion 93
2°) Évolution avec la pression en amont de la buse de condensation 94
3°) Effet de la polarisation 95
D-3-b) Apport des codes plasma 96
1°) Description succincte des codes plasma 96
1°-i) La chaîne de programmes HULLAC 96
1°-ii) Le modèle d'ionisation CLUSTER 98
2°) Résultats issus de ces simulations 98
2°-i) Meilleur ajustement avec COLRAD 98
2°-ii) Influence de la température électronique T_e 99
2°-iii) Influence de la densité électronique n_e 100
2°-iv) Effets des collisions 100
2°-v) Dynamique d'ionisation avec CLUSTER 101
3°) Perspective : le modèle AGREGIX 102
D-4] BILAN SUR LA SPECTROSCOPIE X 103

A] Introduction : les expériences pionnières

L'interaction d'un laser de puissance avec des agrégats constitue un sujet de recherche relativement récent. En effet, bien que les propriétés optiques des agrégats (notamment métalliques) aient été intensivement étudiées depuis l'avènement du laser [Heer, 1993], il aura fallu attendre le début des années 90 et la mise au point de la technique CPA *("Chirp Pulse Amplification")* pour que les physiciens s'intéressent à cet état de la matière sous champ laser intense[1] ($I \geq 10^{15}$ *W/cm*^{2}). Nous allons présenter, dans ce paragraphe, les principaux résultats issus de trois articles, tous publiés entre 1993 et 1994, qui marquent la genèse des études concernant l'interaction d'un laser de puissance avec des agrégats et qui démontrent leur caractère **singulier** :

- génération d'un intense rayonnement X jusqu'à quelques *keV* issu d'ions très multichargés présentant des lacunes en couche interne ;
- production d'ions fortement multichargés et ayant une énergie cinétique de l'ordre de plusieurs centaines d'*eV* ;
- présence d'effets collectifs sur les électrons lors de la dynamique d'évolution de l'agrégat pendant l'interaction (du type ionisation collisionnelle).

Ces études pionnières illustrent bien la question à laquelle les physiciens n'ont, pour l'instant, apporté qu'une réponse partielle : quels sont les différents processus physiques, et leurs compétitions éventuelles, intervenant lorsqu'un agrégat est soumis à une excitation électronique intense *via* une impulsion laser femtoseconde.

A-1] Génération d'un rayonnement X intense

Tout d'abord, l'équipe de C. Rhodes et collaborateurs de l'Université de Chicago [McPherson et al., 1993] [McPherson et al., 1994a] [McPherson et al., 1994b] met en évidence la production d'un important rayonnement X (d'énergie pouvant aller jusqu'à quelques *keV*) lors de l'irradiation d'agrégats de gaz rare de krypton et de xénon de taille nanométrique. Faute de pouvoir quantifier précisément ce rayonnement X, les auteurs le qualifient alors *d'anormalement intense* par rapport à ce qu'ils observent avec une cible gazeuse de forte densité atomique (~ 10^{18} atomes / *cm*^{3} [McPherson et al., 1987]).

Pour les agrégats de krypton, les raies X observées sont attribuées à la présence de Kr^{9+} et de Kr^{10+} (*cf. Figure I-1*) possédant des lacunes en couche M : il s'agit d' X_M identifiés

[1] L'éclairement crête (ou intensité au pic) sera noté par la lettre *I* dans ce chapitre.

principalement, par les auteurs, comme des transitions $4p \rightarrow 3d$. De plus, leurs spectres indiquent un accroissement du taux d'X ainsi qu'une augmentation de l'état de charge moyen lorsque la taille des agrégats augmente. La *Figure I-1b*, obtenue en refroidissant la buse de formation des agrégats, correspond en effet à l'irradiation d'agrégats ayant une taille plus grande que la *Figure I-1a*.

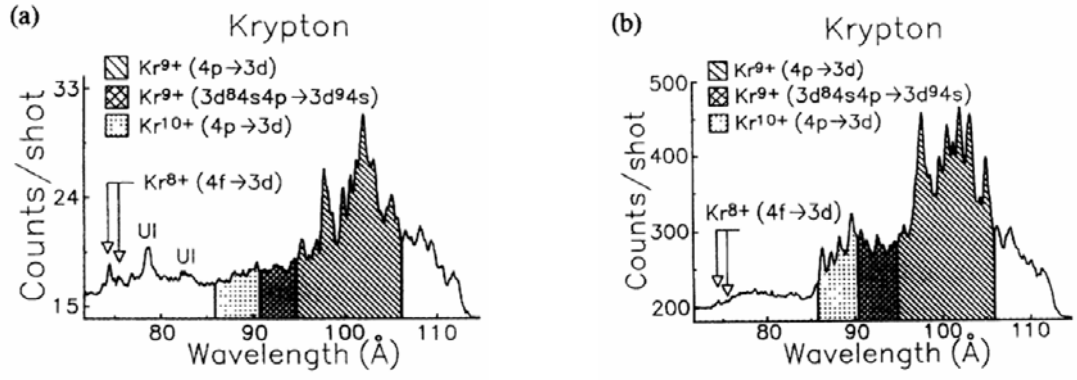


***Figure I-1 :** Comparaison des spectres X_M de Kr dans la région 72 – 112 Å issus de l'irradiation d'agrégats de krypton par une impulsion laser ($\lambda = 248$ nm ; $\tau = 300$ fs) ayant une intensité crête de l'ordre de 10^{17} W/cm^2 pour différentes conditions de formation des agrégats :*
a) T = 293 K et P ≅ 8 bars b) T = 238 K et P ≅ 9 bars [McPherson et al., 1994a].

Dans le cas des agrégats de xénon, ils établissent que le rayonnement X est issu d'ions fortement multichargés $Xe^{>44+}$ possédant des lacunes en couches internes (en l'occurrence en couche L {*cf. Figure I-2a*}) mais ayant encore plusieurs électrons sur des orbitales de valence ($n \geq 3$). Ce résultat est déduit de l'analogie entre les spectres obtenus par irradiation laser – agrégats et par irradiation d'ions lents multichargés ($Xe^{44+ \text{ - } 48+}$) sur une surface (Cu) [Clark, Schneider & McDonald, 1993] (*cf. Figure I-2b*).

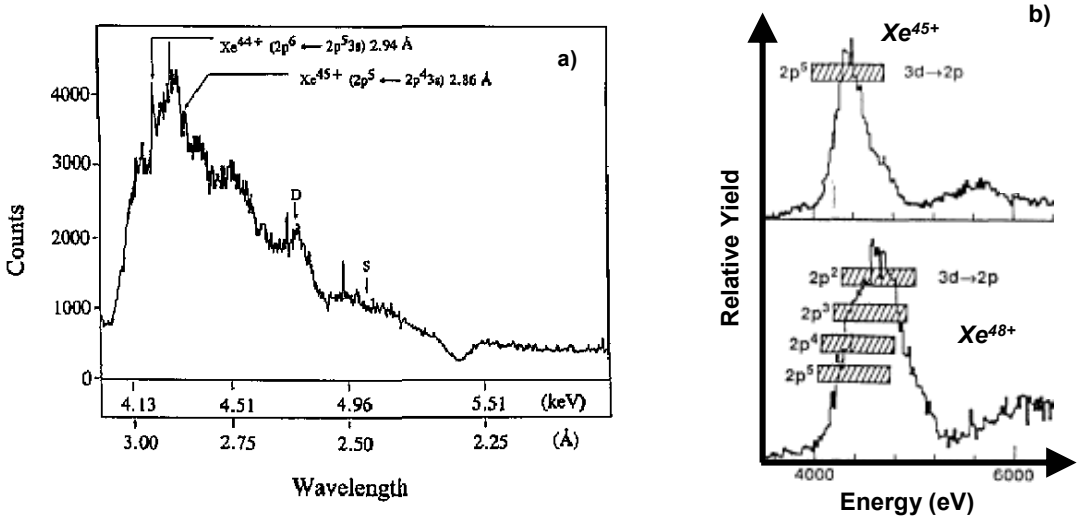


***Figure I-2 :** a) Spectre d'X_L dans la région 4 – 6 keV issu de l'irradiation d'agrégats de xénon ($\lambda = 248$ nm ; $\tau = 300$ fs ; $I \sim 8 \times 10^{18}$ W/cm^2) [McPherson et al., 1994b]*
b) Spectres X obtenus en envoyant des ions multichargés de Xe sur une surface de Cu [Clark et al., 1993].

L'émission X est ainsi identifiée comme étant due à des transitions $3\ell \rightarrow 2p$ (avec une ou plusieurs lacunes en couche $2p$) issues d'atomes creux de Xe^{q+} avec une distribution d'états de charge comprise entre 44+ et 48+. L'origine de ce rayonnement X est attribuée, selon les auteurs, au **mouvement collectif et cohérent** des électrons (CEMM : *"Coherent Electron Motion Model"*) qui sera brièvement discuté dans le paragraphe D de ce chapitre.

A-2] Production d'ions multichargés rapides

Dans le même temps, le groupe de Castleman de l'Université de Pennsylvanie [Purnell et al., 1994] met en évidence, mais à partir cette fois – ci de petits agrégats mixtes de HI et de $HIAr_m$ (avec $m \leq 10$), la production d'ions fortement multichargés ayant une énergie cinétique de l'ordre de 700 *eV* pour l'I^{8+} et 550 *eV* pour l'Ar^{7+} (illustré *Figure I-3*). Cette énergie est largement supérieure à celle que l'on obtiendrait avec des molécules de HI soumises à un éclairement identique. L'hypothèse avancée par les auteurs repose sur l'explosion coulombienne des agrégats pour laquelle l'énergie cinétique des ions est proportionnelle au produit de la charge des ions.

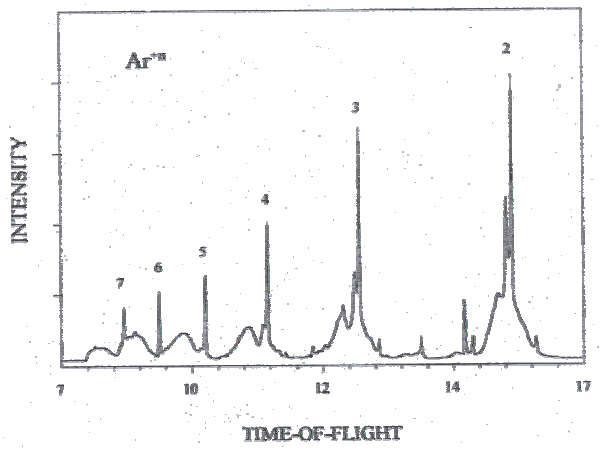


***Figure I-3 :** Spectre de masse à temps de vol d'ions multichargés Ar^{q+} résultant de l'explosion d'agrégats de $HIAr_m$ soumis à un éclairement de 10^{15} W/cm² (λ = 624 nm et τ = 350 fs) [Purnell et al., 1994].*

Outre leur énergie cinétique, la seule production d'ions d'état de charge élevée lors de ces expériences est assez inattendue. En effet, dans les mêmes conditions expérimentales ($I \sim 10^{15}$ *W/cm²*), seuls des ions argon possédant une charge comprise entre +1 et +3 sont détectés lors de l'ionisation d'une cible atomique gazeuse par un champ laser intense [Monot, 1993]. Les auteurs apportent néanmoins une réponse à l'observation de ces ions Ar^{q+} (avec $3 < q < 7$) en évoquant une réaction de transfert de charge entre les ions iode, plus facilement ionisés par l'impulsion laser, et les atomes d'argon. Ces résultats sont attribués aux spécificités des agrégats mixtes de $HIAr_m$, mais, très rapidement, d'autres travaux expérimentaux à partir d'agrégats monoatomiques ont mis en évidence des effets similaires à ces éclairements. Les principaux développements expérimentaux et théoriques concernant la production ionique

obtenus depuis cette expérience pionnière seront détaillés et analysés dans le paragraphe C de ce chapitre.

A-3] Mise en évidence de la présence d'effets collectifs

Enfin, dans la même année (1994), les travaux de C. Wülker *et al.* [Wülker et al., 1994] correspondent aux premières observations expérimentales concernant la formation d'un plasma "chaud" par un laser excimer ($\lambda = 248\ nm$) sub – picoseconde ($I \sim 6\times10^{15}\ W/cm^2$) dans une vapeur de molécules de C_{60}. Dans ces expériences, des taux d'ionisation bien plus élevés qu'avec une vapeur de carbone sont observés. Comme l'illustre la *Figure I-4*, la présence de C_{60} favorise l'émission de raies XUV correspondant à des ions hydrogénoïdes et héliumoïdes (les transitions $3p \rightarrow 2s$ et $3d \rightarrow 2p$ du C^{5+} situées vers 182 Å sont clairement identifiées [Kelly, 1982]) alors que l'irradiation de carbone atomique ne donne lieu, dans les mêmes conditions, qu'à des raies de type bérylliumoïde, voire lithiumoïde (situées entre 250 Å et 550 Å).

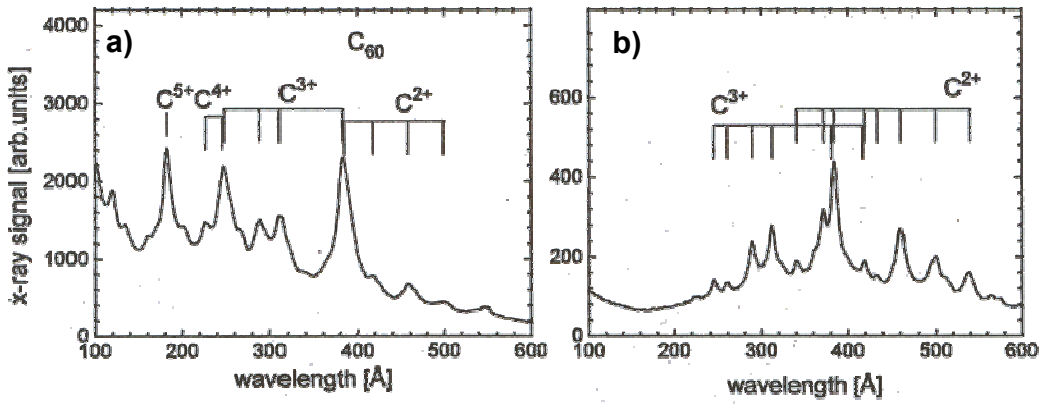


***Figure I-4 :** Comparaison des spectres XUV obtenus dans a) une vapeur de C_{60} et b) une vapeur "ordinaire" de carbone. Deux impulsions ont été envoyées avec un délai de 2 µs sur les cibles de carbone : une impulsion longue (τ = 25 ns) d'éclairement maximum a) $I \sim 4\times10^7\ W/cm^2$ et b) $I \sim 4\times10^8\ W/cm^2$, et une impulsion courte (τ = 0,7 ps) d'éclairement $I \sim 6\times10^{15}\ W/cm^2$ [Wülker et al., 1994].*

Les auteurs soulignent qu'il est remarquable d'observer ces transitions hydrogénoïdes à cet éclairement laser alors qu'il est nécessaire d'avoir un éclairement de près de $10^{19}\ W/cm^2$ pour créer cette espèce dans le cas d'une cible atomique. Cet effet est attribué à une augmentation de l'ionisation collisionnelle par impact électronique sur des ions carbone au sein même de l'agrégat. Il est ainsi évoqué, pour la première fois, la formation de "plasma" au cœur des agrégats, et notamment la possibilité de chauffage des électrons par Bremsstrahlung Inverse (BI) comme dans le cas de l'interaction laser – solide. Cette idée sera ensuite reprise par

T. Ditmire dans le modèle "nanoplasma" comme nous l'expliciterons dans la suite de ce chapitre (*cf.* §I-C-1).

Ces résultats traduisent, *in fine*, un renforcement du couplage entre le rayonnement laser incident et la matière en présence d'agrégats. Cette spécificité est due aux effets conjugués d'une densité atomique locale élevée à l'intérieur de l'agrégat (de l'ordre de celle du solide, $n_{at.loc.} \sim 10^{21} - 10^{22}$ *at./cm*^{3}) et d'une densité atomique moyenne proche de celle d'un gaz ($n_{at.moy.} \sim 10^{13}$ à 10^{17} *at./cm*^{3}). Une grande densité atomique locale permet, en effet, d'envisager la présence d'effets collectifs tandis qu'une faible densité atomique moyenne évite, par exemple, des phénomènes d'écrantage de l'impulsion laser par la présence de plasma de surface comme dans le cas de l'interaction laser – solide.

Ces premières observations expérimentales avec des agrégats ont fait apparaître toute une nouvelle physique où les différents modèles concernant les atomes isolés ou les molécules en champ laser intense deviennent insuffisants pour décrire complètement la dynamique de l'interaction. L'objectif des prochains paragraphes est de présenter une revue des résultats les plus significatifs concernant plus spécifiquement l'interaction d'agrégats de gaz rare (Ar, Kr, Xe) avec un laser de puissance, tant en ce qui concerne la production d'ions multichargés et d'électrons (paragraphe C) que la génération de rayonnement X dur (paragraphe D). Pour chacune de ces observables, nous présenterons les différentes approches de modélisation qui ont été développées.

B] Mécanismes fondamentaux

Nous allons exposer dans ce paragraphe les processus fondamentaux intervenant lors de l'interaction d'un laser de puissance avec des agrégats et qui sont pris en compte dans les différentes approches théoriques. Il s'agit de :

- l'ionisation par effet de champ des atomes de l'agrégat[2];
- le chauffage par le champ laser des électrons libérés initialement par OFI ;
- l'ionisation collisionnelle induite par les électrons présents au sein de l'agrégat.

B-1] Ionisation par effet de champ

L'ionisation par effet de champ est traditionnellement séparée en deux régimes : l'ionisation multiphotonique et l'ionisation par effet tunnel. La classification entre ces deux régimes est guidée par la valeur du paramètre adiabatique de Keldysh γ [Keldysh, 1965] qui correspond au rapport entre l'énergie de l'électron lié à l'atome et son énergie dans le champ laser. Ce paramètre γ est défini par :

$$\gamma = \sqrt{\frac{E_i}{2 \cdot U_p}} \qquad \textbf{[I-B.1]}$$

où E_i est l'énergie d'ionisation de l'électron et U_p l'énergie pondéromotrice d'un électron libre dans le champ laser ayant une énergie de dérive nulle. La valeur de U_p est donnée par l'expression (*cf.* Annexe A) :

$$U_p(eV) = 9{,}33 \times 10^{-14} \cdot \lambda^2(\mu m) \cdot I\left(W / cm^2\right) \qquad \textbf{[I-B.2]}$$

avec λ la longueur d'onde et I l'éclairement laser.

La condition $\gamma >> 1$ correspond au régime multiphotonique tandis que $\gamma \leq 1$ indique une ionisation par effet tunnel. Afin d'estimer la valeur de ce paramètre de Keldysh, nous allons tout d'abord présenter le modèle de l'ionisation par suppression de la barrière coulombienne (BSI : *"Barrier Suppression Ionization"*) puis ensuite les deux modèles d'ionisation par effet de champ (multiphotonique et effet tunnel).

[2] Dans la suite de ce chapitre nous désignerons l'ionisation par effet de champ par l'abréviation OFI pour *"Optical Field Ionization"*.

B-1-a) Ionisation par suppression de la barrière coulombienne

Dans le modèle BSI [Augst et al., 1991], un électron ne peut s'échapper du potentiel de l'ion parent que si l'abaissement de la barrière coulombienne dû au champ laser est suffisant (*cf. Figure I-5*). Cette approche unidimensionnelle suppose la superposition du potentiel coulombien avec un champ laser quasi – statique (approximation basse fréquence).

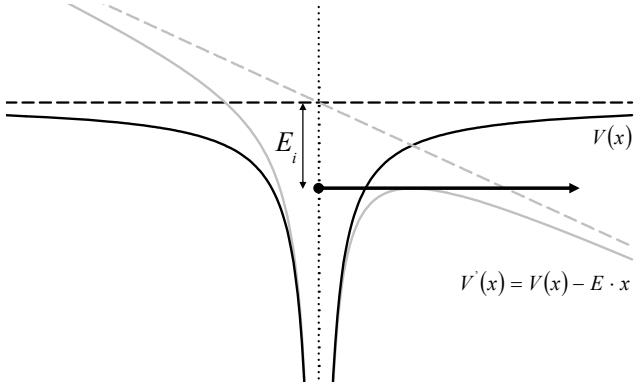


Figure I-5 : Représentation schématique de l'ionisation par suppression de la barrière coulombienne en présence d'un champ électrique statique E.

Ce modèle binaire (soit l'électron est libre, soit il est lié) ne permet pas de calculer des taux d'ionisation ni d'estimer la variation du nombre d'ions en fonction de l'éclairement mais permet, par contre, d'évaluer l'éclairement seuil à partir duquel la saturation de la production d'ions d'un état de charge q donné se produit. L'intensité de saturation (ou éclairement BSI : I_{BSI}) est donnée par l'expression :

$$I_{BSI} = \frac{E_i^4}{16 \cdot q^2}$$

soit dans le système d'unités usitées $I_{BSI}\left(W/cm^2\right) \approx 4.10^9 \times \frac{E_i^4(eV)}{q^2}$ ***[I-B.3]***

Nous présentons dans le *Tableau I-1* les éclairements BSI ainsi que la valeur du paramètre γ dans les cas de l'argon et du xénon que nous avons étudiés plus particulièrement dans nos expériences. On notera que le laser utilisé ($I < 10^{17}$ *W/cm²*) ne permet en aucun cas d'obtenir de l'Ar^{9+} ni du Xe^{19+} dans le cadre de cette approche. Nous voyons également que le paramètre de Keldysh γ est proche ou inférieur à l'unité à proximité de I_{BSI} dans nos conditions expérimentales. L'ionisation par effet tunnel joue donc un rôle prédominant lors des étapes d'ionisation par effet de champ aux longueurs d'onde où nous travaillons et à proximité de ces éclairements. Par contre, pour des longueurs d'onde plus petites ($\lambda < 400$ *nm*) ou à des éclairements plus faibles ($I << I_{BSI}$), l'ionisation multiphotonique peut

avoir un rôle prépondérant lors de l'ionisation par effet de champ. En particulier, pour l'Ar^{9+}, on aura $\gamma >> 1$ si $I << 3{,}5\times10^{15}$ *W/cm²* à 800 *nm* ou encore si $I << 1{,}4\times10^{16}$ *W/cm²* à 400 *nm*.

Élément	Charge q	E_i (en *eV*)	I_{BSI} (en *W/cm²*)	Paramètre de Keldysh γ	
				à 800 *nm*	à 400 *nm*
Argon	1 *(3p)*	15,76	$2{,}5\times10^{14}$	0,73	1,46
	2	26,63	$5{,}0\times10^{14}$	0,67	1,33
	5	75,02	$5{,}1\times10^{15}$	0,37	0,75
	6	91,01	$7{,}6\times10^{15}$	0,32	0,63
	7 *(3s)*	124,32	$1{,}9\times10^{16}$	0,23	0,46
	8	143,46	$2{,}6\times10^{16}$	0,21	0,43
	9 *(2p)*	422,45	$1{,}6\times10^{18}$	0,05	0,10
	16 *(2s)*	918	$1{,}1\times10^{19}$	0,03	0,05
Xénon	1 *(5p)*	12,13	$8{,}7\times10^{13}$	1,08	2,17
	2	21,21	$2{,}0\times10^{14}$	0,94	1,87
	7 *(5s)*	92,1	$5{,}9\times10^{15}$	0,36	0,73
	9 *(4d)*	171	$4{,}2\times10^{16}$	0,19	0,37
	19 *(4p)*	549	$1{,}0\times10^{18}$	0,07	0,14

Tableau I-1 : Estimation des éclairements BSI ainsi que de la valeur du paramètre de Keldysh γ à cet éclairement laser pour une longueur d'onde de 800 nm et de 400 nm (les valeurs du potentiel d'ionisation sont issues de [Cowan, 1981] – cf. Annexe B).

B-1-b) Ionisation multiphotonique

Bien que l'existence de transitions multiphotoniques ait été, théoriquement, envisagée très tôt [Göppert-Mayer, 1931], il aura fallu attendre l'arrivée de sources électromagnétiques relativement intenses pour observer ce phénomène tout d'abord dans le domaine des radiofréquences [Brossel, Cagnac & Kastler, 1953] puis dans le domaine optique [Cagnac, Grynberg & Biraben, 1973]. L'ionisation d'un atome ou d'un ion peut également être décrite par un mécanisme multiphotonique [Mainfray & Manus, 1991] du type :

$$A^{q+} + N \cdot \hbar\omega \rightarrow A^{(q+1)+} + e^{-}$$

L'absorption simultanée de N photons pour porter l'électron d'un état lié vers le continum se traduit, expérimentalement, par un nombre d'ions variant en fonction de l'éclairement en I^N pour $I < I_{BSI}$, puis en $I^{3/2}$ pour des éclairements laser plus grands [L'huillier, 1986] : ceci traduit une saturation du taux d'ionisation avec l'éclairement, le nombre d'ions augmentant

alors comme le nombre d'atomes contenus dans le volume focal effectif, défini par l'éclairement d'apparition (régime de saturation). Nous reviendrons sur cette notion de volume focal effectif et la définirons plus précisément dans le chapitre IV lors de la présentation de nos résultats expérimentaux. A. L'Huillier *et al.* [L'huillier et al., 1983] ont, pour la première fois, mis en évidence expérimentalement ce processus d'ionisation en régime d'impulsion longue (> *ps*). En particulier, ils ont montré qu'un atome de xénon, soumis à un éclairement de quelques 10^{12} W/cm^2, est ionisé par l'absorption simultanée de 6 photons et qu'il est ensuite possible de produire du Xe^{2+} par l'absorption de 10 photons à une longueur d'onde de 1064 μm. Ce mécanisme d'ionisation est représenté schématiquement *Figure I-6*.

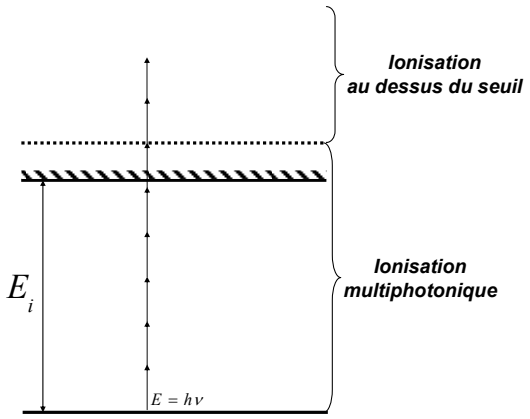


***Figure I-6 :** Principe schématique de l'ionisation multiphotonique.*

En première approximation, la section efficace d'ionisation multiphotonique dépend de l'éclairement de saturation suivant la relation :

$$\sigma_{ionisation} \propto \left(\frac{I}{I_{BSI}} \right)^N \qquad \textbf{[I-B.4]}$$

avec N le nombre de photons absorbés : à 800 *nm*, $N \sim 270$ pour l'Ar^{9+} et $N \sim 590$ pour l'Ar^{16+}. Ainsi, l'ionisation multiphotonique ne peut intervenir, même à très faible éclairement, que pour **les ions de faible état de charge**. Ce mécanisme n'est formellement pris en compte dans aucun modèle traitant de l'interaction laser – agrégats.

B-1-c) Ionisation par effet tunnel

D'une manière tout à fait générale, les différents modèles d'ionisation par effet tunnel considèrent le champ laser comme classique et statique. L'ajout du terme d'interaction dipolaire électrique au potentiel coulombien crée une barrière de potentiel de telle façon que l'électron peut alors avoir une probabilité assez grande pour la franchir par effet tunnel (*cf. Figure I-5*). Pour l'ionisation de l'atome d'hydrogène, le taux d'ionisation par effet tunnel

dans un champ électrique statique a été établi par Landau et Lifshitz [Landau & Lifshitz, 1978] :

$$W_{tun}^{stat}(E) = 4 \cdot \omega_0 \cdot \frac{E_H}{E} \cdot \exp\left[-\frac{2}{3} \cdot \frac{E_H}{E}\right] \qquad \textbf{[I-B.5]}$$

où ω_0 est l'unité atomique de fréquence ($\omega_0 = 4{,}134.10^{16}\ s^{-1}$) et E_H est le champ électrique sur la première orbite de Bohr $\left(E_H = m^2 \cdot e^5 \cdot \hbar^{-4} = 5{,}142 \times 10^9\ V/cm\right)$. Cette expression se généralise facilement pour un ion hydrogénoïde en remplaçant E_H par $E_0 = \left(2 \cdot E_i\right)^{3/2}$. Quand l'équation [I-B.5] est moyennée sur un cycle optique complet, on obtient alors pour un ion hydrogénoïde (éq. 7 de [Perelomov, Popov & Teret'ev, 1965]) :

$$W_{tun}^{alt}(E) = \left(\frac{3 \cdot E}{\pi \cdot E_0}\right)^{1/2} \cdot W_{tun}^{stat}(E) \qquad \textbf{[I-B.6]}$$

Pour des ions non hydrogénoïdes, le taux d'ionisation est modifié et il est habituellement donné par l'équation d'Ammosov, Delone et Krainov (appelée équation ADK), équation 1 de [Ammosov, Delone & Krainov, 1986] :

$$W_{tun}^{stat} = \frac{\omega_0}{2} \cdot \left|C_{n^* l}^*\right|^2 \cdot E_i \cdot \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|} \cdot |m|!\,(l-|m|)!} \cdot \left[2 \cdot \frac{E_0}{E}\right]^{2n^* - |m| - 1} \times \exp\left(-\frac{2}{3} \cdot \frac{E_0}{E}\right) \qquad \textbf{[I-B.7]}$$

avec :

- n^* le nombre quantique principal effectif donné par : $n^* = Z \cdot \left(2E_i\right)^{-1/2}$ (en unité atomique) avec Z l'état de charge de l'ion résultant ;
- l est le nombre quantique associé au moment angulaire ;
- m est le nombre quantique magnétique (en fait, dans le calcul, le taux d'ionisation est moyenné sur m pour un l donné) ;
- $C_{n^* l}^{**}$ est un constante approximativement égale à deux (pour Ar^{1+} : $C_{n^* l}^{**} = 2{,}25$ et pour Xe^{1+} : $C_{n^* l}^{**} = 2{,}23$).

Des résultats expérimentaux antérieurs [Monot, 1993] [Augst et al., 1991] dans le domaine de l'interaction laser – atome ont montré que le modèle ADK reproduit *globalement* l'évolution de la production ionique en fonction de l'éclairement laser. Pour les ions de faible état de charge et à des éclairements très inférieurs à l'éclairement de saturation, des déviations existent néanmoins entre les prédictions de la formule [I-B.7] et les taux d'ions expérimentaux

[Yamakawa et al., 2004] qui peuvent s'interpréter comme étant dues à la contribution du processus d'ionisation multiphotonique.

B-2] Accélération des électrons dans le champ laser

En considérant un électron libéré de l'ion parent à l'instant t_0 avec une **vitesse initiale nulle**, il est possible de montrer que **l'énergie moyenne** des électrons dans le champ laser $< K_e^{laser} >$ peut être séparée en deux contributions distinctes :

$$< K_e^{laser} > = U_p + 2U_p \sin^2(\omega \cdot t_0) = < K_e^{osc} > + T \qquad \textbf{[I-B.8]}$$

avec :

- $T = 2U_p \cdot \sin^2(\omega \cdot t_0)$: l'**énergie initiale** des électrons libérés lors de l'ionisation par effet de champ. Cette énergie s'identifie à l'énergie de dérive des électrons dans le champ laser et dépend fortement de l'instant initial d'ionisation t_0 ;
- et $K_e^{osc} = 2U_p \cdot \sin^2(\omega \cdot t)$, (en moyenne : $< K_e^{osc} > = U_p$) : l'**énergie d'oscillation** (encore appelée **énergie pondéromotrice**) des électrons dans le champ laser avec $\left(K_e^{osc}\right)_{\max} = 2U_p$.

Nous avons reporté sur la *Figure I-7* l'évolution de l'énergie maximale de dérive, moyennée sur les différents états de charge, $<T_{max}>_q$, ainsi que l'évolution de l'énergie moyenne d'oscillation (U_p) en fonction de l'éclairement laser afin de comparer leur contribution respective à l'énergie moyenne des électrons dans le champ laser. Nous remarquons ainsi que, pour un éclairement donné, l'énergie maximale de dérive est inférieure de plusieurs ordres de grandeurs à l'énergie moyenne d'oscillation des électrons dans le champ laser. Nous assimilerons donc, dans la suite de ce chapitre, l'énergie moyenne des électrons dans le champ laser à l'énergie pondéromotrice suivant l'expression :

$$< K_e^{laser} > \approx < K_e^{osc} > = U_p \qquad \textbf{[I-B.9]}$$

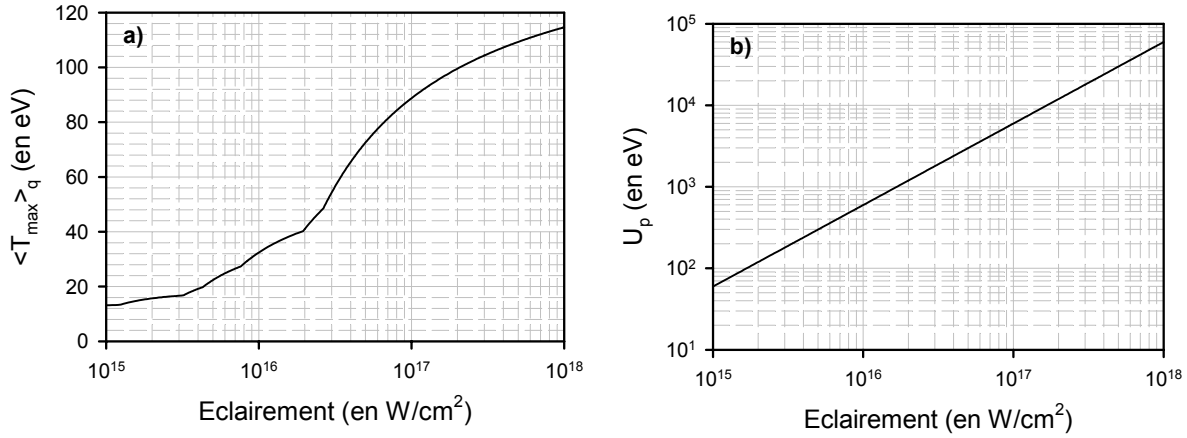


Figure I-7 : a) Évolution de l'énergie maximale de dérive des électrons avec l'éclairement laser pour l'argon b) Évolution de l'énergie pondéromotrice avec l'éclairement laser pour une longueur d'onde de 800 nm.

B-3] Ionisation collisionnelle

L'ionisation par effet de champ est un mécanisme qui se produit aussi bien dans le cas d'une cible gazeuse atomique qu'avec des agrégats. Pour un gaz de faible densité atomique, l'ionisation par effet de champ décrit l'ensemble du processus d'ionisation. Par contre, la grande densité électronique à l'intérieur d'un agrégat (de l'ordre de celle d'un solide) permet aux électrons initialement produits par effet de champ et chauffés lors de l'interaction de continuer l'ionisation des ions par des **collisions électrons – ions inélastiques**.

D'une manière générale, dans un plasma, les électrons se déplacent avec une vitesse bien plus grande que les ions et la vitesse de collision peut alors être prise égale, en première approximation, à la vitesse des électrons. Le taux d'ionisation collisionnelle s'écrit sous la forme générale suivante :

$$W^{coll} = n_e \cdot \sigma_{EII} \cdot V_{électrons} \qquad \textbf{[I-B.10]}$$

avec σ_{EII} la section efficace d'ionisation par impact électronique (EII : *" Electron Impact Ionization "*), $V_{électrons}$ la vitesse des électrons et n_e la densité électronique.

Nous allons, dans la suite de ce paragraphe, présenter l'expression analytique de la section efficace d'ionisation par impact électronique σ_{EII} dans le cadre du formalisme de Lotz puis discuter de la validité de ce formalisme à partir des mesures expérimentales existant dans la littérature.

B-3-a) Section efficace d'ionisation dans le formalisme de Lotz

La section efficace d'ionisation par impact électronique σ_{EII} dépend de l'énergie incidente (K_e) de l'électron venant collisionner ainsi que de l'état de charge de l'ion considéré (q+) et, plus généralement, de sa configuration électronique. Les taux d'ionisation collisionnelle sont habituellement calculés à partir de la formule analytique semi – empirique ([Lotz, 1968] et [Lotz, 1970]) pour la section efficace d'ionisation :

$$\sigma_{EII} = \sum_{i=1}^{N} a_i \cdot p_i \cdot \frac{\ln\left(K_e / E_i\right)}{K_e \cdot E_i} \cdot \left\{1 - b_i \cdot \exp\left[-c_i \cdot \left(\frac{K_e}{E_i} - 1\right)\right]\right\} \text{ pour } K_e \geq E_i \qquad \textbf{[I-B.11]}$$

avec :

- K_e : l'énergie cinétique (en eV) de l'électron incident ;
- a_i, b_i et c_i : des constantes déterminées expérimentalement ou théoriquement. Elles sont tabulées et dépendent *a priori* de l'état de charge considéré ;
- p_i : le nombre d'électrons optiques présents dans la couche i ;
- E_i : le potentiel d'ionisation (en eV) de l'électron dans la couche i ;
- N : le nombre de couches internes à prendre en compte.

En fait, afin de simplifier le calcul de la section efficace d'ionisation par impact électronique, Lotz a également proposé une approximation généralement utilisée et qui s'écrit :

$$\sigma_{EII} = A \cdot p_i \cdot \frac{\ln\left(K_e / E_i\right)}{K_e \cdot E_i} \qquad \forall K_e \geq E_i \qquad \textbf{[I-B.12]}$$

avec $A = 4{,}5\times10^{-14}\ cm^2.eV^2$ *quel que soit l'état de charge*

Cette expression ne considère en fait que la participation à l'ionisation par impact électronique des électrons de valence (couche externe) de l'ion et néglige la contribution des couches plus internes.

B-3-b) Discussion de l'approximation de Lotz

Dans le cas de l'argon, illustré sur la *Figure I-8*, la section efficace de simple ionisation, calculée dans le cadre de l'approximation de Lotz (*cf.* équation [I-B.12]), donne un bon ordre de grandeur quel que soit l'état de charge.

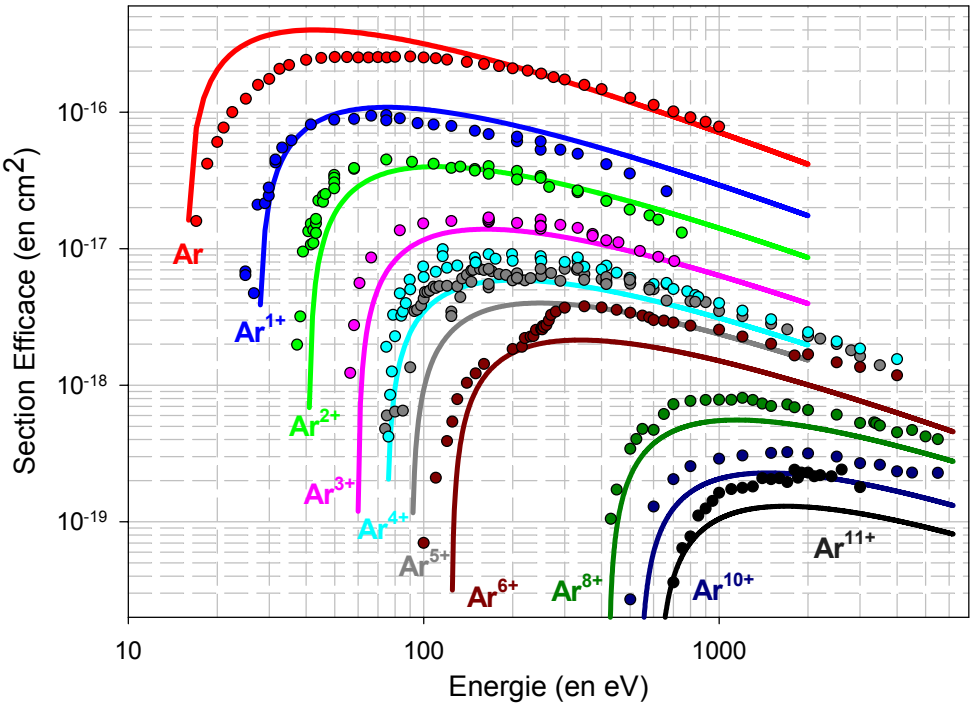


***Figure I-8 :** Comparaison des sections efficaces d'ionisation par impact électronique calculées à l'aide de l'approximation de Lotz (courbes en trait plein) et obtenues expérimentalement (points) pour les premiers états de charge de l'argon (les valeurs expérimentales sont extraites de [Zhang et al., 2002], [Müller et al., 1980] [Müller et al., 1985] et [Rachafi et al., 1991]).*

Cependant, d'autres formulations semi – empiriques ont été depuis proposées, soit en modifiant totalement les expression analytiques [Bernshtam, Ralchenko & Maron, 2000], soit en gardant le même formalisme mais en ajustant les valeurs des constantes (E_i et A) pour chacun des états de charge [Müller et al., 1980] ou bien encore en ajoutant les contributions d'électrons plus internes. La modification du seuil d'ionisation E_i ainsi que de la constante A permet, dans le cas de l'argon, de mieux reproduire les données expérimentales de la section efficace absolue de simple ionisation à partir de la relation suivante (d'après [Müller et al., 1980]) :

$$\sigma_{EII} = A^{*} \cdot \frac{\ln\left(K_e / E_i^{*}\right)}{K_e \cdot E_i^{*}} \qquad \forall\ K_e \geq E_i \qquad \textbf{[I-B.13]}$$

Les valeurs de A^{*} et de E_i^{*} sont reportées dans le *Tableau I-2* pour certains états de charge et les prédictions de cette formule sont illustrées sur la *Figure I-9* où l'on constate que l'accord expérience – théorie est nettement amélioré pour tous les états de charge considérés hormis pour l'Ar^{6+}.

Mécanisme d'ionisation	E_i^* (en eV)	E_i (en eV)	A^* (en $cm^2.eV^2$)
$Ar^{1+} \rightarrow Ar^{2+}$	25 ± 1	27,63	$1{,}4\times10^{-13}$
$Ar^{2+} \rightarrow Ar^{3+}$	36 ± 1	40,74	$1{,}4\times10^{-13}$
$Ar^{3+} \rightarrow Ar^{4+}$	54 ± 2	59,81	$1{,}4\times10^{-13}$
$Ar^{4+} \rightarrow Ar^{5+}$	75 ± 2	75,02	$1{,}15\times10^{-13}$
$Ar^{5+} \rightarrow Ar^{6+}$	80 ± 3	91,01	$1{,}2\times10^{-13}$
$Ar^{8+} \rightarrow Ar^{9+}$	422 ± 1	422,45	$3{,}8\times10^{-13}$
$Ar^{10+} \rightarrow Ar^{11+}$	500 ± 5	539,96	$2{,}3\times10^{-13}$
$Ar^{11+} \rightarrow Ar^{12+}$	670 ± 5	618,26	$2{,}7\times10^{-13}$

***Tableau I-2 :** Valeurs du potentiel d'ionisation effectif et de la constante de Lotz modifiée reproduisant au mieux les résultats expérimentaux concernant la section efficace de simple ionisation pour l'argon [Müller et al., 1980].*

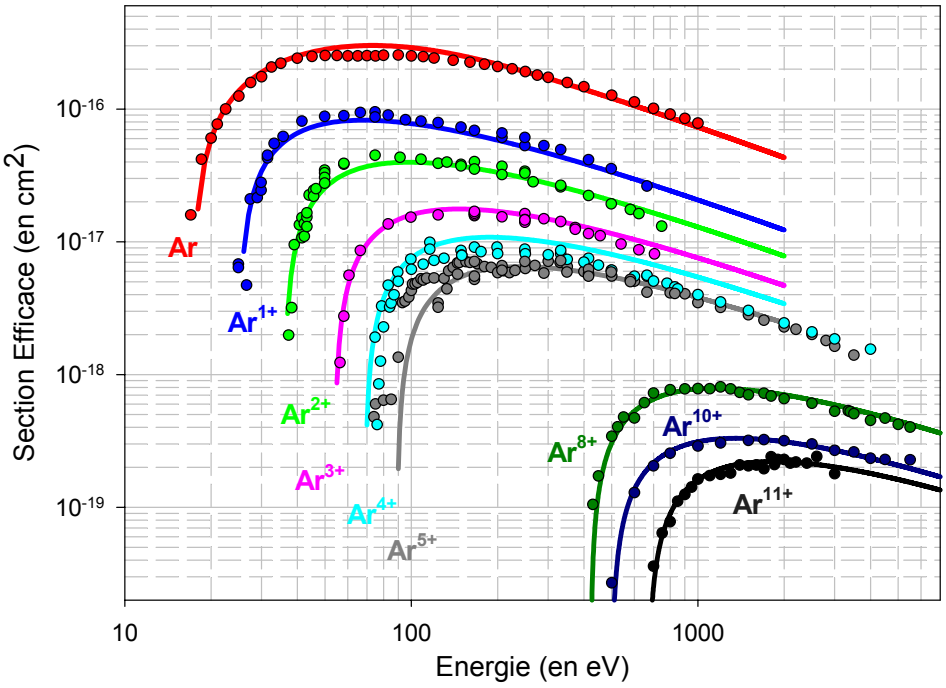


***Figure I-9 :** Comparaison des sections efficaces d'ionisation par impact électronique calculées à l'aide de formule [I-B.13] de l'approximation de Lotz (courbes en trait plein) et obtenues expérimentalement (points) pour les premiers états de charge de l'argon (les valeurs expérimentales sont extraites de [Zhang et al., 2002], [Müller et al., 1980] [Müller et al., 1985] et [Rachafi et al., 1991]).*

En fait, l'approximation de Lotz, même modifiée comme nous venons de le voir, ne considère l'ionisation par impact électronique que comme un processus **direct** dans lequel seuls les électrons dans leur état fondamental peuvent être envoyés dans le continum. Or la contribution des processus **indirects** peut être importante voire dominante par rapport au

processus d'ionisation direct quand l'état de charge des ions augmente [Beyer & Shelvelko, 2003]. Ces processus sont :

- le mécanisme d'ionisation résonnante : formation d'un état résonnant excité par recombinaison diélectrique suivie d'une double autoionisation :

$$A^{q+} + e^{-} \rightarrow \left(A^{(q-1)+} \right)^{*} \rightarrow A^{(q+1)+} + 2 \cdot e^{-}$$

La contribution de ce processus se traduit par la présence de raies de résonance dans la section efficace d'ionisation qui sont négligeables dans une évaluation globale de la section efficace d'ionisation.

- le mécanisme d'Excitation – Autoionisation (EA) : l'excitation collisionnelle d'un électron d'une couche interne dans un autre état lié excité suivi d'une autoionisation (effet Auger) :

$$A^{q+} + e^{-} \rightarrow \left(A^{q+} \right)^{*} + e^{-} \rightarrow A^{(q+1)+} + 2 \cdot e^{-}$$

Ce processus est d'une importance particulière pour les atomes ou les ions ayant un faible nombre d'électrons externes après une couche interne complète comme p^6 ou d^{10} car dans ces systèmes, la section efficace d'excitation des électrons internes est proportionnelle au nombre d'électrons dans cette couche. Il s'agit du mécanisme responsable de la "marche" observée expérimentalement pour l'Ar^{6+} et qui n'est pas pris en compte dans les prédictions théoriques reportées sur la *Figure I-8*. En effet pour cet ion (Ar^{6+} : $1s^2 2s^2 2p^6\ 3s^2$), des transitions $2p \rightarrow nl$ et $2s \rightarrow nl$ suivies d'une autoionisation deviennent possibles pour une énergie supérieure à 250 *eV*, qui est l'énergie seuil pour l'excitation de l'état fondamental à l'état autoionisant $2p^5 3snl$. Ce processus indirect contribue pour près de 50 % à la section efficace de simple ionisation de l'Ar^{6+} [Zhang et al., 2002] à une énergie supérieure à 300 *eV*. De même, pour le xénon, des différences pouvant atteindre un ordre de grandeur existent entre les prédictions de l'approximation de Lotz et les mesures expérimentales pour les faibles états de charge ($Xe^{q<8+}$). Ces dissemblances sont attribuées à l'excitation d'un électron *4d* vers un état lié (du type *4f*) fortement autoionisant également observé lors de la photoionisation du xénon [Hill et al., 1983]. Pour les états de charge plus élevés ($Xe^{q>8+}$), il n'existe pas de données expérimentales exhaustives mais on peut penser que, comme dans le cas de l'argon, le formalisme de Lotz permettra d'estimer correctement les sections efficaces d'ionisation pour les états de charge dans la mesure où les couches *p* et *d* ne sont pas pleines.

C] Études de la production d'ions et d'électrons

C-1] Contexte théorique : le modèle nanoplasma

Le modèle nanoplasma, développé initialement par T. Ditmire, constitue à l'heure actuelle le seul modèle théorique offrant un scénario complet de l'interaction laser – agrégats. En l'occurrence, ce modèle traite sur un même pied d'égalité **l'ensemble** des processus intervenant lors de l'interaction et prend en compte **simultanément** les ionisations par effet de champ et collisionnelle, le chauffage des électrons par le champ laser et par absorption collisionnelle de photons au sein du nanoplasma (Bremsstrahlung Inverse) et l'explosion de l'agrégat. Le scénario envisagé est alors le suivant :

- l'ionisation par effet tunnel va libérer, dans un premier temps, certains électrons de l'atome parent ;
- le chauffage de ces électrons par le champ électrique du laser et par absorption collisionnelle de photons va ensuite contribuer à augmenter l'énergie de ces électrons ;
- puis, une fois que les électrons ont acquis suffisamment d'énergie, ils vont alors venir collisionner sur les ions présents au sein du nanoplasma et participer à leur tour à l'ionisation.

Nous allons dans un premier temps présenter le traitement de l'ionisation collisionnelle dans le cadre de ce modèle, puis nous exposerons le mécanisme de chauffage des électrons introduit en plus du chauffage par le champ laser (Bremsstrahlung Inverse). Enfin il sera présenté la dynamique de l'agrégat obtenue dans le cadre de ce modèle.

C-1-a) Calcul des taux d'ionisation collisionnelle

Le modèle nanoplasma présume que la vitesse effective d'un électron dans l'agrégat se met sous la forme :

$$V_{eff} \sim \sqrt{V_{osc}^2 + V_{k_B T_e}^2} \qquad \textit{[I-C.1]}$$

avec V_{osc} la vitesse d'oscillation des électrons dans le champ laser et $V_{k_B T_e} = \sqrt{\frac{k_B T_e}{m}}$ la vitesse dite "thermique" des électrons ayant, en particulier, pour origine le chauffage par absorption collisionnelle de photons. Ce modèle suppose qu'il est possible de séparer, dans les taux d'ionisation collisionnelle, la contribution due à l'énergie thermique des électrons de celle due à l'énergie cinétique d'oscillation des électrons dans le champ laser. Ainsi, deux taux d'ionisation collisionnelle sont calculés :

- celui dû à la contribution "thermique" : $W^{coll}_{k_BT_e}$ (correspondant à T_e)
- et celui dû à la contribution du champ laser : W^{coll}_{las} (correspondant à K^{osc}_e)

avec $$W^{coll} = W^{coll}_{las} + W^{coll}_{k_BT_e} \qquad \textbf{[I-C.2]}$$

Nous allons maintenant expliciter le traitement de ces deux taux d'ionisation collisionnelle tel qu'il est réalisé dans le modèle nanoplasma.

1°) Contribution thermique

Pour la contribution thermique, le modèle nanoplasma présume une distribution Maxwellienne en énergie des électrons donnée par :

$$\frac{dn_e}{n_e} = \frac{2}{k_BT_e}\cdot\left(\frac{K_e}{\pi\cdot k_BT_e}\right)^{1/2}\cdot\exp\left[-\frac{K_e}{k_BT_e}\right]\cdot dK_e = f(K_e)\cdot dK_e \qquad \textbf{[I-C.3]}$$

Dans ces conditions, la contribution thermique au taux d'ionisation collisionnelle est :

$$W^{coll}_{k_BT_e} = n_e\cdot\int_{E_i}^{\infty}\frac{2}{k_BT_e}\cdot\left(\frac{K_e^{k_BT_e}}{\pi\cdot k_BT_e}\right)^{1/2}\cdot\exp\left[-\frac{K_e^{k_BT_e}}{k_BT_e}\right]\cdot V_{k_BT_e}\cdot\sigma_{EII}\left(K_e\right)\cdot dK_e^{k_BT_e} \qquad \textbf{[I-C.4]}$$

avec $V_{k_BT_e}$ la vitesse "thermique" des électrons et $\sigma_{EII}(K_e)$ la section efficace d'ionisation par impact électronique calculée dans le cadre de l'approximation de Lotz (formule [I-B.12]). En calculant analytiquement l'intégrale, cette contribution est donnée finalement par l'expression:

$$W^{coll}_{k_BT_e} = n_e\left(cm^{-3}\right)\cdot\frac{c\cdot 2\sqrt{2}}{\sqrt{\pi\cdot m_e(eV)}}\cdot\frac{A\cdot p_i}{\left(k_BT_e\right)^{1/2}\cdot E_i}\int_{E_i/k_BT_e}^{\infty}\frac{\exp(-x)}{x}\cdot dx \quad \text{et}\, x = \frac{K_e^{k_BT_e}}{k_BT_e} \qquad \textbf{[I-C.5]}$$

avec n_e la densité électronique, A la constante de Lotz donnée par l'expression [I-B.12], p_i le nombre d'électrons restant dans la couche i, m_e la masse de l'électron ($m_e = 0{,}511\ MeV$), c la vitesse de la lumière ($c = 299\,792\,458\ m/s$) et T_e la température électronique du milieu en eV. En remplaçant par les valeurs numériques, l'expression finale est :

$$W^{coll}_{k_BT_e}\left(s^{-1}\right) = 30{,}15\times10^{-7}\cdot n_e\cdot\frac{p_i}{\left(T_e\right)^{1/2}\cdot E_i}\int_{E_i/k_BT_e}^{\infty}\frac{\exp(-x)}{x}\cdot dx \qquad \textbf{[I-C.6]}$$

Comme le montre la *Figure I-10*, le taux d'ionisation collisionnelle varie fortement en fonction de la température électronique du nanoplasma quand celle – ci est inférieure à quelques centaines d'eV, et même de plusieurs ordres de grandeur pour les états de charge

élevés. Ce taux d'ionisation reste, par contre, assez constant pour des températures électroniques allant de un à plusieurs *keV*.

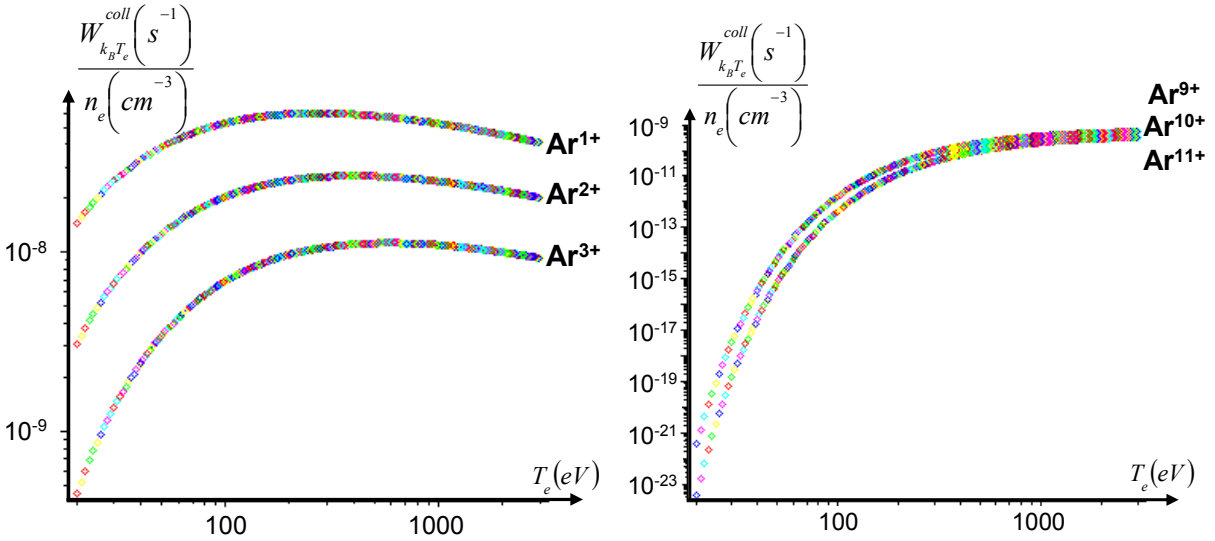


***Figure I-10 :** Dépendance du taux d'ionisation collisionnelle, pour une densité électronique donnée, avec la température électronique du nanoplasma pour quelques états de charge de l'argon calculée à partir de la relation [I-C.6].*

L'utilisation, pour la section efficace d'ionisation par impact électronique, de formules analytiques correspondant mieux aux mesures expérimentales (à partir du *Tableau I-2* du paragraphe I-B-3-b par exemple) augmente, pour l'argon, ces taux d'ionisation de l'ordre de 20 % pour les faibles états de charge et pour des températures électroniques de l'ordre de la centaine d'*eV*, d'après les simulations que nous avons réalisées.

2°) Contribution du champ laser

La vitesse d'un électron dans le champ laser peut s'écrire sous la forme suivante (*cf.* paragraphe I-B-2) :

$$V_{osc} = \frac{e \cdot E_0}{m_e \cdot \omega} \cdot |\sin\phi| = 2\sqrt{\frac{U_p}{m_e}} \cdot |\sin\phi| \qquad \text{avec } \phi = \omega \cdot t \qquad \textbf{[I-C.7]}$$

$$\text{soit finalement } K_e^{osc} = 2U_p \cdot \sin^2\phi$$

La valeur moyenne du taux d'ionisation par les électrons accélérés dans le champ laser est alors donnée par :

$$W_{las}^{coll} = \frac{n_e}{T} \int_{\phi_{min}}^{\phi_{max}} \sigma_{EII} \cdot 2\sqrt{\frac{U_p}{m_e}} \cdot |\sin\phi| \cdot d\phi \qquad \textbf{[I-C.8]}$$

La période de la vitesse d'oscillation est $T = \pi$, et les bornes d'intégration correspondent aux moments $\left(\phi_{\min} = \omega \cdot t_{\min}, \phi_{\max} = \omega \cdot t_{\max}\right)$ où l'énergie cinétique de l'électron est égale au potentiel d'ionisation de l'ion considéré (E_i). En effet, la section efficace d'ionisation étant nulle quand l'énergie cinétique d'oscillation est inférieure au potentiel d'ionisation, seul ne compte, dans la moyenne, que les contributions temporelles où $K_e^{osc} > E_i$ (*cf.* *Figure I-11*).

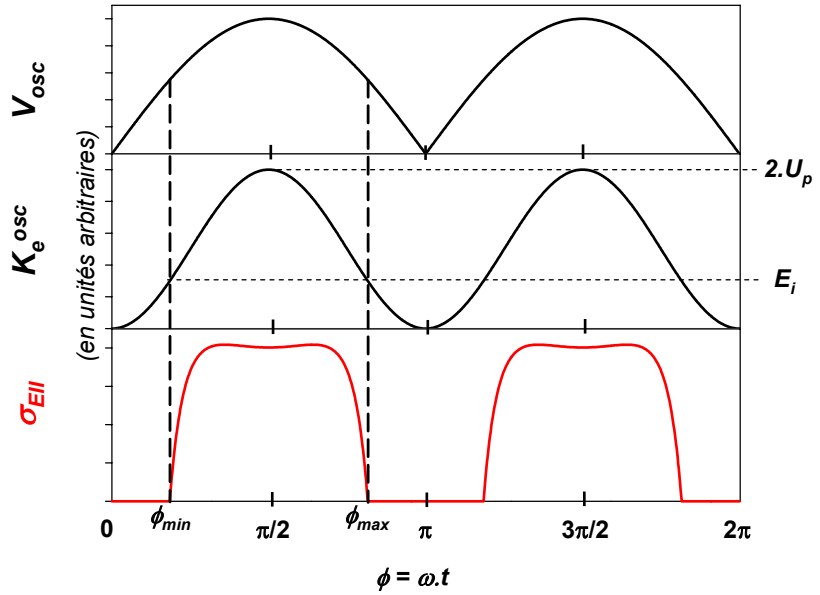


Figure I-11 : Évolution de la vitesse, de l'énergie cinétique des électrons dans un champ laser ainsi que de la section efficace d'ionisation par impact électronique en fonction de la phase du champ laser.

En tenant compte de la section efficace donnée par l'approximation de Lotz (*cf.* équation [I-B.12]), le taux d'ionisation collisionnelle s'écrit finalement :

$$W_{las}^{coll} = n_e \cdot \frac{A \cdot p_i}{\pi \cdot E_i} \cdot \left(\frac{1}{m_e \cdot U_p}\right)^{1/2} \cdot \int_{E_i}^{2U_p} \frac{\ln\left(K_e^{osc} / E_i\right)}{K_e^{osc}} \cdot \frac{dK_e^{osc}}{\sqrt{1 - K_e^{osc} / 2U_p}} \qquad \textbf{[I-C.9]}$$

(Formule intégrale)

Afin d'obtenir une expression analytique pour W_{las}^{coll}, Ditmire [Ditmire et al., 1996] utilise un développement limité au deuxième ordre autour de $\left(1 - \frac{E_i}{K_e^{osc}}\right)$ dont l'expression est :

$$\ln\left(\frac{K_e^{osc}}{E_i}\right) \approx \frac{3}{2} - 2\cdot\frac{E_i}{K_e^{osc}} + \frac{1}{2}\cdot\left(\frac{E_i}{K_e^{osc}}\right)^2 \qquad \textbf{[I-C.10]}$$

L'expression analytique finale est alors donnée par[3] :

$$W_{las}^{coll} \approx \frac{A\cdot n_e\cdot p_i}{2\pi\cdot m_e^{1/2}\cdot E_i\cdot U_p^{1/2}}\cdot\left[\left(3-\frac{E_i}{U_p}+\frac{3}{32}\left(\frac{E_i}{U_p}\right)^2\right)\cdot\ln\left|\frac{1+\sqrt{1-\frac{E_i}{2U_p}}}{1-\sqrt{1-\frac{E_i}{2U_p}}}\right| - \left(\frac{7}{2}-\frac{3}{8}\frac{E_i}{U_p}\right)\cdot\sqrt{1-\frac{E_i}{2U_p}}\right]$$

(Formule analytique) **[I-C.11]**

Comme l'illustre la *Figure I-12*, le taux d'ionisation calculé à l'aide de la formule analytique [I-C.11] permet effectivement d'obtenir un bon ordre de grandeur pour des énergies proches de E_i mais sous – estime cependant systématiquement le taux d'ionisation collisionnelle calculé à partir de la formule intégrale [I-C.9]. Cette sous – estimation du taux d'ionisation collisionnelle peut atteindre 50 %, mais pour les très bas états de charge qui, eux, sont en fait principalement créés par effet de champ.

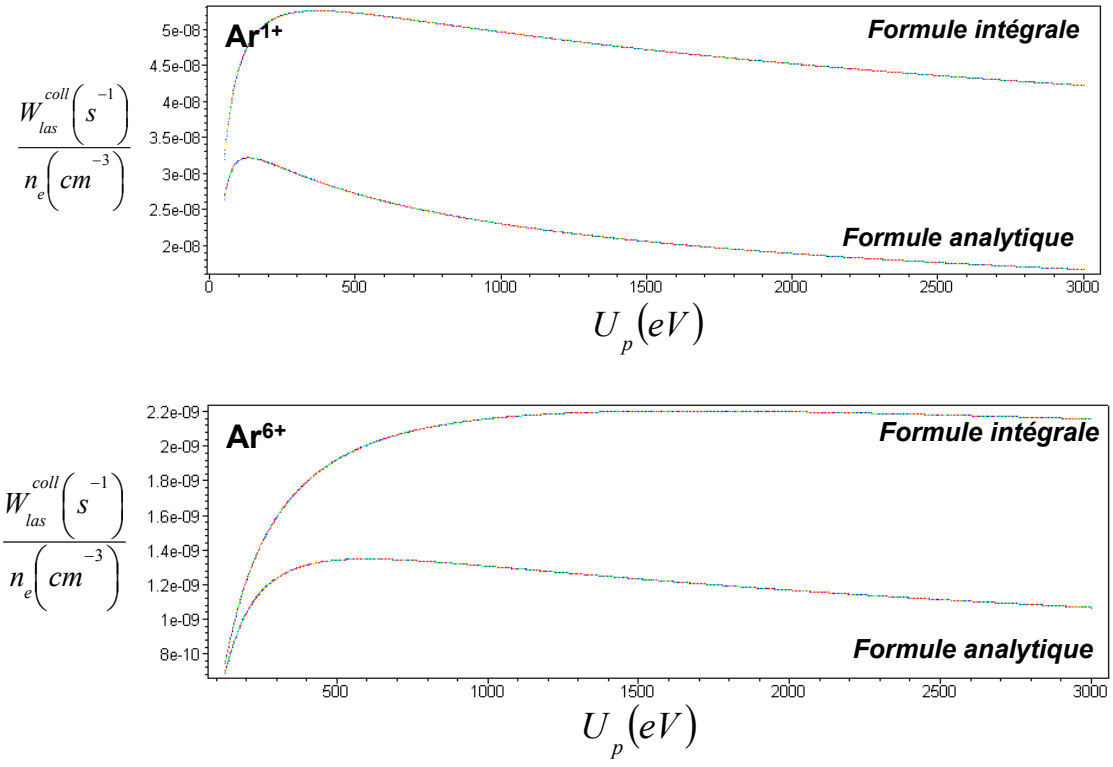


***Figure I-12 :** Pour des ions argon, comparaison entre les taux d'ionisation collisionnelle par les électrons accélérés dans le champ laser en utilisant la formule analytique [I-C.11] ou la formule intégrale [I-C.9].*

[3] Cette expression corrige les formules publiées précédemment.

Enfin, en comparant la *Figure I-10* et la *Figure I-12*, nous voyons que, pour un état de charge donné, le taux d'ionisation collisionnelle dû à la contribution thermique et celui dû à l'accélération des électrons dans le champ laser sont du même ordre de grandeur, toutes choses étant égales par ailleurs (même densité électronique et même énergie).

C-1-b) Le chauffage par Bremsstrahlung Inverse

Bien que l'énergie pondéromotrice d'un électron dans le champ laser puisse être grande comme nous l'avons vu dans le §I-B-2, un autre mécanisme permet aux électrons d'acquérir aussi de l'énergie lors de l'interaction : le Bremsstrahlung Inverse[4]. Dans ce processus, l'électron vient collisionner, en présence de photons, sur un ion ce qui lui permet d'augmenter son énergie cinétique par l'absorption simultanée d'un ou plusieurs photons ; cette absorption de photons par l'électron doit se faire obligatoirement en présence du potentiel coulombien d'un ion afin de conserver à la fois l'énergie et l'impulsion. Dans le cas d'une cible atomique gazeuse, la faible densité atomique induit un taux de collisions électrons – ions faible ; le chauffage par BI joue ainsi un rôle négligeable. Par contre, dans le cas des cibles solides, ce processus contribue d'une manière très importante au chauffage des électrons de la cible. Pour les agrégats, ayant une densité atomique locale proche de celle d'un solide, le BI peut donc jouer un rôle important dans le chauffage des électrons lors de l'interaction. Dans le cadre du modèle nanoplasma, ce mécanisme est introduit *via* la constante diélectrique réduite complexe $\bar{\varepsilon}$ calculée à partir du modèle de Drude [Drude, 1900] :

$$\bar{\varepsilon} = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega \cdot \left(\omega + i \cdot \nu_{électronique}\right)} \qquad \textbf{[I-C.12]}$$

où $\nu_{électronique}$ est la fréquence de collision des électrons (ou fréquence électronique de collision), ω la fréquence de l'onde électromagnétique incidente (onde laser) et ω_p la fréquence plasma électronique définie à partir de la densité électronique n_e par[5] :

$$\omega_p^2 = \frac{n_e \cdot e^2}{m_e \cdot \varepsilon_0} \qquad \text{soit} \qquad \omega_p\left(s^{-1}\right) = 5,64 \times 10^4 \cdot \sqrt{n_e\left(cm^{-3}\right)} \qquad \textbf{[I-C.13]}$$

Cette fréquence plasma électronique est à l'origine d'oscillation des charges électroniques en volume (oscillations de Langmuir). L'introduction, dans cette constante diélectrique réduite

[4] Dans la suite de ce chapitre nous désignerons le Bremsstrahlung Inverse par l'abréviation BI.
[5] Cette expression est donnée dans le Système International d'unités.

complexe $\bar{\varepsilon}$, de la fréquence électronique de collision est responsable de l'absorption de l'énergie incidente du laser par l'agrégat. Afin de déterminer le chauffage des électrons par BI, il est nécessaire d'évaluer l'énergie déposée dans la sphère diélectrique par le champ laser. Cette variation d'énergie électromagnétique se détermine à partir de la divergence du vecteur de Poynting $\vec{S}$ (forme différentielle du théorème de Poynting exprimant le bilan local d'énergie) :

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot \vec{S} = \vec{\nabla} \cdot \left(\vec{E} \wedge \vec{H} \right) \qquad \textbf{[I-C.14]}$$

En utilisant les relations de Maxwell et en considérant un milieu diélectrique $\left(\vec{D} = \varepsilon \cdot \vec{E} \right)$ et non magnétique $(\mu = 1)$, le taux d'énergie déposée par unité de volume et par unité de temps est :

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \varepsilon_0 \cdot \vec{E} \cdot \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \qquad \textbf{[I-C.15]}$$

En écrivant le champ électrique sous la forme $E_{\text{int}} = \frac{1}{2}\left(\bar{E} \cdot e^{-i\omega t} + \bar{E}^{*} \cdot e^{+i\omega t} \right)$ et en moyennant sur un cycle optique, il vient que :

$$\left\langle \frac{\partial U}{\partial t} \right\rangle_{\text{cycle optique}} = \frac{\varepsilon_0 \cdot \omega}{2} \cdot \left| \bar{E}_{\text{int}} \right|^2 \cdot \Im m(\bar{\varepsilon}) \qquad \textbf{[I-C.16]}$$

Le champ électrique à l'intérieur d'une sphère diélectrique se calcule en considérant le champ électrique externe comme uniforme (approximation du type séculaire où le diamètre de l'agrégat est supposé petit devant la longueur d'onde) :

$$\bar{E}_{\text{int}} = \frac{3}{2 + \bar{\varepsilon}} \cdot E_0 \qquad \textbf{[I-C.17]}$$

L'équation [I-C-16] s'écrit alors :

$$\left\langle \frac{\partial U}{\partial t} \right\rangle_{\text{cycle optique}} = \frac{9\varepsilon_0 \omega}{2} \cdot E_0^2 \cdot \frac{\Im m(\bar{\varepsilon})}{\left| 2 + \bar{\varepsilon} \right|^2} \qquad \textit{[I-C.18]}$$

En remplaçant $\bar{\varepsilon}$ par l'expression [I-C.12], le taux de chauffage par BI devient finalement :

$$\left\langle \frac{\partial U}{\partial t} \right\rangle_{\text{cycle optique}} = \frac{9\varepsilon_0 \omega^2 \omega_p^2 \nu_{\text{électronique}}}{2} \cdot \frac{E_0^2}{9\omega^2 \left(\omega^2 + \nu_{\text{électronique}}^2 \right) + \omega_p^2 \left(\omega_p^2 - 6\omega^2 \right)} \qquad \textbf{[I-C.19]}$$

Cette énergie absorbée présente une résonance en fonction du rapport entre la fréquence de collision et la fréquence de l'onde laser qui va maintenant être explicitée.

1°) Phénomène de résonance

Tous les plasmas possèdent une fréquence propre d'oscillation et, quand la fréquence de l'onde laser (ω) est égale à cette fréquence propre du système ($\omega_{résonance}$), le système entre en résonance. Pour un plasma de longueur finie, cela se traduit macroscopiquement par le fait que le dipôle créé par la séparation des électrons et des ions augmente le champ électrique à l'intérieur du plasma. L'équation du mouvement du système correspond à celle d'un oscillateur harmonique de fréquence propre :

$$\omega_{résonance} = \frac{\omega_p}{\sqrt{3}} \qquad \textbf{[I-C.20]}$$

Par analogie avec l'équation [I-C.13] reliant la fréquence plasma électronique ω_p avec la densité électronique n_e, la densité critique n_c est définie à partir de la fréquence de résonance par l'expression :

$$\omega_{résonance}^2 = \frac{n_c \cdot e^2}{m_e \cdot \varepsilon_0} \qquad \textbf{[I-C.21]}$$

Le phénomène de résonance se produisant quand $\omega_{résonance} = \omega$, avec ω la fréquence de l'onde laser, on peut écrire, en remplaçant par les valeurs numériques :

$$n_c\left(cm^{-3}\right) = \frac{1{,}11 \times 10^{21}}{\lambda(\mu m)} \qquad \textbf{[I-C.22]}$$

A partir de [I-C.20] et [I-C.21], nous pouvons aussi écrire que le phénomène de résonance du nanoplasma avec l'onde laser incidente se produit pour :

$$n_e = 3 \cdot n_c \qquad \textbf{[I-C.23]}$$

2°) Champ électrique et taux de chauffage par BI à la résonance

En reprenant les expressions [I-C.19] et [I-C.17] concernant respectivement le taux de chauffage par BI et le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat et en posant :

$$X = \left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)^2 = \frac{n_e}{n_c} \qquad \text{et} \qquad A = \frac{\nu_{électronique}}{\omega} \qquad \textbf{[I-C.24]}$$

il vient ***[I-C.25]*** :

$$\left\langle \frac{\partial U}{\partial t} \right\rangle_{cycle\ optique} = \frac{9\varepsilon_0 \cdot \omega}{2} \cdot E_0^2 \frac{X \cdot A}{9\left(1 + A^2\right) + X(X - 6)} \text{ et } \frac{E_{int}}{E_0} = \frac{3\left(1 + A^2\right)}{\left[\left(3A^2 + 3 - X\right)^2 + A^2 X^2\right]^{1/2}}$$

Posons : $$F(X,A) = \left\langle \frac{\partial U}{\partial t} \right\rangle_{cycle\ optique} \Big/ \frac{9\varepsilon_0 \cdot \omega}{2} \cdot E_0^2 \qquad \text{et} \qquad G(X,A) = \frac{E_{int}}{E_0} \qquad \textbf{[I-C.26]}$$

Nous avons tracé sur la *Figure I-13*, l'évolution des fonctions *F(X, A)* et *G(X, A)* représentant respectivement (à une constante près) le taux de chauffage et le champ électrique, et qui dépendent des paramètres réduits *X* (densité électronique) et *A* (fréquence électronique de collision).

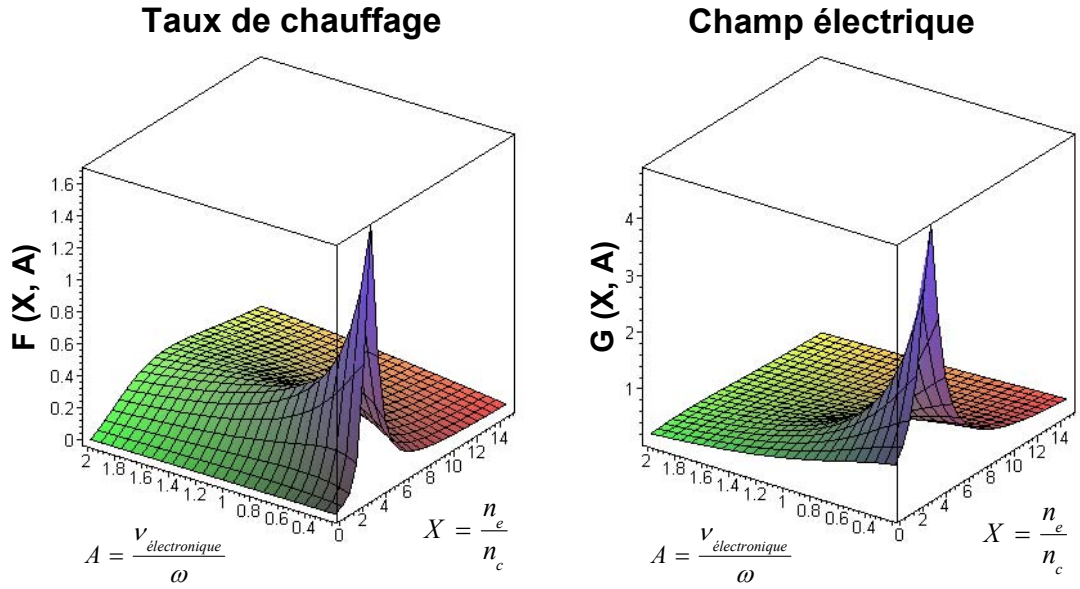


Figure I-13 : Évolution du taux de chauffage par BI (fonction F(X, A)) et du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat (fonction G(X, A)) en fonction des paramètres réduits X et A.

Les valeurs du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat et du taux de chauffage par BI présentent un maximum lorsque $X = 3$, soit effectivement pour $n_e = 3.n_c$ (phénomène de résonance présenté ci – dessus), et d'autant plus que la fréquence électronique de collision est faible devant la fréquence de l'onde laser $\left(A = \nu_{électronique} / \omega << 1 \right)$. Ainsi la fréquence électronique de collision (*via* le paramètre réduit A) tient lieu de facteur de qualité de la résonance. Le nanoplasma, lors de son interaction avec l'onde laser, va passer deux fois par cette résonance :

- une première fois dans le pied de l'impulsion laser lorsque quelques électrons vont être libérés après l'ionisation par effet de champ ; la densité électronique **croit** alors fortement en passant une première fois par $n_e = 3.n_c$;

- et une deuxième fois lorsque l'agrégat va se dilater sous l'action des forces de pression régnant à l'intérieur de l'agrégat comme nous le verrons dans la suite, la densité électronique va alors **diminuer** fortement en passant encore une fois par $n_e = 3.n_c$.

3°) Champ électrique à l'intérieur de l'agrégat hors des résonances

Nous venons de voir que le champ électrique ainsi que le taux de chauffage par BI **augmente** au moment des résonances mais pendant le reste de l'interaction, le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat ne s'identifie pas forcément au champ électrique extérieur. En effet, l'écriture des équations de Maxwell pour un milieu plasma dans lequel seul les électrons sont mobiles et sont soumis à un champ électrique de pulsation ω conduit à une relation de dispersion de la forme :

$$k(\omega) = \frac{1}{c}\left(\omega^2 - \left(\frac{\omega_p}{\sqrt{3}}\right)^2\right)^{1/2} = \frac{e}{c \cdot \sqrt{m_e \cdot \varepsilon_0}}\left(n_c - \frac{n_e}{3}\right)^{1/2} \qquad \textit{[I-C.27]}$$

où $k(\omega)$ est le vecteur d'onde associé à la propagation de l'onde incidente dans le milieu plasma, ω_p la fréquence plasma électronique, n_c la densité critique et n_e la densité électronique. En se basant sur cette équation nous pouvons en déduire les comportements suivant pour le champ électrique :

1°) **avant la première résonance :** nous avons $n_e < 3.n_c$; $k(\omega)$ est alors purement réel. Les équations de Maxwell montrent que le courant de déplacement des charges est supérieur au courant de conduction dans la sphère diélectrique. L'onde électromagnétique se propage sans atténuation dans l'agrégat : le plasma est transparent à l'onde laser (comportement qualifié de "capacitif"). Le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat E_{int} est alors identique au champ électrique extérieur E_0.

2°) **entre la première et la deuxième résonance :** nous avons $n_e > 3.n_c$; $k(\omega)$ est cette fois purement imaginaire. La mobilité des électrons est alors suffisante pour compenser le champ électrique de l'onde incidente et donc empêcher sa propagation : le plasma est opaque à l'onde laser (comportement qualifié de "selfique"). Le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat E_{int} sera plus faible que le champ électrique du laser à l'extérieur E_0 (phénomène d'atténuation).

3°) **après la deuxième résonance :** nous avons $n_e < 3.n_c$ de nouveau ; on retrouve le cas exposé en 1°).

Pour résumer, le scénario concernant les densités électroniques et le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat est donc le suivant :

$t < t_{1^{ère}\ résonance}$	$t = t_{1^{ère}\ résonance}$	$t_{1^{ère}\ résonance} < t < t_{2^{ème}\ résonance}$	$t = t_{2^{ème}\ résonance}$	$t > t_{2^{ème}\ résonance}$
	RESONANCE		**RESONANCE**	
$n_e < 3.n_c$	$n_e = 3.n_c$	$n_e > 3.n_c$	$n_e = 3.n_c$	$n_e < 3.n_c$
$E_{int} = E_0$	$E_{int} >> E_0$	$E_{int} < E_0$	$E_{int} >> E_0$	$E_{int} = E_0$

Nous présenterons l'évolution de la densité électronique ainsi que du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat dans le paragraphe I-C-1-d.

4°) Modèle nanoplasma standard

Dans le modèle nanoplasma **standard**, la fréquence électronique de collision est identifiée uniquement à la fréquence de collision électrons – ions :

$$\nu_{électronique} = \nu_{ei}$$

La détermination exacte de cette fréquence de collision électrons – ions est d'un abord délicat et plusieurs expressions et approximations ont été utilisées, dépendant principalement de la comparaison entre la vitesse d'oscillation des électrons V_{osc} et de la vitesse dite "thermique" $V_{k_B T_e}$ [Silin, 1965]. Une expression généralement retenue est la suivante (en unité MKSA) [Djaoui & Offenberger, 1994] [Johnson & Dawson, 1973] :

$$\nu_{ei} = \frac{1}{2} \cdot \frac{\langle Q \rangle \cdot n_e \cdot e^4}{\left(\pi \cdot \varepsilon_0 \cdot m_e\right)^2 \cdot \left(V_{k_B T_e}^2 + V_{osc}^2\right)^{3/2}} \cdot \ln \Lambda \qquad \textbf{[I-C.28]}$$

où n_e est la densité électronique, m_e la masse d'un électron, et $ln\ \Lambda$ le logarithme coulombien. Ce logarithme coulombien représente physiquement l'importance relative des diffusions des électrons aux petits angles. Il peut être montré que Λ est le rapport entre les paramètres d'impact maximum b_{max} et minimum b_{min} lors de la diffusion d'un électron par un potentiel coulombien [Kruer, 1988] et vaut de l'ordre de 10 à 20. Différentes expressions ont été utilisées pour $ln\ \Lambda$ selon les versions du code nanoplasma [Ditmire et al., 1996] [Dobosz, 1998].

C-1-c) Présentation d'un code nanoplasma modifié

Le groupe de Suraud et collaborateurs de Toulouse a repris le code nanoplasma publié par Ditmire et, après avoir rectifié certaines erreurs numériques, a montré que la prise en compte uniquement des collisions électrons – ions pour la fréquence électronique de collision

($\nu_{électronique}$) entraîne une divergence du champ électrique au moment de la deuxième résonance. Comme l'illustre la *Figure I-14 (a-1)*, le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat atteint, dans ce cas, des valeurs très importantes ($> 10^{14}$ $V.m^{-1}$) pouvant conduire à des vitesses d'électrons relativistes. En reprenant l'équation [I-C.17], il est possible de montrer que le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat, et à proximité de la résonance, peut se mettre sous la forme :

$$\left| E_{\text{int}}\left(\omega = {\omega_p}/{\sqrt{3}} \right) \right| = \sqrt{1 + \left(\frac{\omega}{\nu_{électronique}} \right)^2} \cdot E_0 \qquad \textbf{[I-C.29]}$$

avec $\nu_{électronique} = \nu_{ei}$ si l'on ne tient compte que des collisions électrons – ions comme dans le modèle nanoplasma standard. Cette augmentation brutale du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat est donc corrélée à une diminution rapide du taux de collision électrons – ions à proximité de cette résonance (*cf. Figure I-14 - b*). En effet, en utilisant l'expression [I-C.28], on montre facilement que cette fréquence de collision électrons – ions diminue fortement à ce moment à cause :

- d'une chute brutale de la densité électronique n_e ;
- et d'une augmentation importante de la vitesse effective des électrons V_{eff}.

Au voisinage de cette deuxième résonance, la contribution d'autres termes d'amortissement (" *damping* ") devient donc de plus en plus grande devant la fréquence de collision électrons – ions. Quand la vitesse des électrons augmente, ils atteignent rapidement la surface de l'agrégat et peuvent ainsi être réfléchis de nombreuses fois durant la résonance. Ce phénomène conduit à l'amortissement de Landau ("*Landau damping*") des plasmons et présente une forte analogie avec la dissipation sur la barrière de surface de la physique nucléaire. Suraud *et al.* ont choisit d'introduire des collisions électrons – surface ayant une fréquence de collision de la forme :

$$\nu_{es} = \frac{V_{eff}}{R} \qquad \textbf{[I-C.30a]}$$

avec V_{eff} la vitesse effective des électrons (équation [I-C.1]) et R le rayon de l'agrégat. La fréquence électronique de collision, intervenant pour calculer le chauffage par BI et le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat, est alors la somme de deux contributions : celle due aux ions (ν_{ei}) et celle due à la surface (ν_{es}).

$$\nu_{électronique} = \nu_{ei} + \nu_{es} \qquad \text{avec} \quad \nu_{ei} \propto \frac{1}{V_{eff}^3} \text{ et } \nu_{es} \propto V_{eff} \qquad \textbf{[I-C.30b]}$$

Aux environs de la deuxième résonance, la vitesse des électrons augmente et la contribution des collisions avec la surface ($\propto V_{eff}$) dans la fréquence électronique de collision empêche finalement la divergence du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat comme l'illustre le résultat du calcul de la *Figure I-14 - b* où $\nu_{électronique} = \nu_{ei} + \nu_{es}$.

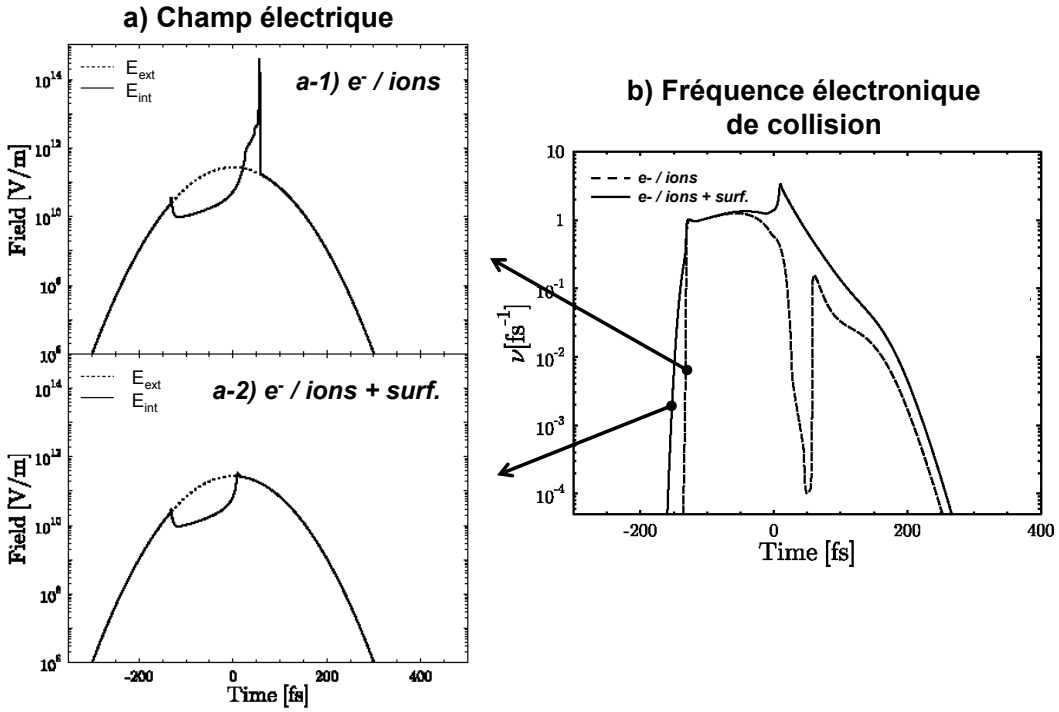


***Figure I-14 :** a) Évolution du champ électrique à l'intérieur et à l'extérieur de l'agrégat en prenant uniquement les collisions électrons – ions (a-1) et en incluant en plus les collisions électrons – surface (a-2). b) Évolution de la fréquence électronique de collision dans ces deux mêmes cas. (agrégat de xénon, N = 5 000 atomes, I = 10^{16} W/cm^2, λ = 780 nm et τ = 100 fs [Megi et al., 2003]).*

Cette modification de la fréquence électronique de collision induit des changements significatifs sur la dynamique de l'agrégat lors de l'interaction et qui se traduisent par :

- une diminution du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat au moment de la seconde résonance par rapport au modèle nanoplasma standard ;
- un changement de la dynamique d'ionisation. L'état de charge moyen est trouvé de l'ordre de 10+ pour des agrégats de xénon à un éclairement de 10^{15} W/cm^2, ce qui est bien inférieur à celui atteint lorsque les collisions électrons – surface ne sont par présentes (> 40+) ;
- une baisse du chauffage par BI. En effet, proche de la résonance, le chauffage par BI s'écrit de la façon suivante :

$$< \frac{\partial U}{\partial t} >_{cycle\ optique} \propto \frac{\omega^2}{\nu_{électronique}} \cdot E_0^2 \qquad \textbf{[I-C.31]}$$

Et comme $\nu_{électronique}^{sans\ e\ /\ surface} << \nu_{électronique}^{avec\ e\ /\ surface}$, il vient que $\left(\frac{\partial U}{\partial t}\right)^{sans\ e\ /\ surface} >> \left(\frac{\partial U}{\partial t}\right)^{avec\ e\ /\ surface}$, toutes choses étant égales par ailleurs (même ω et même E_0).

C-1-d) Dynamique de l'agrégat

Nous allons présenter, pour finir la description de ce modèle, les évolutions temporelles de plusieurs grandeurs physiques, et ce afin de donner un scénario le plus complet possible sur les prévisions du modèle nanoplasma. Il va donc être exposé successivement :

- l'équation fondamentale d'évolution du nanoplasma permettant d'en déduire l'évolution du rayon de l'agrégat ;
- la compétition entre les différentes pressions régnant au sein de l'agrégat (coulombienne et hydrodynamique) ;
- l'évolution de la densité électronique à l'intérieur de l'agrégat ;
- l'estimation de l'épaisseur de peau ainsi que l'évolution temporelle du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat ;
- la dynamique d'ionisation *via* l'évolution des taux d'ionisation ainsi que des populations ioniques ;
- l'évolution de la température électronique régnant à l'intérieur de l'agrégat ;
- et enfin il sera présenté l'influence de la taille des agrégats et de l'éclairement laser sur la dynamique de l'agrégat.

1°) Équation fondamentale du nanoplasma

La dynamique temporelle de l'évolution du rayon de l'agrégat est obtenue en utilisant le modèle développé par Haught et Polk [Haught & Polk, 1970] dans le cas de l'irradiation d'un plasma à **symétrie sphérique** décrit comme un fluide à deux températures T_e et T_i. En écrivant le théorème de l'énergie cinétique sous sa forme différentielle (temporellement) mais intégré sur tout le volume de l'agrégat (la puissance des forces de pression est égale à la variation temporelle d'énergie cinétique), il vient :

$$-\int_0^R \frac{\partial P(r,t)}{\partial r} \cdot 4\pi \cdot r(t)^2 \cdot \frac{dr(t)}{dt} \cdot dr = \frac{1}{2} \cdot \frac{d}{dt} \int_0^R \rho(r,t) \cdot 4\pi \cdot r^2 \cdot \left(\frac{dr(t)}{dt}\right)^2 \cdot dr \qquad \textbf{[I-C.32]}$$

avec $P(r, t)$ la pression à l'intérieur de l'agrégat, $\rho(r, t)$ la masse volumique et R le rayon de l'agrégat. Dans ce modèle, on sépare les différentes variables en une partie spatiale (en introduisant la variable réduite $u = r/R$) et temporelle :

$$A(r,t) = A(t) \cdot f\left(u = {}^{r}\!/_{R}\right) \qquad \textbf{[I-C.33]}$$

A représentant une variable physique quelconque (pression, masse volumique …) et *f(u)* le profil spatial de ces grandeurs physiques. En prenant un profil homogène modélisé par la fonction suivante :

$$f(u) = \lim_{n\to\infty} e^{-u^{n}} \qquad \textbf{[I-C.34]}$$

L'équation fondamentale d'évolution du nanoplasma s'écrit finalement :

$$\frac{d^{2}R(t)}{dt^{2}} = 5 \cdot \frac{P(t)}{n_e m_e + n_i m_i} \cdot \frac{1}{R(t)} \qquad \textbf{[I-C.35]}$$

L'évolution du rayon de l'agrégat, présentée sur la *Figure I-15*, est assez lente entre les deux résonances puis augmente brutalement une fois la seconde résonance passée (explosion).

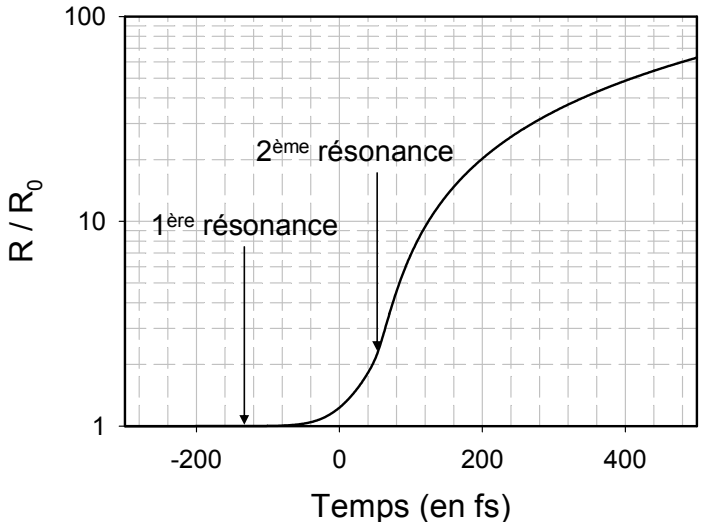


Figure I-15 : Évolution temporelle du rayon de l'agrégat obtenue par le code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface (agrégats de xénon, N = 10 000 atomes, I = 10^{16} W/cm^2, τ = 100 fs et λ = 800 nm). Le rayon initial de l'agrégat (R_0) est de 5,28 nm.

2°) Pressions régnant à l'intérieur de l'agrégat

La pression totale régnant à l'intérieur de l'agrégat est la somme de deux contributions distinctes :

- *la pression coulombienne :* elle résulte de la non neutralité du plasma qui apparaît lorsqu'une partie des électrons a acquis suffisamment d'énergie pour quitter l'agrégat. La pression coulombienne (notée P_c) se calcule en considérant une sphère conductrice et chargée [Jackson, 2001] :

$$P_c(t) = \frac{3}{2} \cdot \frac{Q(t)^2}{(4\pi)^2 \cdot \varepsilon_0 \cdot R(t)^4} \qquad \textbf{[I-C.36]}$$

où *R(t)* et *Q(t)* sont respectivement le rayon et la charge de l'agrégat.

- *la pression hydrodynamique :* il s'agit de la pression liée à l'agitation "thermique" des particules présentes au sein du plasma caractérisé par deux températures différentes (T_e et T_i) ;

cette pression hydrodynamique (notée P_h) s'écrit sous la forme [Nishikawa & Wakatani, 200] :

$$P_h(t) = n_e(t) \cdot k_B T_e(t) + n_i(t) \cdot k_B T_i(t) \qquad \textbf{[I-C.37]}$$

où (n_e, T_e) et (n_i, T_i) sont respectivement les densités et les températures électroniques et ioniques. En fait, la contribution ionique est bien inférieure à la contribution électronique et l'image associée à la pression hydrodynamique est celle d'un plasma dans lequel les électrons "chauds" poussent les ions plus "froids" ainsi $P_h(t) \approx n_e(t) \cdot k_B T_e(t)$.

Les évolutions de ces pressions avec le rayon de l'agrégat sont donc les suivantes :

$$P_c \propto \frac{1}{R^4} \qquad \text{et} \qquad P_h \propto \frac{1}{R^3}$$

Qualitativement, P_h l'emporte pour les gros agrégats tandis que P_c domine pour des agrégats plus petits. Afin de chiffrer plus quantitativement cette compétition, nous avons tracé sur la *Figure I-16*, les évolutions temporelles de ces deux pressions pour plusieurs tailles d'agrégat de xénon ($I = 5\times10^{16}$ *W/cm²* et $\tau = 100$ *fs*) à l'aide du code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface. Précisons qu'il semblerait que la pression hydrodynamique joue un rôle moins important pendant la dynamique de l'agrégat lorsque des collisions électrons – surface sont introduites qu'en présence uniquement de collisions électrons – ions.

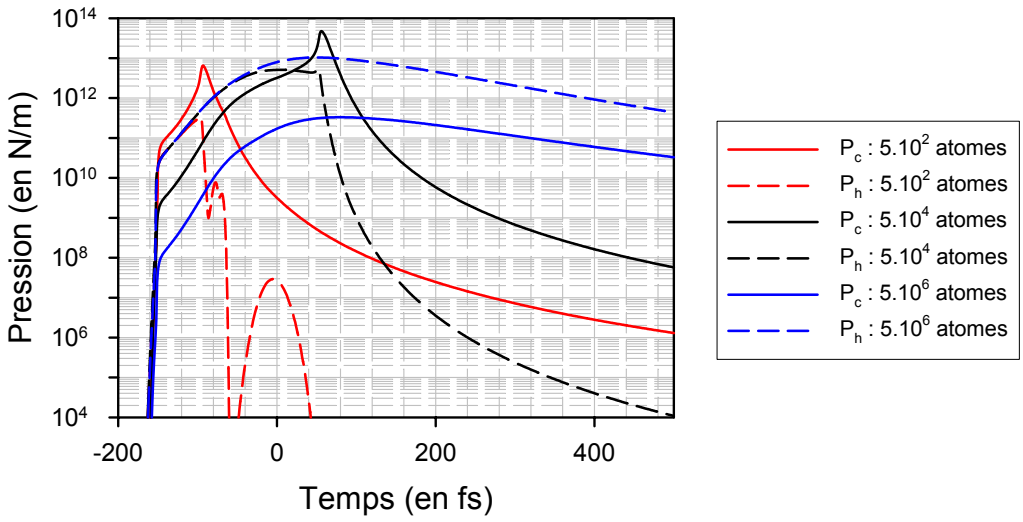


Figure I-16 : ***Évolution temporelle de la pression coulombienne (P_c) et de la pression hydrodynamique (P_h) obtenue par le code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface pour plusieurs tailles d'agrégat de xénon ($I = 5\times10^{16}$ W/cm², $\lambda = 800$ nm et $\tau = 100$ fs).***

Ce calcul confirme l'approche qualitative précédente car P_h l'emporte pour les très gros agrégats (à cet éclairement de 5×10^{16} *W/cm²*, N > 100 000 atomes) tandis que, pour les agrégats plus petits, il s'agit de P_c qui domine au moment de l'explosion. Nous reviendrons sur cette compétition entre explosion coulombienne et hydrodynamique dans le paragraphe I-C-2-b concernant la spectroscopie d'ions.

3°) Évolution de la densité électronique

Comme nous l'avons précisé précédemment, la densité électronique augmente brutalement une fois réalisée la première ionisation des atomes de l'agrégat passant ainsi une première fois à la résonance (*i.e.* $n_e = 3.n_c$). Une fois que le rayon de l'agrégat commence à augmenter, la densité électronique chute fortement passant alors une deuxième fois par la résonance. Ce comportement est illustré sur la *Figure I-17* obtenu à l'aide du code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface.

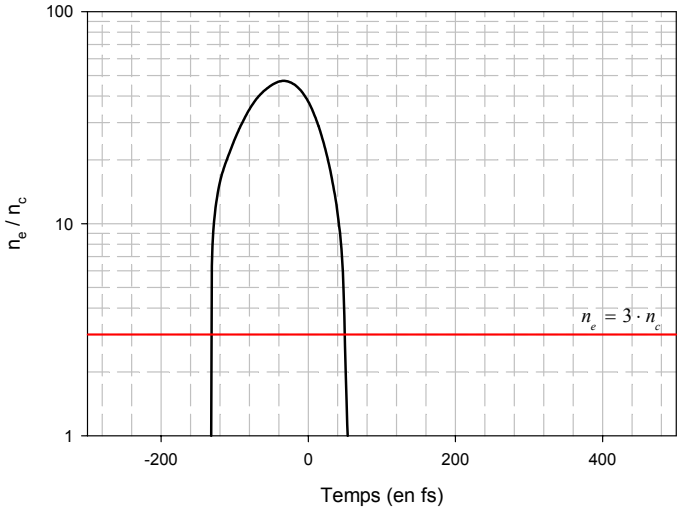


Figure I-17 : Évolution temporelle de la densité électronique n_e (normalisée à la densité critique n_c) obtenue par le code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface (agrégat de xénon, N = 10 000 atomes, I = 10^{16} W/cm^2, λ = 800 nm et τ = 100 fs).

4°) Épaisseur de peau et champ électrique à l'intérieur de l'agrégat

Comme il a été vu au §I-C-1-b-3, le champ électrique entre les deux résonances est évanescent et la pénétration de l'onde électromagnétique ne se fera donc que sur une épaisseur δ, appelée *épaisseur de peau*, pour laquelle il sera possible de considérer le champ électrique comme quasi – constant (en fait le champ électrique décroît d'un facteur e^{-1} pour une longueur de δ). Pour un milieu diélectrique, δ est donnée par l'expression suivante [Jackson, 2001] :

$$\frac{1}{\delta} = \frac{\omega}{c} \cdot \Im m\left(\bar{\varepsilon}^{1/2}\right) \qquad \textbf{[I-C.38]}$$

où ω est la fréquence de l'onde électromagnétique incidente, c la vitesse de la lumière et $\bar{\varepsilon}$ la constante diélectrique complexe donnée par l'expression [I-C.12]. Certaines approximations peuvent être faites afin d'évaluer plus facilement δ :

- Si $\frac{\nu_{électronique}}{\omega} << 1$ alors $\delta \approx \frac{c}{\omega_p}$ **[I-C.39]**

Soit dans le système d'unités usitées : $\delta\,(nm) \approx \dfrac{5,315\times 10^{12}}{\sqrt{n_e\left(cm^{-3}\right)}}$

- Si $\dfrac{\nu_{électronique}}{\omega} >> 1$ alors $\delta \approx \dfrac{\nu_{électronique}^{1/2}\cdot c}{\omega^{1/2}\cdot\omega_p}\cdot\dfrac{1}{\sqrt{2}}$ ***[I-C.40]***

A l'aide de la valeur de $\bar{\varepsilon}$ calculée par le code nanoplasma, nous avons évalué cette épaisseur de peau pour différentes conditions de simulations (taille d'agrégat, éclairement…) et ainsi pu tester la validité de l'approximation [I-C.39] par rapport à la formule "exacte" [I-C.38]. A titre d'exemple, nous présentons sur la *Figure I-18*, les résultats d'une telle simulation pour un agrégat de xénon contenant 10 000 atomes soumis à un éclairement crête de $10^{16}\ W/cm^2$ ($\lambda = 780\ nm$ et $\tau = 100\ fs$). On peut constater que la formule [I-C.39] (courbe en trait plein de la *Figure I-18-b*) permet d'estimer correctement l'épaisseur de peau dans le nanoplasma pendant toute l'interaction. Enfin, pour un rayon initial R_0 de 5,28 *nm*, nous voyons également que δ est supérieur à $R(t)$ pendant toute l'interaction : tous les atomes de l'agrégat voient donc un champ électrique identique.

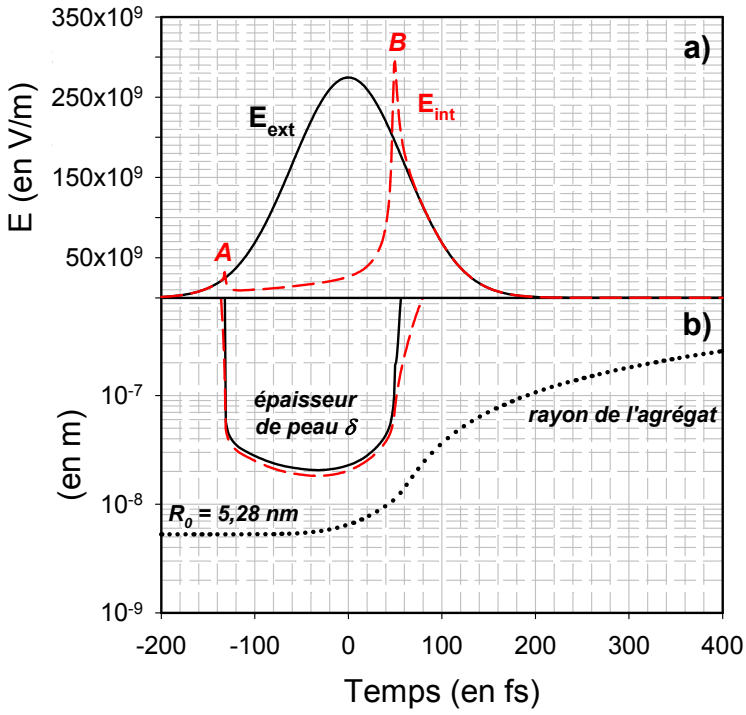


Figure I-18 : a) Évolution temporelle du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat (courbe en tirets) et à l'extérieur de l'agrégat (courbe en traits pleins). Les points A et B indiquent le moment des résonances.
b) Évolution temporelle du rayon de l'agrégat et de l'épaisseur de peau (courbe en traits pleins : formule [I-C.39], courbe en tirets : formule [I-C.38]) (pour les conditions de simulation voir le texte).

Par contre, pour des agrégats ayant un rayon initial R_0 supérieur à 20 *nm* (soit N > 10^6 atomes), les simulations indiquent que l'épaisseur de peau devient égale voire inférieure au rayon de l'agrégat : l'approximation d'un champ électrique constant pour tous les atomes de l'agrégats ne devient donc plus valide pour ces gros agrégats. Les différentes versions du code

nanoplasma ne tiennent pas compte de cet effet de non – homogénéité du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat pour les gros agrégats, ce qui peut entraîner une limitation de son domaine de validité.

5°) Dynamique d'ionisation

La dynamique d'ionisation lors de l'interaction est obtenue, dans le modèle nanoplasma, en calculant à chaque instant de l'interaction les différents taux d'ionisation. Les trois contributions au taux d'ionisation (W_{tun} équation [I-B.7], W_{coll}^{las} équation [I-C.6] et $W_{coll}^{k_B T_e}$ équation [I-C.11]) ont des comportements très différents en fonction du temps et l'un ou l'autre des termes domine à des instants différents de l'interaction. Pour décrire les tendances générales, on séparera la discussion en 4 zones temporelles en s'appuyant sur la *Figure I-19* :

- **avant la première résonance :** le taux d'ionisation par effet de champ de l'espèce neutre est important $\left(W_{tun}\left[Ar^{1+} \right] > 10^{11}\ s^{-1} \right)$ alors que pour les autres états de charge ce taux d'ionisation par effet de champ est inférieur de plusieurs ordres de grandeur. A cause d'une faible densité électronique à l'intérieur de l'agrégat les taux d'ionisation collisionnelle (thermique et laser) sont trop faibles pour contribuer efficacement à l'ionisation, et ce quel que soit l'état de charge considéré. On produit alors uniquement de l'Ar^{1+} et la densité électronique à l'intérieur de l'agrégat augmente corrélativement.
- **entre la première résonance et avant la deuxième résonance :** ayant maintenant une densité électronique suffisante, la contribution thermique du taux d'ionisation collisionnelle $\left(W_{coll}^{k_B T_e} \right)$ augmente rapidement après la première résonance pour tous les états de charge permettant ainsi de continuer l'ionisation de l'Ar^{1+} initialement produit. Par contre le champ électrique étant écranté à l'intérieur de l'agrégat entre ces deux instants, l'ionisation par effet de champ $\left(W_{tun} \right)$ et la contribution à l'ionisation collisionnelle des électrons accélérés dans le champ laser $\left(W_{coll}^{las} \right)$ sont négligeables.
- **à proximité de la deuxième résonance :** le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat augmente fortement permettant ainsi à W_{coll}^{las} et à W_{tun} de devenir du même ordre de grandeur que $W_{coll}^{k_B T_e}$.

juste après la deuxième résonance : la densité électronique chute brutalement du fait de l'expansion de l'agrégat, faisant diminuer par conséquent l'ionisation collisionnelle ($W_{coll}^{k_B T_e}$ et W_{coll}^{las}). Le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat étant identique au champ électrique à l'extérieur de l'agrégat, l'ionisation par effet de champ domine de nouveau pour certains états de charge. Par exemple sur la *Figure I-19*, nous voyons que le taux d'ionisation par effet de champ est important de l'Ar^{1+} à l'Ar^{5+} mais pour des états de charge plus élevée (≥ 6+) le champ électrique n'est pas suffisant pour obtenir des taux d'ionisation significatifs. Une fois passée la seconde résonance, l'ionisation s'arrête brutalement.

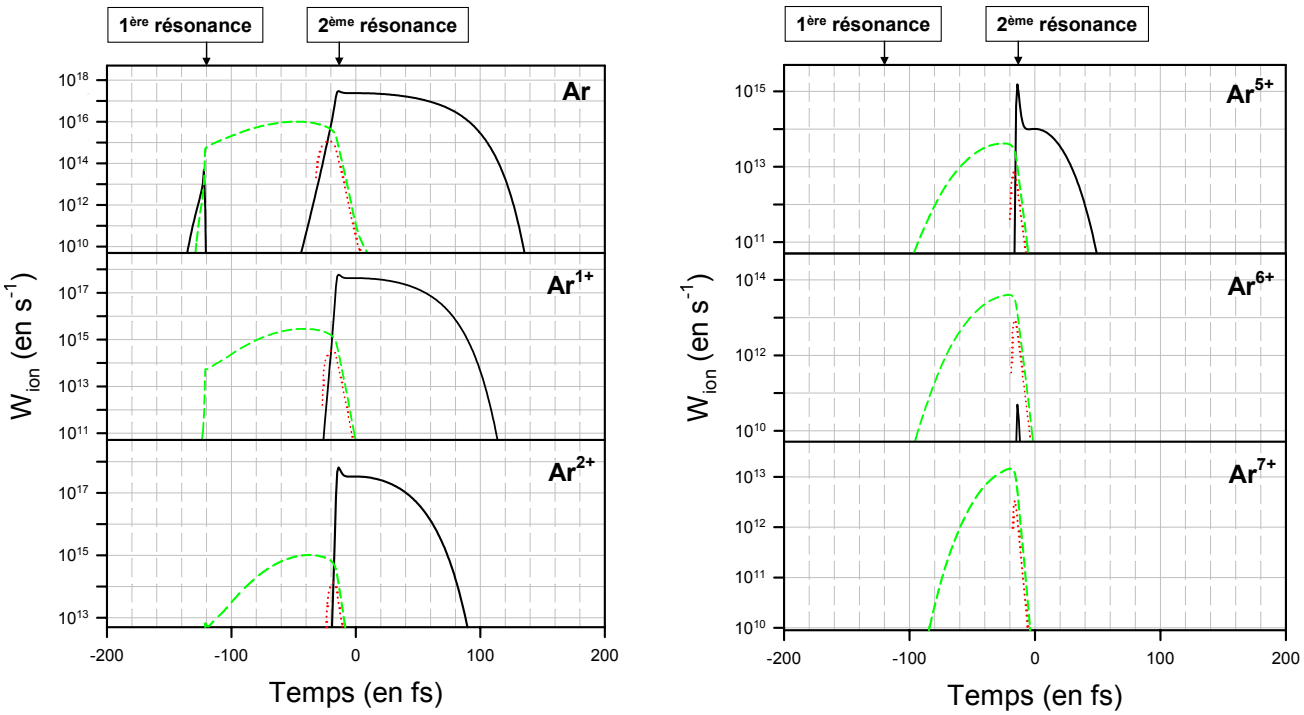


Figure I-19 : Dynamique temporelle des taux d'ionisation par effet tunnel (courbe noire en traits pleins) et collisionnelle (courbe verte en tirets : contribution thermique, courbe rouge en pointillés : contribution du laser) pour différents états de charge. Ces simulations ont été obtenues par le code nanoplasma de Toulouse (agrégats d'argon, N = 5 000 atomes, I = 10^{16} W/cm², τ = 100 fs et λ = 800 nm).

Les populations ioniques N_j des différents états de charge *(j)* sont ensuite calculées à partir des taux d'ionisation par des équations couplées de la forme :

$$\frac{dN_j(t)}{dt} = \left\{ W_{j-1}^{tun} + W_{j-1}^{k_B T_e} + W_{j-1}^{las} \right\} \cdot N_{j-1}(t) - \left\{ W_j^{tun} + W_j^{k_B T_e} + W_j^{las} \right\} \cdot N_j(t) \qquad \textbf{[I-C.41]}$$

où $\left(W_j^{tun}, W_j^{k_B T_e}, W_j^{las} \right)$ sont respectivement les taux d'ionisation tunnel et collisionnelle (contribution thermique et laser) pour l'ion d'état de charge *(j)*. Nous présentons sur la *Figure I-20*, l'évolution des populations ioniques correspondant aux mêmes conditions de simulation

que les taux d'ionisation de la *Figure I-19* et que nous avons commentées précédemment. On voit ainsi que, juste avant la deuxième résonance, le nanoplasma contient autant d'ions Ar^{5+} que d'ions Ar^{6+}. Au moment de cette résonance, l'Ar^{5+} se vide entièrement dans l'Ar^{6+} car le champ électrique augmente fortement. Mais une fois cette résonance passée, les taux d'ionisation collisionnelle chutent brutalement et l'ionisation par effet de champ n'est pas suffisante pour peupler significativement l'Ar^{7+} : les populations ioniques n'évoluent plus.

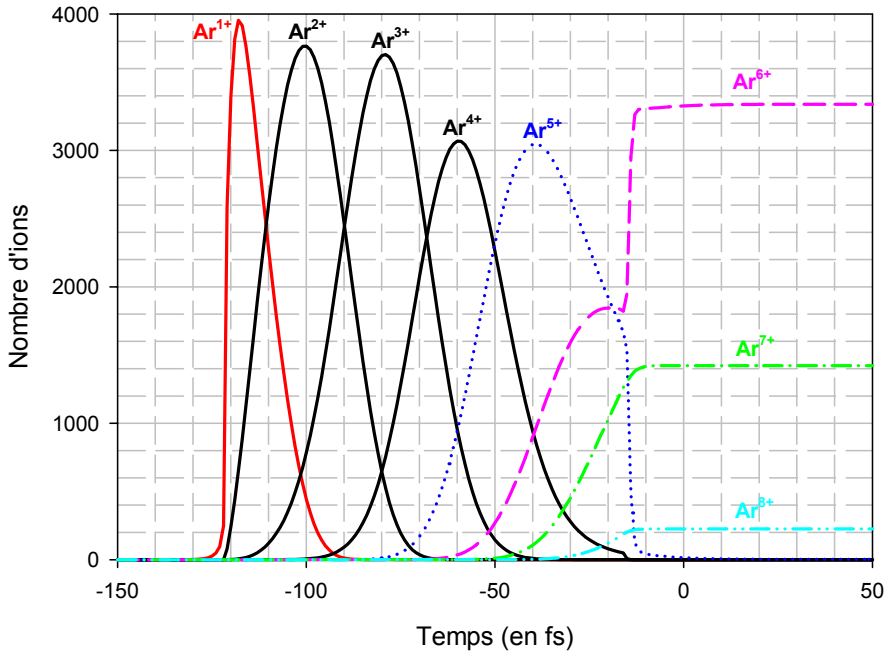


***Figure I-20 :** Dynamique temporelle des populations ioniques obtenue par le code nanoplasma de Toulouse (agrégat d'argon, N = 5 000 atomes, I = 10^{16} W/cm², τ = 100 fs, λ = 800 nm).*

Cet effet de "gel" des populations ioniques intervenant après la seconde résonance est inhérent au code nanoplasma et se retrouve quelque soit la taille des agrégats, l'éclairement laser, la durée d'impulsion et la nature des agrégats (argon ou xénon).

6°) Évolution de la température électronique

L'expansion du nanoplasma, les mécanismes d'ionisation et les processus collisionnels induisent une variation de la température électronique du milieu pendant l'interaction. Il est possible d'obtenir une équation d'évolution de cette température électronique en écrivant la conservation de l'énergie au sein du nanoplasma (les pertes d'énergie par émission radiative ainsi que les recombinaisons sont négligées) :

$$\frac{dT_e}{dt} = -\frac{2}{R}\frac{dR}{dt}T_e - \frac{T_e}{n_e}\frac{dn_e}{dt} + \frac{2}{3n_e k_B}\frac{dU}{dt} + \frac{2}{3n_e k_B}\frac{d\langle T\rangle}{dt} - \frac{T_e - T_i}{t_{éq}} - \frac{2}{3n_e k_B}\sum_j E_j \frac{dn_j}{dt} \quad \textbf{[I-C.42]}$$

- le terme $-\frac{2}{R}\frac{dR}{dt}T_e$ traduit le refroidissement du plasma lors de l'expansion de l'agrégat ;

- le terme $-\frac{T_e}{n_e}\frac{dn_e}{dt}$ provient de la variation de densité électronique ;

- le terme $+\frac{2}{3n_e k_B}\frac{dU}{dt}$ permet de prendre en compte le chauffage des électrons par absorption collisionnelle de photons (Bremsstrahlung Inverse) ;

- le terme $+\frac{2}{3n_e k_B}\frac{d\langle T\rangle}{dt}$ permet de tenir compte de l'augmentation de l'énergie de dérive moyenne des électrons produits par effet tunnel ;

- le terme $-\frac{T_e - T_i}{t_{éq}}$ traduit une baisse de l'énergie des électrons lors des collisions électrons – ions élastiques ; le temps d'équilibre est donné typiquement par la formule :

$$t_{éq} = \frac{1}{\nu_{électronique}} \qquad \textbf{[I-C.43]}$$

- enfin, le terme $-\frac{2}{3n_e k_B}\sum_j E_j \frac{dn_j}{dt}$ rend compte de la perte d'énergie des électrons lors du processus d'ionisation collisionnelle.

Nous présentons sur la *Figure I-21*, les évolutions temporelles des températures électroniques obtenues à l'aide du code nanoplasma de Toulouse pour plusieurs tailles d'agrégats de xénon et à différents éclairements ($I = 10^{15}$, 10^{16} et 10^{17} W/cm^2). Afin de comparer cette température électronique moyenne avec l'énergie moyenne d'oscillation des électrons dans le champ laser, nous avons également reporté sur cette figure l'évolution de U_p. Les énergies électroniques moyennes associées au plasma et liées au chauffage par BI ne sont donc pas très supérieures à l'énergie cinétique moyenne d'oscillation d'électrons libres dans le champ laser. Ces températures électroniques peuvent même être inférieures à U_p entre les deux résonances car, dans le modèle nanoplasma, le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat est fortement écranté. L'introduction du BI ne permet donc pas aux électrons d'acquérir beaucoup plus d'énergie que lorsque l'on considère uniquement l'oscillation des électrons libres dans un champ électrique identique au champ laser à l'extérieur de l'agrégat.

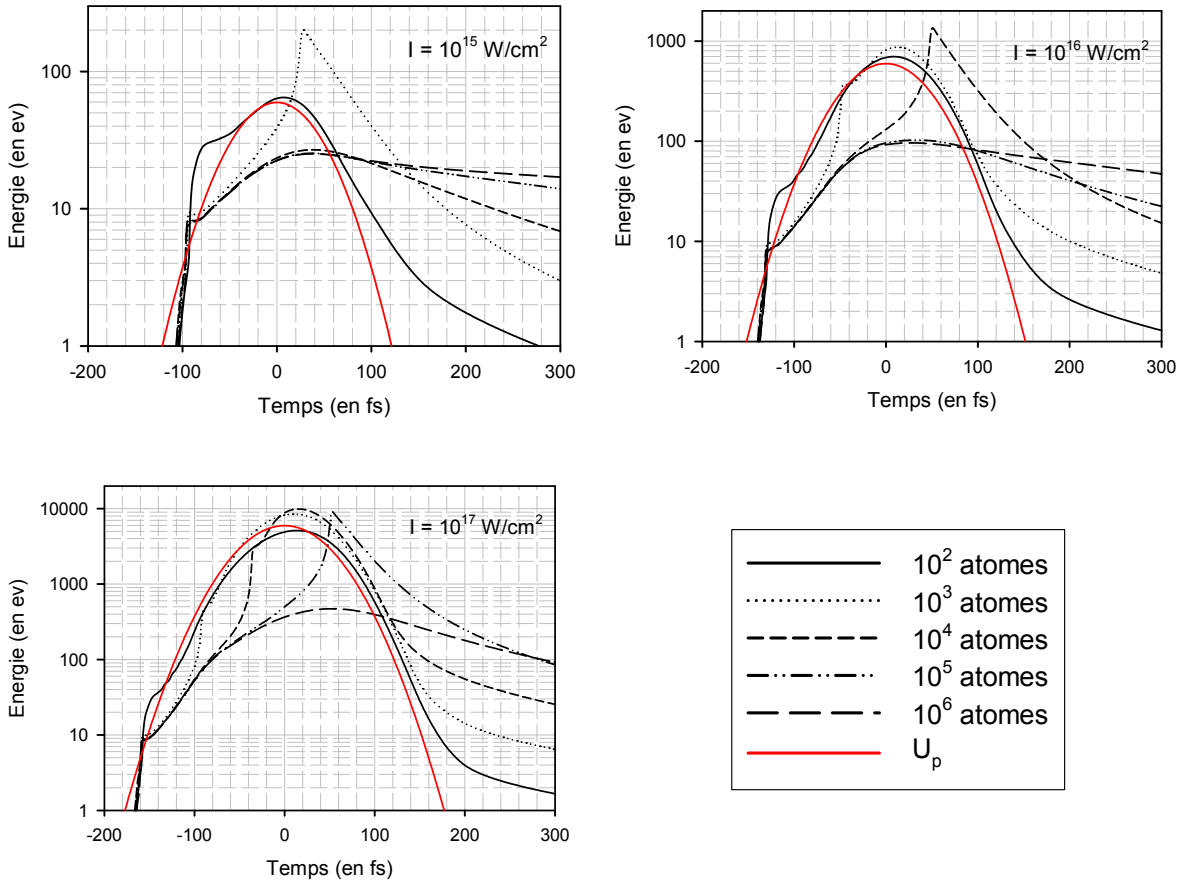


Figure I-21 : Évolution de la température électronique moyenne du nanoplasma pour plusieurs tailles d'agrégat de xénon à trois éclairements (10^{15}, 10^{16} et 10^{17} W/cm^2) calculée par le code nanoplasma de Toulouse incluant les collisions électrons – surface (τ = 100 fs et λ = 800 nm).

7°) Influence de la taille et de l'éclairement laser sur la dynamique

Il est présenté sur la *Figure I-22* (pour la taille des agrégats) et la *Figure I-23* (pour l'éclairement laser) l'évolution des grandeurs suivantes :

- le rayon de l'agrégat (normalisé au rayon initial) ;
- l'état de charge moyen des ions présents dans le nanoplasma ;
- la température électronique moyenne au cours de l'interaction ;
- le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat ;
- la densité électronique dans le nanoplasma.

Ces simulations ont été obtenues à l'aide du code nanoplasma de Toulouse incluant les collisions électrons – surface pour une durée d'impulsion de 100 *fs* et une longueur d'onde de 800 *nm* (IR). L'éclairement laser a été fixé à 10^{16} *W/cm*^{2} (sur notre dispositif expérimental, 10^{14} *W/cm*^{2} < *I* < 10^{17} *W/cm*^{2}) pour les simulations en fonction de la taille et la taille des agrégats a été fixée à 10 000 atomes (sur notre dispositif expérimental, 10^3 atomes < N < 10^6 atomes) pour les simulations réalisées en fonction de l'éclairement laser.

7°-i) Influence de la taille des agrégats

Le principal effet de la taille des agrégats sur la dynamique de l'interaction est de déplacer temporellement la seconde résonance de l'onde laser avec le nanoplasma dans l'impulsion laser. Ainsi, à un éclairement de 10^{16} *W/cm²* ($\tau = 100$ *fs* et $\lambda = 800$ *nm*) et pour une taille d'agrégat de 500 atomes, cette résonance se produit approximativement 140 *fs* **avant** le maximum de l'éclairement laser tandis que pour une taille d'agrégat de 100 000 atomes celle – ci se produit approximativement 200 *fs* **après** l'éclairement maximum. Ce déplacement temporel de la seconde résonance induit une modification du chauffage des électrons : en particulier, lorsque la seconde résonance se produit au moment de l'éclairement crête, **la température électronique maximale est optimale** (légèrement supérieure à 1 *keV* pour une taille de 10 000 atomes). Ce déplacement temporel de la seconde résonance dans l'impulsion laser avec la taille des agrégats est alors associé à une taille optimale dans le couplage entre le rayonnement laser incident et les agrégats. D'une manière simplifiée, un petit agrégat explose trop rapidement lors du passage de l'impulsion laser tandis qu'un agrégat trop gros ne va pas, au contraire, exploser suffisamment rapidement pour "voir" la seconde résonance pendant l'impulsion laser (*i.e.* pour que $n_e = 3.n_c$ pour la seconde fois).

Comme nous l'avons déjà vu au paragraphe précédent (§I-C-1-d-6), il est important de noter que la **température électronique maximale** au cours de l'interaction n'est pas très différente de l'énergie pondéromotrice des électrons dans le champ laser (à 10^{16} *W/cm²* et $\lambda = 800$ *nm*, *Up* ~ 600 *eV*) et ce quelque soit la taille des agrégats. Enfin, l'état de charge moyen des ions après l'interaction semble saturer vers l'Ar^{8+} pour une taille d'agrégat supérieure à 50 000 atomes ; ceci correspond à ce que nous avons déjà explicité dans le paragraphe I-C-1-d-5 et qui dépend du "gel" des populations après la seconde résonance. Ainsi, quelque soit la taille des agrégats et à un éclairement de 10^{16} *W/cm²*, nous voyons que le modèle nanoplasma ne permet pas d'obtenir des états de charge beaucoup plus grands qu'un modèle atomique d'ionisation par effet de champ : le modèle nanoplasma prévoit, en effet, un état de charge moyen compris typiquement entre l'Ar^{6+} (pour 500 atomes) et l'Ar^{8+} (dès 10 000 atomes) à 10^{16} *W/cm²*, tout comme la formule ADK pour un atome isolé (*cf.* formule [I-B.7]).

7°-i) Influence de l'éclairement laser

La modification de l'éclairement influe à la fois sur la position temporelle de la première résonance et sur celle de la seconde résonance. La première résonance se produisant dès la première ionisation des atomes de l'agrégat, celle – ci a donc tendance à se produire

plus tôt dans l'impulsion laser lorsque l'éclairement laser augmente (pour une même durée d'impulsion). La tendance générale observée est que, plus l'éclairement laser est important, plus le temps entre les deux résonances diminue ; ce phénomène traduit une augmentation de la dynamique d'ionisation lorsque l'éclairement laser augmente. Par ailleurs, l'état de charge moyen des ions à l'issue de l'interaction n'est pas très différent de celui obtenu dans un modèle d'ionisation par effet de champ :

- à un éclairement maximum de 5×10^{14} W/cm^2, l'état de charge moyen donné par le modèle nanoplasma est de l'ordre de 3,2 tandis que la formule ADK prévoit un état de charge moyen compris entre 2 et 3 pour un atome isolé ;
- à un éclairement maximum de 10^{17} W/cm^2, l'état de charge moyen donné par le modèle nanoplasma est de l'ordre de 8 tandis que la formule ADK prévoit un état de charge moyen compris entre 7 et 8 pour un atome isolé

Enfin, la température électronique est également du même ordre de grandeur que l'énergie pondéromotrice des électrons dans le champ laser :

- à un éclairement maximum de 5×10^{14} W/cm^2, la température maximale est de l'ordre de 15 eV tandis que $Up = 30$ eV à cet éclairement et pour $\lambda = 800$ nm ;
- à un éclairement maximum de 10^{17} W/cm^2, la température électronique maximale est de l'ordre de 10 keV tandis que $Up = 6$ keV à cet éclairement et pour $\lambda = 800$ nm.

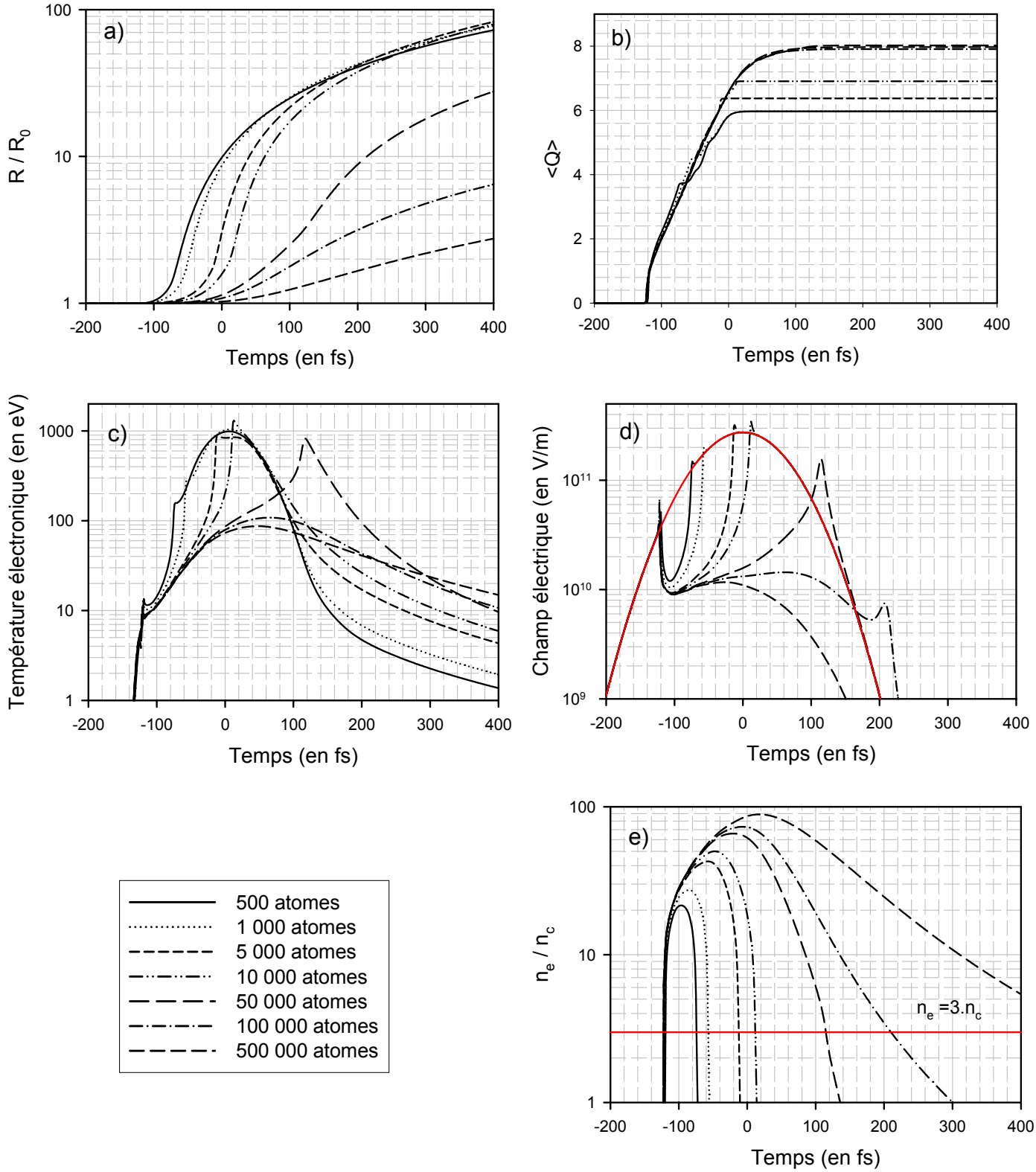


***Figure I-22 :** Évolutions temporelles a) du rayon de l'agrégat, b) de l'état de charge moyen, c) de la température électronique, d) du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat et e) de la densité électronique en fonction de la taille. Ces simulations ont été obtenues à l'aide du code nanoplasma de Toulouse (agrégat d'argon, $I = 10^{16}$ W/cm^2, $\tau = 100$ fs, $\lambda = 800$ nm).*

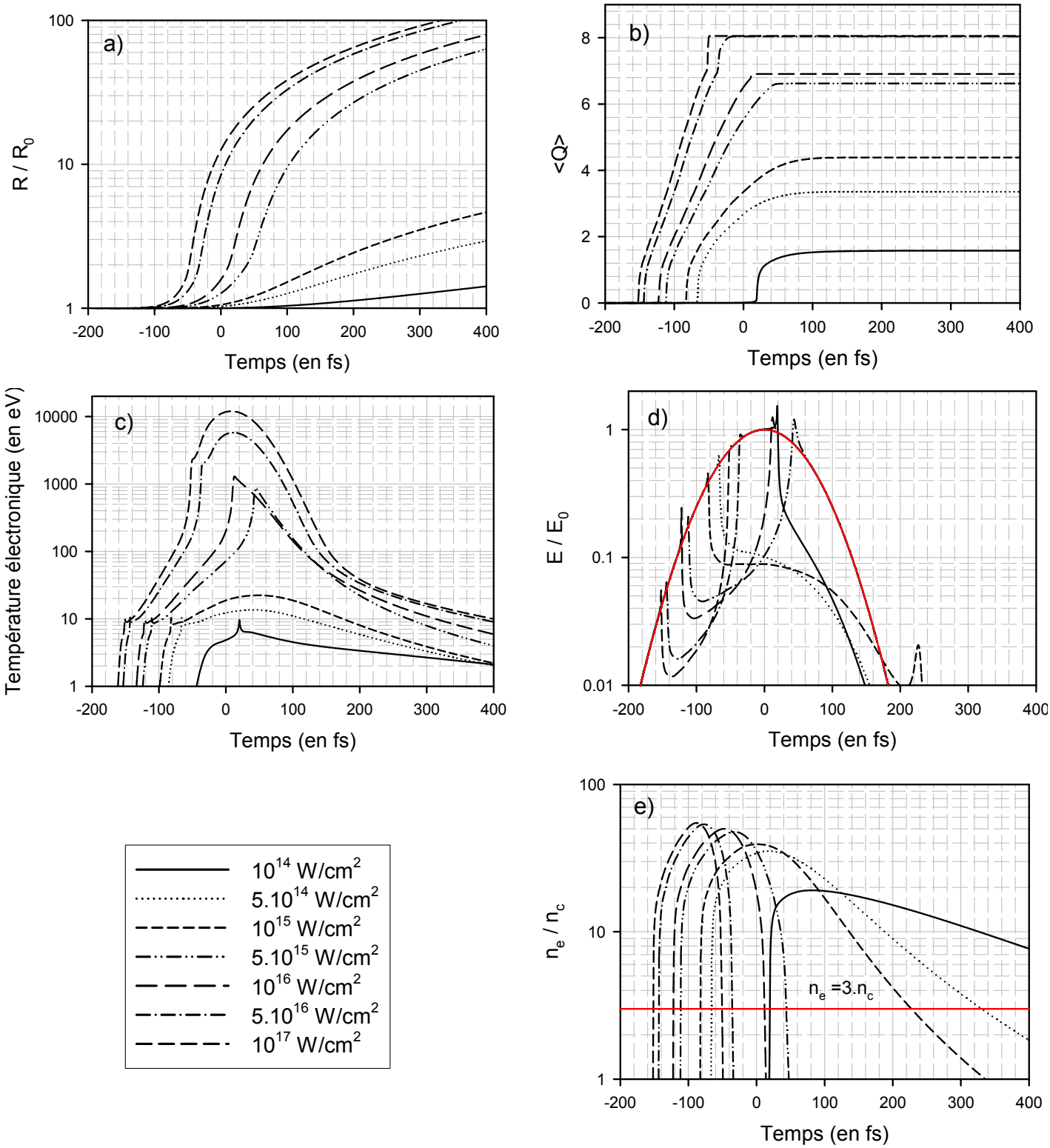


***Figure I-23 :** Évolutions temporelles a) du rayon de l'agrégat, b) de l'état de charge moyen, c), de la température électronique, d) du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat et e) de la densité électronique en fonction de l'éclairement. Ces simulation ont été obtenues à l'aide du code nanoplasma de Toulouse (agrégat d'argon, N = 10 000 atomes, τ = 100 fs et λ = 800 nm).*

C-2] Confrontation expériences – théories

Nous allons présenter dans ce paragraphe une revue des résultats expérimentaux les plus significatifs concernant, dans un premier temps, la production d'électrons (§I-C-2-a) puis l'émission d'ions (§I-C-2-b) lors de l'interaction d'un laser intense avec des agrégats de gaz rare. Dans chacun de ces paragraphes, nous discuterons ces travaux expérimentaux dans le cadre du modèle nanoplasma tel que nous venons de le présenter (§I-C-1) mais également à partir de résultats obtenus à l'aide de modèles de dynamique moléculaire complémentaires à l'approche théorique développée précédemment.

C-2-a) La spectroscopie d'électrons

La spectroscopie d'électrons est une méthode expérimentale qui apporte des informations importantes sur les **mécanismes d'ionisation** intervenant lors de l'interaction ainsi que sur la **dynamique de chauffage** des électrons à partir de l'étude de leur taux d'émission, de leur énergie cinétique et de leur distribution angulaire. Nous allons exposer successivement les distributions énergétiques et angulaires des électrons puis nous verrons l'évolution du taux d'électrons avec la durée d'impulsion.

1°) Distribution énergétique des électrons

1°-i) Confrontation des différents travaux expérimentaux

Ditmire *et al.* [Shao et al., 1996] ont mesuré, pour la première fois, la distribution énergétique des électrons (*cf.* *Figure I-24*) issus de l'irradiation d'agrégats de xénon (N~2 500 atomes) par une impulsion laser d'éclairement de 10^{16} W/cm^2 ($\lambda = 780$ nm, $\tau = 150$ fs).

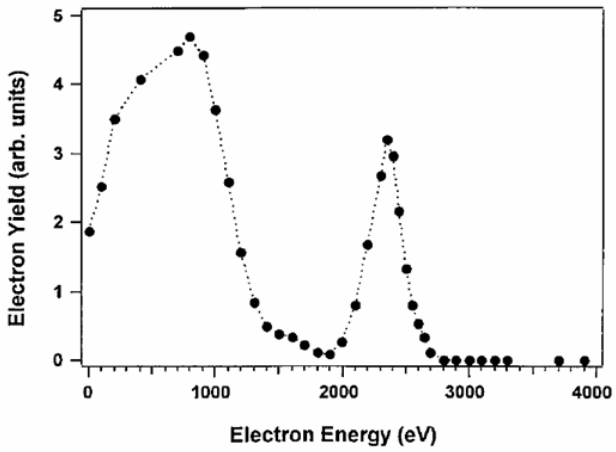


***Figure I-24 :** Distribution en énergie des électrons obtenue lors de l'irradiation d'agrégats de xénon (N ~ 2500 at./agrégat) par une impulsion laser d'intensité crête de 10^{16} W/cm^2 suivant la direction de polarisation du laser [Shao et al., 1996].*

Ce spectre en énergie présente clairement deux contributions distinctes :

- une distribution large, d'énergie comprise entre 0,1 *keV* et 2 *keV*, correspondant à des électrons qualifiés par les auteurs de "froids" (contribution basse énergie) ;
- et un pic étroit centré sur une énergie de 2,4 *keV* correspondant à des électrons qualifiés *a contrario* de "chauds" (contribution haute énergie).

Selon les auteurs, cette contribution haute énergie est spécifique des agrégats car le signal Rayleigh diffusé, caractéristique de la condensation des atomes, est corrélé avec l'intensité de ce pic d'électrons énergétiques (*cf.* *Figure I-25*).

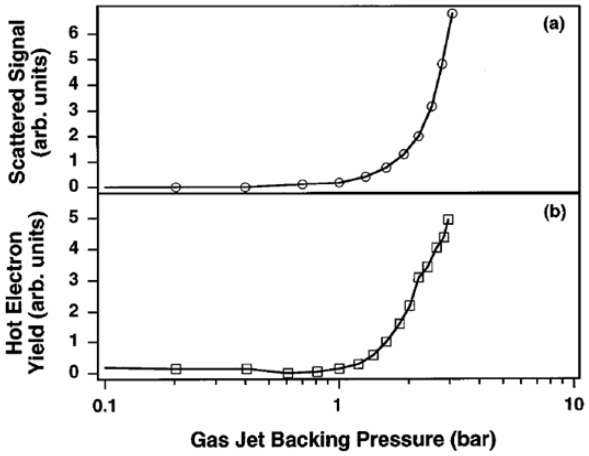


Figure I-25 : a) Signal Rayleigh diffusé en fonction de la pression amont de Xe b) Taux d'électrons énergétiques en fonction de la pression amont pour un éclairement de 10^{16} W/cm^2 [Shao et al., 1996].

D'une façon plus générale, la présence d'électrons énergétiques (K_e > 1 *keV*) est la signature d'un **effet agrégat** car des études expérimentales précédentes réalisées dans le cadre de l'interaction laser – atome ont montré qu'à un tel éclairement la majorité des électrons ont une énergie inférieure à 100 *eV*. Les énergies électroniques obtenues avec des agrégats se rapprochent des températures électroniques mesurées lors de l'interaction d'un laser de puissance avec des cibles solides renforçant ainsi l'idée que les agrégats ont un comportement proche d'une cible solide sous champ laser intense.

Des travaux expérimentaux très récents (2003) obtenus par Springate *et al.* ainsi que par Mathur *et al*. sont venus nuancer ces résultats de Ditmire *et al.* à propos, notamment, de la présence du pic d'électrons énergétiques. En effet, leurs résultats montrent qu'il n'est pas possible, dans leurs conditions expérimentales, de séparer, dans la distribution énergétique des électrons, une contribution **basse énergie et large** et une contribution **haute énergie et piquée** (*cf.* *Figure I-26*).

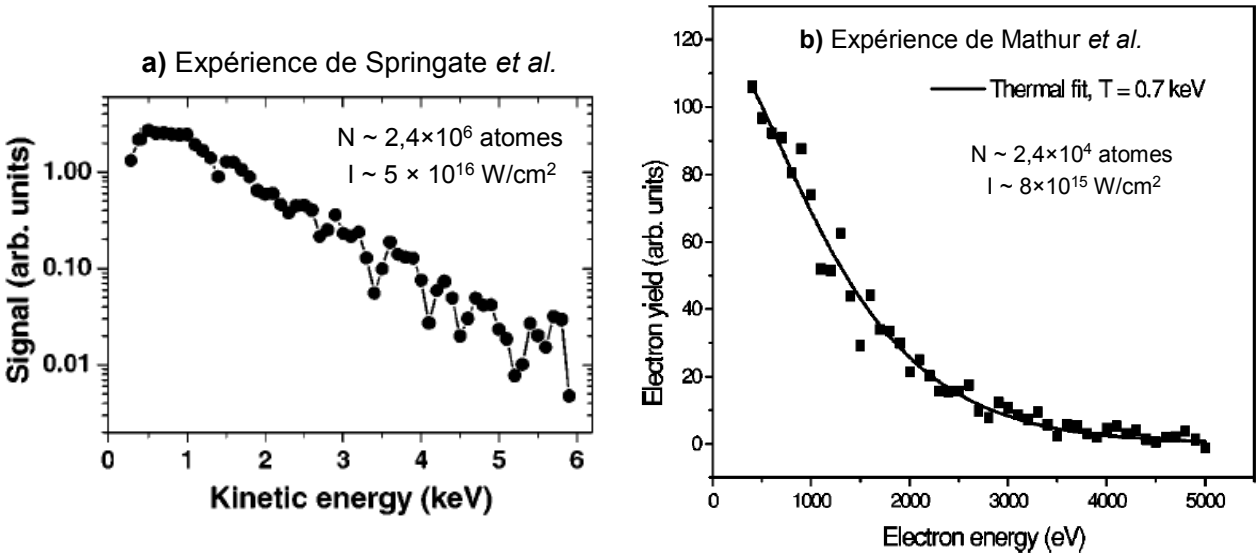


***Figure I-26 :** Spectres expérimentaux d'électrons issus d'agrégats de xénon : a) Expérience de Springate et al. [Springate et al., 2003] et b) Expérience de Mathur et al. [Kumarappan, Krishnamurthy & Mathur, 2003] (les différentes conditions expérimentales sont indiquées sur la figure).*

Plusieurs raisons peuvent être invoquées pour expliquer ces dissemblances :

- en premier lieu, la densité d'agrégats dans la zone d'interaction peut affecter les mesures expérimentales. En effet, dans le cas où la densité d'agrégats est trop importante, des effets de charge d'espace altèrent les mesures d'énergie voire même empêchent l'éjection de certains électrons. Cependant, ceci devrait se traduire par une augmentation de la contribution "haute énergie" par rapport à la contribution "basse énergie" et non par la disparition de ce pic d'électrons énergétiques. De plus, les trois travaux expérimentaux présentés ci – dessus ont, semble – t – il, travaillé dans des conditions de densité d'agrégats similaires.
- par contre, les tailles d'agrégats sont très différentes entre les expériences de Ditmire *et al.* d'une part (2 500 atomes) et celles de Springate *et al.* et Mathur *et al.* d'autre part (respectivement : $2{,}4\times10^6$ atomes et de $2{,}5\times10^4$ à $1{,}5\times10^5$ atomes). Il peut donc être envisagé que la proportion de ce pic d'électrons, jamais observé dans cette gamme de taille, par rapport à la distribution basse énergie, et s'étalant jusqu'à plusieurs *keV*, soit différente en fonction de la taille des agrégats.
- en dehors de problèmes expérimentaux spécifiques (comme la présence d'un piédestal sous l'impulsion ou bien d'un "chirp" résiduel), il existe un désaccord dans l'interprétation des traces de temps de vol permettant de reconstruire le spectre en énergie entre Ditmire et Springate – Mathur. Selon ces derniers, ce que Ditmire a interprété comme un pic d'électrons de 2,4 *keV* ne pourrait être, selon eux, que des photons et / ou des électrons beaucoup plus énergétiques ($K_e > 100$ *keV*).

1°-ii) Confrontation avec le modèle nanoplasma

Les deux distributions énergétiques observées par Ditmire *et al.* trouvent néanmoins une justification théorique dans le cadre du modèle nanoplasma. Ces simulations permettent de déterminer l'origine de chacune des distributions en séparant la contribution des électrons quittant l'agrégat **avant** et **après** la deuxième résonance. Pour commencer, la distribution large et "basse énergie" est attribuée au faible chauffage des électrons présents à proximité de la surface de l'agrégat et qui quittent le nanoplasma bien avant la deuxième résonance. Une fois que cette résonance se produit, les électrons encore présents au sein du nanoplasma sont fortement chauffés. Ces électrons énergétiques vont ensuite pouvoir quitter l'agrégat si leur énergie cinétique est suffisante pour franchir une barrière de surface rendue de plus en plus importante par le départ des premiers électrons : ceux – ci participent alors à la formation du pic d'électrons à haute énergie observé uniquement par Ditmire.

Comme l'illustre la *Figure I-27-a*, le spectre d'électrons simulé à l'aide du code nanoplasma de Toulouse dans des conditions identiques aux expériences de Ditmire *et al.* est en bon accord avec la distribution énergétique expérimentale présentée précédemment (*cf. Figure I-24*). En particulier, le pic d'électrons dans le spectre simulé est à la même énergie que sur le spectre expérimental (2,4 *keV*) tout comme le maximum de la distribution "basse énergie" (~ 1 *keV*). Il est à noter qu'en présence uniquement des collisions électrons – ions (*cf. Figure I-27-b*), l'allure générale du spectre simulé à l'aide de ce code est notablement différente tant en ce qui concerne l'intensité relative des différentes contributions que la position en énergie du pic d'électrons énergétiques.

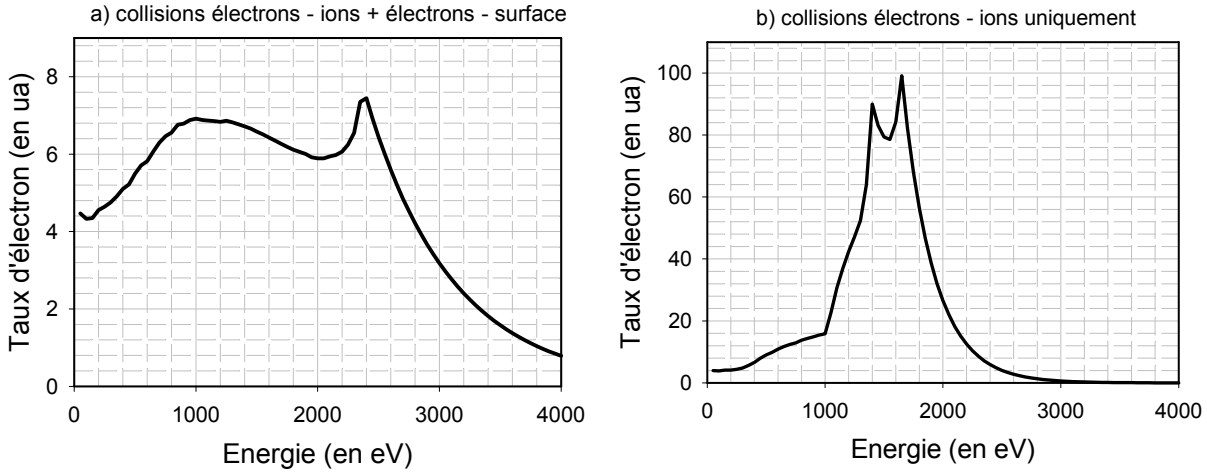


***Figure I-27 :** Simulations des spectres en énergie des électrons obtenues à l'aide du code nanoplasma de Toulouse dans les mêmes conditions expérimentales que la Figure I-24. Il est présenté le cas (a) avec des collisions électrons – ions et électrons – surface et (b) avec des collisions électrons – ions uniquement.*

Enfin, en comparant les spectres de la *Figure I-27-a* et de la *Figure I-28*, nous remarquons que le spectre théorique publié par Ditmire *et al.* a la même allure générale que celui obtenu avec un code incluant les collisions électrons – surface, ce qui est très surprenant car les auteurs n'y ont jamais fait référence.

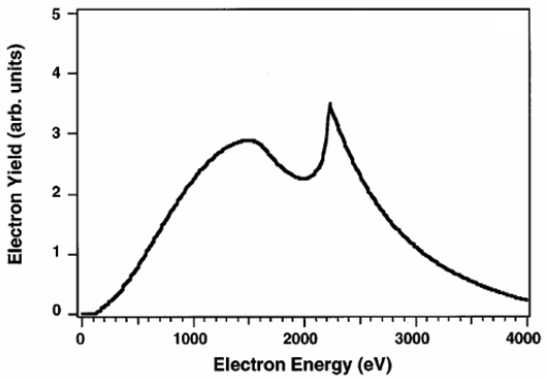


Figure I-28 : Spectre d'électrons simulé par le code nanoplasma de Ditmire dans des conditions expérimentales identiques à la Figure I-24 [Shao et al., 1996].

De façon à éclaircir la comparaison faite entre les différentes données expérimentales, nous avons examiné l'effet de la taille et de l'éclairement sur la position du pic d'électrons énergétiques illustré *Figure I-29*. En se basant initialement sur les conditions expérimentales de Ditmire (N = 2 500 atomes et $I = 10^{16}$ *W/cm*^{2}), les tendances observées sont les suivantes :

- lorsque la taille est divisée par deux (N = 1 250 atomes et $I = 10^{16}$ *W/cm*^{2}), le pic d'électrons se déplace de 2,4 *keV* à 1,4 *keV* ;
- lorsque l'éclairement est augmenté d'un ordre de grandeur (N = 2 500 atomes et $I = 10^{17}$ *W/cm*^{2}), le pic d'électrons se déplace de 2,4 *keV* à 2,9 *keV*.

Dans le cadre du modèle nanoplasma, la position de cette contribution haute énergie dépend donc fortement des conditions expérimentales.

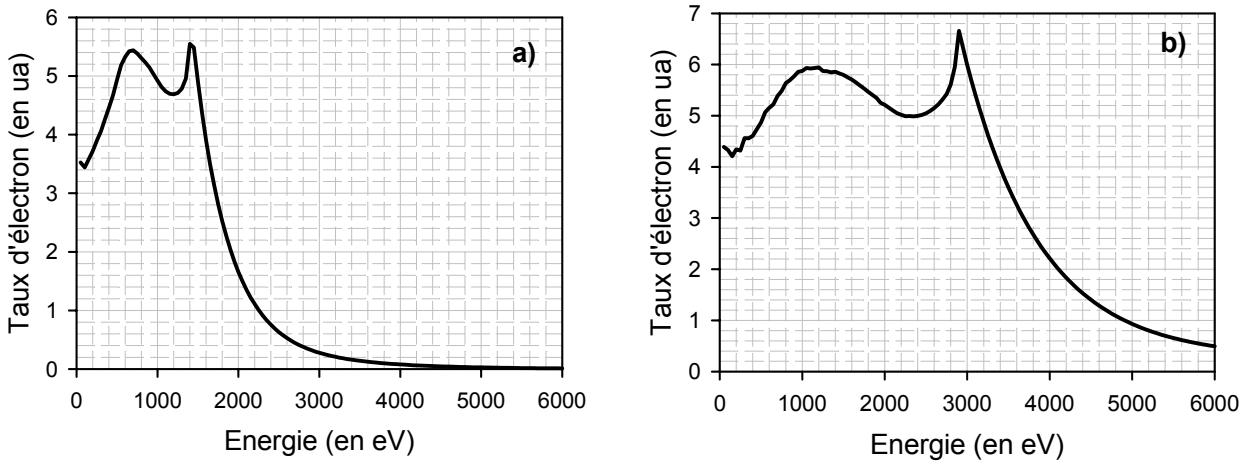


Figure I-29 : Spectres en énergie des électrons obtenus par le code nanoplasma de Toulouse pour des agrégats de xénon. Les conditions de simulations sont identiques à celles de la Figure I-24 sauf pour a) la taille est divisée par 2 (N = 1 250 atomes) et b) l'intensité est augmentée d'un ordre de grandeur ($I = 10^{17}$ W/cm^2).

Ceci est *a fortiori* valable lorsque l'on reprend les conditions expérimentales de Springate et de Mathur. Les simulations présentées sur la *Figure I-30* et réalisées à l'aide du code nanoplasma de Toulouse reprennent leurs conditions expérimentales, ce qui permet de les comparer directement avec les spectres expérimentaux de la *Figure I-26*. Ces simulations présentent une contribution haute énergie très importante à une énergie supérieure au *keV* ce que Springate et Mathur n'observent pas. Hormis un artefact expérimental ou bien une erreur d'interprétation dans les données expérimentales comme nous l'avons précisé ci – dessus, nous pouvons donc nous interroger sur la validité du code nanoplasma pour de telles tailles d'agrégat (> 10^4 atomes).

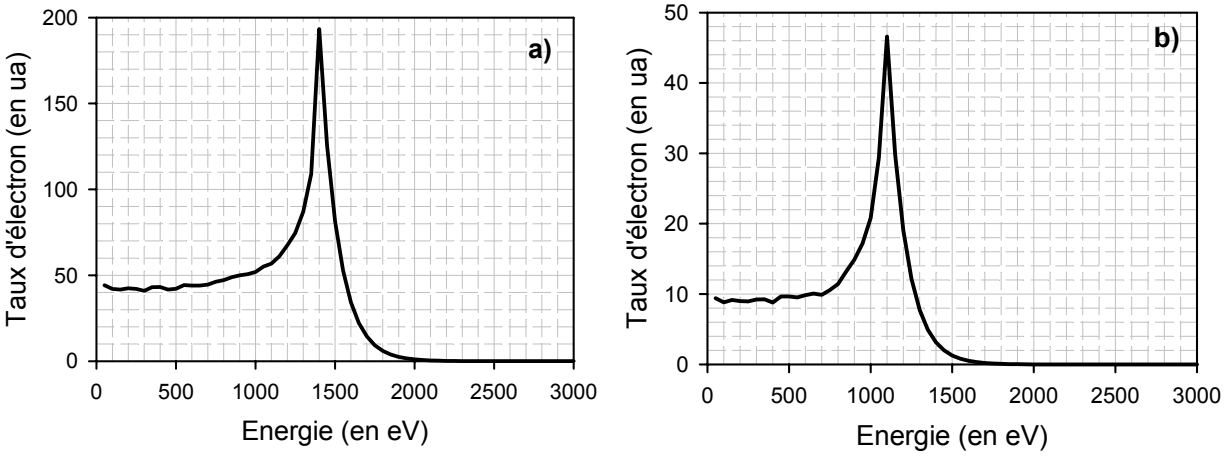


Figure I-30 : Simulations des spectres en énergie des électrons obtenues par le code nanoplasma de Toulouse pour des agrégats de xénon dans des conditions expérimentales identiques aux Figures I-26 : a) N = 2,4×10^6 atomes et I = 5×10^16 W/cm^2 et b) N = 2,5×10^4 atomes et I = 8×10^15 W/cm^2 (λ = 780 nm).

2°) Distribution angulaire des électrons

2°-i) Confrontation des différents travaux expérimentaux

Les distributions angulaires associées aux deux types de contribution dans le spectre en énergie ("chaude" et "froide") ont également été étudiées par Ditmire *et al*. Comme l'illustre la *Figure I-31*, l'émission des électrons les plus énergétiques (K_e > 2 *keV*) est isotrope, tandis que l'émission des électrons les moins énergétiques (K_e < 1 *keV*) est piquée suivant la direction de polarisation du laser avec une largeur à mi – hauteur de l'ordre de 60°. Des études expérimentales précédentes, réalisées dans le domaine de l'interaction laser – atome, ont montré que les électrons libérés par effet de champ ont une distribution angulaire avec une largeur de l'ordre de 15° à 30° [Humpert et al., 1985], dépendant de l'état final de l'ion et centrée suivant la direction de polarisation du laser. Les électrons les moins énergétiques obtenus en laser – agrégats ont une distribution angulaire similaire mais plus large. Selon Ditmire *et al.*, cet élargissement est attribué aux collisions que les électrons ont

subies avec les ions avant d'être éjectés de l'agrégat. Quand aux électrons les plus énergétiques, ils résultent d'un long chauffage au sein de l'agrégat subissant un grand nombre de collisions ; ceci rendrait leur distribution de vitesse complètement aléatoire. Ils perdraient ainsi la mémoire de l'ionisation initiale et leur émission serait complètement isotrope.

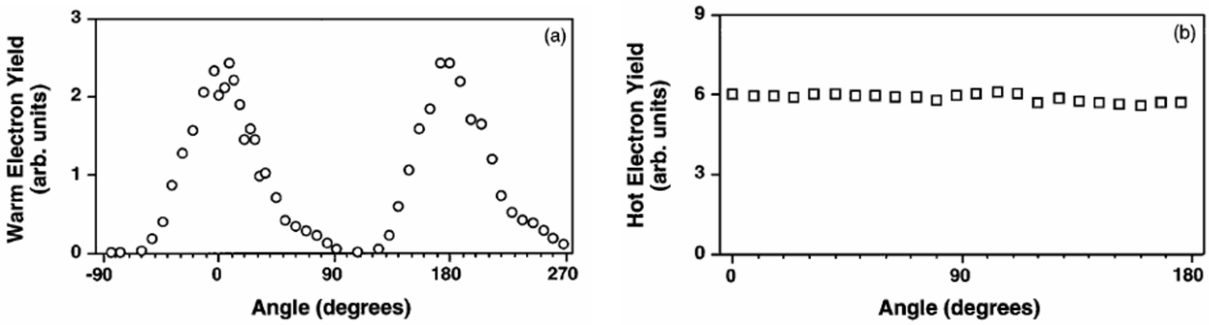


***Figure I-31 :** Distribution angulaire a) des électrons les moins énergétiques (entre 0,3 keV et 1 keV) et b) des électrons les plus énergétiques (entre 2 et 3 keV). L'émission suivant la direction de polarisation du laser est définie par les angles 0° et 180° [Shao et al., 1996].*

Ce résultat a été confirmé, du moins en partie, par Springate *et al*. qui observent en effet que l'ensemble de la contribution basse énergie présente une émission anisotrope avec une largeur à mi – hauteur de l'ordre de 40° (*cf.* *Figure I-32*). L'autre contribution aux spectres de temps de vol, sujet à différentes interprétations entre Springate (qui l'attribue à des photons) et Ditmire (qui l'attribue à un pic d'électrons) comme nous l'avons vu précédemment, présente elle une distribution isotrope (*cf.* *Figure I-31*).

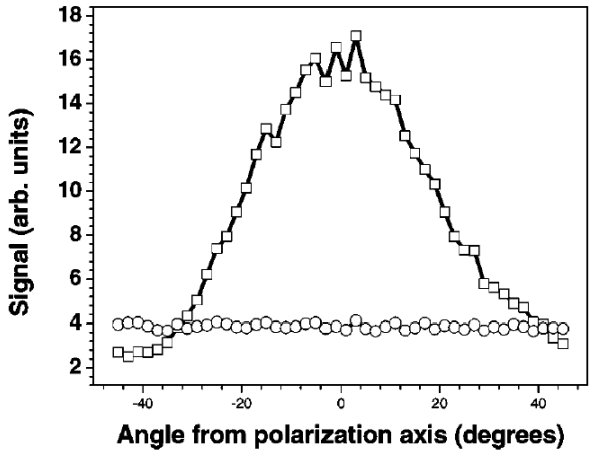


***Figure I-32 :** Distribution angulaire du pic photonique (cercle) et du pic correspondant aux électrons (carré) [Springate et al., 2003].*

Pour Mathur *et al.*, le taux d'électrons de basse énergie émis à 90° par rapport à la polarisation du laser n'est pas nul contrairement aux mesures de Ditmire et de Springate. Ces auteurs se sont intéressés également à l'étude de l'évolution de la distribution en énergie en fonction de l'angle d'émission. Ils observent ainsi que les températures électroniques associées aux électrons éjectés perpendiculairement sont plus faibles que celles associées aux électrons émis parallèlement à l'axe de polarisation (*cf.* *Figure I-33*)

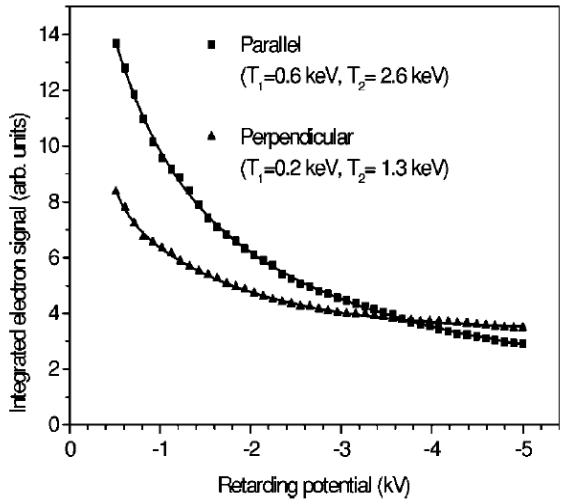


***Figure I-33 :** Taux d'électrons en fonction du potentiel retardeur de l'analyseur en énergie pour des agrégats de xénon contenant $1{,}5\times10^{5}$ atomes. L'intensité laser est de 8×10^{15} W/cm^2. Les mesures sont faites pour une direction parallèle et perpendiculaire au vecteur polarisation du laser (pour la direction perpendiculaire, le taux est ici multiplié par 2) [Kumarappan et al., 2003].*

2°-ii) Effet lié à la polarisation de surface

Afin d'expliquer l'émission électronique anisotrope ainsi que les différentes distributions énergétiques obtenues en fonction de l'angle d'émission, Mathur propose d'introduire, en plus de la pression coulombienne et de la pression hydrodynamique, une pression liée à la polarisation de la surface de l'agrégat. Cette polarisation de surface abaisserait la barrière coulombienne de surface d'une manière asymétrique obligeant ainsi une description bi – dimensionnelle de l'expansion de l'agrégat. Cette implémentation dans le modèle nanoplasma permettrait alors de prédire les distributions angulaires.

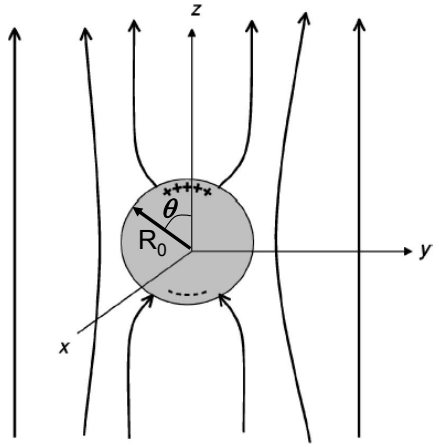


***Figure I-34 :** Représentation schématique de la polarisation d'une sphère diélectrique sous l'action d'un champ électrique extérieur lui – même modifié par cette polarisation.*

Dans sa version standard, le modèle nanoplasma considère l'augmentation importante du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat comme le résultat de la polarisation du milieu sous l'influence du champ électrique incident mais ne tient pas compte de la distribution surfacique de charge due à cette polarisation (*cf. Figure I-34*). En tenant compte de la polarisation du milieu et dans le cas d'une sphère diélectrique placée dans un champ électrique extérieur de la forme $E(t) = E_0 \cdot \cos(\omega \cdot t)$, les expressions pour le champ

électrique à l'intérieur de la sphère et à proximité de cette dernière sont données par [Jackson, 2001] :

$$\overline{E}_{\text{int}}(r) = \frac{3}{\overline{\varepsilon} + 2} \cdot E_0 \cdot \cos(\omega \cdot t) \cdot \cos\theta \qquad \textbf{[I-C.44]}$$

$$\overline{E}_{ext}(r) = \frac{2R_0^3}{r^3} \cdot \left(\frac{\overline{\varepsilon} - 1}{\overline{\varepsilon} + 2} + 1 \right) \cdot E_0 \cdot \cos(\omega \cdot t) \cdot \cos\theta \qquad \textbf{[I-C.45]}$$

Il en résulte alors une polarisation de la surface, dont la densité surfacique de charge de polarisation est donnée par :

$$\left| \overline{\sigma}_{pol} \right| = 3 \cdot \varepsilon_0 \cdot \left| \frac{\overline{\varepsilon} - 1}{\overline{\varepsilon} + 2} \right| \times \cos\theta \cdot E_0 \cdot \cos(\omega \cdot t) \qquad \textbf{[I-C.46]}$$

La pression de polarisation, moyennée sur un cycle optique, est alors :

$$< P_{pol} >_{cycle\ opt.} = \frac{\varepsilon_0}{4} \cdot \left| \overline{\varepsilon} - 1 \right|^2 \cdot \left| \overline{E}_{\text{int}} \right|^2 \qquad \textbf{[I-C.47]}$$

Mathur *et al.* ont calculé, qu'à la résonance, cette pression de polarisation contribue notablement à la dynamique du nanoplasma. Celle – ci est en effet du même ordre de grandeur que les deux autres (hydrodynamique et coulombienne) : $\sim 10^{11}\ N.m^{-2}$ pour un agrégat de xénon de 100 *Å* de rayon et soumis à un éclairement de $10^{15}\ W/cm^2$. A partir de la constante diélectrique complexe réduite $\overline{\varepsilon}$ et du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat calculés par le code nanoplasma de Toulouse, nous avons donc **estimé** la valeur de cette pression de polarisation au cours de la dynamique de l'agrégat. Le modèle nanoplasma étant un modèle self consistant, il faudrait, en toute rigueur, inclure cette pression de polarisation afin de donner un véritable profil temporel de son évolution. Cependant, cette démarche permet, dans une première étape, d'en évaluer l'importance relative lors de la dynamique de l'agrégat. D'après la *Figure I-35*, nous voyons que cette pression de polarisation est effectivement du même ordre de grandeur que les deux autres (coulombienne et hydrodynamique) entre les deux résonances du nanoplasma avec l'onde laser. Cette pression de polarisation peut donc effectivement contribuer à la dynamique d'évolution de l'agrégat. Néanmoins, au moment de l'explosion de l'agrégat, *i.e.* une fois la deuxième résonance passée, cette pression de polarisation est inférieure de plusieurs ordres de grandeurs à la pression dominante (coulombienne ou hydrodynamique suivant la taille de l'agrégat). Cette nouvelle pression n'influerait donc pas sur l'explosion de l'agrégat.

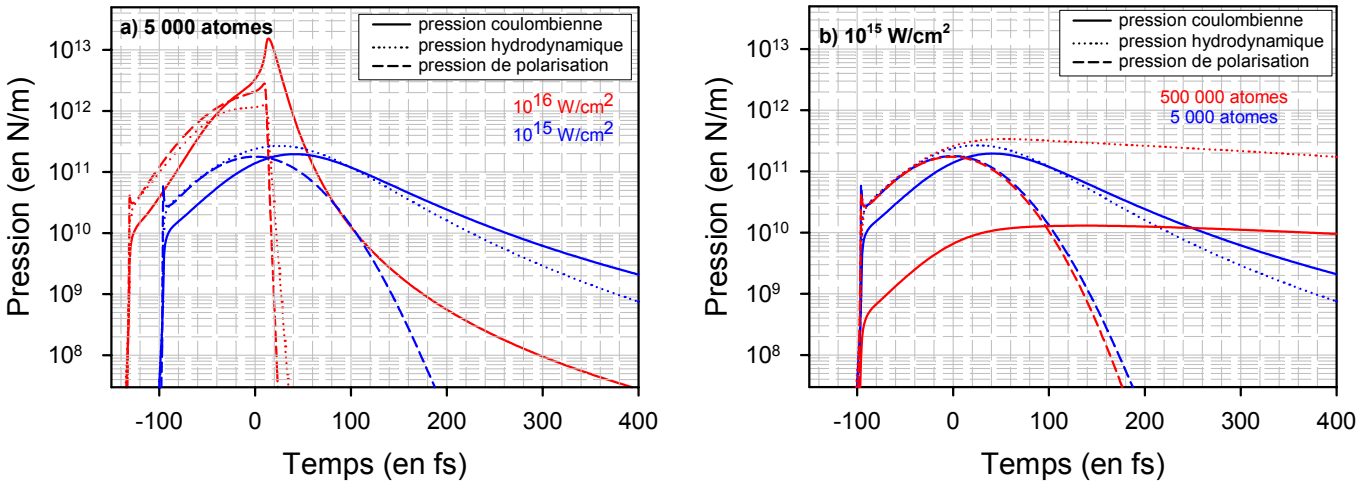


***Figure I-35 :** Simulation de l'évolution temporelle de la pression coulombienne (courbe en traits pleins), de la pression hydrodynamique (courbe en pointillés) et de la pression de polarisation (courbe en tirets) lors de l'irradiation d'agrégats de xénon soumis à une impulsion laser de 100 fs pour a) différentes tailles d'agrégat et b) différents éclairements. Simulations réalisées à l'aide du code nanoplasma de Toulouse.*

3°) Evolution de l'émission électronique avec la durée d'impulsion

Enfin, la variation du taux d'électrons avec la durée d'impulsion a également été étudiée par Springate *et al.* [Springate et al., 2003] (*cf.* *Figure I-36-a*) ainsi que par Mathur *et al.* [Kumarappan et al., 2003] (*cf.* *Figure I-36-b*).

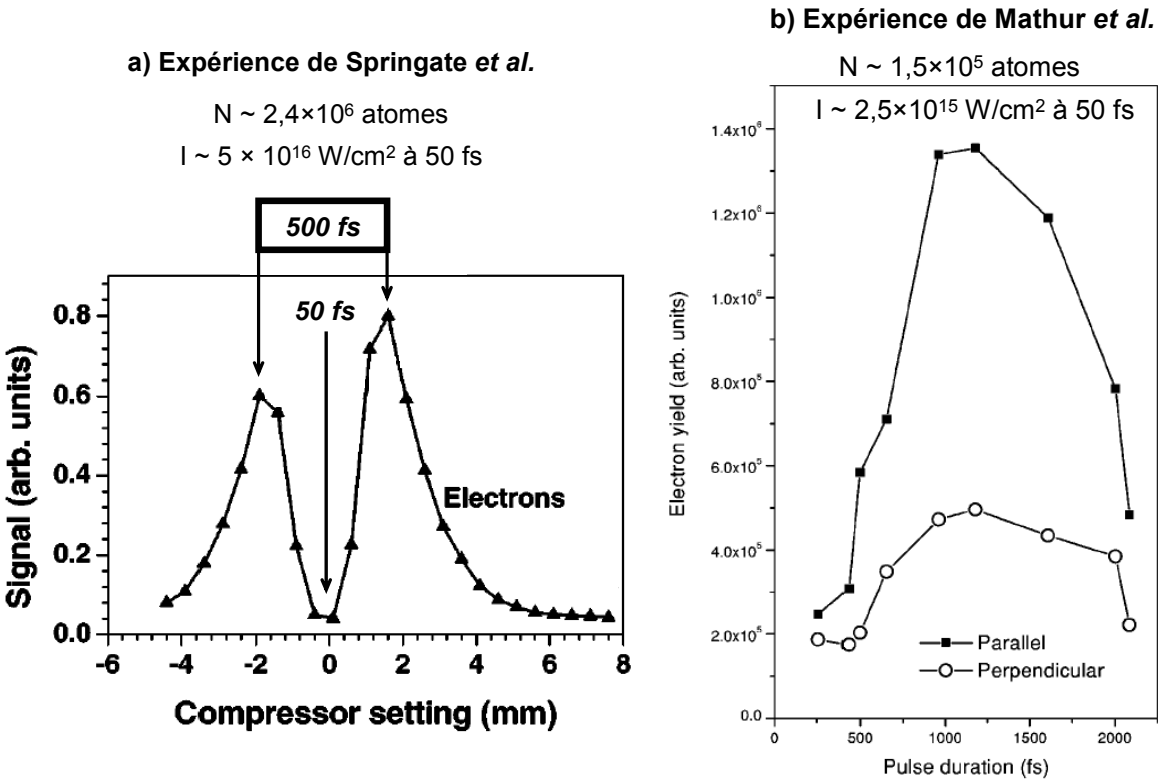


***Figure I-36 :** Évolution du taux d'électrons en fonction de la durée d'impulsion pour des agrégats de xénon a) expérience de Springate [Springate et al., 2003] et b) expérience de Mathur [Kumarappan et al., 2003].*

Ces deux équipes observent, pour une énergie par impulsion donnée, la présence d'un optimum dans le taux d'émission électronique en fonction de la durée d'impulsion. Mathur observe, en outre, une augmentation de l'anisotropie de l'émission électronique à proximité de cette durée optimale qui s'expliquerait selon lui par l'ajout de la pression de polarisation dans le modèle nanoplasma telle que nous l'avons vu précédemment (§I-C-2-a-2-ii). Le modèle nanoplasma explique cette durée optimale par une modification de l'absorption de l'énergie laser lorsque la durée d'impulsion change. Ainsi, quand la durée d'impulsion est trop courte, l'agrégat n'a pas le temps d'absorber significativement l'énergie de l'onde laser et peu d'électrons peuvent quitter l'agrégat pendant l'interaction car ils ne sont pas assez énergétiques. De même, quand la durée d'impulsion est trop longue, l'agrégat explose avant l'éclairement crête, ce qui ne permet pas un transfert significatif d'énergie de l'onde laser vers les électrons de l'agrégat. Il existe donc une durée caractéristique (ou optimale) pour laquelle le couplage entre l'onde laser et l'agrégat est optimum : plus d'électrons acquièrent l'énergie suffisante pour quitter l'agrégat.

4°) Bilan sur la spectroscopie d'électrons

L'ensemble des études expérimentales présentées ci – dessus s'accorde sur la présence d'une large distribution énergétique d'électrons à laquelle il est possible d'associer une température électronique inférieure au *keV* pour un éclairement proche de 10^{16} W/cm^2. Le modèle nanoplasma prévoit l'existence d'une telle contribution dans les spectres en énergie et l'attribue aux électrons ayant quitté l'agrégat avant la deuxième résonance. Les résultats expérimentaux montrent également que cette large distribution énergétique a une émission anisotrope piquée suivant la direction de polarisation du laser. Selon Mathur, cette anisotropie peut s'interpréter comme étant due à une polarisation de la surface de l'agrégat. Par contre, des différences majeures existent à propos de l'existence du pic d'électrons énergétiques (2,4 *keV*) observé par Ditmire (et prédit dans le cadre du modèle nanoplasma) qui l'attribue à la deuxième résonance de l'onde laser avec le nanoplasma. Nous avons vu que les conditions expérimentales de Springate et de Mathur sont très différentes de celles de Ditmire, notamment en ce qui concerne la taille des agrégats. On peut d'ailleurs se demander si l'accord expérience – modèle dans les conditions expérimentales utilisées par Ditmire n'est pas purement fortuit. De plus, il existe un désaccord dans l'interprétation des données expérimentales entre ces différents auteurs conduisant à la présence ou non du pic d'électrons énergétiques. Soulignons qu'il est également possible que le pic d'électrons observé par Ditmire à 2,4 *keV* soit en réalité associé à des électrons Auger. En effet, comme nous l'avons

signalé au début de ce chapitre (§I-A-1), les agrégats de xénon, soumis à un champ laser intense, émettent des X_L qui sont clairement identifiés comme étant issus d'ions fortement multichargés présentant une (ou plusieurs) lacunes en couche *2p*. Ces X_L s'accompagnent de l'émission d'électrons Auger du type LMM ayant une énergie comprise typiquement entre 1,6 *keV* pour du Xe^{44+} [DeWitt et al., 1992] et 3,2 *keV* pour du xénon neutre. Cette possibilité est renforcée par le fait que l'émission Auger devrait être isotrope, tout comme le pic observé par Ditmire, dans la mesure où les transitions X correspondantes (§I-D) ne sont pas polarisées. Des expériences complémentaires sont donc nécessaires pour confirmer ou non la présence de ce pic d'électrons. En particulier, des expériences en coïncidence électrons – X doivent être menées afin d'évaluer la contribution réelle de ces électrons Auger dans les spectres d'électrons.

La spectroscopie d'électrons est une méthode expérimentale sensible à la fois aux processus d'ionisation **et** de chauffage **mais également** à l'explosion de l'agrégat. Il est en effet difficile d'extraire de ces spectres d'électrons, larges et pouvant s'étaler jusqu'à plusieurs *keV*, la contribution des différents processus (ionisation – recombinaison – chauffage – explosion) et ces mesures ne permettent donc pas de remonter à la distribution énergétique des électrons présents à l'intérieur de l'agrégat pendant l'interaction. Par exemple, les derniers résultats expérimentaux dans ce domaine (Mathur *et al.* et Springate *et al.*) ne déterminent qu'une **température électronique moyenne** liée à toute la dynamique de l'agrégat.

C-2-b) La spectroscopie d'ions

En parallèle aux études de spectroscopie d'électrons, un certain nombre d'expériences ont été dédiées à la spectroscopie d'ions visant à déterminer à la fois l'énergie des ions émis lors de l'interaction, les distributions en état de charge de ces ions mais également la corrélation entre ces deux grandeurs physiques. Nous allons tout d'abord présenter l'évolution de l'énergie maximale des ions éjectés en fonction de certains paramètres physiques gouvernant l'interaction : la taille des agrégats et l'éclairement laser. Nous verrons ensuite les résultats concernant l'explosion anisotrope des agrégats sous champ laser intense que nous comparerons avec des simulations de dynamique moléculaire. Et, enfin, nous examinerons le type d'explosion auquel est soumis l'agrégat : coulombien et / ou hydrodynamique.

1°) Évolution de l'énergie maximale des ions

Les résultats expérimentaux exposés ci – dessous sont issus de l'équipe de Ditmire de l'Imperial College de Londres qui sont, à l'heure actuelle, les seuls résultats systématiques

réalisés dans le domaine de la spectroscopie d'ions. Ces résultats ont été initialement comparés avec des simulations issues du code nanoplasma standard et qui ne prend en compte, *a priori*, que les collisions électrons – ions pour la fréquence électronique de collision.

1°-i) Influence de la taille des agrégats

L'étude de la variation de **l'énergie maximale** des ions issus de l'irradiation d'agrégats de xénon contenant de 200 à 74 000 atomes par une impulsion laser d'éclairement crête de l'ordre de 3×10^{15} *W/cm*^{2} est présentée sur la *Figure I-37* [Springate et al., 2000]. La variation de l'énergie maximale prédite par le modèle nanoplasma et présentée sur cette même figure est *qualitativement* en accord avec les mesures expérimentales. En particulier, les simulations numériques prédisent l'existence d'un optimum dans l'énergie maximale des ions avec la taille des agrégats et qui se situe approximativement vers 20 000 atomes par agrégat tout comme les résultats expérimentaux. Dans ce modèle, les petits agrégats se dilatent rapidement et atteignent la seconde résonance avant l'éclairement crête tandis que les gros agrégats ont une densité électronique favorable pour la deuxième résonance bien après l'éclairement maximum. Il existe donc une taille d'agrégat optimale pour laquelle cette seconde résonance se produit au moment même où l'impulsion laser atteint son éclairement crête comme nous l'avons déjà vu au paragraphe I-C-1-d.

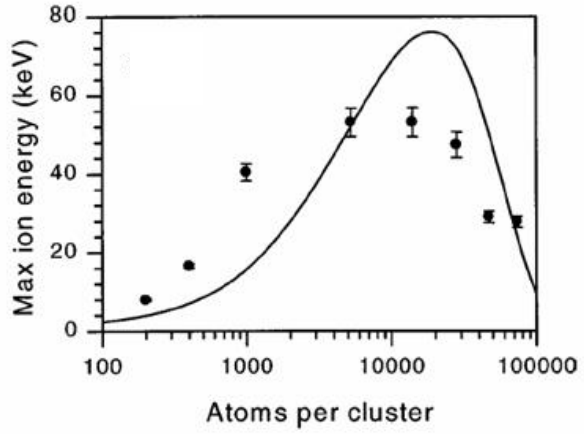


***Figure I-37 :** Énergie maximale des ions issus de l'irradiation d'agrégats de xénon par une impulsion laser femtoseconde (λ = 780 nm, τ = 230 fs, $I \sim 3\times10^{15}$ W/cm^2); les points indiquent les valeurs expérimentales tandis que la courbe en trait plein correspond aux prévisions du modèle nanoplasma de Ditmire [Springate et al., 2000].*

Nous avons calculé, à l'aide du code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface, **l'énergie moyenne** des ions après l'interaction, donnée par l'expression :

$$\left\langle E_c^{ions} \right\rangle = \frac{3}{10} \cdot \frac{m_i}{1+\langle Q \rangle} \cdot \left(\left. \frac{dR}{dt} \right|_\infty \right)^2 \qquad \textbf{[I-C.48]}$$

avec $m_i = 2{,}18.10^{-25}\,kg$ la masse des ions de xénon, $\langle Q \rangle$ et $\left(\left. \frac{dR}{dt} \right|_{\infty} \right)$ respectivement la charge moyenne des ions et la vitesse d'expansion de l'agrégat. Comme nous l'illustrons sur la *Figure I-38*, le comportement de **l'énergie moyenne** des ions à la fin de l'interaction en fonction de la taille des agrégats présente une **évolution similaire** à la simulation présentée sur la *Figure I-37* et qui concerne **l'énergie maximale** des ions.

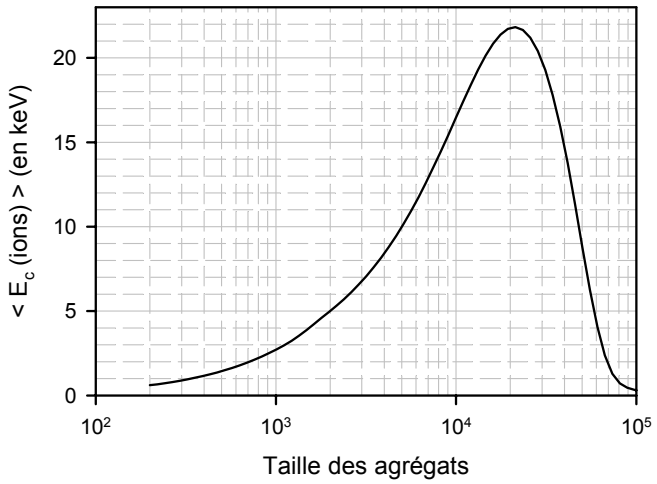


Figure I-38 : Évolution de l'énergie cinétique moyenne des ions résultant de l'interaction d'agrégats de xénon avec une impulsion laser ($I = 3\times10^{15}$ W/cm^2, $\tau = 230$ fs, $\lambda = 780$ nm) en fonction du nombre d'atomes par agrégat. Cette simulation est issue du code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface. Les conditions de simulation sont identiques à celles de la Figure I-37.

L'ajout des collisions électrons – surface ne semblerait donc pas jouer de rôle sur la présence de cet optimum qui se situe également à une taille proche de 20 000 atomes par agrégat. Récemment de nouvelles simulations ont été réalisées par l'Imperial College en incluant une distribution en taille d'agrégats dans la zone d'interaction. Ceci induit alors un élargissement de la courbe théorique reproduisant mieux les données expérimentales.

1°-ii) Influence de l'éclairement laser

L'évolution de l'énergie maximale des ions avec l'intensité laser pour des agrégats de krypton (N = 6 200 atomes) et de xénon (N = 5 300 atomes) est présentée sur la *Figure I-39*. Pour ces deux espèces atomiques, l'énergie maximale des ions suit un comportement assez similaire en fonction de l'éclairement laser malgré une grande dispersion des mesures expérimentales. Il est également reporté sur cette même figure les prévisions du modèle nanoplasma.

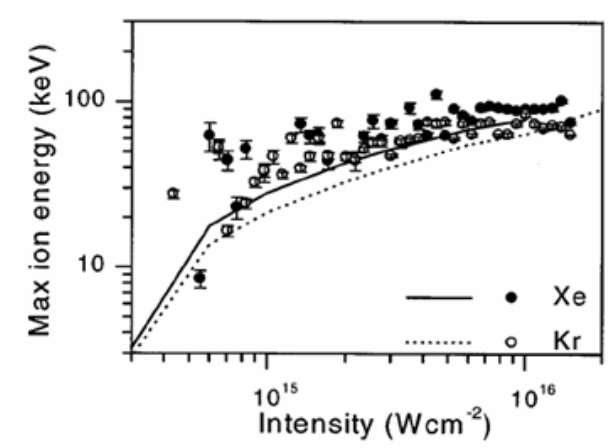


Figure I-39 : Énergie maximale des ions issus de l'irradiation d'agrégats de xénon et de krypton avec une impulsion laser en fonction de l'éclairement laser (λ = 780 nm, τ = 230 fs); les points représentent les valeurs mesurées tandis que les courbes correspondent aux prévisions du modèle nanoplasma [Springate et al., 2000].

L'hypothèse avancée par Ditmire *et al.* pour expliquer ces différences de comportement théorique avec l'éclairement laser repose sur une compétition entre les mécanismes suivants :

- **le chauffage des ions par les électrons** *via* de nombreuses collisions électrons – ions élastiques qui domineraient à faible éclairement : le champ électrique n'est pas assez intense pour accélérer les électrons à des énergies suffisantes pour qu'ils puissent ensuite ioniser lors des collisions électrons – ions. La majeure partie de l'énergie des électrons est alors entièrement transférée aux ions.
- **le mécanisme d'ionisation par collisions électrons – ions inélastiques** qui dominerait à grand éclairement : le champ électrique devient assez intense pour accélérer suffisamment les électrons et, cette fois – ci, la majeure partie de l'énergie des électrons sert à ioniser les ions.

Nous présentons sur la *Figure I-40* l'évolution de l'énergie moyenne et de l'état de charge moyen des ions en fonction de l'éclairement laser obtenue par le code nanoplasma de Toulouse. Au regard de ces simulations, nous pensons qu'il s'agit plutôt de la répulsion coulombienne des ions présents au sein du nanoplasma qui expliquerait le comportement de l'énergie cinétique des ions avec l'éclairement laser. En effet, l'énergie coulombienne de répulsion électrostatique, corrélée à l'énergie cinétique acquise par les ions lors de l'explosion de l'agrégat, suit la loi suivante :

$$< E_{coulombienne} > \propto < Q >^2 \quad \text{soit} \quad \frac{d < E_{coulombienne} >}{dI} \propto < Q > \cdot \frac{d < Q >}{dI} \qquad \textbf{[I-C.49]}$$

Ainsi, en nous basant sur la *Figure I-40-b*, nous pouvons en déduire les comportements suivants :

- à faible éclairement :

$$\frac{d < Q >}{dI} \text{ est } \textbf{important} \Rightarrow \frac{dE_{coulombienne}}{dI} \textbf{ important} \text{ (d'après l'équation [I-C.49])}$$

L'énergie cinétique des ions augmente alors **rapidement** avec l'éclairement comme on l'observe sur la *Figure I-40-a*.

- à grand éclairement :

$$\frac{d < Q >}{dI} \text{ est } \textbf{faible} \Rightarrow \frac{dE_{coulombienne}}{dI} \textbf{ faible} \text{ (d'après l'équation [I-C.49])}$$

L'énergie cinétique des ions augmente alors **lentement** avec l'éclairement comme cela est également observé sur la *Figure I-40-a*.

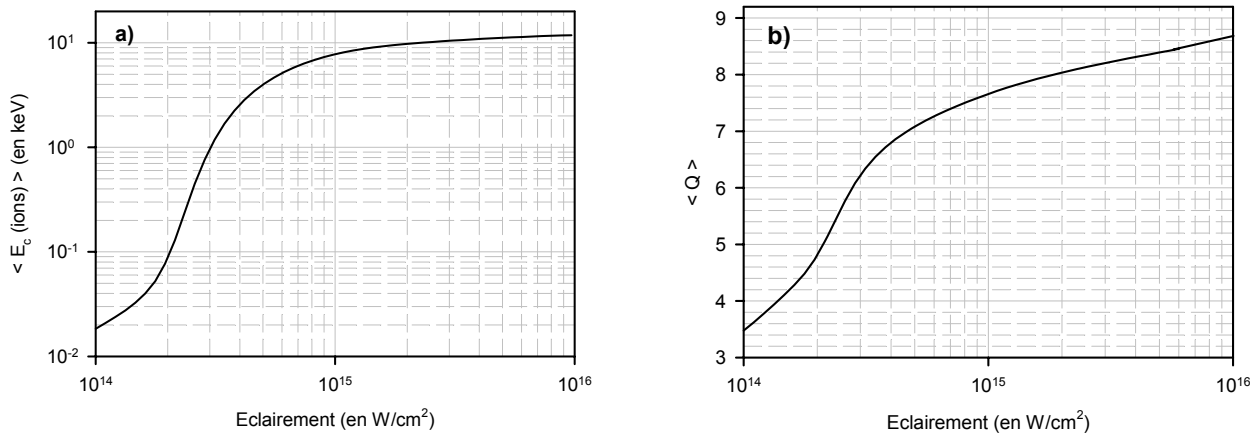


***Figure I-40 :** Évolution a) de l'énergie cinétique moyenne et b) de l'état de charge moyen des ions résultant de l'interaction d'agrégats de xénon avec une impulsion laser femtoseconde en fonction de l'éclairement laser. Ces simulations sont issues du code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface. Les conditions de simulation sont identiques à celles de la Figure I-39.*

2°) Explosion anisotrope des agrégats

Comme nous l'avons déjà vu, le modèle nanoplasma ne permet pas de prédire une quelconque brisure de la symétrie sphérique lors de l'interaction. Des travaux expérimentaux récents concernant la spectroscopie d'ions ont néanmoins mis en évidence l'existence d'anisotropie dans l'émission ionique que nous allons maintenant présenter (§ 2-i) et discuter à l'aide des résultats obtenus par des simulations de dynamique moléculaire (§ 2-ii).

2°-i) Confrontation des différents travaux expérimentaux

Tout état de charge confondu, les premières mesures concernant l'énergie cinétique moyenne des ions ont montré qu'il existait une anisotropie de l'ordre de 15 % comme nous l'illustrons sur la *Figure I-41*.

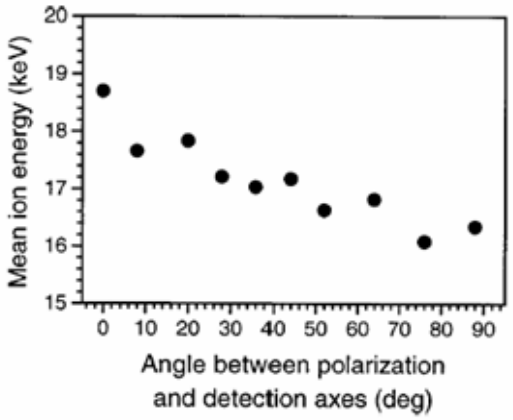


***Figure I-41 :** Énergie moyenne des ions émis lors de l'interaction d'agrégats de xénon contenant 5 300 atomes avec une impulsion laser de 170 fs d'éclairement maximum de 1,3×10^{16} W/cm^2 et une longueur d'onde de 780 nm en fonction de l'angle entre l'axe de détection et la polarisation linéaire du laser [Springate et al., 2000].*

L'hypothèse avancée par Ditmire pour expliquer ce résultat repose sur l'anisotropie observée dans la contribution basse énergie de la distribution énergétique des électrons (*cf.* §I-C-2-a). En fait, Mathur *et al.* ont identifié [Kumarappan, Krishnamurthy & Mathur, 2001] que seule la contribution de grande énergie dans la distribution ionique présente une anisotropie (*cf. Figure I-42*).

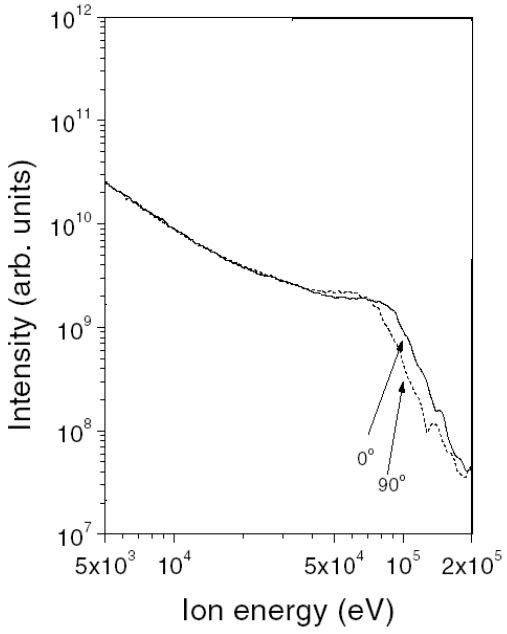


***Figure I-42 :** Spectre en énergie des ions issus de l'explosion d'agrégats d'argon (contenant de l'ordre de 40 000 atomes soumis à une impulsion de quelques 10^{15} W/cm^2) pour une direction parallèle et perpendiculaire à l'axe de polarisation du laser [Kumarappan et al., 2001].*

Il apparaît donc assez peu probable que la contribution basse énergie des électrons soit effectivement responsable de cette anisotropie qui n'affecte que les ions de grande énergie. Mathur *et al.* observent également que les distributions en état de charge des ions de faible énergie sont identiques à 0° et 90° de la polarisation du laser. Ces résultats viennent d'être confirmés très récemment par une autre équipe [Hirokane et al., 2004] qui a également observé pour la première fois jusqu'à l'Ar^{14+}. Par contre pour les ions ayant une grande énergie cinétique (K_e > 170 *keV*), certaines différences apparaissent entre la distribution en état de

charge des ions émis suivant la direction de polarisation du laser et celle des ions émis perpendiculairement (*cf. Figure I-43*).

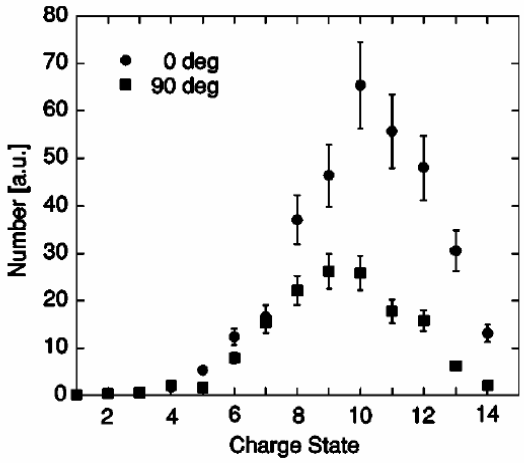


***Figure I-43 :** Distribution en état de charge des ions ayant une énergie supérieure à 170 keV et éjectés lors de l'interaction d'agrégat d'argon contenant 12 800 atomes avec une impulsion laser femtoseconde ($I \sim 2\times10^{16}$ W/cm^2 ; $\tau = 130$ fs, $\lambda = 780$ nm) [Hirokane et al., 2004].*

Ainsi, seuls les ions de **grande énergie** et **fortement multichargés** participe à cette anisotropie.

2°-ii) Confrontation avec des modèles de dynamique moléculaire

Blenski *et al.* [Ishikawa & Blenski, 2000] du SPAM ont proposé un modèle de type dynamique moléculaire pour expliquer cette explosion asymétrique mais sur des agrégats beaucoup plus petits (au maximum 155 atomes). Leur méthode de calcul de type Monte Carlo inclue l'ionisation par impact électronique ainsi que l'ionisation par effet tunnel (mais également les recombinaisons électrons – ions) et permet de suivre le mouvement des ions et des électrons libres durant toute l'interaction. A partir de leur simulation, les auteurs remarquent que l'ionisation par impact électronique joue un rôle mineur dans la dynamique d'ionisation et que cette anisotropie est due uniquement au **champ laser**. Des calculs similaires réalisés par Mathur *et al.* ont montré que l'anisotropie résultante du modèle de Blenski *et al.* est du même ordre de grandeur que celle observée expérimentalement.

Très récemment [Jungreuthmayer et al., 2004], des simultions MPIC *(Microscopic Particle In Cell)* reproduisent le spectre en énergie de Mathur *et al.* avec des gros agrégats comme nous le présentons sur la *Figure I-44*. Dans les codes PIC, les équations de Maxwell et les équations du mouvement pour toutes les particules chargées sont résolues en utilisant l'approximation du champ moyen. Les mécanismes d'ionisation par effet tunnel (formule ADK : équation [I-B.7]) ainsi que l'ionisation collisionnelle dans le cadre du formalisme de Lotz (formule [I-B.13]) sont également présents dans ces simulations. L'une des principales conclusions de ses simulations est que l'ionisation est dominée par l'ionisation par effet de champ tandis que l'ionisation collisionnelle est négligeable durant toute la dynamique

d'expansion de l'agrégat tout comme dans les simulations de Blenski *et al*. L'augmentation du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat par effet de charge provoque un accroissement de l'ionisation par effet de champ (mécanisme appelé CEI : *"Charge Enhanced Ionization"*) ainsi qu'une polarisation du nuage électronique : le champ laser suffit à éjecter les électrons présents sur l'un des pôles de l'agrégat. Le déséquilibre de charge entre les deux pôles de l'agrégat génère à son tour un champ électrique du même ordre de grandeur que le champ laser, ce qui contribue encore une fois à augmenter l'ionisation (mécanisme appelé PEI : *"Polarization Enhanced Ionization"*). Il s'agirait, d'après ces simulations, de ce processus PEI qui serait responsable de la création **d'ions fortement multichargés** et **très énergétiques** aux pôles de l'agrégat. Ce scénario serait ainsi à l'origine de l'asymétrie présente dans le spectre énergétique simulé (*cf.* *Figure I-44*), en très bon accord avec le spectre expérimental de Mathur *et al.* (*cf.* *Figure I-42*). Contrairement au modèle nanoplasma, ces simulations de dynamique moléculaire permettent de comprendre l'anisotropie, en terme d'énergie, observée lors de l'éjection des ions multichargés, et elles démontrent également la grande influence du champ électrique régnant à l'intérieur de l'agrégat pendant toute l'interaction pour expliquer la création d'ions fortement multichargés et très énergétiques.

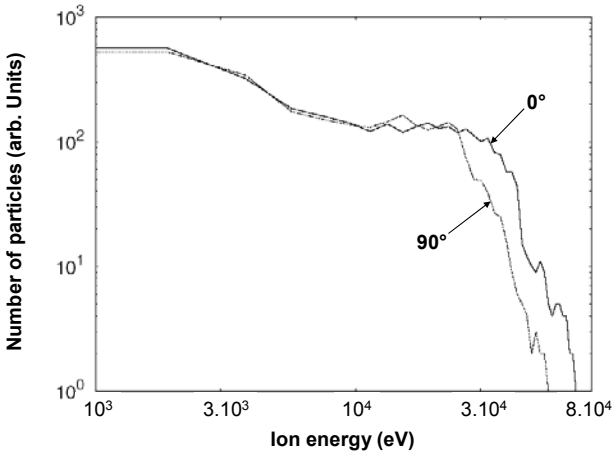


***Figure I-44 :** Spectre en énergie des ions émis par un agrégat d'argon contenant 10 000 atomes après l'irradiation avec une impulsion laser de 100 fs et d'intensité de 8×10^{15} W/cm^2 (en IR) en fonction de la polarisation [Jungreuthmayer et al., 2004].*

3°) Mécanismes d'explosion des agrégats

Pour caractériser les mécanismes impliqués dans l'explosion de l'agrégat (coulombien et / ou hydrodynamique), il est nécessaire d'étudier la relation entre la distribution en état de charge des ions multichargés et l'énergie cinétique de ces ions. Nous allons, dans un premier temps, exposer les premiers travaux de l'équipe de l'Imperial College ainsi que résumer les résultats de la thèse de S. Dobosz du SPAM. Dans un second temps, nous confronterons ces résultats avec le modèle nanoplasma et le modèle de dynamique moléculaire de Blenski *et al.* que nous avons brièvement exposé ci – dessus.

3°-i) Confrontation des différents travaux expérimentaux

La *Figure I-45* présente l'évolution de la distribution en état de charge avec l'énergie des ions lors de l'irradiation d'agrégats de xénon contenant 2 500 atomes par une impulsion laser d'éclairement crête de l'ordre de 2×10^{16} W/cm^2. Nous remarquons que pour les ions énergétiques (K_e > 10 keV), le maximum de la distribution en état de charge est compris, typiquement, entre 18+ et 25+, avec certains ions pouvant avoir un état de charge aussi grand que 40+. Comme nous l'avons précisé dans le paragraphe A de ce chapitre, ceci est largement supérieur à ce qu'il est possible d'obtenir dans le cas de l'ionisation par effet de champ avec des atomes isolés. Les auteurs de ce travail [Ditmire et al., 1997] affirment qu'il s'agit de la pression hydrodynamique qui est responsable de l'évolution de la distribution en état de charge avec l'énergie des ions.

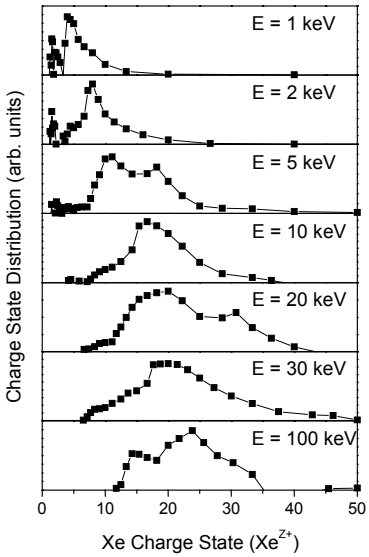


Figure I-45 : Distributions en état de charge pour des agrégats de xénon contenant de l'ordre de 2 500 atomes et soumis à un éclairement laser IR de 2×10^{16} W/cm^2 [Tisch et al., 2003].

En utilisant un spectromètre à temps de vol couplé à une déflection magnétique du type Wiley – McLaren (MD – TOF : *"Magnetic Deflection – Time Of Flight"*), Dobosz *et al.* du groupe de Saclay ont fait un pas supplémentaire dans la compréhension des mécanismes d'évolution des agrégats en quantifiant l'évolution de l'énergie cinétique avec l'état de charge des ions éjectés lors de l'interaction.

Pour commencer, leurs résultats montrent sans ambiguïté, pour les agrégats d'argon contenant 2×10^5 atomes, la manifestation d'une **explosion de type purement coulombienne**. En effet, dans leur spectre bi – dimensionnel, présenté sur la *Figure I-46*, les traces correspondant à des ions argon ayant un état de charge compris entre 1+ et 8+ sont clairement résolues et l'énergie cinétique initiale de ces ions peut être modélisée par :

$$E(q) = \alpha \cdot q^2 \qquad \text{avec } \alpha = 160\ eV\ .$$

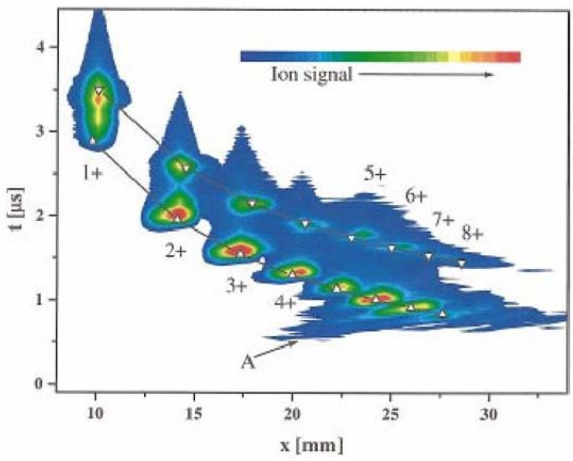


***Figure I-46 :** Spectre bi – dimensionnel montrant un spectre typique de MD – TOF obtenu lors de l'irradiation d'agrégats d'argon contenant 200 000 atomes à un éclairement IR de 5×10^{17} W/cm^2 [Lezius et al., 1998].*

Pour les agrégats de xénon beaucoup plus gros contenant 2×10^6 atomes, ils ont trouvé un comportement plus complexe de la distribution énergétique des ions en fonction de l'état de charge comme l'illustre la *Figure I-47*.

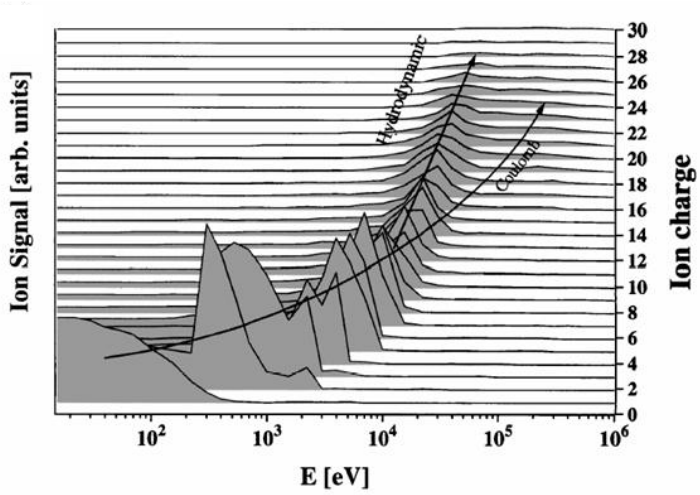


***Figure I-47 :** Distribution d'énergie cinétique des ions Xe^{q+} (avec q compris entre 1 et 30) issus de l'irradiation d'agrégats de xénon contenant 2×10^6 atomes par une impulsion laser d'éclairement crête de 4×10^{17} W/cm^2 [Dobosz, 1998].*

Une analyse de ces spectres révèle que la dépendance en énergie des ions ne peut être comprise que si deux mécanismes distincts sont considérés :

- pour les ions de faible état de charge (q < 6+), les ions acquièrent leur énergie uniquement par répulsion électrostatique des fragments chargés entre eux. Ce comportement est similaire à celui des ions provenant d'agrégats d'argon dans les mêmes conditions d'irradiation. L'énergie des ions suit une évolution quadratique avec l'état de charge ($E(q) = 180\times q^2$), indiquant une explosion de type purement coulombienne.
- pour des ions Xe^{q+} (avec q > 10+) d'état de charge plus important, la dépendance de leur énergie cinétique avec l'état de charge est linéaire et est donnée par la relation suivante : $E(q) = 1500\times q$. Ce comportement est associé à une expansion de type hydrodynamique.

- Enfin, pour les ions de charge intermédiaire (6+ < q < 10+), il semble que les distributions en énergie sont un compromis entre une explosion purement coulombienne et une explosion purement hydrodynamique.

3°-ii) Confrontation avec les modèles

Les résultats obtenus par le groupe de Saclay sont compréhensibles à partir du modèle nanoplasma pour lequel l'agrégat peut se détendre, comme nous l'avons vu dans le paragraphe I-C-1-d, de deux façons différentes :

- la pression coulombienne qui varie en $1/R^4$ (R étant le rayon de l'agrégat) ;
- et la pression cinétique qui varie comme $1/R^3$.

Qualitativement, la pression hydrodynamique l'emporte pour les gros agrégats tandis que la pression coulombienne domine pour des agrégats plus petits. Ce comportement se retrouve à partir des résultats expérimentaux de Dobosz *et al.* : les agrégats d'argon contenant 2×10^5 atomes explosent par répulsion coulombienne, tandis que des agrégats plus gros (contenant 2×10^6 atomes) ont un comportement intermédiaire pour lequel le nanoplasma se dilate sous l'action conjuguée des forces électrostatiques entre ions multichargés et des forces de pression cinétique. Néanmoins, le modèle nanoplasma, tel qu'il est présenté dans la partie C-1 de ce chapitre, ne permet pas de rendre compte d'une réelle distinction physique dans le comportement des différents états de charge. Une hypothèse a cependant été avancée pour expliquer les résultats de Dobosz *et al*. Après les premières ionisations, les électrons pouvant quitter l'agrégat sont ceux qui se trouvent proches de la surface. Ceux – ci laissent alors un défaut de charge en surface de l'agrégat, qui peut donc entraîner préférentiellement l'éjection d'ions peu chargés par répulsion coulombienne. Ces ions ont des états de charge faibles car ils n'ont pas encore eu le temps de subir une ionisation collisionnelle importante par impact électronique. Les ions du cœur de l'agrégat, plus liés, sont soumis à un grand nombre de collisions électrons – ions et participent à la formation du nanoplasma. Pendant son expansion, ils acquièrent des états de charge plus importants par impact électronique en même temps que le rayon de l'agrégat augmente à cause de l'effet conjugué de la pression cinétique et de la pression coulombienne. Les ions restants sont alors éjectés par la pression hydrodynamique si celle – ci domine l'explosion finale de l'agrégat.

Blenski *et al.*, à partir du modèle de dynamique moléculaire présenté précédemment, ont montré que les résultats de leurs simulations ont un comportement absolument similaire

aux observations de Dobosz *et al*. En premier lieu, ils observent que **l'énergie moyenne de tous les ions** $\left(\overline{E}\right)$ dépend quadratiquement de **l'état de charge moyen** $\left(\overline{Q}\right)$ avec l'éclairement laser et ce quelles que soient la taille des agrégats et la nature du gaz (argon, xénon) comme nous pouvons le voir sur la *Figure I-48* : ceci caractérise donc **une explosion purement coulombienne** de l'agrégat.

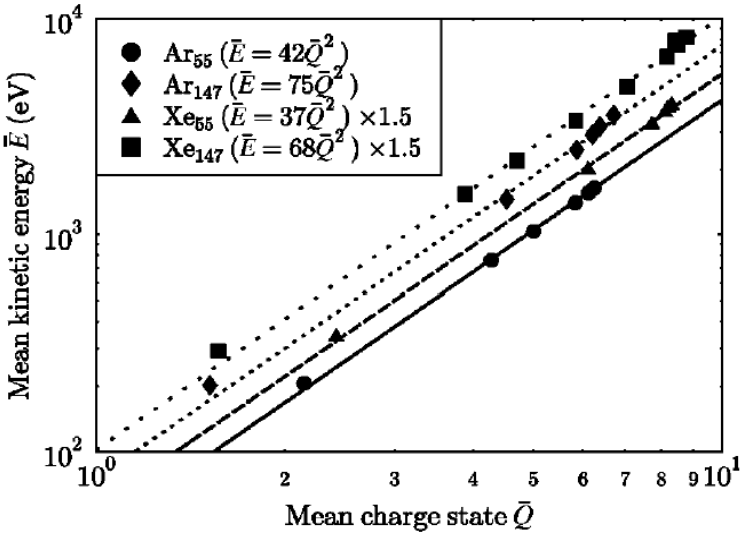


***Figure I-48 :** Relation entre l'énergie moyenne et l'état de charge moyen obtenue pour différentes intensités laser de 0,35×10^15 W/cm^2 à 13×10^15 W/cm^2. Les valeurs de l'énergie moyenne pour les agrégats de xénon sont multipliées par un facteur 1,5 pour plus de visibilité sur la figure [Ishikawa & Blenski, 2000].*

Par contre, en s'intéressant à l'énergie moyenne ***de chaque état de charge***, les auteurs observent les évolutions suivantes (*cf. Figure I-49*) :

- $\overline{E} \propto Q^2$ pour les ions de faible état de charge $\left(Ar^{<6+} / Xe^{<8+}\right)$;
- et $\overline{E} \propto Q$ pour les ions d'état de charge plus grand $\left(Ar^{>6+} / Xe^{>8+}\right)$.

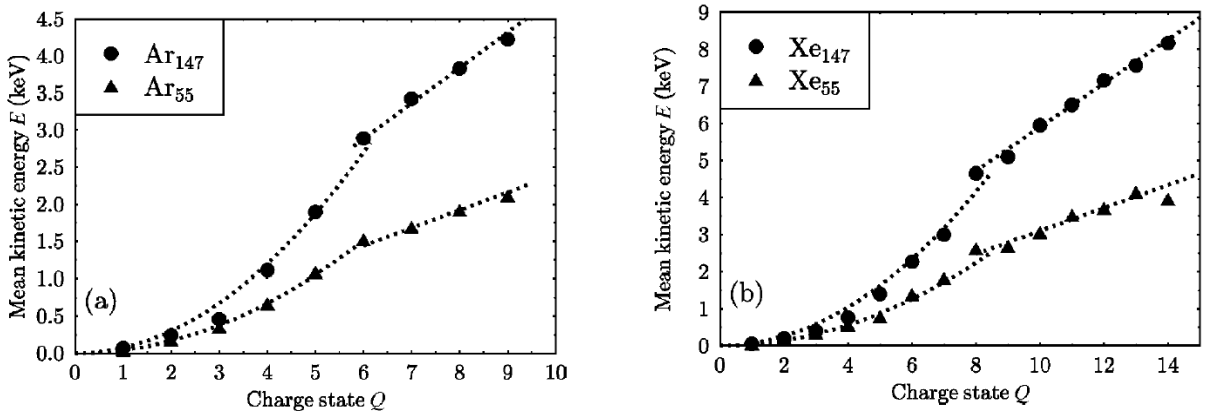


***Figure I-49 :** Dépendance de l'énergie moyenne en fonction de l'état de charge pour a) des agrégats d'Ar_{55} et d'Ar_{147} et b) des agrégats de Xe_{55} et de Xe_{147} soumis à une impulsion laser d'éclairement de 1,3×10^16 W/cm^2 [Ishikawa & Blenski, 2000].*

Ainsi, malgré une explosion **manifestement** coulombienne des agrégats, lorsque l'on discrimine l'énergie moyenne pour chaque état de charge, il existe une dépendance linéaire

entre cette énergie et l'état de charge, ce qui était, jusqu'à présent, interprété comme la manifestation d'une explosion hydrodynamique. Ces simulations reproduisent donc globalement les différentes évolutions observées par Dobosz *et al*.

4°) Bilan sur la spectroscopie d'ions

Comme nous venons de le voir dans ce paragraphe, le modèle nanoplasma prédit **qualitativement** l'évolution de l'énergie cinétique des ions avec les différents paramètres influant sur la dynamique de l'interaction, comme la taille des agrégats et l'éclairement laser (§I-C-2-b-1). Néanmoins, nous avons également vu dans ce paragraphe les insuffisances du modèle nanoplasma pour expliquer toutes les données expérimentales obtenues en spectroscopie d'ions comme :

- l'anisotropie de l'explosion des agrégats ;
- la production de grands états de charge (>10+) pour un éclairement modéré de l'ordre de quelques 10^{16} W/cm^2 : les études très récentes de [Hirokane et al., 2004] montrent en effet **un état de charge moyen** de l'ordre de 10+ lors de l'interaction d'agrégats d'argon avec une impulsion laser d'éclairement crête de 2×10^{16} W/cm^2.

De même, l'hypothèse d'une répartition homogène de la densité électronique dans le modèle nanoplasma ne permet pas de faire une distinction dans le comportement des ions d'état de charge différents et / ou d'énergie cinétique différente comme par exemple lors de :

- l'explosion anisotrope des ions très chargés et très rapides (§I-C-2-b-2) ;
- l'évolution de l'énergie cinétique avec l'état de charge (§I-C-2-b-3).

A contrario, les modèles de type dynamique moléculaire permettent de reproduire de tels comportements mais ils restent, pour l'instant, limités en taille d'agrégat. D'autre part, ces modèles semblent montrer que l'ionisation par impact électronique joue un rôle mineur dans la dynamique d'ionisation (Blenski et code PIC), contrairement au modèle nanoplasma, et qu'il s'agirait plutôt de l'important champ électrique régnant dans l'agrégat pendant toute l'interaction (celui du laser + celui des particules chargés + éventuellement celui de la polarisation) qui expliquerait les états de charge élevés ainsi que les grandes énergies cinétiques atteintes par les ions. Précisons également que les simulations de dynamique moléculaire incluant le champ coulombien des ions, mais négligeant le champ de polarisation, indiquent que les électrons quitteraient l'agrégat au début de l'interaction, même pour de gros agrégats (> 10^3 atomes) [Last & Jortner, 1998] [Last, Shek & Jortner, 1997]. Ces résultats rendent l'existence même d'un nanoplasma assez discutable.

Enfin, la spectroscopie d'ions est une méthode expérimentale sensible **principalement** à l'explosion des agrégats et qui intègre l'émission ionique pendant toute la dynamique de l'agrégat sous champ laser intense ; en effet, la détection des ions se fait quelques μs après l'interaction ce qui rend difficile une analyse de l'interaction sur une échelle de temps de la l'ordre de la femtoseconde.

D] Études de la génération de rayons X durs

D-1] Introduction

D-1-a) Présentation générale

Comme il a été vu dans l'introduction de ce chapitre (§A), la production de rayons X intenses fut l'une des premières manifestations singulières de l'interaction laser – agrégats. Nous allons nous intéresser dans ce paragraphe aux résultats les plus significatifs **en rapport** avec les études que nous avons menées. La plupart des travaux concernant l'émission de photons issus de l'interaction laser – agrégats ont eu pour objet l'étude de la génération d'harmoniques dans les agrégats par une impulsion laser femtoseconde [Tisch et al., 1997] [Donnelly et al., 1996], l'émission UV [Mori et al., 2001] [Parra et al., 2000; Schnürer et al., 2001] [Ter-Avetisyan et al., 2001] ou de photons X mous ($E_X < 1\ keV$) [Ditmire et al., 1995] [Ditmire et al., 1996]. Nous allons donc restreindre la discussion, dans ce paragraphe, aux résultats expérimentaux et théoriques concernant plus spécifiquement l'émission de **rayons X durs d'énergie supérieure au *keV***. D'autre part, comme dans le domaine de la spectroscopie X les principaux développements théoriques ont été réalisés à partir de données expérimentales obtenues avec des agrégats de krypton, de xénon et d'argon, ce paragraphe va être divisé en fonction de ces différentes espèces atomiques.

Pour commencer cette partie, il est présenté l'un des premiers modèles développés pour tenter d'expliquer l'ionisation en couche interne lors de l'interaction d'un laser intense avec des agrégats de gaz de rare : il s'agit du modèle de l'ionisation par allumage ou "*Ignition Ionization Model*" de Rose – Petruck et collaborateurs. Néanmoins, ce modèle n'ayant jamais été comparé directement avec des résultats expérimentaux, celui – ci a été séparé de la discussion.

D-1-b) Ignition Ionization Model (IIM)

L'ionisation en couche interne a été étudiée théoriquement pour de **petits** agrégats de gaz rare (quelques dizaines d'atomes de néon et d'argon) dans un champ laser intense à l'aide de simulations classiques de type Monte – Carlo par Rose – Petruck *et al.* [Rose-Petruk et al., 1997]. Pour des impulsions laser identiques, leurs résultats indiquent que les états de charge moyens atteints par les atomes dans un agrégat peuvent être plus grands que ceux obtenus pour les mêmes atomes en phase gazeuse : à un éclairement de $5\times10^{15}\ W/cm^2$, les simulations

indiquent que l'état de charge moyen de 1,4 pour un atome isolé augmente et atteint 4,5 pour du $(Ne)_{25}$. Ce modèle prévoit également, pour des agrégats de néon contenant 25 atomes, une probabilité d'ionisation en couche interne (K et L) par impact électronique comprise typiquement entre 10^{-5} (couche L) et 10^{-8} (couche K). D'une manière générale, les résultats du modèle IIM montrent que la dynamique d'ionisation dépend fortement de la **densité électronique** à l'intérieur de l'agrégat et augmente très rapidement quand l'intensité laser atteint l'éclairement seuil pour la première ionisation. En particulier, les auteurs observent la production d'Ar^{8+} 11 *fs* après la première ionisation et cette ionisation par allumage ("*Ignition Ionization*") est due à l'action combinée du champ électrique du laser et de l'important champ électrique résultant des ions présents dans l'agrégat.

1°) Présentation succincte du modèle

Sont traités dans ce modèle :

- l'ionisation par effet de champ : cette ionisation est traitée dans le cadre du modèle de l'ionisation par suppression de la barrière coulombienne (BSI) présentée précédemment (*cf.* §I-B-1-a) ;
- l'ionisation par impact électronique : le formalisme de Lotz (§I-B-3-a) est appliqué pour calculer la probabilité d'ionisation d'un électron venant collisionner sur un ion ;
- les trajectoires de toutes les particules : l'équation du mouvement pour les noyaux et les électrons libres est résolue numériquement en considérant les interactions avec les autres particules chargées ainsi que l'interaction avec le champ laser *via* la force Lorentz.

2°) Résultats

L'étude individuelle des trajectoires électroniques montre que les électrons ionisés ne s'échappent pas immédiatement de l'agrégat mais peuvent collisionner fréquemment avec les ions voisins. Le nombre total de collisions électrons – ions à l'intérieur de l'agrégat pendant toute l'interaction, ainsi que l'état de charge moyen final atteint après l'interaction, sont présentés sur la *Figure I-50* pour plusieurs intensités laser et pour des agrégats de néon contenant 25 atomes. Alors que le niveau moyen d'ionisation par atome augmente avec l'augmentation de l'éclairement laser, le nombre total de collisions électrons – ions diminue. Ceci indique, selon les auteurs, que l'augmentation du champ électrique, lorsque l'éclairement augmente, contribue également à enlever des électrons de l'agrégat et donc à diminuer la densité électronique au sein de l'agrégat.

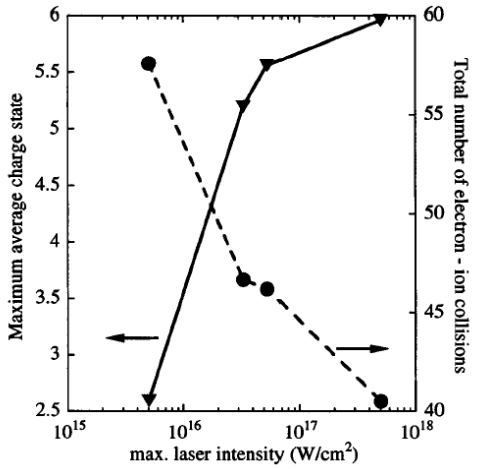


***Figure I-50 :** État de charge maximal et nombre total de collisions électrons – ions en fonction de l'intensité laser pour des agrégats de néon contenant 25 atomes [Rose-Petruk et al., 1997].*

La probabilité d'ionisation totale en couche L et K, **intégrée durant toute l'interaction**, est présentée sur la *Figure I-51* pour des petits agrégats de néon (25 atomes) en fonction de l'éclairement laser. Afin d'expliquer l'évolution de la probabilité d'ionisation en couche K, les auteurs pensent que la baisse du nombre de collisions électrons – ions peut être compensée, jusqu'à une certaine intensité laser (~ 3×10^{16} *W/cm²*), par les grandes énergies cinétiques (~ *keV*) atteintes par les électrons dans le champ électrique du laser. Au dessus de 3×10^{16} *W/cm²*, le chauffage des électrons n'est pas suffisant pour compenser la chute du nombre de collisions électrons – ions et, consécutivement, la probabilité totale d'ionisation en couche K. Ceci conduit les auteurs à supposer que la production de lacunes en couche interne par impact électronique, et donc l'émission de rayons X durs, doit se produire à des intensités laser intermédiaires, *i.e.* suffisamment importantes pour chauffer les électrons (> 5×10^{15} *W/cm²*), mais pas trop grandes pour ne pas diminuer la densité électronique à l'intérieur de l'agrégat (< 10^{18} *W/cm²*).

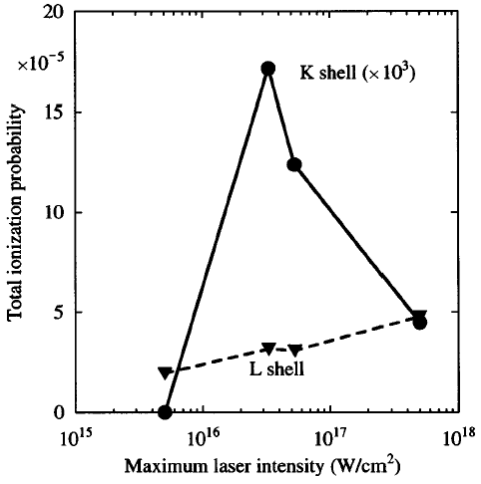


***Figure I-51 :** Probabilité totale d'ionisation par impact électronique en couche K et L lors d'un calcul pour un agrégat de néon de 25 atomes à différentes intensités laser [Rose-Petruk et al., 1997].*

3°) Conclusion

En conclusion, ce modèle prédit que, suite à l'ionisation des ions, un fort champ électrique peut être présent à l'intérieur de l'agrégat par effet de charge (*cf. Figure I-52*) contribuant ainsi à amplifier la dynamique d'ionisation. Ceci rend possible, en particulier, l'ionisation en couche interne des ions présents dans l'agrégat par impact électronique des électrons accélérés par le champ électrique régnant dans l'agrégat.

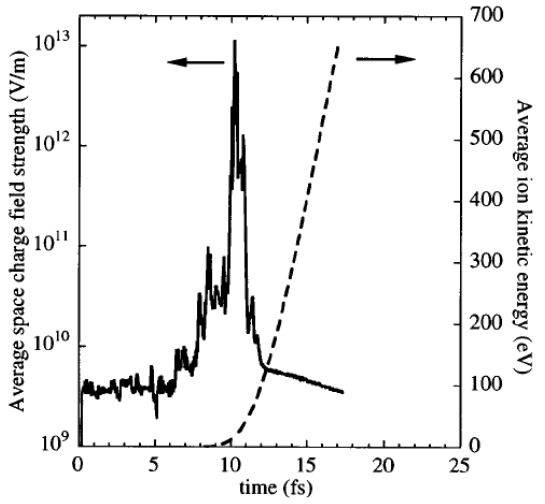


***Figure I-52 :** Champ électrique à l'intérieur de l'agrégat et énergie cinétique moyenne des ions lors de l'interaction d'un agrégat d'argon contenant 25 atomes avec une impulsion laser d'éclairement de 5×10^{15} W/cm^2 (τ = 15 fs et λ = 800 nm) [Rose-Petruk et al., 1997].*

Dans la mesure où le chauffage collisionnel augmente avec la taille des agrégats et avec le numéro atomique de la cible, les auteurs estiment que les gros agrégats de gaz rare comme l'argon, le krypton ou le xénon peuvent conduire à la production de rayons X très énergétiques, *i.e.* d'énergie supérieure au *keV* : c'est que nous allons maintenant expliciter.

D-2] Agrégats de krypton et de xénon

D-2-a) Agrégats de krypton : étude des X_L

Les agrégats de krypton ont fait partie des premières études menées dans le domaine de la spectroscopie X. Nous exposerons ici tout d'abord les premiers travaux réalisés par l'équipe de C. Rhodes et collaborateurs qui ont permis d'identifier le type de transitions ainsi que la distribution en état de charge des ions mis en jeu dans le rayonnement X observé. Un bref résumé des résultats marquants obtenus pendant la thèse de S. Dobosz sera ensuite présenté.

1°) Expériences qualitatives : Travaux de C. Rhodes et collaborateurs

Le spectre d'émission X obtenu par l'équipe de C. Rhodes *et al.* lors de l'irradiation d'agrégats de krypton par une impulsion laser ayant un éclairement de 8×10^{18} *W/cm^2* et une

longueur d'onde de 248 *nm* est présenté sur la *Figure I-53* [Boyer et al., 1994] [McPherson et al., 1994a]. Ce spectre, dans la région 4,5 Å – 7,7 Å (respectivement 2,76 *keV* – 1,61 *keV*) montre, selon les auteurs, la présence de transitions X provenant d'ions Kr^{q+} avec un état de charge q compris entre 24+ et 27+ et présentant une lacune en couche L (principalement *2p*). Ces photons X sont issus de transitions :

- $3\ell \rightarrow 2\ell'$ intenses dans la région 6,3 – 7,7 Å ;
- $4\ell, 5\ell \rightarrow 2p$ de faibles intensités dans la région 4,8 – 5,7 Å ;

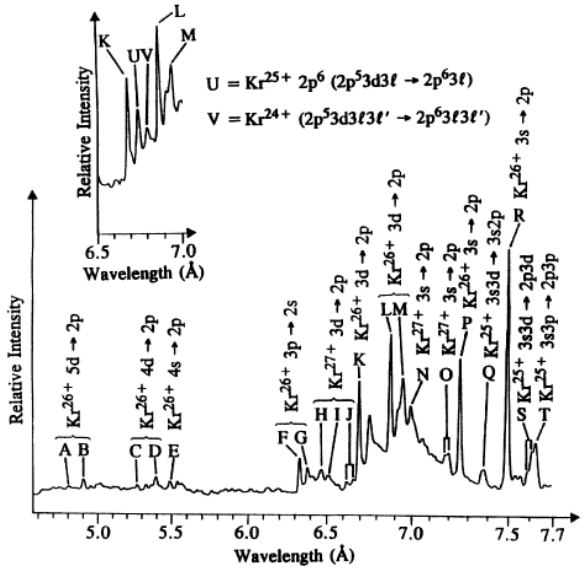


***Figure I-53 :** Spectre X d'émission d'ions Kr^{q+} possédant des lacunes en couche L obtenu lors de l'irradiation d'agrégats de krypton (P_0 = 8 bars, T_0 = 243 K) par une impulsion laser femtoseconde (λ = 248 nm , I ~ 8×10^18 W/cm^2) [McPherson et al., 1994a].*

Plusieurs remarques peuvent être faites à partir de ce spectre X. En premier lieu, l'état de charge des ions émettant le rayonnement X est important ; en effet, à partir du modèle d'ionisation par suppression de la barrière coulombienne (*cf.* §I-B-1a), il n'est pas possible, dans ces conditions d'éclairement, de produire des états de charge plus grands que 22+ (Kr^{22+} : $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^4$) et *a fortiori* des lacunes en couche L. Les auteurs estiment donc qu'il se produit de nombreuses collisions électrons – ions pendant l'interaction épluchant les ions à des états de charge élevés et pouvant par conséquent créer des lacunes en couche L par impact électronique uniquement grâce à l'énergie acquise par les électrons dans le champ laser ($U_p \sim 46$ *keV* pour $I \sim 8\times10^{18}$ *W/cm²* et λ = 248 *nm*). A ce stade, nous pouvons remarquer qu'il ressort l'idée que plus l'éclairement laser est important et plus l'émission X sera intense. En effet, un champ laser de plus en plus grand va alors accélérer d'autant les électrons au sein d'un agrégat et par conséquent augmenter fortement la probabilité d'ionisation en couche interne des ions, ce mécanisme étant néanmoins limité par la baisse de la section efficace d'ionisation par impact électronique pour les grandes énergies cinétiques comme il a été vu dans le paragraphe I-B-3. Deuxièmement, les auteurs estiment qu'il doit exister des processus

d'excitation *nombreux* dans le milieu lors des processus collisionnels. En effet, à un éclairement de 8×10^{18} W/cm^2, la couche *3d* devrait être complètement vide ($I_{BSI} \sim 2\times10^{18}$ W/cm^2), or les auteurs observent la présence de transitions $3d \rightarrow 2p$ de grande intensité. En particulier, ils pensent qu'il se produit des excitations collisionnelles d'un électron *3s* vers la sous – couche *3d* **avant** que la transition radiative $3s \rightarrow 2p$ ne se produise. Enfin, il est important de remarquer que les transitions observées sont extrêmement rapides : en effet, la durée de vie des transitions $3s \rightarrow 2p$, $3d \rightarrow 2p$ et $3p \rightarrow 2s$ est typiquement comprise entre 10 *fs* et 1000 *fs*. Ceci indiquerait, selon les auteurs, que le taux de recombinaison reste relativement faible dans le milieu ($<< 10^{10}$ s^{-1}) mais que le taux d'excitation collisionnelle est lui très important ($>> 10^{10}$ s^{-1}).

Finalement, ces résultats traduisent une émission X se produisant sur une échelle de temps extrêmement rapide : de l'ordre de la durée d'impulsion voire inférieure. Les auteurs suggèrent également qu'il est nécessaire d'avoir des intensités laser relativement intenses ($> 10^{17}$ W/cm^2) pour pouvoir observer une émission X intense lors de l'interaction laser – agrégats. Enfin, leurs résultats sont les premiers à mettre en évidence l'importance des collisions électrons – ions dans l'agrégat pendant la dynamique de l'interaction afin d'expliquer la présence d'ions fortement multichargés ayant des lacunes en couche interne.

2°) Expériences quantitatives : Résultats de la thèse de S. Dobosz

Les premières études quantitatives concernant les agrégats de krypton [Dobosz et al., 1997] ont été réalisées pendant la thèse de S. Dobosz et ont montré, en particulier, que le taux de photons X le plus important est obtenu avec les agrégats de krypton plutôt qu'avec des agrégats d'argon ou de xénon, toutes choses étant égales par ailleurs (même taille et même éclairement laser). Les travaux quantitatifs menés ont également permis de suivre l'évolution du taux d'X avec l'éclairement laser et la taille des agrégats.

2°-i) Influence de l'éclairement laser

La *Figure I-54* présente l'évolution du taux absolu de photons X émis lors de l'interaction avec l'intensité laser. Une loi de puissance en $I^{3/2}$ est observée ce qui a été interprété, comme dans le cadre de l'interaction laser – atomes, par une augmentation du volume focal effectif. Ce volume focal est défini comme le volume à l'intérieur duquel un certain éclairement seuil a été dépassé. Le taux absolu de photons X augmenterait alors uniquement comme le nombre d'agrégats contenu dans le volume focal effectif.

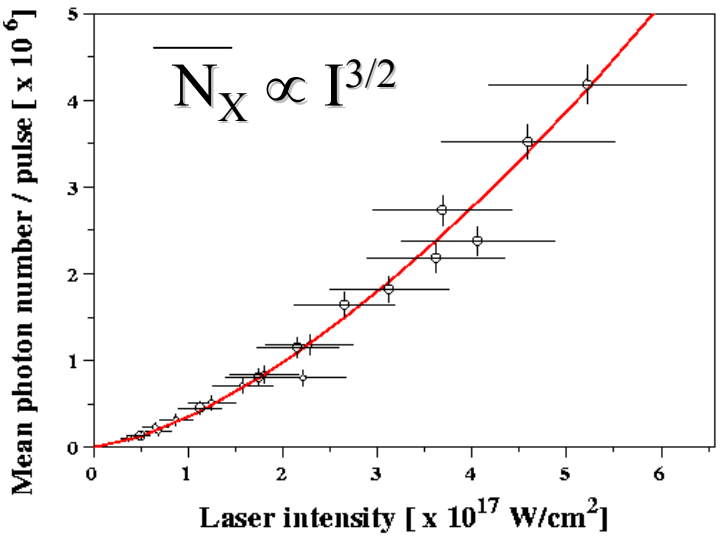


***Figure I-54 :** Évolution du taux d'X avec l'éclairement laser lors de l'irradiation d'agrégats de krypton (P_0 = 19,5 bars) par une impulsion laser femtoseconde (λ = 790 nm et τ = 130 fs) [Dobosz, 1998].*

2°-ii) Influence de la taille des agrégats

En ce qui concerne l'évolution du taux d'X avec la pression en amont de la buse de condensation P_0 (caractéristique de la taille des agrégats), il est observé une loi d'évolution en $(P_0 - P_c)^3$ dans la gamme de pression étudiée (de l'ordre de 5 *bars* à 20 *bars*). La pression minimale nécessaire pour la production de rayons X (P_c) est de l'ordre de 3 *bars* dans ces conditions expérimentales, ce qui correspond à une taille minimale des agrégats pour l'émission X de l'ordre de 10^4 atomes.

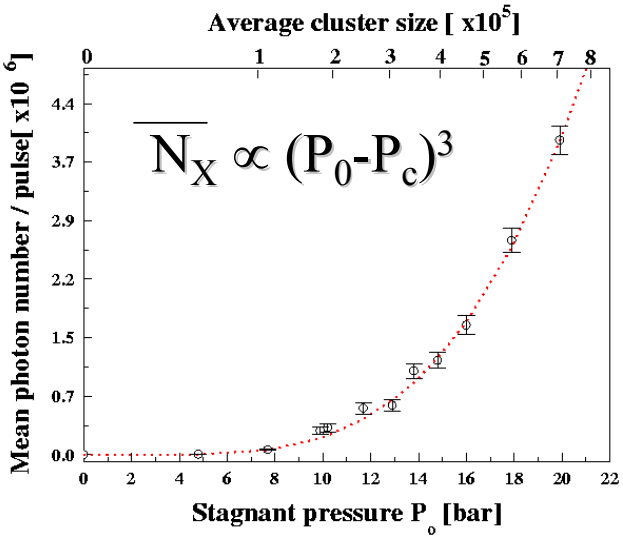


***Figure I-55 :** Évolution du taux d'X avec la taille des agrégats (via la pression P_0) lors de l'irradiation d'agrégats de krypton par une impulsion laser femtoseconde ($I = 4\times10^{17}$ W/cm^2, λ = 790 nm et τ = 130 fs) $P_c \sim 3$ bars [Dobosz et al., 1997].*

1°-ii) Polarisation

Enfin, la polarisation du rayonnement X a également été étudiée lors de ces expériences de deux façons complémentaires, que nous allons expliciter :

tout d'abord dans le cas d'une émission anisotrope, l'intensité de l'émission X suit la relation suivante [Vernhet, 1990] :

$$I_X = < I > \frac{1 - P \cdot (\cos\theta)^2}{1 - P/3} \qquad \textbf{[I-D.1]}$$

avec P le facteur de polarisation du rayonnement X et θ l'angle entre l'axe privilégié de l'émission X et l'axe d'observation. Ainsi, en mesurant la dépendance avec θ de l'intensité du rayonnement X émis, il est possible d'étudier la polarisation du rayonnement X. On peut utiliser soit plusieurs détecteurs placés à des angles différents, soit effectuer plusieurs mesures en déplaçant un même détecteur. Le dispositif expérimental ayant permis d'effectuer ces études est présenté schématiquement sur la *Figure I-56*. Afin de s'affranchir de la transmission, de l'efficacité et de l'angle solide de détection, le signal X issu du détecteur 1 ($N_{X\ détecteur(1)}$) est normalisé par rapport à un autre détecteur (détecteur 2 – $N_{X\ détecteur(2)}$). Comme l'illustre la *Figure I-57*, en échangeant la position des deux détecteurs, le rapport du nombre de photons détectés est identique pour les deux configurations expérimentales, ce qui permet d'affirmer que l'émission X est complètement isotrope (P = 0 car $I_X = cste$ quelque soit l'angle θ). Dans l'expérience présentée ici, ceci a été vérifié pour plusieurs tailles d'agrégats de krypton (*i.e.* plusieurs pressions en amont de la buse de condensation).

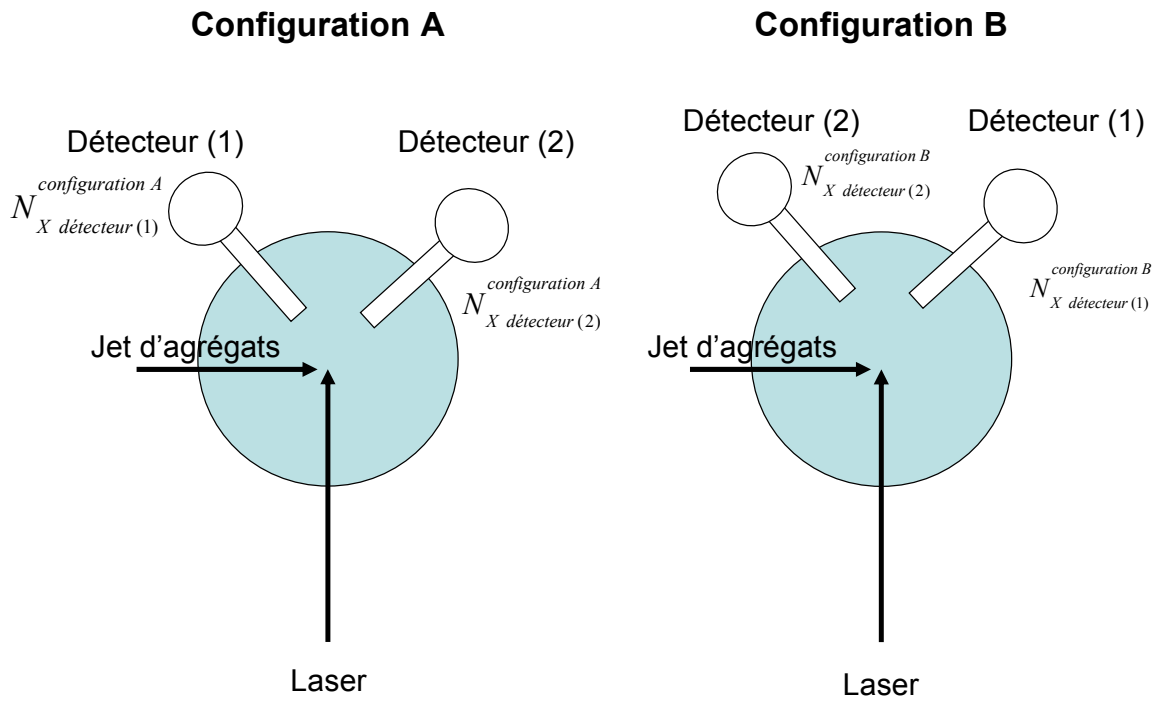


Figure I-56 : Configurations expérimentales utilisées afin d'étudier la polarisation du rayonnement X émis.

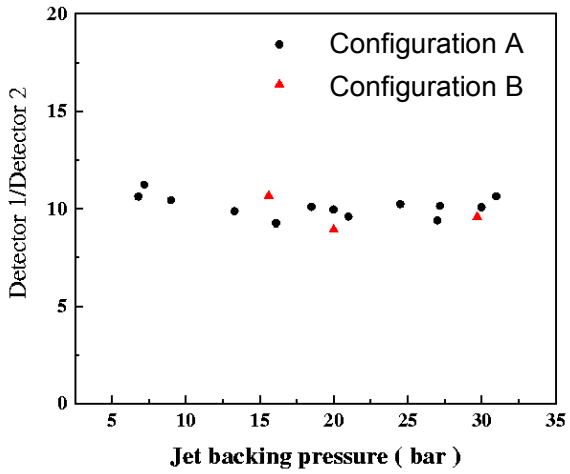


***Figure I-57 :** Évolution du rapport entre le nombre de photons détectés sur le détecteur 1 sur le nombre de photons détectés sur le détecteur 2 pour plusieurs tailles d'agrégats de krypton ($I = 2\times10^{17}$ W/cm^2, $\lambda = 800$ nm , $\tau = 130$ fs) [Dobosz, 1998].*

ensuite, et par une approche complémentaire à celle présentée ci – dessus, le taux d'émission X pour un détecteur donné (*i.e.* un angle θ donné) a également été trouvé indépendant de la direction de polarisation du laser (horizontale *s* et verticale *p*). Cette expérience confirme ainsi le fait qu'il n'existe pas d'axe privilégié pour l'émission X (émission complètement isotrope). Un agrégat contenant plusieurs milliers d'atomes pouvant être considéré, en première approximation, comme étant de symétrie sphérique, le rayonnement laser arrive donc toujours sous une incidence normale par rapport à la surface de l'agrégat : les polarisation *s* et *p* sont donc physiquement identiques (*cf.* *Figure I-58-a*). Ce comportement est différent de celui d'une cible solide pour laquelle, sous une incidence **oblique**, les polarisations *s* et *p* ne jouent plus un rôle physique identique (*cf.* *Figure I-58*) et conduisent alors à une modification du chauffage de la surface. Précisons qu'en toute rigueur cette vision "géométrique" de l'interaction n'est pas valide (rayon de l'agrégat << longueur d'onde) mais elle permet néanmoins d'appréhender facilement l'insensibilité de l'émission X par rapport à la polarisation *s* et *p* lors de l'irradiation des agrégats.

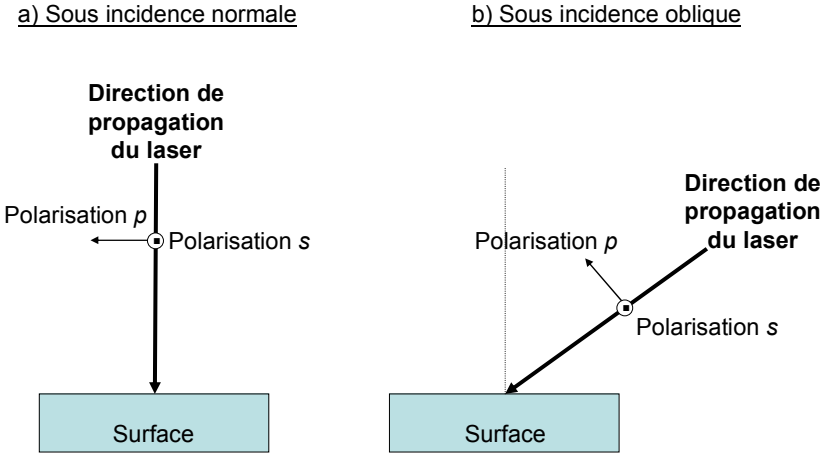


***Figure I-58 :** Polarisations s et p pour a) une incidence normale et b) une incidence oblique du faisceau laser sur une surface.*

D-2-b) Agrégats de xénon : étude des X_L et mouvement collectif et cohérent des électrons

Les principaux travaux concernant l'émission d'X_L issus d'agrégats de xénon induit par l'interaction avec un laser femtoseconde ont également été effectués par C. Rhodes et collaborateurs. Cette émission d'énergie comprise entre 4 *keV* et 6 *keV* est interprétée par les auteurs en terme de mouvement collectif et cohérent des électrons. Ces résultats expérimentaux ont servi de base à l'élaboration d'un modèle appelé "*Coherent Electron Motion Model*" (CEMM) [Thompson et al., 1994].

1°) Production de multiples lacunes en couche 2p

Nous reprenons sur la *Figure I-59* le spectre qui a déjà été présenté dans l'introduction de ce chapitre (*cf. Figure I-2-a*) et qui concerne l'irradiation d'agrégats de xénon avec une impulsion laser UV (λ = 248 *nm*) d'éclairement de l'ordre de 8×10^{18} W/cm^2 (τ = 300 *fs*) [McPherson et al., 1994b] [Thompson et al., 1994]. Comme il a été signalé précédemment, la production de simple lacune en couche interne à cet éclairement n'est pas étonnante en considérant les collisions électrons – ions avec des électrons accélérés dans le champ laser (U_p > 40 *keV*) mais sur ce spectre les auteurs identifient deux transitions particulières :

- à 2,94 Å : transition $2p^5 3s \rightarrow 2p^6$ du Xe^{44+} ;
- à 2,86 Å : transition $2p^4 3s \rightarrow 2p^5$ du Xe^{45+}.

Ces deux raies, d'une intensité comparable, correspondent respectivement à une lacune en couche *2p* (Xe^{44+}) et deux lacunes en couche *2p* (Xe^{45+}). Les auteurs en déduisent alors que **la probabilité de produire deux lacunes en couche *2p* est du même ordre de grandeur que la probabilité de produire une seule lacune en couche *2p***. Cette identification nous semble largement discutable par rapport à la statistique du spectre mais également par la présence de nombreuses transitions radiatives existantes pour un état de charge donné. L'ensemble des transitions radiatives issues d'une espèce multi – ionisée ayant un numéro atomique élevé (comme le Xe^{44+} par exemple) peut en effet s'étaler sur plusieurs dizaines d'*eV* et il devient alors impossible d'identifier aussi précisément la contribution d'une transition particulière pour un tel spectre.

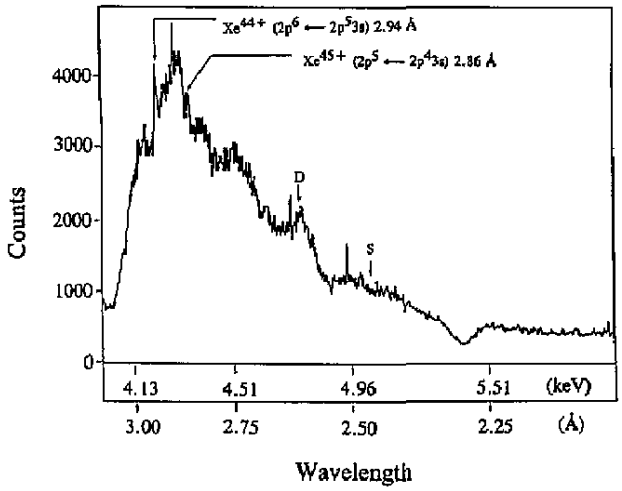


***Figure I-59 :** Spectre d'X_L dans la région 4 – 6 keV issu de l'irradiation d'agrégats de xénon ($\lambda = 248$ nm ; $\tau = 300$ fs ; $I \sim 8\times10^{18}$ W/cm^2) [McPherson et al., 1994b]*

En dehors de ce problème d'identification, l'existence d'une probabilité de double ionisation par impact électronique du même ordre de grandeur que la probabilité de simple ionisation est assez déconcertante. En effet, la section efficace de double ionisation d'un ion par un électron est beaucoup plus faible, typiquement de plus d'un ordre de grandeur, que la section efficace de simple ionisation. Même si on considère maintenant N électrons venant collisionner sur un même atome, la probabilité de double ionisation reste dans le même rapport vis – à – vis de la probabilité de simple ionisation, c'est – à – dire très petite. Ceci est en contradiction avec les observations expérimentales de C. Rhodes et collaborateurs. Les auteurs affirment ainsi que les N électrons libérés d'un même atome par le champ laser se conduiraient comme une "quasi – particule" de masse $N.m_e$ et de charge $N.e$ à cause de leur **mouvement collectif et cohérent** dans le champ laser. La section efficace de double ionisation de cette quasi – particule serait alors, selon les auteurs, fortement augmentée. En l'occurrence, dans le domaine de la physique des collisions, il a été démontré que les sections efficaces des processus doubles augmentent fortement avec la charge du projectile [Vernhet et al., 1997] mais, ceci dit, sans pour autant invoquer l'effet de la quasi – particule.

D'une manière simplifiée, l'interprétation proposée par Rhodes *et al.* implique que les électrons garderaient la "mémoire" de leur appartenance à un même atome et qu'ils oscilleraient alors d'une **manière cohérente** dans le champ laser. Cette hypothèse forte est largement discutable physiquement ; en effet, le terme de couplage entre les électrons dans le champ laser (traduisant la cohérence entre les électrons) est ici supposé plus important que le terme d'interaction e^- / champ laser dans l'Hamiltonien total du système pendant l'interaction.

D'autre part, l'image de la quasi – particule pour traiter les probabilités collisionnelles est de toute façon en contradiction formelle avec les études de collision ion – atome ou ion – solide où l'effet global des électrons participant à la collision comme partenaire excitateur est

évalué au travers d'un terme appelé terme d'antiécrantage. De façon générale, la section efficace d'un processus du type ionisation ou excitation est proportionnelle à la quantité :

$$\int Z_c^2 F(\vec{K}) dK \qquad \textbf{[I-D.2]}$$

où Z_c décrit le partenaire excitateur et $F(\vec{K})$ ne dépend que du partenaire excité. On peut essayer de conserver cette séparation formelle en introduisant les phénomènes d'écrantage et d'antiécrantage. J.H. McGuire a montré que, dans le cas où Z_c est entouré de deux électrons, on obtient les sections efficaces en remplaçant Z_c par une charge effective $Z_c(\vec{K})$ qui ne dépend que du partenaire excitateur [McGuire & Stolterfort, 1981]. R. Anholt [Anholt et al., 1986] a généralisé ce résultat pour un atome neutre (noté ici *c*) :

$$Z_c^2(\vec{K}) = \left| Z_c - \sum_{i=1}^{Z_c} \langle \psi_i | e^{i\vec{K}.\vec{r}} | \psi_i \rangle \right|^2 + Z_c - \sum_{i=1}^{Z_c} \left| \langle \psi_i | e^{i\vec{K}.\vec{r}} | \psi_i \rangle \right|^2 \qquad \textbf{[I-D.3]}$$

Ainsi, dans cette formule qui est couramment utilisée et qui reproduit bien les sections efficaces observées dans le domaine des collisions, **l'effet des Z_c électrons, donné par la somme des deux derniers termes, est donc inférieur dans tous les cas à Z_c fois l'effet d'un seul électron**. On voit bien que l'image de la quasi – particule n'est pas ici validée alors que basée sur l'hypothèse du mouvement collectif et cohérent des électrons dans l'interaction laser – agrégats ; elle constitue pourtant la pierre angulaire du modèle CEM et a fait l'objet de nombreuses publications afin d'en justifier l'exactitude tant pour les agrégats de xénon (X_L et X_M) que pour les agrégats de krypton (X_L).

2°) Effets de la longueur d'onde

Plus récemment, la même équipe [Kondo et al., 1997] a étudié l'effet de la longueur d'onde sur les X_L émis lors de l'irradiation d'agrégats de xénon (illustré *Figure I-60*). Les deux spectres sur cette figure ont été obtenus sur des dispositifs expérimentaux de production d'agrégats *semblables*, d'après les auteurs, mais pour des conditions expérimentales, tant en ce qui concerne les agrégats que le laser, sensiblement différentes comme il est exposé dans le *Tableau I-3*.

Longueur d'onde (en *nm*)	Durée d'impulsion (en *fs*)	Energie par impulsion (en *mJ*)	Intensité laser (en W/cm^2)	Pression (en *bar*)	Température (en *K*)
800	90	50	$1{,}4\times10^{18}$	7	293
248	270	220	1×10^{19}	4,5	293

Tableau I-3 : Conditions expérimentales des spectres de la Figure I-60.

Les spectres présentés ci –dessous n'ayant pas été réalisés à la même énergie laser, les auteurs ont appliqué une simple loi de proportionnalité afin de normaliser ces deux spectres ; sans tenir compte de la durée d'impulsion différente en UV et en IR, de la taille des agrégats qui change entre 4,5 *bars* et 7 *bars* ....

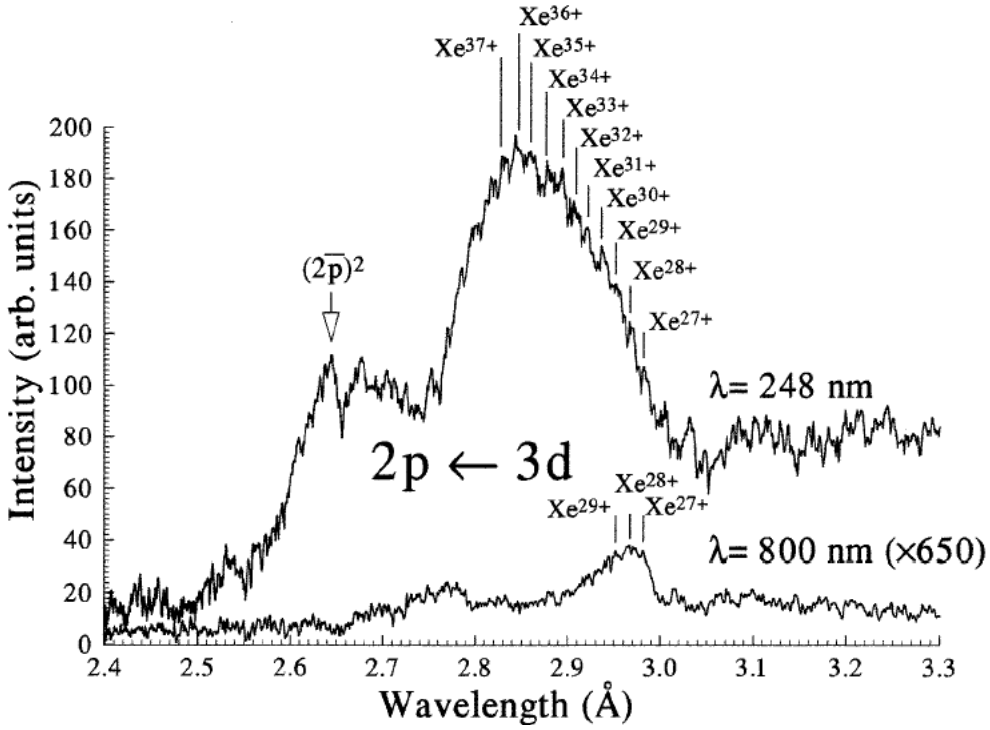


***Figure I-60 :** Spectre d'X_L dans la région 2,4 – 3,3 Å (soit 3,8 – 5,2 keV) obtenu lors de l'irradiation d'agrégats de xénon pour deux longueurs d'onde différentes λ = 248 nm et λ = 800 nm [Kondo et al., 1997].*

Comme nous l'avons déjà vu pour les agrégats de krypton, une telle dépendance linéaire de l'émission X avec l'énergie par impulsion n'est clairement pas réaliste mais les auteurs en tirent néanmoins certaines conclusions quantitatives :

- les auteurs observent une forte baisse (de l'ordre de 3 000) de l'intensité maximale du spectre à 800 *nm* par rapport à celui obtenu à 248 *nm* (l'intégrale du spectre à 800 *nm* serait 10^4 fois plus faible que l'intégrale du spectre obtenue à 248 *nm*) ; une loi en λ^{-6} ou λ^{-7} est alors établie en ce qui concerne l'émission X : nos travaux expérimentaux qui seront présentés dans le Chapitre IV ne montrent en aucune façon une telle loi d'évolution quand on tient compte effectivement de l'influence respective des différents paramètres.
- l'émission X serait uniquement issue de transitions $3d \rightarrow 2p$ et les auteurs attribuent les deux groupes de raies observés en UV soit à une lacune en couche $2p$ ($2p^{-1}$) soit deux lacunes en couche $2p$ ($2p^{-2}$) d'ions ayant la même distribution en état de charge qui est ici parfaitement identifiée. Précisons d'ores et déjà que nous ne sommes pas d'accord avec

l'interprétation spectrale qui a été faîte par cette équipe sur les types de transitions observées. En premier lieu, l'identification aussi précise de la distribution en état de charge est largement discutable du fait de la présence, pour un ion d'état de charge donné, de nombreuses configurations électroniques donnant naissance à un "paquet" de raies s'étalant sur plusieurs dizaines d'*eV* comme nous l'avons déjà précisé précédemment. D'autre part, Kondo *et al.* ont identifié chacun des deux groupes de raies observés comme étant des transitions $3d \rightarrow 2p$ avec soit une lacune en couche $2p$ ($2p^{-1}$) soit deux lacunes en couche $2p$ ($2p^{-2}$). Des calculs d'énergie de transition de type Slater montrent clairement que l'écart en énergie entre $2p^{-1}$ et $2p^{-2}$ est totalement incompatible avec l'observation. En effet, l'écart énergétique $3d \rightarrow 2p^{-1}$ / $3d \rightarrow 2p^{-2}$ correspond à environ 120 *eV* alors que l'écart observé entre les deux groupes de raies correspond à plus de 300 *eV*. On peut, par contre, attribuer à chacun de ces groupes de raies une configuration distincte à partir de l'écart de structure fine du niveau $2p^{-1}$. En effet, si on considère en première approximation que chacun des deux groupes de raies observées est principalement dû à la désexcitation du niveau *3d* pour différents états de charge de l'ion émetteur Xe^{q+}, l'écart type mesuré correspond à l'écart $3d_{3/2} \rightarrow 2p_{1/2}$ et $3d_{5/2} \rightarrow 2p_{3/2}$ soit autour de 310 *eV* pour des ions d'états de charge supérieur à 24+. Cette hypothèse a été confirmée par des calculs multi – configurations Hartree – Fock mais une interprétation plus poussée de ces spectres doit néanmoins être menée. En effet, les différentes composantes de structure fine $3l_j \rightarrow 2l_j$ sont à prendre en compte et un calcul précis des rapports de branchement et des taux Auger / radiatifs est à effectuer pour chaque état de charge. Cependant, ces premiers calculs réalisés permettent d'identifier les deux groupes de raies comme étant dû à l'écart de structure fine $2p_{1/2} - 2p_{3/2}$ pour une seule lacune en couche *2p* et non à l'écart correspondant à la présence d'une et deux lacunes en couche *2p* ($2p^{-1} - 2p^{-2}$).

- Enfin, selon les auteurs, de grandes différences dans l'allure générale du spectre à ces deux longueurs d'onde existent ; en particulier, les auteurs affirment ne pas trouver la présence de doubles lacunes en couche *2p* à 800 *nm* contrairement au spectre à 248 *nm* : il existe néanmoins à 800 *nm* deux groupes de raies identiques à celles du spectre obtenu en UV qui apparaissent uniquement décalées par rapport à l'émission X à 248 *nm*.

Les auteurs affirment néanmoins que leurs résultats sont cohérents avec le mouvement collectif et cohérent des électrons en calculant un temps de cohérence pour les électrons de l'ordre de 1 *fs*. Un tel temps de cohérence indique que le mouvement électronique cohérent est possible pour des radiations UV (λ = 248 *nm*) car la période d'un cycle optique est de 0,8 *fs*. *A contrario*, pour une radiation IR (λ = 800 *nm*) la période d'un cycle optique est de 2,6 *fs* : les

électrons auraient alors perdu leur cohérence quand ils viennent collisionner avec les ions. Par conséquent, ils estiment que la production de doubles lacunes devient beaucoup moins probable en IR qu'en UV. Ceci expliquerait ainsi selon les auteurs une forte baisse de l'émission X en IR par rapport à l'UV. Précisons, tout de même, que les grandes différences obtenues sur l'émission X en fonction de la longueur d'onde lors des expériences de Kondo *et al.* peuvent être dues aux conditions expérimentales différentes (taille d'agrégat, durée d'impulsion, éclairement laser …) plutôt qu'à une forte dépendance des mécanismes de chauffage des électrons lors de l'interaction laser – agrégats. Cet argument est renforcé par le fait d'ailleurs qu'une telle dépendance n'a pas été observée pour les X_M du xénon [Smith et al., 1999] et les X_L du krypton [Dobosz, 1998].

3°) Effets de l'intensité laser

Enfin, en imageant deux zones différentes suivant la direction de propagation du faisceau laser, les auteurs en tirent certaines conclusions à propos de l'émission X pour une longueur d'onde de 248 *nm* en fonction de l'intensité laser [Borisov et al., 1996] (*cf.* *Figure I-61*) :

- une baisse de la production de multiples lacunes en couche *2p* lorsque l'intensité diminue, tant en ce qui concerne les doubles lacunes que les triples lacunes ;
- une diminution de l'état de charge moyen des ions émettant le rayonnement X avec une réduction de l'intensité laser et qui est corrélée, selon les auteurs, à la baisse de la production de multiples lacunes.

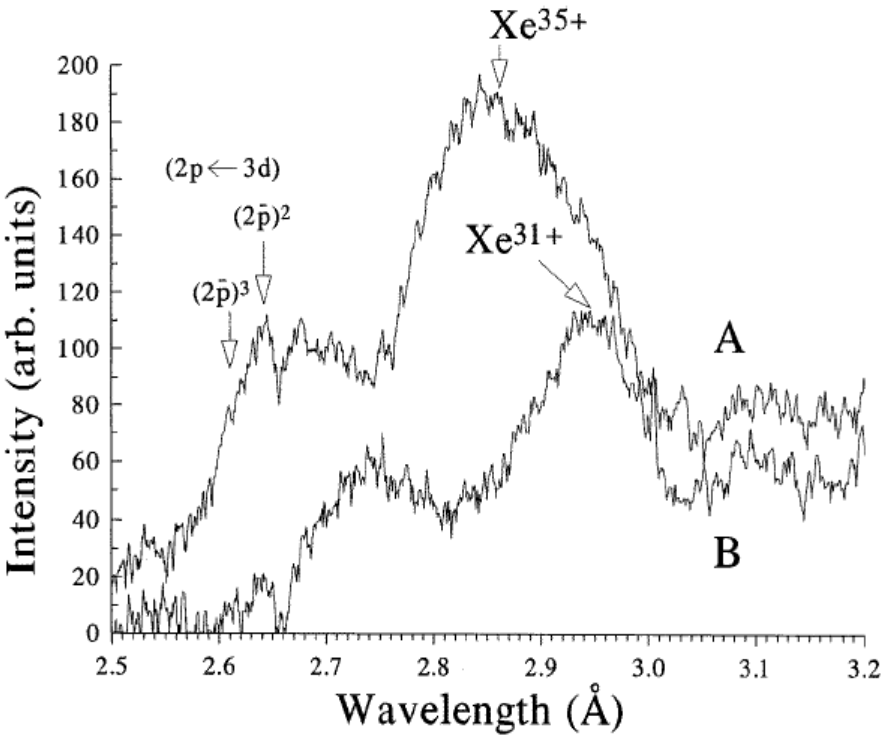


***Figure I-61 :** Spectre d'X_L dans la région 2,4 – 3,3 Å (soit 3,8 – 5,2 keV) pour λ = 248 nm et pour deux intensités différentes : $I_A \sim 8\times10^{18}$ W/cm^2 et $I_B \sim 4\times10^{18}$ W/cm^2 [Borisov et al., 1996].*

Le modèle CEM n'explique pas la forte sélectivité en ℓ (et en n) de production de lacunes en couche interne lors des collisions avec les ions ; en particulier, il n'a pas été observé de double lacunes en couche *2s*, *3s* et *3p*. Dans le même esprit, un modèle quantique a été développé par Andreas – Schroeder de l'équipe de Rhodes [Schroeder et al., 2001] afin d'expliquer cette sélectivité sur la production de **multiples lacunes** en couche *2p*. Les auteurs considèrent que cet effet est dû uniquement aux électrons *4p* libérés par effet de champ : ces électrons garderaient leur "cohérence" dans le champ laser et contribueraient ainsi à la formation de la quasi – particule induisant alors sélectivement des lacunes en couche *2p* lors des collisions avec l'ion parent.

Les différents résultats expérimentaux obtenus par cette équipe sur la production d'X_L du xénon comme la dépendance en λ^{-6} de l'émission X, l'attribution des deux groupes de raies à 1 et 2 lacunes en couche *2p*, la dépendance de l'état de charge moyen avec l'éclairement sont en contradiction avec les résultats expérimentaux que nous avons obtenus (*cf.* Chapitre IV).

D-3] Agrégats d'argon

Avant le début du travail de thèse présenté dans ce manuscrit, peu d'études se sont consacrées à l'étude de l'émission de rayons X durs issus de l'interaction d'un laser de puissance avec des agrégats d'argon [Larsson & Sjörgen, 1999] [Junkel-Vives et al., 2001]. C'est pourquoi, il ne sera présenté dans ce paragraphe que les résultats obtenus par l'équipe pendant la thèse de S. Dobosz lors d'une collaboration entre le GPS et le DRECAM/SPAM. Ces travaux ont, en particulier, permis de déterminer pour la première fois des taux absolus de photons X ainsi que de commencer à cerner les paramètres sensibles pour la production de rayonnement X lors de l'interaction laser – agrégats. Les travaux plus récents (résultats du groupe du CELIA, de l'équipe de Tribedi ...) obtenus avec ce type d'agrégats seront discutés dans le Chapitre IV consacré à la présentation de nos résultats expérimentaux.

D-3-a) Présentation des résultats expérimentaux

L'émission X ($E_X \sim 3{,}1\ keV$) est attribuée à la présence de lacunes en couche K d'ions fortement multichargés. Les transitions $1s2pnl \rightarrow 1s^2nl$ sont clairement identifiées ainsi que la distribution en état de charge des ions émettant le rayonnement X (entre l'Ar^{11+} et l'Ar^{16+}) comme nous l'illustrons sur la *Figure I-62*. Partant de l'idée évoquée précédemment (*cf.* §I-D-2-a) sur la nécessité d'un éclairement laser important pour la production de rayonnement X, les expériences ont été réalisées en utilisant une parabole hors axe comme système de focalisation du laser afin d'atteindre des éclairements laser supérieurs à $10^{17}\ W/cm^2$. D'autre part, afin de tenter d'appréhender la réponse d'un agrégat unique lors de l'interaction, la configuration expérimentale fut choisie de façon à avoir une faible densité atomique moyenne au niveau de la zone d'interaction ($\sim 10^{14}$ at. / cm^3). Les résultats exposés dans ce paragraphe concernent :

- l'évolution du nombre de photons X ainsi que leur énergie moyenne en fonction de l'éclairement laser (*via* l'énergie par impulsion) et de la taille des agrégats (*via* la pression en amont de la buse de condensation) ;
- l'influence de la polarisation du laser sur l'émission X.

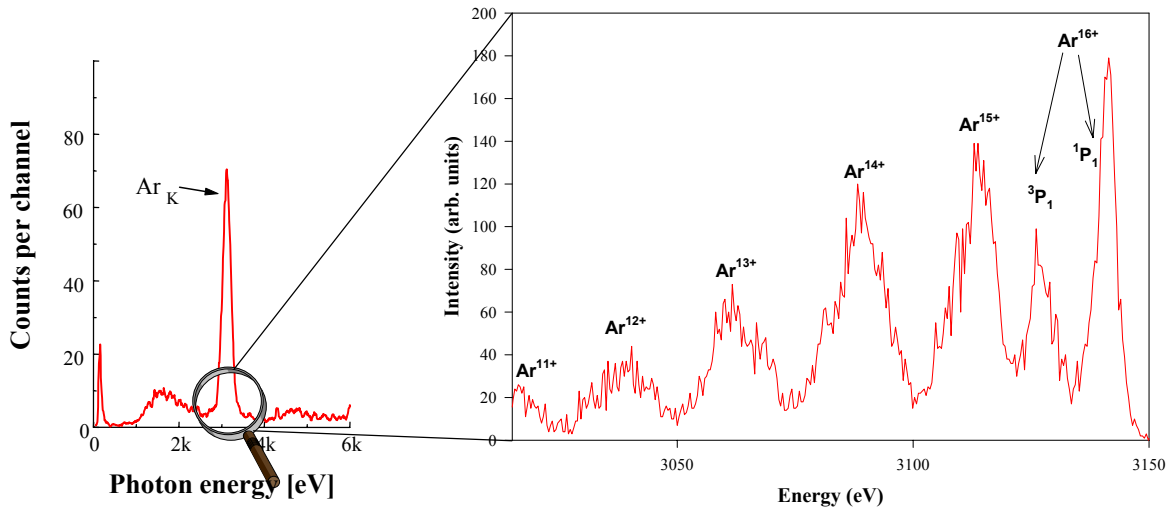


***Figure I-62 :** Spectres X issus de l'irradiation d'agrégats d'argon (P_0 = 18 bars, $I = 5\times10^{17}$ W/cm², τ = 130 fs , λ = 790 nm). La figure de gauche présente le spectre X enregistré par un détecteur Si(Li) tandis que la figure de droite présente un zoom du pic à 3,1 keV enregistré par un spectromètre cristallin (cf. Chapitre II) [Dobosz, 1998].*

1°) Évolution avec l'éclairement laser *via* l'énergie par impulsion

La *Figure I-63* présente l'évolution du taux de photon X (figure du haut) ainsi que de l'énergie moyenne des photons X (figure du bas) en fonction de l'éclairement laser entre 2×10^{17} *W/cm²* et 2×10^{18} *W/cm²* pour des agrégats d'argon contenant de l'ordre de $1{,}2\times10^{6}$ atomes. Cette figure montre une évolution du taux de photons X en $I^{3/2}$ ainsi qu'une énergie moyenne des photons X constante sur toute cette gamme d'éclairement. Un tel comportement est habituellement observé dans le cadre de l'interaction laser – atome et traduit une saturation de la production ionique avec l'éclairement laser : le nombre d'ions augmente comme le **volume focal effectif**. L'émission X, à grand éclairement, suit une telle évolution et indique que le processus d'ionisation en couche interne (K) serait déjà saturé à une intensité de 10^{17} *W/cm²*. Cette évolution en $I^{3/2}$ suppose néanmoins la présence d'un éclairement seuil (I_{seuil}) qui n'a pas été observé lors de ces études ; ceci constituait un des objectifs des différentes campagnes d'expériences exposées dans le Chapitre IV de ce manuscrit.

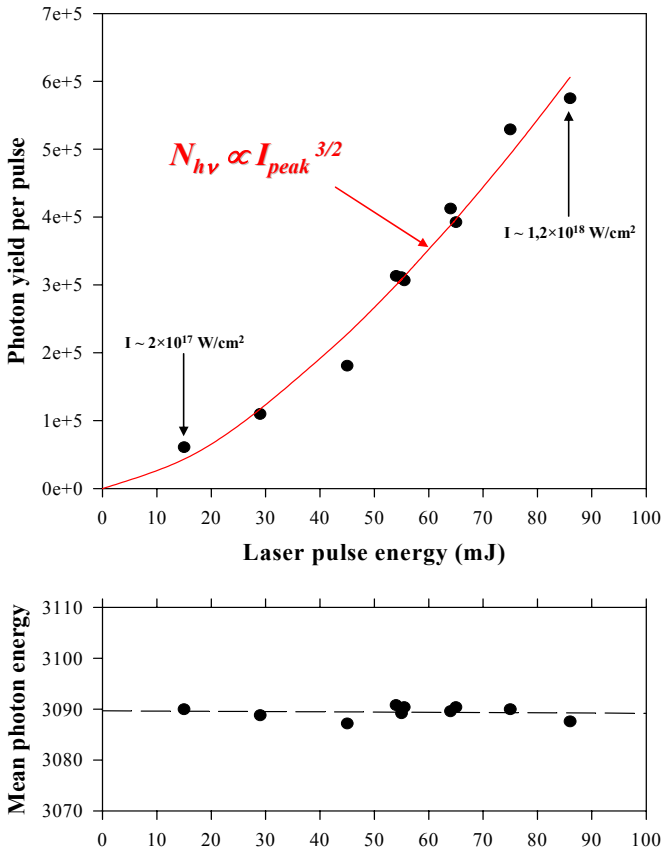


***Figure I-63 :** Évolution du taux d'X (figure du haut) et de l'énergie moyenne des X émis (figure du bas) en fonction de l'éclairement (via l'énergie par impulsion) lors de l'irradiation d'agrégats d'argon (P_0 = 25 bars, τ = 70 fs, λ = 790 nm) [Dobosz, 1998].*

2°) Évolution avec la pression en amont de la buse de condensation

La *Figure I-64* présente l'évolution du taux de photons X (figure du haut) ainsi que de l'énergie moyenne des photons X (figure du bas) en fonction de la pression en amont de la buse de condensation (caractérisant la taille des agrégats) entre 10 *bars* (taille ~ 3×10^5 atomes) et 45 *bars* (taille ~ $4{,}5\times10^6$ atomes) pour un éclairement laser de l'ordre de 10^{18} W/cm^2 ($\lambda = 790$ *nm* et $\tau = 70$ *fs*). Cette figure montre une évolution du taux de photon X en $P_0^{5/3}$ ainsi qu'une énergie moyenne des photons X qui augmente sur cette gamme de taille d'agrégat. Il est à noter que cette augmentation de l'énergie moyenne traduit en fait une augmentation de l'épluchage en couche L des ions émettant le rayonnement X (augmentation de l'état de charge moyen).

Ces premiers résultats ont alors initié la conception d'un modèle dynamique d'ionisation en couche interne développé par l'équipe qui sera présenté dans le Chapitre IV de ce manuscrit. De plus, le programme des différentes campagnes d'expériences que nous avons réalisées avait pour but de tester certaines idées découlant de ce modèle.

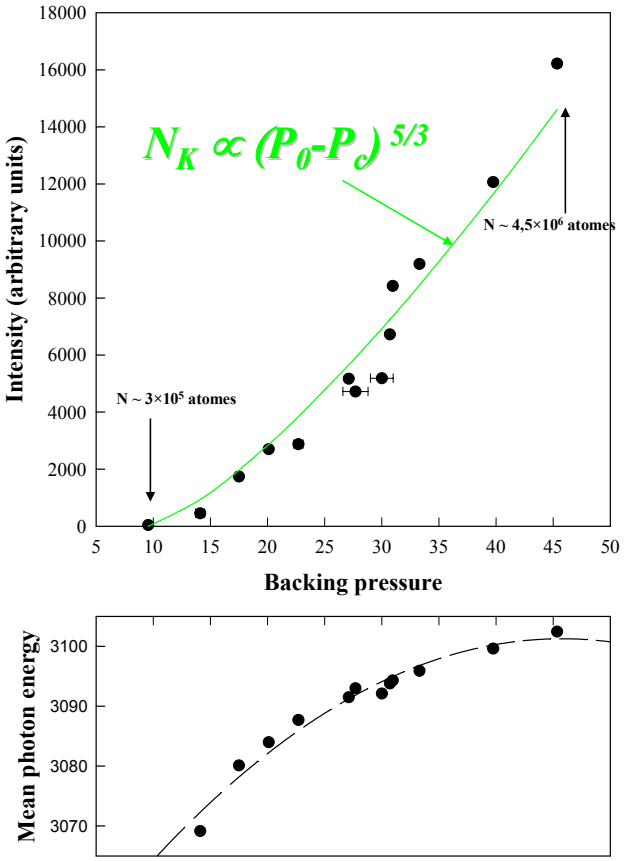


***Figure I-64 :** Évolution du taux d'X (figure du haut) et de l'énergie moyenne des X émis (figure du bas) en fonction de la taille des agrégats (via la pression en amont de la buse de condensation) lors de l'irradiation d'agrégats d'argon ($I = 10^{18}$ W/cm², $\tau = 70$ fs, $\lambda = 790$ nm). $P_{min} = 9$ bars.*

3°) Effet de la polarisation

L'effet de la polarisation linéaire (*s* ou *p*) a enfin été étudié pour les agrégats d'argon [Dobosz, 1998]. En particulier, nous présentons sur la *Figure I-65* les spectres X haute résolution de l'argon pour une polarisation horizontale (*s*) ou verticale (*p*). Aucune différence n'est trouvée tant sur la distribution en état de charge des ions émettant le rayonnement X que sur le taux de photons X, tout comme pour les agrégats de krypton. Les résultats obtenus en polarisation circulaire ne sont pas présentés ici car un problème de déclenchement de l'acquisition empêche une comparaison des spectres haute résolution.

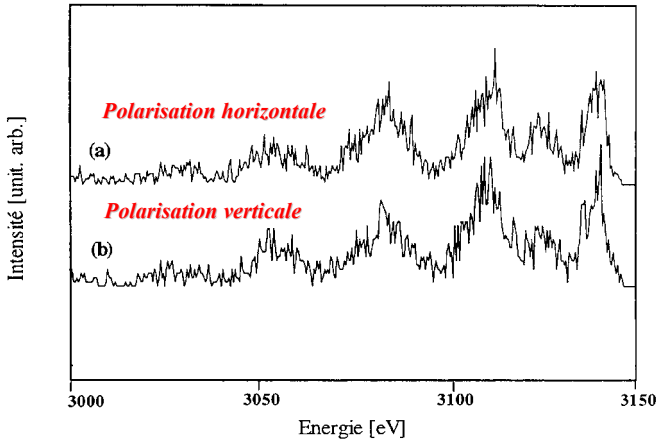


***Figure I-65 :** Spectres d'émission X de haute résolution obtenus en irradiant des agrégats d'argon contenant 1,6×10⁶ atomes avec une impulsion laser d'éclairement crête de 2×10¹⁷ W/cm², $\tau = 130$ fs et $\lambda = 790$ nm, pour une polarisation linéaire horizontale (a) et verticale (b).*

D-3-b) Apport des codes plasma

Une collaboration entre le GPS, J.C. Gauthier et S. Jacquemot a été initiée après l'obtention des premiers résultats afin de simuler les spectres X haute résolution obtenus lors des premières campagnes d'expériences. Deux efforts distincts de modélisation ont été entrepris pour interpréter les spectres X haute résolution obtenus avec des agrégats d'argon :

- simulation du spectre X en supposant la température et la densité électroniques fixées et en ajustant la proportion d'état de charge des ions ayant une lacune en couche K afin de reproduire au mieux le spectre X. Les calculs correspondant à la simulation du spectre X haute résolution ont été effectués avec la chaîne de programme HULLAC mise au point par M. Klapisch et collaborateurs [Bar-Shalom, Klapisch & Oreg, 2001].
- tentative d'étude de la dynamique d'ionisation en tenant compte de l'ionisation tunnel induite par le laser et de l'ionisation collisionnelle qui est traitée de la même manière que dans le modèle nanoplasma (§I-C-1-a).

Ce genre de code "plasma" permet d'avoir une approche complémentaire au modèle nanoplasma présenté précédemment dans la mesure où, cette fois – ci, l'ensemble des configurations électroniques possibles des différents ions sont prises en compte dans ce type de modélisation moyennant la connaissance de la température et de la densité électronique pendant l'interaction. Ces codes permettent également de tenir compte des processus d'autoionisation, de recombinaison et d'excitations collisionnels qui sont négligés dans le modèle nanoplasma.

Il ne sera pas décrit d'une manière exhaustive les différents codes de simulation dans la suite de ce paragraphe car je n'ai pas pris part au développement de ces simulations et j'en ferais donc une brève description, renvoyant le lecteur à des références plus complètes. Nous allons uniquement donner ici les principaux phénomènes physiques introduits dans ces codes ainsi que les résultats essentiels obtenus.

1°) Description succincte des codes plasma

1°-i) La chaîne de programmes HULLAC

Le code HULLAC consiste en une série de programmes dont chaque module est dédié au calcul d'un processus atomique particulier dans le plasma. Ces modules échangent des données entre eux au moyen de fichiers et il est possible de rassembler ces fichiers pour constituer une base de données servant d'entrée à un modèle collisionnel – radiatif dépendant

du temps (le code COLRAD) donnant l'intensité des raies du plasma en fonction de la densité et de la température électroniques moyennes. Dans ce code :

- les énergies des niveaux sont calculées à partir de fonctions d'ondes relativistes solutions de l'équation de Dirac dans un potentiel central paramétrique [Klapisch, 1971] [Klapisch et al., 1977]. Il est tenu compte des termes de Breit, des corrections de QED et de l'interaction entre configurations.
- les transitions électriques dipolaires, quadrupolaires, octopolaires ainsi que les transitions magnétiques dipolaires et quadrupolaires sont prises en compte.
- l'excitation collisionnelle est calculée dans le formalisme de l'approximation "*Distorted Wave*" avec échange, et par la méthode de factorisation – interpolation [Bar-Shalom & Klapisch, 1988].
- l'autoionisation est calculée en prenant en compte explicitement les transitions niveau par niveau entre les états doublement excités de l'ion de charge q vers des états d'énergie inférieure de l'ion "parent" de charge $q+1$. Les taux d'ionisation sont évalués en utilisant la règle d'or de Fermi mais la largeur des niveaux associée aux profils de Fano n'est pas introduite.
- l'ionisation collisionnelle est traitée dans le cadre du formalisme du modèle "*Distorted Wave*" Coulomb – Born en tenant compte des corrélations électroniques [Sobelman, 1972].
- enfin, la recombinaison radiative est calculée de la même manière que les transitions radiatives entre états liés en évaluant les orbitales relativistes du continuum. Il s'agit de transitions de niveau à niveau de l'ion de charge q vers l'ion de charge $q - 1$.

Le code COLRAD permet, *in fine*, moyennant un ajustement de la densité électronique, de la température électronique moyenne, et en admettant un pourcentage relatif de chaque état de charge des ions présentant une lacune en couche K, de simuler le spectre X haute résolution présenté précédemment (*cf.* *Figure I-62*). COLRAD est donc un modèle de type statique ne traitant pas la dynamique de l'interaction. En particulier, les populations ioniques sont admises et il s'agit d'un paramètre ajustable. Par contre, le meilleur ajustement avec un spectre expérimental permet de remonter à la température et à la densité électroniques moyennes au moment de l'émission X.

1°-ii) Le modèle d'ionisation CLUSTER

Ce modèle résout l'équation d'évolution instationnaire des populations ioniques en présence d'un champ laser. Deux processus d'ionisation ont été retenus : l'ionisation tunnel (effet du champ laser) et l'ionisation collisionnelle. La probabilité d'ionisation tunnel est calculée avec la formule ADK (formule [I-B.7]) ou avec la formulation plus récente, mais identique, de Ilkov *et al.* [Ilkov, Decker & Chin, 1992]. Il est également tenu compte de la moyenne temporelle sur un cycle optique des taux d'ionisation. L'ionisation collisionnelle est obtenue dans le cadre de l'approximation de Lotz (formule [I-B.12]) à partir de la formule [I-C.6] développée dans le cadre du modèle nanoplasma. La température électronique est maintenue constante et la densité électronique est calculée de façon auto – consistante à partir des taux d'ionisation mais le volume de l'agrégat est supposé figé (rayon de l'agrégat constant). Ce code fournit la distribution en état de charge des ions ainsi que la densité électronique en fonction du temps, la température électronique restant un paramètre ajustable pouvant être estimée à partir de COLRAD. Ce code fait néanmoins un pas supplémentaire dans la compréhension de la dynamique de l'interaction laser – agrégats par rapport à COLRAD en essayant de traiter cette fois – ci les processus d'ionisation (par effet de champ et collisionnel).

2°) Résultats issus de ces simulations

2°-i) Meilleur ajustement avec COLRAD

Dans les simulations présentées ci – dessous, toutes les configurations d'états simplement ou doublement excités avec un nombre quantique principal $n = 2$ ont été retenues (en particulier, les états de $n \geq 3$ n'ont pas été pris en compte). Toutes les probabilités de transition radiative, les durées de vie d'autoionisation et les sections efficaces d'excitation collisionnelle entre tous les niveaux ont été calculés. Dans le code collisionnel – radiatif (COLRAD), la contribution collisionnelle tient compte à la fois de l'excitation en couche interne et des couplages de "*l-mixing*" entre niveaux doublement excités. Ce code engrange toutes ces données et résout, en fonction du temps, les équations d'évolution des populations des niveaux concernés, en suivant l'histoire des paramètres du plasma : densité et température électroniques. Le meilleur ajustement entre l'expérience ($I = 5\times10^{17}$ *W/cm²*, $\tau = 80$ *fs* et $P_0 = 30$ *bars*) et la simulation issue du code COLRAD est présenté sur la *Figure I-66*.

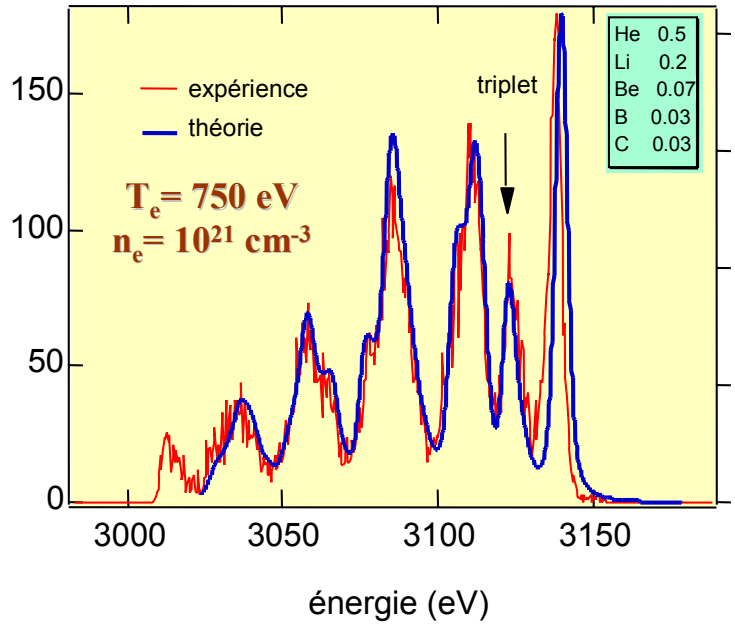


***Figure I-66 :** Modélisation donnant le meilleur ajustement entre l'expérience et le code COLRAD ($n_e = 10^{21}$ cm^{-3} et T_e = 750 eV). L'encart donne les populations relatives des ions ayant initialement une lacune en couche K.*

Dans ces conditions, le meilleur ajustement est obtenu pour **une température électronique de 750 *eV* et une densité électronique de 10^{21} *cm^{-3}*** (moyennant une distribution initiale d'ions présentant une lacune en couche interne donnée dans l'encart de la *Figure I-66*). La valeur extraite de la température électronique donne la valeur moyenne de l'énergie cinétique des électrons du plasma (ou du nanoplasma formé) **au moment** de l'émission X. Il est à noter que cette température est extrêmement faible par rapport à l'énergie moyenne d'oscillation des électrons dans le champ à cet éclairement ($I = 5\times10^{17}$ *W/cm^2*) qui est proche de 30 *keV* mais également par rapport à celle qui est nécessaire pour conduire à une ionisation en couche K de l'argon importante (seuil K d'excitation $1s \rightarrow 2p$ de l'argon à 3,1 *keV*). Les énergies des électrons sont néanmoins assez grandes pour affecter la population relative des différents sous – niveaux excités, ainsi que la distribution en état de charge.

2°-ii) Influence de la température électronique T_e

Lorsque l'on s'intéresse à la sensibilité de la température électronique, on constate, comme le montre la *Figure I-67*, que, lorsqu'elle est augmentée, la population de certaines configurations électroniques baisse légèrement sur l'ensemble des états de charge : modification sur le petit épaulement de ArXVI (Ar^{15+}) et ArXV (Ar^{14+}) et une baisse assez nette de l'intensité de ArXIV (Ar^{13+}) et ArXII (Ar^{12+}).

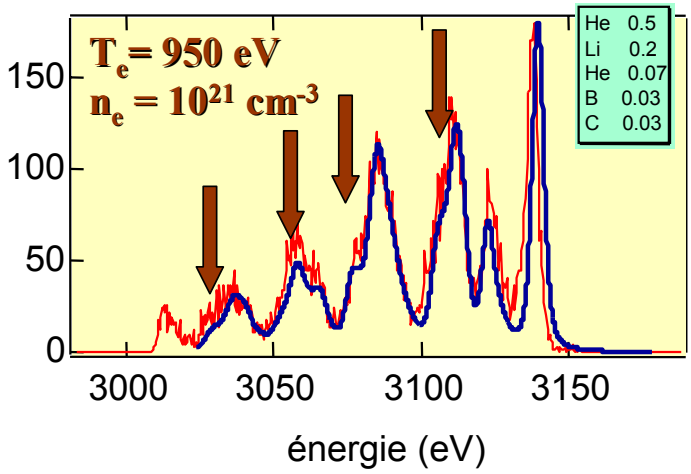


***Figure I-67 :** COLRAD avec T_e = 950 eV et n_e = 10^{21} cm^{-3}.*

2°-iii) Influence de la densité électronique n_e

Une illustration de l'importance de la densité électronique est présentée sur la *Figure I-68* pour laquelle la densité a été changée d'un ordre de grandeur par rapport à la *Figure I-66* (n_e = 10^{22} *cm*$^{-3}$ sur la *Figure I-68* au lieu de n_e = 10^{21} *cm*$^{-3}$ sur la *Figure I-66*). On visualise très bien sur cette figure la forte sensibilité de la raie $^3P_1$ (raie d'intercombinaison) de l'Ar^{16+} dont l'intensité chute lorsque l'on augmente la densité électronique du plasma. Les autres populations sont assez peu modifiées par ce changement brutal de densité.

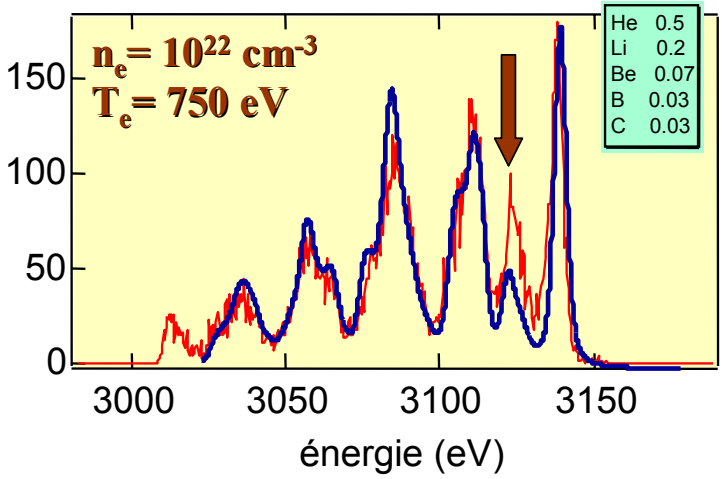


***Figure I-68 :** COLRAD avec T_e = 750 eV et n_e = 10^{22} cm^{-3}.*

2°-iv) Effets des collisions

La sensibilité aux processus collisionnels est illustrée sur la *Figure I-69* où il est présenté une simulation dans laquelle l'excitation collisionnelle a été supprimée artificiellement ainsi que le couplage entre les sous niveaux ("*l mixing*"). Cette figure permet de distinguer l'importance de l'excitation collisionnelle en couche interne dans les processus de peuplement des niveaux doublement excités.

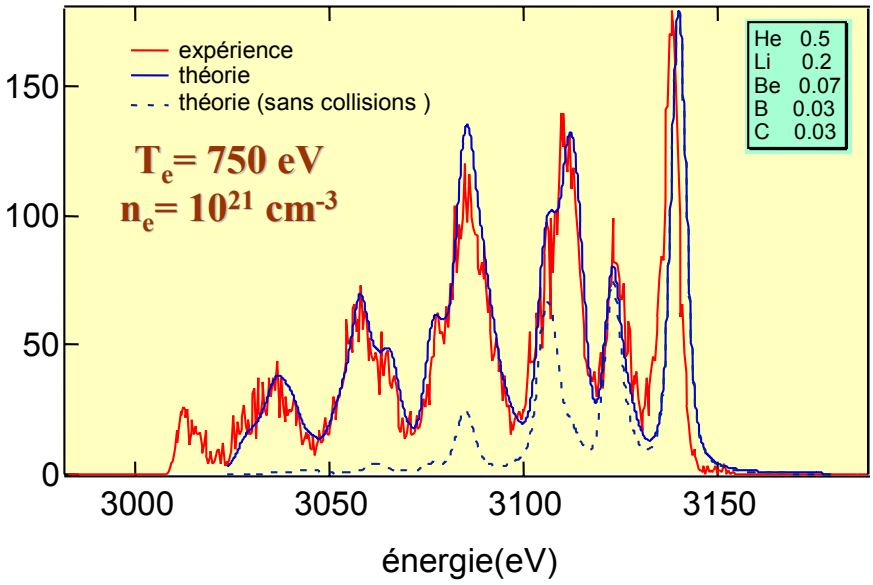


***Figure I-69 :** Comparaison du spectre X haute résolution expérimental avec COLRAD avec les processus collisionnels (courbe en traits pleins) et sans collision (courbe en pointillés) - l'encart donne la distribution initiale en état de charge).*

2°-v) Dynamique d'ionisation avec CLUSTER

Le code CLUSTER résout l'équation d'évolution des populations ioniques suivante :

$$\frac{dN_j(t)}{dt} = \left\{W_{j-1}^{tun}(t) + W_{j-1}^{k_B T_e}(t)\right\} \cdot N_{j-1}(t) - \left\{W_j^{tun}(t) + W_j^{k_B T_e}(t)\right\} \cdot N_j(t) \qquad \textbf{[I-D.4]}$$

Tout comme dans le modèle nanoplasma, les taux d'ionisation dépendent du temps par l'intermédiaire de la variation temporelle de l'intensité laser (ionisation tunnel) et de la densité électronique (ionisation collisionnelle), moyennés sur un cycle optique. Il est supposé que la densité d'atomes dans l'agrégat est de $1{,}8\times10^{22}$ cm^{-3} (densité atomique proche du solide) mais le rayon de l'agrégat est considéré comme fixe (pas d'expansion ni *a fortiori* d'explosion de l'agrégat). La *Figure I-70* présente l'évolution temporelle des populations ioniques relatives pour une température électronique de 1 500 eV et de 750 eV qui est la gamme de température électronique moyenne que l'on peut déduire des spectres issus de la comparaison entre COLRAD et l'expérience. La courbe en pointillés sur cette figure donne la forme de l'impulsion laser.

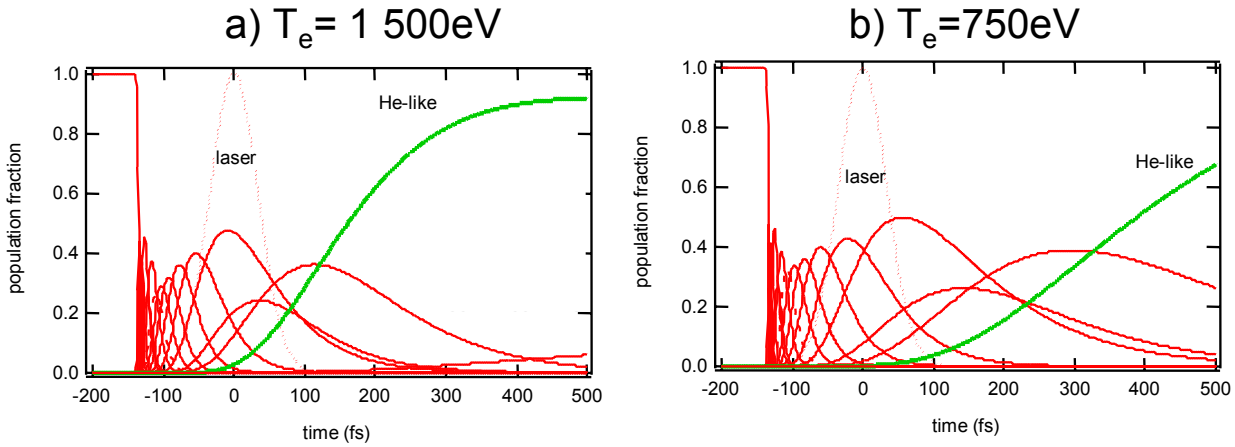


Figure I-70 : Simulations CLUSTER pour une intensité laser de 5×10^{17} W/cm² et une température électronique de a) 1 500 eV et b) 750 eV.

Dans ces simulations, l'intensité d'apparition de l'ArIX (Ar^{8+}) est compatible avec la valeur couramment admise de $2{,}7\times10^{16}$ *W/cm²*. Par contre la densité électronique trouvée dans les simulations CLUSTER est supérieure à 2×10^{23} *cm⁻³*, ce qui est en contradiction avec la densité électronique déduite du rapport d'intensité $^3P_1$ et $^1P_1$ de la raie de résonance $1s2p - 1s^2$ de l'Ar^{16+} qui était de 10^{21} *cm⁻³* dans les simulations COLRAD. Les populations ioniques relatives ne sont, *a contrario*, pas **incompatibles** avec les résultats du code COLRAD comme le montre la *Figure I-71*. Néanmoins, il est nécessaire d'intégrer dans le temps jusqu'à 1 *ps* les populations présentées sur la *Figure I-70-b* pour reproduire les résultats issus de COLRAD.

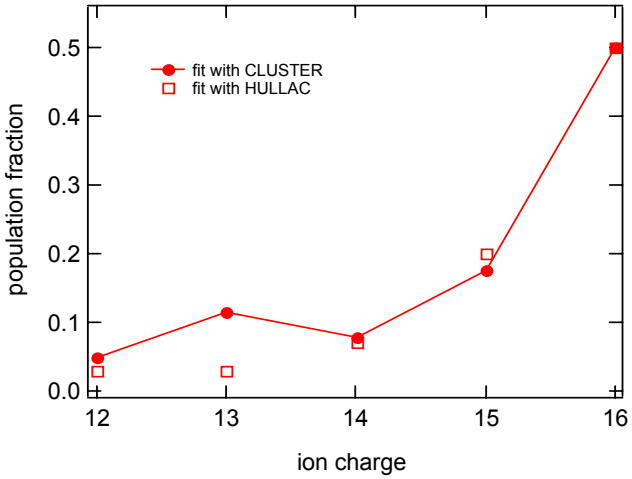


Figure I-71 : Populations ioniques relative ; comparaison entre les résultats de COLRAD et ceux de HULLAC.

3°) Perspective : le modèle AGREGIX

À la suite de ces premières simulations par le code COLRAD, S. Jacquemot a développé un programme permettant de suivre, en quelque sorte en temps réel, l'émission X lors de l'interaction. Dans ce code, une distribution électronique de type monocinétique est supposée (oscillation des électrons dans le champ laser) et sont inclus l'ionisation par effet de champ,

l'ionisation collisionnelle, l'excitation collisionnelle et la désexcitation ainsi que les transitions radiatives. Dans ce code :

- les énergies des niveaux (en couplage intermédiaire) ainsi que les probabilités radiatives sont calculées par le programme SUPERSTRUCTURE ;
- les probabilités d'autoionisation sont obtenues par le programme AUTOLSJ ;
- les sections efficaces d'excitation et d'ionisation collisionnelles sont issues du code HULLAC décrit précédemment.

Ce code permet en plus de tenir compte de l'expansion de l'agrégat à partir de la même équation d'évolution que celle décrite pour le modèle nanoplasma de Ditmire (formule [I-C.35]). Des premiers résultats ont été obtenus :

- en considérant le rayon de l'agrégat constant durant l'interaction :
  - les raies C → Li – like (Ar^{12+} → Ar^{15+}) semblent émises pendant la montée de l'impulsion laser et les raies He – like représente moins de 2 % du spectre.
  - si on intègre sur un temps de l'ordre de 100 *fs* après le maximum de l'impulsion laser, l'intensité des raies He – like augmente et sature mais les faibles états de charge (Ar^{12+} → Ar^{14+}) ne sont pas reproduits correctement.
- en tenant compte de l'explosion de l'agrégat uniquement par explosion coulombienne :
  - l'apparition des états de charge est retardée ;
  - l'intensité des raies He – like est "figée" et inférieure à 2 % ;
  - à t – 60 *fs* avant le maximum de l'impulsion, la charge coulombienne est suffisante pour entraîner l'explosion de l'agrégat.

Ce code de simulation fait actuellement encore l'objet de développements théoriques au LULI afin d'améliorer la prise en compte des différents processus intervenant lors de l'interaction. A ce stade, on est encore loin de comprendre la dynamique de la production du rayonnement X observé expérimentalement.

D-4] bilan sur la spectroscopie X

L'émission de rayons X durs (> 1 *keV*) issus de l'interaction laser – agrégats de gaz rare est attribuée à la présence de lacunes en couches internes d'ions fortement multichargés :

- Pour le krypton : lacune(s) en couche L avec un état de charge compris entre 24+ et 27+ ;
- Pour le xénon : lacune(s) en couche L avec un état de charge compris approximativement entre 30+ et 40+.
- Pour l'argon : lacune en couche K avec un état de charge compris entre 11+ et 16+ ;

Les différents modèles théoriques envisageant (IIM), justifiant (CEMM) ou reproduisant (code plasma "statique" comme COLRAD) la production de rayons X durs ne sont pas, à l'heure actuelle, des modèles complets traitant, sur un même pied d'égalité, l'ensemble des processus intervenant lors de la dynamique de l'agrégat sous champ laser intense : ionisation par effet de champ, dynamique d'expansion de l'agrégat, chauffage des électrons, processus collisionnels du type excitation et ionisation, désexcitation radiative (émissions de photons) ou non radiative (électrons Auger) … Précisons que le modèle nanoplasma, détaillé au §I-C-1, ne peut prévoir ni la production de tels états de charge à ces éclairements laser ni la présence de lacunes en couche interne pour les ions dans le nanoplasma (pas de traitement des configurations électroniques). Du point de vue expérimental, les quelques essais de comparaison réalisés jusqu'à présent ont été faits à partir de données obtenues sur des dispositifs expérimentaux différents et / ou pour des conditions expérimentales assez différentes rendant les lois d'échelle obtenues contestables (comme la loi en λ^{-6} ou λ^{-7} de K. Kondo *et al.*). Hormis les premiers résultats obtenus par l'équipe et présentés dans la thèse de S. Dobosz, il n'existe pas de résultats systématiques de l'évolution de l'émission X en fonction des différents paramètres expérimentaux et dans des conditions contrôlées, *i.e.* en faisant varier un seul paramètre à la fois, ce qui permet d'étudier la sensibilité de l'émission X à cet unique paramètre. D'autre part, la plupart des expériences réalisées en spectroscopie d'X restent assez qualitatives et il existait avant le début du travail présenté dans ce manuscrit très peu d'études quantitatives.

Enfin, la spectroscopie de rayons X durs, de par l'étude des transitions radiatives ayant une durée de vie comprise entre quelques dizaines de femtosecondes et quelques centaines de femtosecondes au maximum, constitue une sonde temporelle du même ordre de grandeur que la durée de l'impulsion laser, contrairement aux études de spectroscopie d'ions et d'électrons qui intègrent la réponse de l'agrégat sur des durées importantes. Cette méthode expérimentale permet donc d'avoir accès à la dynamique de l'interaction sur des échelles de temps inférieures à la picoseconde et constitue, de ce point de vue, un outil précieux pour l'étude de l'interaction laser – agrégats.

Chapitre II

Démarche expérimentale :

Contrôle et optimisation des paramètres sur l'émission X

"L'observation est l'investigation d'un phénomène naturel
et l'expérience est l'investigation d'un phénomène modifié par l'investigateur"
Claude Bernard (1813 – 1878)
Physiologiste

Plan détaillé du Chapitre

CHAPITRE II DEMARCHE EXPERIMENTALE : CONTROLE ET OPTIMISATION DES PARAMETRES SUR L'EMISSION X 105

A] INTRODUCTION 108

B] LE LASER 110

B-1] PRESENTATION GENERALE DU SERVEUR LUCA 110
B-1-a) Oscillateur femtoseconde 111
B-1-b) Etirement et compression de l'impulsion 112
B-1-c) Amplification 112
1°) Amplificateur régénératif 113
2°) Amplificateur multipassages 113
B-2] ÉCLAIREMENT LASER 113
B-2-a) Durée d'impulsion : 114
1°) Principe de l'autocorrélateur à échantillonnage 115
2°) Estimation des aberrations temporelles 117
2°-i) Origine des aberrations 117
2°-ii) Calcul des aberrations et exemple de simulation 119
2°-iii) Résultats pour la lentille 121
2°-iv) Résultats pour le hublot 122
B-2-b) Rayon de la tâche focale 122
1°) Principe de la mesure 122
2°) Procédure de dépouillement des images 123
3°) Résultats 124
B-2-c) Énergie par impulsion 125
1°) Principe de la mesure 125
2°) Résultats 126
B-3] CONTRASTE 127
B-4] GENERATION D'IMPULSION A 400 NM 130
B-4-a) Caractéristique spatiale 130
B-4-b) Caractéristique temporelle 130
B-5] POLARISATION LINEAIRE / CIRCULAIRE 133
B-6] RECAPITULATIF 134

C] LE JET D'AGREGATS 136

C-1] GENERALITES PHYSIQUES DES AGREGATS DE GAZ RARE 136
C-1-a) Potentiel d'interaction 136
C-1-b) Structure cristalline 137
C-1-c) Déplacement des niveaux d'énergie 138
1°) Evolution du premier potentiel d'ionisation avec la taille 139
2°) Evolution de l'énergie de liaison des électrons internes avec la taille 139
C-2] FORMATION DES AGREGATS 141
C-2-a) Principe de fonctionnement d'une source d'agrégats 141
C-2-b) Thermodynamique de la formation et de la croissance des agrégats 142
C-2-c) Conditions thermodynamiques et cinématiques d'un jet supersonique pulsé 144
C-3] CARACTERISTIQUES INTRINSEQUES DU JET D'AGREGATS 146
C-3-a) Estimation de la taille des agrégats via des lois semi – empiriques issues de la spectroscopie de masse 147
1°) Théorie d'Hagena 147
2°) Application à nos conditions expérimentales 150
C-3-b) Apport des mesures optiques 151
1°) Densité atomique moyenne 152
2°) Taux de condensation et rayon moyen des agrégats 154
3°) Taille moyenne des agrégats 155
C-4] BILAN 155
C-4-a) Distribution en taille des agrégats 156
C-4-b) Récapitulatif : estimation de la taille des agrégats 157

D] LA DETECTION X 161

D-1] DETECTEURS SI(LI) 162
D-1-a) Efficacité des détecteurs Si(Li) *163*
D-1-b) Angle solide *165*
D-1-c) Résolution *166*
D-1-d) Étalonnage en énergie *166*
D-1-e) Transmission des filtres *168*
D-1-f) Transmission totale des détecteurs Si(Li) *169*
D-2] SPECTROMETRE CRISTALLIN 169
D-2-a) Détecteur à localisation *170*
D-2-b) Cristal *172*
D-2-c) Transmission totale *175*
D-2-d) Caractéristiques du spectromètre cristallin *175*
1°) Contrôle de l'uniformité de l'efficacité du détecteur à localisation 175
2°) Étalonnage en énergie du détecteur à localisation 176
3°) Plage angulaire et uniformité de la réflectivité du cristal 177
4°) Dispersion et plage en énergie du détecteur à localisation 179
5°) Résolution 180
6°) Récapitulatif 181
D-3] ÉLECTRONIQUE ASSOCIEE ET CHAINE D'ACQUISITION 183

E] OPTIMISATION DU RECOUVREMENT SPATIAL DE L'IMPULSION LASER ET DU JET D'AGREGATS 185

E-1] DELAI VANNE – LASER 186
E-2] TRANSLATION XY DU JET D'AGREGATS 188
E-3] DEPLACEMENT EN $\mathscr{Y}$ DE LA LENTILLE 189

A] Introduction

Le schéma synoptique du dispositif expérimental utilisé lors des expériences décrites dans ce manuscrit est présenté sur la *Figure II-1*.

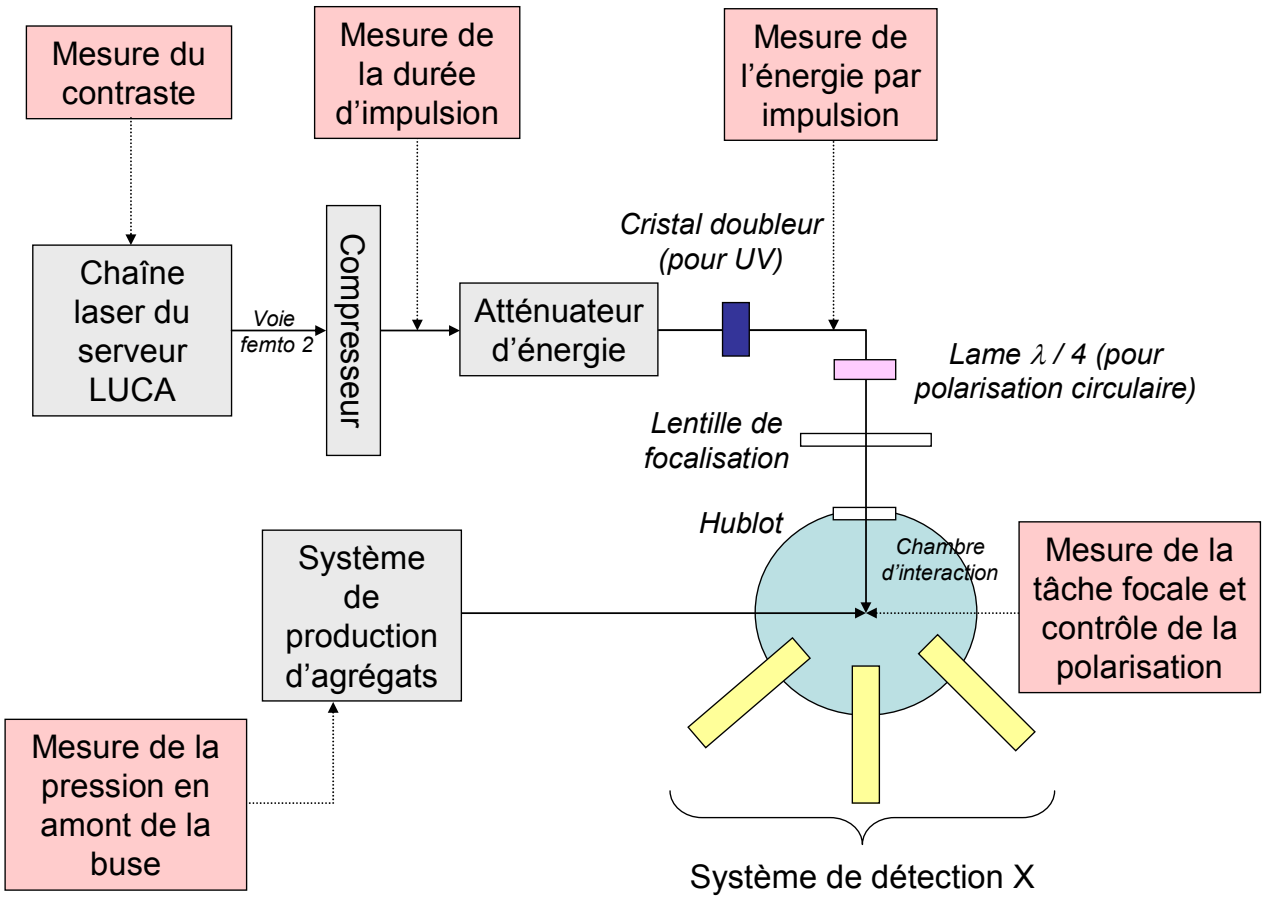


***Figure II-1 :* Schéma général du dispositif expérimental.**

Le faisceau laser issu du serveur LUCA (Laser Ultra – Court Accordable) est focalisé à l'aide d'une lentille convergente à l'intérieur de la chambre d'interaction et croise en son centre le jet d'agrégats. Celui – ci est produit par expansion adiabatique d'un gaz rare sous une pression P_0 (Argon, Krypton, Xénon) à travers un embout de petit diamètre (buse de condensation). Une vanne à action rapide permet la formation de "pulse" d'agrégats qui doivent être synchronisés avec l'arrivée de l'impulsion laser au centre de la chambre d'interaction. Afin de mener à bien les études quantitatives sur l'émission X que nous avons entreprises, il a été nécessaire de contrôler, lors des différents campagnes d'expériences, les paramètres physiques intervenant lors de l'interaction tant en ce qui concerne le laser (éclairement, durée d'impulsion, polarisation, …) que les agrégats (densité atomique moyenne, taille). Il sera donc présenté

dans ce chapitre les études qui ont été menées afin de contrôler les grandeurs pouvant influer sur l'émission du rayonnement X tant en ce qui concerne le laser (partie B de ce chapitre) que le jet d'agrégats (partie C de ce chapitre). Le système de détection est composé de trois détecteurs X (2 détecteurs Si(Li) + 1 spectromètre cristallin) et permet de déterminer les caractéristiques fondamentales du rayonnement X émis lors de l'interaction du laser avec les agrégats : taux absolu de photons X et distribution en état de charge des ions émettant le rayonnement X. Il sera présenté dans la partie D de ce chapitre les propriétés fondamentales du système de détection utilisé. Enfin, nous présenterons dans la partie E les expériences qui concernent plus spécifiquement l'optimisation du recouvrement spatial entre l'impulsion laser et le pulse d'agrégats par l'intermédiaire de l'émission X.

B] Le laser

Le développement ces dernières années des sources lasers ultra – courtes (jusqu'à quelques dizaines de femtosecondes) et intenses (~ *TW*) a été rendu possible grâce à l'utilisation combinée de l'oxyde d'aluminium dopé au titane ($Ti:Al_2O_3$) comme milieu amplificateur et de la technique CPA (*"Chirp Pulse Amplification"*) [Mourou, Barty & Perry, 1998] [Perry & Mourou, 1994]. De tels lasers de puissance sont maintenant présents dans de nombreux laboratoires à travers le monde et il est actuellement possible de caractériser parfaitement les impulsions laser délivrées par ces sources femtosecondes tant du point de vue spectral et temporel que spatial. Le serveur LUCA (Laser Ultra – Court Accordable) du CEA Saclay, utilisé lors des expériences décrites dans ce manuscrit, est un laser femtoseconde de puissance qui bénéficie de la présence de nombreux diagnostics en ligne permettant de caractériser au mieux les impulsions laser. Nous allons détailler, dans un premier temps, le principe général de fonctionnement du laser femtoseconde utilisé puis nous présenterons les propriétés intrinsèques de la lumière laser venant interagir avec le jet d'agrégats au niveau de la zone d'interaction et comment nous les avons contrôlées.

B-1] Présentation générale du serveur LUCA

Le serveur LUCA, dont nous présentons sur la *Figure II-2* le schéma synoptique, est un laser femtoseconde de type titane saphir basé sur l'amplification à dérive de fréquence (CPA). Cette technique consiste à amplifier des impulsions laser à des énergies supérieures au *mJ* après les avoir étirées temporellement. Il est ensuite possible, en théorie, de les comprimer à leur durée initiale ce qui permet alors d'atteindre des puissances crêtes très grandes (supérieures au *TW*). Cette technique CPA évite des dommages dans les milieux amplificateurs qui auraient lieu sans l'étirement temporel de l'impulsion. Deux voies sont présentes sur le serveur LUCA, alimentant en parallèle plusieurs dispositifs expérimentaux. Nous avons utilisé la voie *femto 2* qui est la voie haute énergie (jusqu'à 100 *mJ*) permettant d'atteindre des puissances crête de l'ordre de 2 *TW*. Une partie du serveur est commune aux deux voies ; il s'agit de l'oscillateur, de l'amplificateur régénératif et du "booster" (1er étage de l'amplification multipassages) présentés brièvement dans la suite.

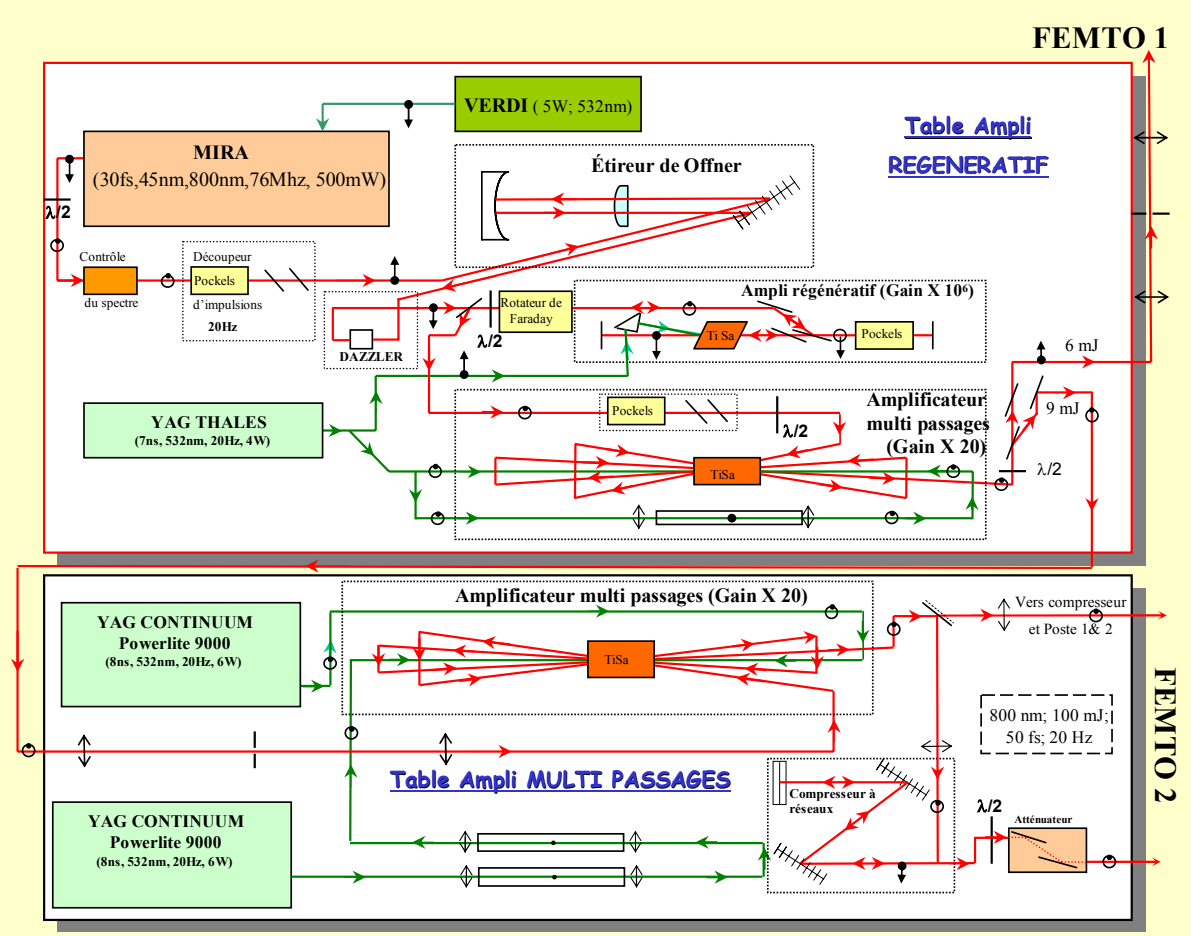


***Figure II-2 :** Schéma de fonctionnement du serveur LUCA.*

B-1-a) Oscillateur femtoseconde

L'oscillateur à la base de la génération d'impulsions femtosecondes et présent sur le serveur LUCA est de type MIRA de la société COHERENT. La génération d'impulsions femtosecondes repose sur la mise en phase des différents modes longitudinaux existant dans la cavité laser. Ce blocage de mode (*"mod blocking"*) est réalisé en modulant les pertes de la cavité avec un élément dont la transmission augmente avec l'intensité qui le traverse. La focalisation résonante qui en résulte (effet Kerr optique) favorise alors la formation de l'impulsion femtoseconde au détriment de l'impulsion lumineuse continue. Le milieu amplificateur présent dans la cavité est un barreau de titane saphir et l'inversion de population est obtenue grâce à un laser de pompe argon ionisé (laser continu à gaz de type VERDI) fonctionnant à une longueur d'onde de 532 *nm* et délivrant une puissance continue de 5 *W*. A la sortie de l'oscillateur, des impulsions de 30 *fs* sont obtenues à une fréquence de 76 *MHz* contenant une énergie maximale de 6 *nJ*. Un découpeur d'impulsion (cellule de Pockels) réduit le taux de répétition à 20 *Hz*.

B-1-b) Etirement et compression de l'impulsion

L'étirement temporel de l'impulsion femtoseconde issue de l'oscillateur s'obtient par la dispersion négative dans un étireur à réseaux en position anti – symétrique dont nous présentons le principe générique de fonctionnement sur la *Figure II-3-a*.

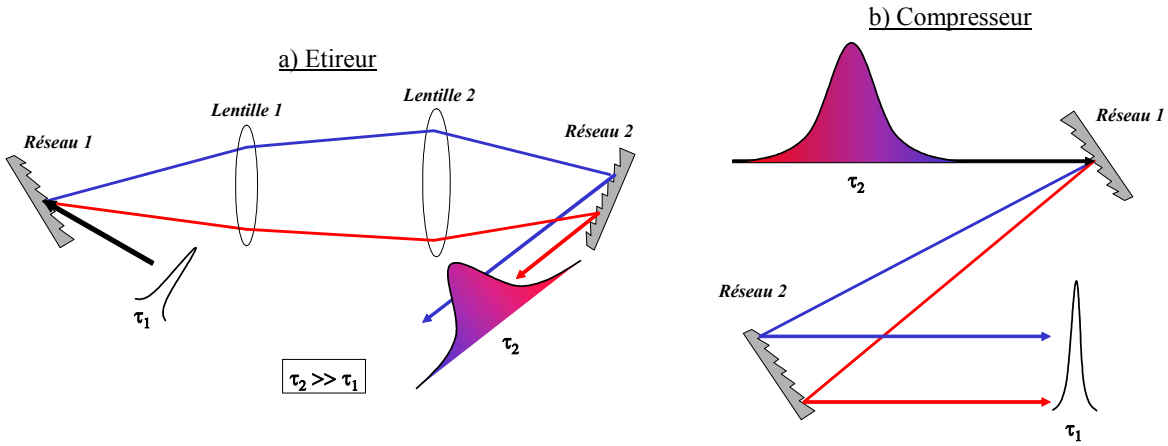


Figure II-3 : Schéma de principe de l'étireur (a) et du compresseur (b) à réseaux.

Il s'agit, dans cette ligne à retard dispersive, de faire suivre aux différentes longueurs d'onde composant le spectre de l'impulsion des chemins optiques différents, afin que les plus grandes longueurs d'onde parcourent un chemin optique plus important que les courtes longueurs d'onde. Ce dispositif permet de garder, en première approximation, le même spectre en fréquence que l'oscillateur et de répartir les longueurs d'onde dans le temps obtenant ainsi une impulsion temporellement élargie. Sur le serveur LUCA, un facteur d'élargissement de l'ordre de 10^4 est obtenu grâce à l'étireur de Offner (entrée : $\tau = 30$ *fs* $\rightarrow$ sortie $\tau = 300$ *ps*). Cet étireur de Offner est un système achromatique évitant les aberrations spatio – temporelles présentes avec un étireur classique à lentilles. La compression de l'impulsion (*cf. Figure II-3-b*), reposant sur le même principe que l'étirement, est obtenue en fin de chaîne à l'aide d'un couple de réseaux en position parallèle qui induit, cette fois – ci, une dispersion positive. Cette dispersion doit compenser celle de l'étireur ainsi que tous les défauts de phase spectrale engendrés pendant l'amplification. Le compresseur à réseaux présent sur notre voie permet d'obtenir au mieux une durée d'impulsion de 50 *fs* et de conserver, en première approximation, la longueur d'onde et la largeur spectrale de l'impulsion.

B-1-c) Amplification

Plusieurs étages d'amplification sont présents sur le serveur LUCA :

- un amplificateur régénératif ;
- deux étages d'amplificateurs multipassages.

Cette configuration permet au final d'obtenir une impulsion laser ayant une énergie maximale proche de 100 *mJ* sur la foie *femto 2* après le compresseur. Le principe de fonctionnement de ces différents étages d'amplification est présenté ici succinctement.

1°) Amplificateur régénératif

L'amplificateur régénératif est une cavité laser servant à piéger l'impulsion à amplifier. L'impulsion est injectée par des rotations de polarisation (rotateur de Faraday) puis est extraite au moyen d'une cellule de Pockels (lame d'onde pilotée électroniquement) lorsque le niveau d'amplification atteint son maximum. Cette cavité est constituée d'un barreau de titane saphir pompé par un laser YAG doublé en fréquence. Dans un amplificateur régénératif, le nombre de passage est de l'ordre de 50 et, à la sortie, l'énergie des impulsions est de l'ordre de 1 *mJ*, ce qui correspond à un gain de 10^6 par rapport à l'entrée de l'amplificateur régénératif.

2°) Amplificateur multipassages

Deux étages d'amplification multipassages sont présents sur le serveur LUCA après l'amplificateur régénératif. L'amplification multipassages consiste à utiliser une structure de type papillon grâce à des miroirs de replis permettant à l'impulsion laser de passer plusieurs fois, et par des trajets différents, dans le milieu amplificateur (cristal de titane saphir) pompé à l'aide d'un (ou deux laser) YAG doublé en fréquence. Chaque amplificateur multipassages a un gain de l'ordre de 20 et permet de conserver, en première approximation, le même spectre fréquentiel (*i.e.* avec la même longueur d'onde et la même largeur spectrale).

B-2] Éclairement laser

La détermination de l'éclairement crête (ou intensité au pic) au foyer de l'optique de focalisation, caractéristique du champ électrique, se fait à l'aide à la relation suivante :

$$I_0\left(W/cm^2\right) = \frac{E_{eff.}(J)}{S\left(cm^2\right) \times 2 \cdot \tau_{eff.}(s)} \qquad \textbf{[II-B.1]}$$

L'hypothèse d'un faisceau temporellement et spatialement gaussien conduit à une expression pour $I(r,t)$ de la forme suivante [Cagnac & Faroux, 2002] :

$$I(r,t) = I_0 \cdot \exp\left(\frac{-2r^2}{w_0^2}\right) \cdot \exp\left(\frac{-2t^2}{\tau^2}\right) \qquad \textbf{[II-B.2]}$$

avec w_0 et τ respectivement le rayon et la demi largeur à $1/e^2$ en intensité.

Le calcul de cet éclairement crête et son contrôle lors des expériences nécessitent la connaissance des trois grandeurs physiques suivantes :

- la durée "effective" de l'impulsion au niveau de la zone d'interaction : $\tau_{eff.}$

Dans le cas d'un faisceau temporellement gaussien, cette durée effective est définie par :

$$\tau_{eff.} = \int_0^{\infty} \exp\left(\frac{-t^2}{\tau^2}\right) \cdot dt \qquad \textbf{[II-B.3a]}$$

$$\text{Soit : } \tau_{eff.} = \frac{\sqrt{\pi}}{2\sqrt{2}} \cdot \tau \qquad \textbf{[II-B.3b]}$$

La demi – largeur à $1/e^2$ (τ) et la demi – largeur à mi – hauteur $\left(\tau_{FWHM}\right)$ sont reliées par :

$$\tau = \sqrt{\frac{2}{\ln 2}} \cdot \tau_{FWHM} \qquad \textbf{[II-B.4a]}$$

$$\text{ainsi : } 2 \cdot \tau_{eff.} = \frac{\sqrt{\pi}}{2.\sqrt{\ln 2}} \cdot 2\ \tau_{FWHM} = \frac{\sqrt{\pi}}{2.\sqrt{\ln 2}} \cdot \Delta t \qquad \textbf{[II-B.4b]}$$

avec Δt la durée totale à mi – hauteur qui est la grandeur mesurée expérimentalement.

- la surface "effective" du faisceau laser au foyer de la lentille : S

Dans le cas d'un faisceau spatialement gaussien, cette surface S est définie par :

$$S = \pi \cdot \sigma^2 = \int_0^{\infty} 2\pi \cdot r \cdot \exp\left(-\frac{2r^2}{w_0^2}\right) \cdot dr \qquad \textbf{[II-B.5a]}$$

avec w_0 le rayon à $1/e^2$ en intensité, le paramètre σ est relié à w_0 par l'expression :

$$\sigma = \frac{w_0}{\sqrt{2}} \qquad \textbf{[II-B.5b]}$$

Ce paramètre σ est également appelé rayon quadratique moyen.

- l'énergie "effective" par impulsion contenue dans la tâche focale de surface S : $E_{eff.}$ définie à partie de l'énergie mesurée par : $E_{eff.} = \kappa \times E_{mesurée}$ **[II-B.5c]**

Nous allons détailler dans ce paragraphe comment nous avons contrôlé ces trois paramètres fondamentaux ($\tau_{eff.}$, S, $E_{eff.}$).

B-2-a) Durée d'impulsion :

La durée des impulsions émises par des lasers sub – picoseconde est trop courte pour pouvoir être mesurée directement par des moyens électroniques classiques (détecteurs photoniques rapides de type photodiodes ou même caméras à balayage). En effet, aucun

élément opto – électronique n'est suffisamment rapide pour fournir un signal électronique permettant d'évaluer directement la durée de telles impulsions. Les premières techniques, proposées il y a maintenant plus de quinze ans et encore très utilisées aujourd'hui, font appel au principe de la corrélation optique [Salin , 2001 #678] [Rullière, 1998]. D'une façon générale, deux classes d'autocorrélateurs peuvent être utilisées :

- la première permet de caractériser des impulsions dont la récurrence est faible, et la caractérisation temporelle se fait uniquement sur une impulsion : ce sont les autocorrélateurs monocoup [Salin et al., 1987] ;
- la deuxième fait appel à des techniques d'échantillonnage et se basent sur la récurrence et la reproductibilité des impulsions à caractériser temporellement [Colombeau, Froehly & Vampouille, 1980] : il s'agit des autocorrélateurs par échantillonnage ou à balayage présents sur le laser LUCA.

Ces deux types de mesure s'appuient sur le même principe de base qui consiste en l'utilisation d'un effet non linéaire (doublement de fréquence ou *"Single Harmonic Generation" SHG* dans un cristal de KDP ou de BBO) suivi de la mesure du flux émis à la fréquence double. La grande stabilité de la source LUCA (stabilité énergétique ~ 2 %) ainsi que son taux de répétition relativement élevé (20 *Hz*) permettent d'utiliser la deuxième classe d'autocorrélateur : autocorrélateur par échantillonnage. Cette mesure de la durée d'impulsion, incorporée en permanence comme moyen de diagnostic sur le laser LUCA, s'effectue cependant avant notre système de focalisation (lentille) et l'entrée dans la chambre d'interaction (hublot). Des aberrations temporelles peuvent donc être introduites par ces éléments traversés et nous présenterons ensuite des simulations permettant d'évaluer la durée d'impulsion au niveau de la zone d'interaction.

1°) Principe de l'autocorrélateur à échantillonnage

Le principe de l'autocorrélateur à échantillonnage en temps réel est représenté schématiquement sur la *Figure II-4*.

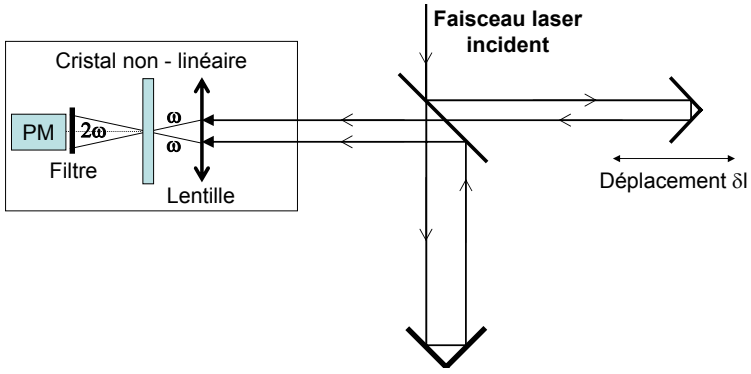


Figure II-4 : Schéma de principe de l'autocorrélateur à échantillonnage en temps réel.

Le faisceau laser incident est divisé en deux demi – faisceaux par une lame semi – réfléchissante et envoyé dans un interféromètre de type Michelson. Les deux demi – faisceaux parallèles (autocorrélation intensimétrique) sont ensuite focalisés au moyen d'une optique (lentille) sur le cristal non linéaire. Un filtre permet d'éliminer la fréquence fondamentale (ω) et de détecter le flux émis à la seconde harmonique (2ω) sur un photomultiplicateur (*PM*). La taille du cristal ainsi que son orientation sont choisies de façon à ce que le doublage ne puisse se produire que pour une vibration incidente dirigée selon la bissectrice des deux directions des demi – faisceaux incidents. Dans ces conditions, un seul faisceau ne respecte pas l'accord de phase et il ne peut donc pas y avoir génération de la seconde harmonique. De plus, s'il n'y a pas superposition temporelle entre les deux faisceaux aucun signal à 2ω n'est détecté. Le principe du recouvrement temporel des deux impulsions issues de l'interféromètre est représenté sur la *Figure II-5*.

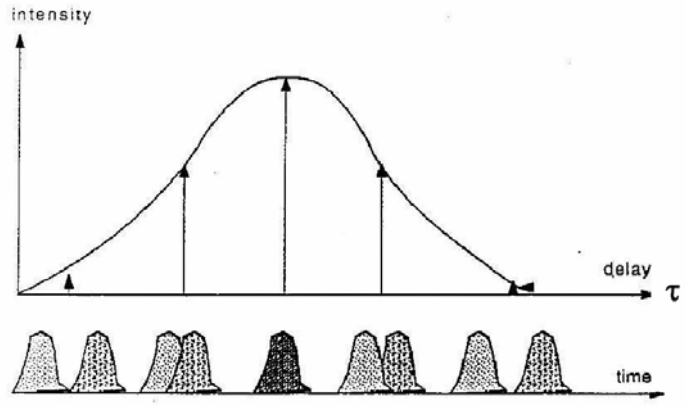


Figure II-5 : Principe de l'autocorrélation intensimétrique.

Pour un retard donné T entre les deux bras de l'interféromètre (réalisé *via* une différence de longueur entre les deux bras $\delta l = c.T$), le signal à 2ω, $S(t,T)$, sera donné par :

$$S(t,\mathrm{T}) \propto I(t-\mathrm{T}) \times I(t) \qquad \textbf{[II-B.6a]}$$

$I(t)$ étant le profil temporel de l'intensité sur chacun des demi – bras de l'interféromètre. La fonction $S(T)$ obtenue en fonction du délai T est alors de la forme :

$$S(\mathrm{T}) \propto \int I(t-\mathrm{T}) \times I(t) \cdot dt \qquad \textbf{[II-B.6b]}$$

La durée d'impulsion s'obtient ensuite en effectuant certaines hypothèses concernant la forme du profil temporel de $I(T)$. Deux formes d'impulsions sont généralement utilisées :

- le profil gaussien : dans ce cas, le facteur de déconvolution est de 1,41 ;
- le profil sécante hyperbolique, qui conduit à un facteur de déconvolution de 1,55.

Un programme LABVIEW, développé par l'équipe FEMTO du LUCA et traitant en temps réel les données issues de l'interféromètre, permet d'obtenir directement la fonction $S(T)$ et,

moyennant un fit gaussien de la fonction obtenue, donne la durée d'impulsion totale à mi – hauteur Δt (*cf. Figure II-6*).

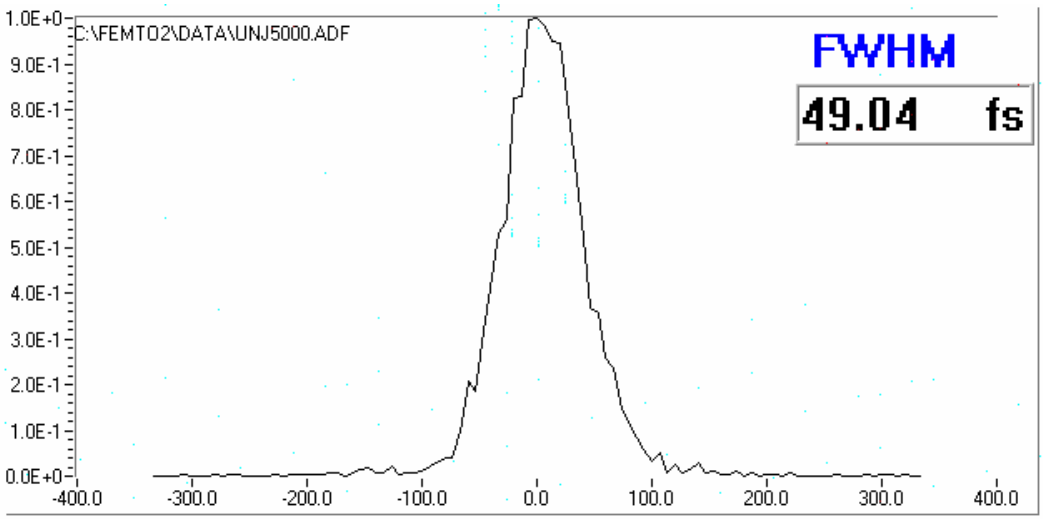


Figure II-6 : Trace d'autocorrélation obtenue sur le laser LUCA (voie femto 2).

2°) Estimation des aberrations temporelles

Afin d'évaluer les aberrations temporelles introduites par la lentille de focalisation et le hublot, nous avons utilisé le modèle de Bor [Bor, 1988] [Bor & Horvath, 1992] qui a fait très récemment l'objet d'une complète vérification expérimentale [Planchon, 2003]. Le principe de base de ce modèle consiste à décomposer le faisceau incident en rayons élémentaires, à calculer le retard subi par chacun de ces rayons puis à intégrer ces rayons élémentaires au niveau du foyer de la lentille.

2°-i) Origine des aberrations

L'impulsion femtoseconde traversant une lentille parcourt un milieu d'épaisseur variable en fonction de la distance au centre de la lentille *r*. La structure temporelle de l'impulsion est modifiée de deux façons différentes :

- le premier effet est le retard à la propagation (PTD : *"Propagation Time Delay"*) affectant les rayons élémentaires qui ne traversent pas une épaisseur identique. Ce retard se produit car l'impulsion laser se déplace à la vitesse de groupe dans le matériau et non à la vitesse de phase. Il existe donc, après la lentille, une différence entre le front de phase et le front d'énergie. Ce phénomène est illustré sur la *Figure II-7* où est décomposé en rayons élémentaires le faisceau laser incident.

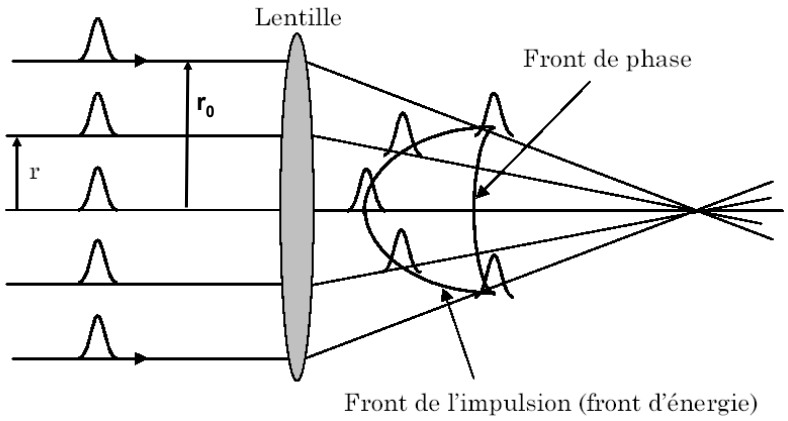


Figure II-7 : Illustration du décalage entre le front d'onde et le front d'énergie d'une impulsion par le retard à la propagation dans une lentille convergente.

Bor a montré [Bor, 1988], en utilisant un modèle géométrique simple, que ce retard à la propagation $\delta t_{PTD}(r)$, pour une lentille convergente, se met sous la forme :

$$\delta t_{PTD}(r) = \frac{r_0^2 - r^2}{2 \cdot c \cdot f \cdot (n-1)} \cdot \left(-\lambda \cdot \frac{dn}{d\lambda} \right) \qquad \textbf{[II-B.7]}$$

avec r_0 la distance au centre de la lentille du rayon le plus extrême, c la vitesse de la lumière, f la focale de la lentille (dans notre cas $f = 480$ *mm*), n l'indice de réfraction de la lentille et λ la longueur d'onde du faisceau incident. Ce retard à la propagation est une fonction quadratique de la position r du rayon d'entrée et sera donc d'autant plus important que le diamètre incident du faisceau laser est grand mais également que la distance focale de la lentille est petite.

- le deuxième effet concerne la dispersion de la vitesse de groupe dans le matériau (GVD : *"Group Velocity Dispersion"*). Il s'agit d'un élargissement temporel lié à la traversée d'un milieu dispersif. Chaque impulsion, le long d'un rayon élémentaire incident, est élargie après la lentille. Cet élargissement dépend également de l'épaisseur traversée, et donc de la position du rayon lumineux par rapport au centre de la lentille. Son expression analytique est donnée par [Bor & Horvath, 1992] :

$$\delta t_{GVD}(r) = \Delta t \cdot \left(\sqrt{1 + \left[\frac{4 \ln 2}{\Delta t^2} \cdot k''(\omega) \cdot \frac{\left(r_0^2 - r^2 \right)}{2f \cdot (n-1)} \right]^2} - 1 \right) \qquad \textbf{[II-B.8]}$$

avec $k''(\omega) = \frac{d^2 k(\omega)}{d\omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi \cdot c^2} \cdot \frac{d^2 n}{d\lambda^2}$ la dispersion du milieu traversé et Δt la durée totale d'impulsion à mi – hauteur en intensité avant la traversée du milieu dispersif. Pour notre lentille et pour une durée d'impulsion initiale de 50 *fs*, l'élargissement (GVD), dû à la

dispersion de vitesse de groupe, est de l'ordre de 1 *fs* ce qui est faible par rapport à l'effet du retard à la propagation (PTD) qui se traduit par une modification de la durée d'impulsion initiale de l'ordre de 5 *fs*. Dans les simulations réalisées, il a été tenu compte de ces deux effets.

2°-ii) Calcul des aberrations et exemple de simulation

La durée d'impulsion au foyer de la lentille (durée globale) est, en fait, la somme, sur l'ensemble des rayons incidents, de toutes les impulsions locales (durée locale) en pondérant, pour chaque rayon incident, par un poids dépendant de la distribution radiale en énergie dans le faisceau incident comme cela est présenté sur la *Figure II-8*.

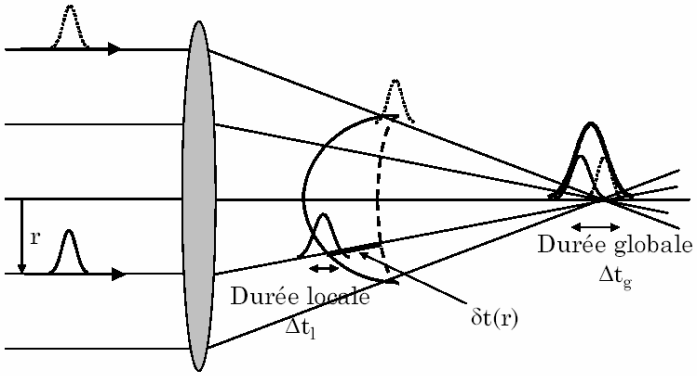


***Figure II-8 :** Visualisation de la différence entre durée locale et durée globale.*

Un programme de simulation écrit sous MAPLE permet de calculer, pour chaque rayon situé à une distance *r* du centre de la lentille, l'élargissement que subit l'impulsion à la traversée de la lentille ainsi que son retard à la propagation. Le profil temporel global de l'impulsion au foyer de la lentille est alors obtenu par intégration sur *r* des profils locaux en leur attribuant un poids déterminé par le profil spatial énergétique initial. Le profil en énergie de la voie *femto 2* du LUCA est présenté sur la *Figure II-9* et il a été obtenu en mesurant l'énergie transmise après la lentille en fonction du diamètre variable d'un diaphragme placé avant la lentille.

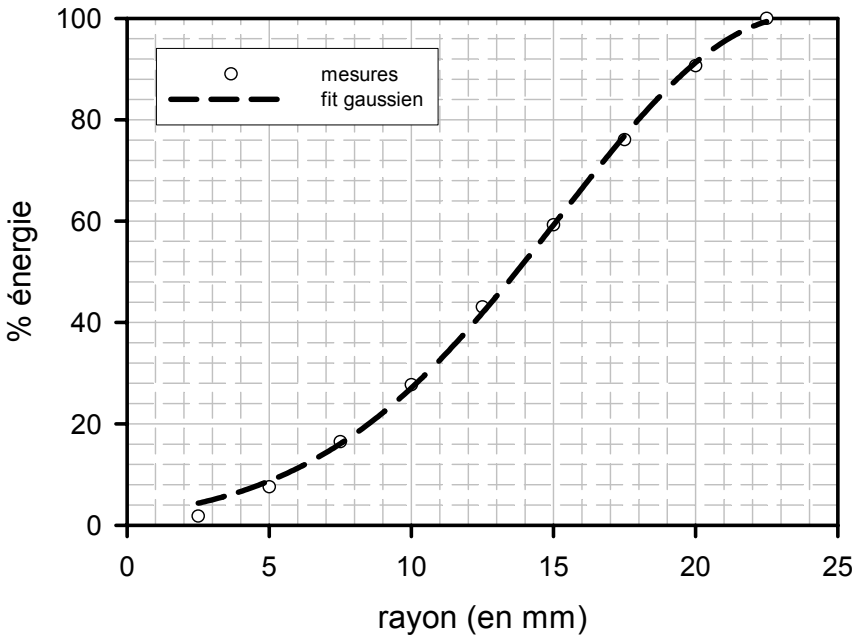


***Figure II-9 :** Répartition spatiale en énergie du faisceau LUCA avant la lentille de focalisation.*

La *Figure II-10* présente la simulation, après la lentille de focalisation, du profil temporel d'une impulsion incidente ayant une largeur totale à mi – hauteur initiale de 50 *fs*, avec $r_0 = 23{,}7$ *mm* conformément à la *Figure II-9* et pour une distance focale de 480 *mm*. L'impulsion, au niveau du foyer de la lentille, arrive après l'impulsion initiale (retard à la propagation) et elle présente un profil temporel **très légèrement** dissymétrique avec une largeur à mi – hauteur de 56 *fs*.

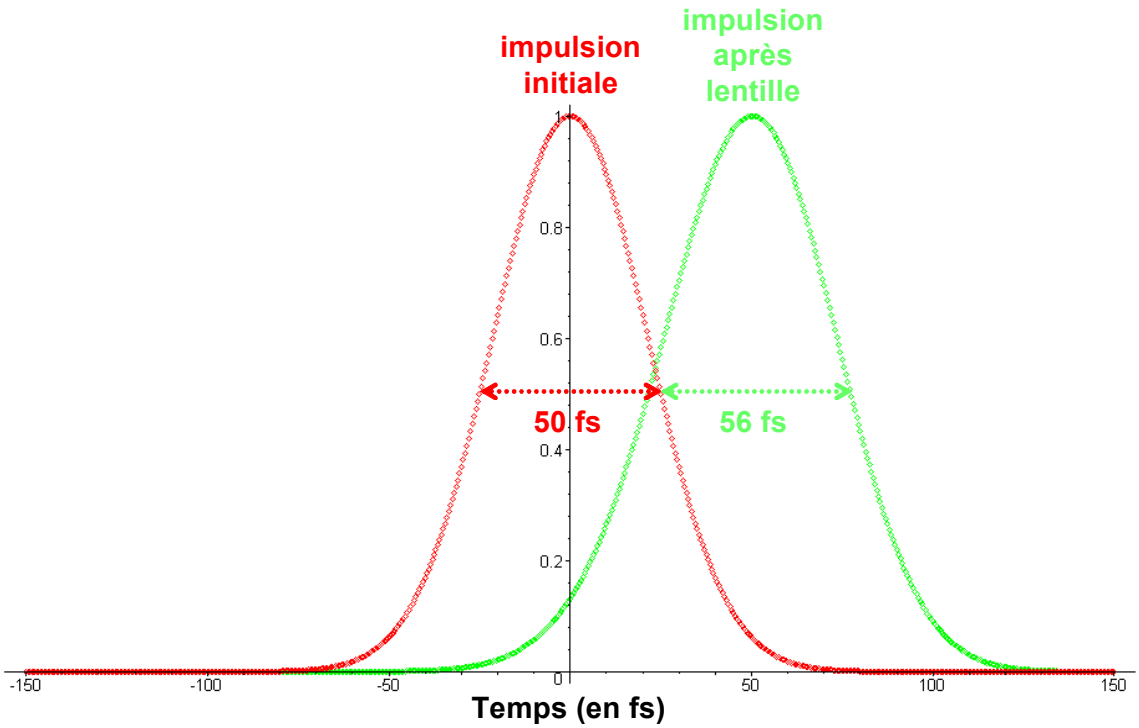
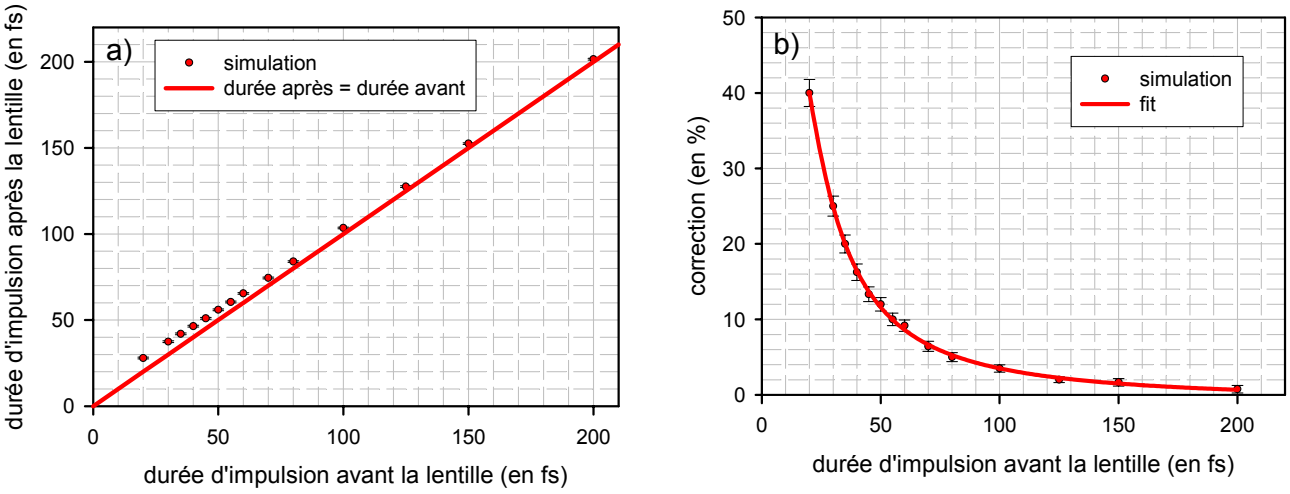


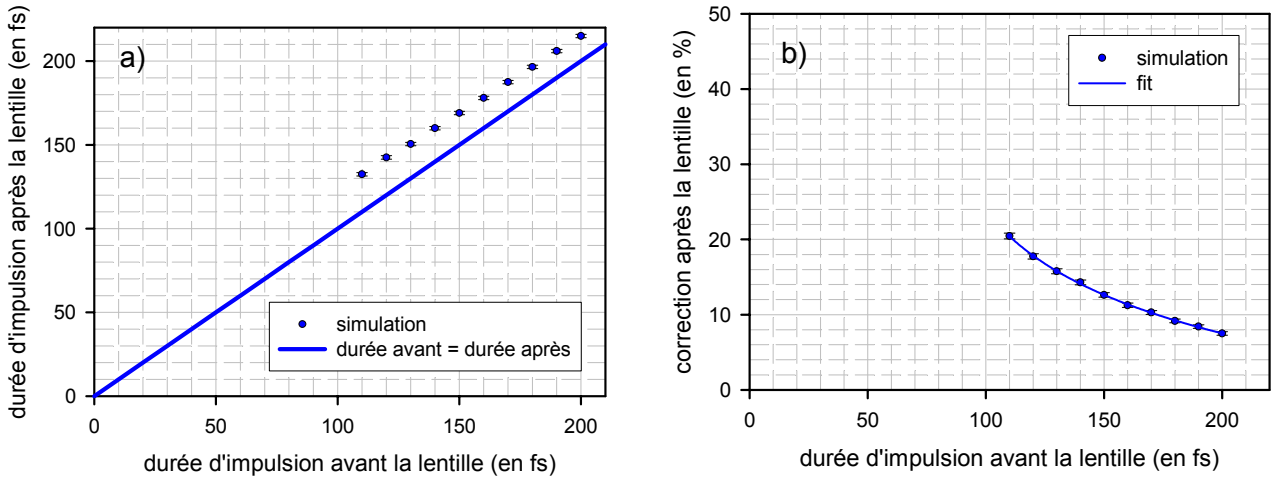
***Figure II-10 :** Exemple de simulation des profils temporels avant et après la lentille de focalisation.*

2°-iii) Résultats pour la lentille

Les *Figures II-11* et *II-12* regroupent les résultats des simulations réalisées en fonction de la durée d'impulsion initiale pour respectivement une longueur d'onde de 800 *nm* et de 400 *nm* dans nos conditions expérimentales (r_0 = 23,7 *mm* et f = 480 *mm*). A 800 *nm*, la durée d'impulsion après la lentille reste proche de la durée d'impulsion initiale mesurée à l'aide de l'autocorrélateur. La correction introduite par cet élément optique sur la durée d'impulsion est **au maximum** de 12 % pour une durée d'impulsion initiale de 50 *fs* et devient négligeable pour une durée d'impulsion de 100 *fs* par rapport à l'incertitude présente sur les mesures de trace d'autocorrélation. Par contre à 400 *nm* (*cf. Figures II-12*), cette correction est plus importante : jusqu'à 20 % pour une durée initiale de 110 *fs*.



Figures II-11 : Estimation de la durée d'impulsion après la lentille (a) ainsi que de la correction (en %) qui en résulte (b) en fonction de la durée d'impulsion initiale pour une longueur d'onde de 800 nm.



Figures II-12 : Estimation de la durée d'impulsion après la lentille (a) ainsi que de la correction (en %) qui en résulte (b) en fonction de la durée d'impulsion initiale pour une longueur d'onde de 400 nm.

2°-iv) Résultats pour le hublot

Le seul effet du hublot sur la durée d'impulsion est l'élargissement temporelle de l'impulsion à cause de la dispersion de la vitesse de groupe : δt_{GVD} [II-B.8]. En effet, en première approximation, nous pouvons considérer que tous les rayons élémentaires traversent une épaisseur de Silice constante et donc négliger le retard introduit par la propagation dans le hublot : la différence d'épaisseur traversée entre le rayon central et le rayon le plus extrême est inférieure à 0,1 % ce qui se traduit par un retard à la propagation pour ces deux rayons extrêmes très faible et non mesurable ($\delta t_{PTD} < 0{,}1$ *fs*). Nous présentons sur la *Figure II-13*, la correction relative introduite par le hublot (épaisseur = 3 *mm*) sur la durée d'impulsion initiale par cet effet et pour les deux longueur d'onde laser utilisées.

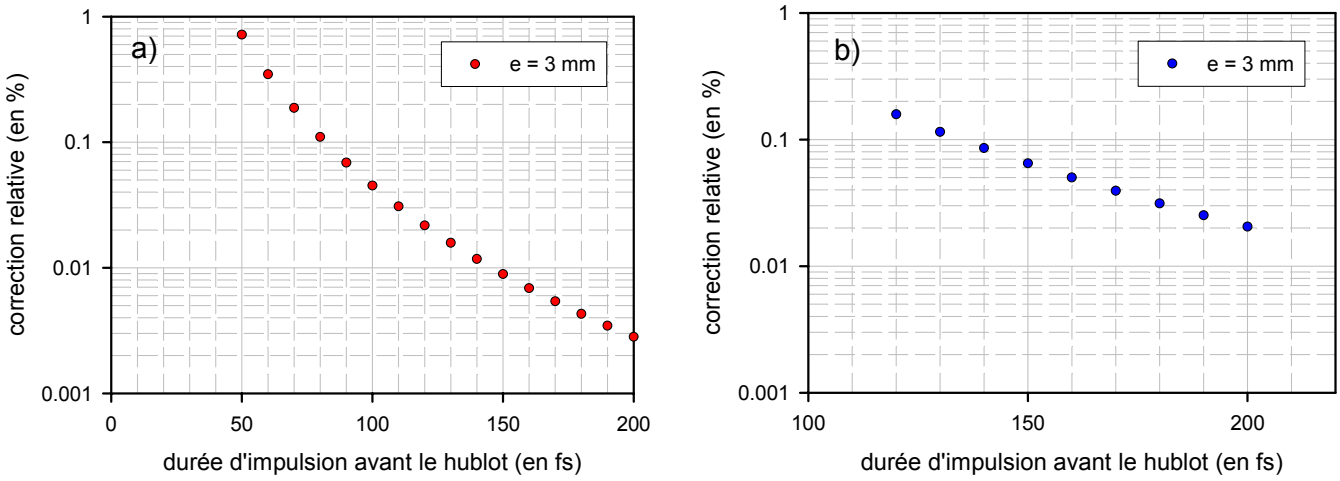


Figure II-13 : Estimation de la correction relative sur la durée d'impulsion après le hublot en fonction de la durée d'impulsion initiale pour une longueur d'onde a) de 800 nm et b) de 400 nm.

Comme nous le voyons sur ces figures, cette correction introduite par le hublot est négligeable (< 1 %), quelque soit la longueur d'onde et la durée d'impulsion initiale, devant celle introduite par la lentille. Nous avons donc tenu compte, pour la durée d'impulsion effective au niveau de la zone d'interaction, uniquement de l'effet de la lentille de focalisation sur la durée d'impulsion mesurée.

B-2-b) Rayon de la tâche focale

1°) Principe de la mesure

Afin de mesurer aussi précisément que possible le diamètre de la tâche focale au foyer de la lentille, nous avons réalisé toute une série d'expériences avec une caméra de type DALSA de grande dynamique et de grande résolution de la société SPIRICON. Le principe de la mesure consiste à faire l'image, grâce à un objectif de microscope, du foyer de la lentille

sur une barrette CCD de silicium. Afin de ne pas endommager la caméra, il est nécessaire d'atténuer la puissance du laser incident à l'aide d'un *"wedge"* (coin) et de plusieurs densités optiques placées à proximité du foyer de la lentille. Cette atténuation doit se faire de telle façon que le profil spatial du faisceau laser soit le moins possible modifié afin de ne pas biaiser la mesure. Ces mesures n'ont pu être réalisées *in situ* faute de place mais nous avons introduit, sur le trajet du faisceau laser, le hublot d'entrée de la chambre d'interaction afin de réaliser les mesures de la tâche focale dans des conditions aussi identiques que possible à nos conditions expérimentales. Le schéma du dispositif expérimental utilisé pour cette mesure est récapitulé sur la *Figure II-14*.

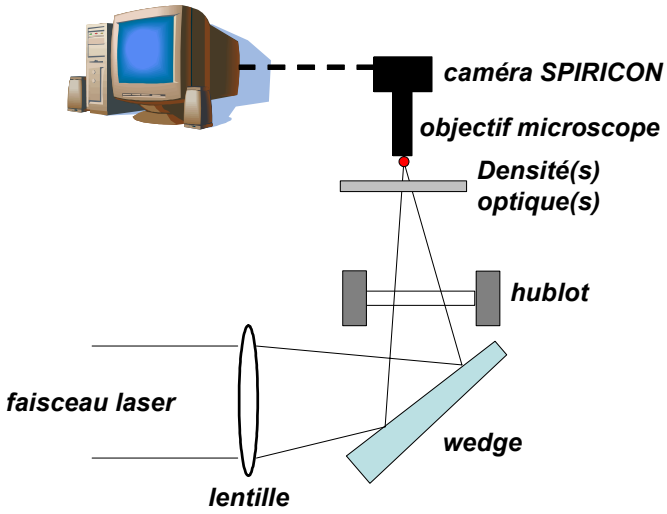


Figure II-14 : Schéma de principe de la mesure de la tâche focale.

2°) Procédure de dépouillement des images

Les images de la tâche focale ont ensuite été analysées à l'aide de deux logiciels :

- le programme de traitement des images de la société SPIRICON (logiciel LBAPC) ;
- un programme LABVIEW entièrement développé par l'équipe du LUCA.

Afin de remonter à la dimension de la tâche focale, il est nécessaire, au préalable, d'étalonner le grandissement de l'objectif du microscope. Pour cela, une mire a été initialement placée sur le trajet du faisceau laser suivant deux directions perpendiculaires (X et Y). Le grandissement calculé est de 23,8 suivant X et de 23,5 suivant Y, valeurs proches du grandissement nominal de l'objectif du microscope (× 20). Nous avons ensuite relevé la largeur à mi – hauteur, suivant ces mêmes directions, de la tâche focale pour les différentes images obtenues à l'aide de la caméra. Nous présentons sur la *Figure II-15*, à titre d'exemple, une image de la tâche focale obtenue à l'aide du programme LABVIEW.

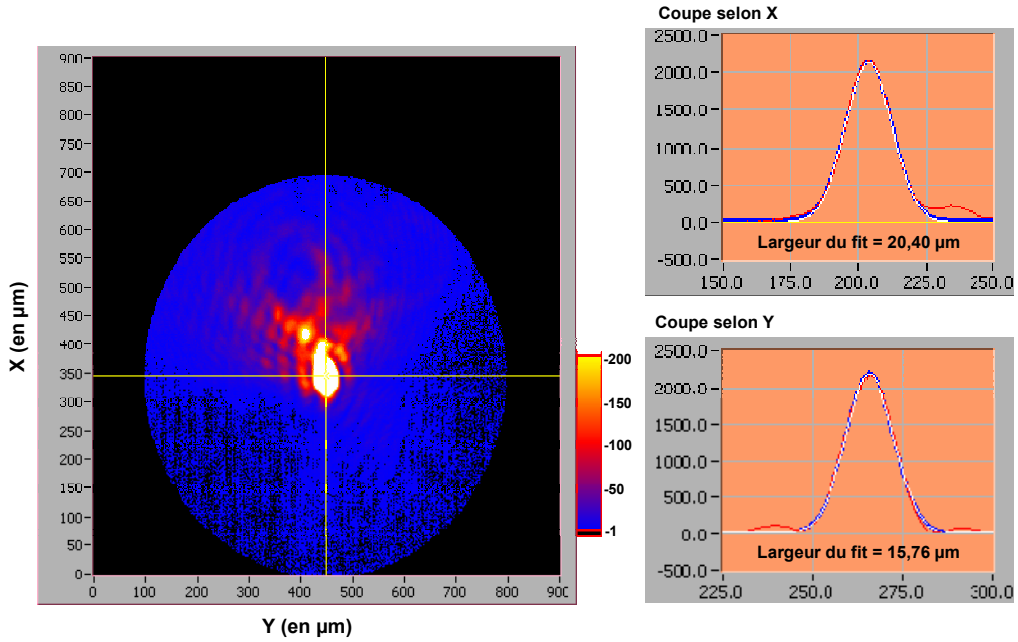


***Figure II-15 :** Exemple d'une image de la tâche focale obtenue à l'aide du programme LABVIEW.*

3°) Résultats

Nous avons effectué deux types de mesures : tout d'abord des mesures tir à tir (sur 50 images) puis des mesures moyennées sur 120 tirs (10 images), que nous présentons dans l'Annexe C. Ce travail a également été réalisé à deux énergie différentes : 5 *mJ* et 45 *mJ*. Nous présentons dans le *Tableau II-1* la valeur moyenne de toutes ces mesures.

Coupe selon :	Largeur totale à mi – hauteur (en μm)
X	21,20 ± 0,90
Y	15,40 ± 0,70

***Tableau II-1 :** Largeur à mi – hauteur de la tâche focale selon les axes X et Y.*

La tâche focale présente une allure ellipsoïdale définie par ces deux axes (X, Y) et il est possible d'assimiler la surface de cette ellipse à un disque de diamètre défini par :

$$\pi \cdot d^{2} = \pi \cdot X \cdot Y \qquad \textbf{[II-B.9]}$$

Les mesures réalisées ont également permis de vérifier que la **surface** de la tâche focale est **indépendante** de l'énergie incidente du faisceau laser. La valeur du diamètre à mi – hauteur en intensité de la tâche focale est donnée dans le *Tableau II-2* et les autres caractéristiques spatiales de la tâche focale seront données dans le paragraphe récapitulatif B-6.

Diamètre à mi – hauteur	$d = 18{,}30 \pm 0{,}80\ \mu m$

***Tableau II-2 :** Diamètre à mi – hauteur de la tâche focale à 800 nm.*

B-2-c) Énergie par impulsion

1°) Principe de la mesure

L'énergie par impulsion (E) peut être modifiée avant l'arrivée sur le dispositif expérimental grâce à un atténuateur d'énergie composé d'une lame demi – onde ($\lambda / 2$) d'orientation variable et d'un polariseur fixe. L'énergie à la sortie de l'atténuateur ($E_{mesurée}$) est mesurée à l'aide d'un Joulemétre étalonné de la société MOLECTRON. Cependant, toute cette énergie ne participe pas à l'éclairement crête du fait, principalement, de la présence d'effets non – linéaires à la traversée des différents éléments optiques sur le trajet du faisceau laser, ainsi que des aberrations de diffraction introduites par la lentille. Grâce aux images réalisées à l'aide de la caméra SPIRICON, il a également été possible d'évaluer la proportion d'énergie participant à l'éclairement crête. Pour cela, nous avons comparé l'énergie comprise dans un disque équivalent à $r = 1\sigma$ à l'énergie comprise dans un disque équivalent à $r = 10\sigma$. En théorie, si toute l'énergie incidente participe à l'éclairement crête, *i.e.* tâche focale avec un profil purement gaussien, ce rapport vaut 0,63 ; en effet :

$$\frac{\%\ E_{théo.}(r=\sigma)}{\%\ E_{théo.}(r=10\cdot\sigma)} = \frac{\int_0^{\sigma} \exp\left(-\frac{2r^2}{w_0^2}\right)\cdot 2\pi\cdot r\cdot dr}{\int_0^{10\cdot\sigma} \exp\left(-\frac{2r^2}{w_0^2}\right)\cdot 2\pi\cdot r\cdot dr} = \frac{1-\exp(-1)}{1-\exp(-10)} \approx 0{,}63 \qquad \textbf{[II-B.10a]}$$

Mais comme une partie de l'énergie se trouve dans les pieds de l'impulsion et ne participe donc pas à l'éclairement crête, ce rapport est nécessairement inférieur à la valeur théorique de 0,63. Nous définissons alors le facteur correctif de l'énergie mesurée κ par l'expression suivante :

$$\%\ E_{exp.}(r=\sigma) = \kappa\cdot 0{,}63 \times \%\ E_{exp.}(r=10\cdot\sigma) \text{ avec } 0<\kappa<1 \qquad \textbf{[II-B.10b]}$$

Le principe de cette méthode est résumé d'une manière schématique sur la *Figure II-16*.

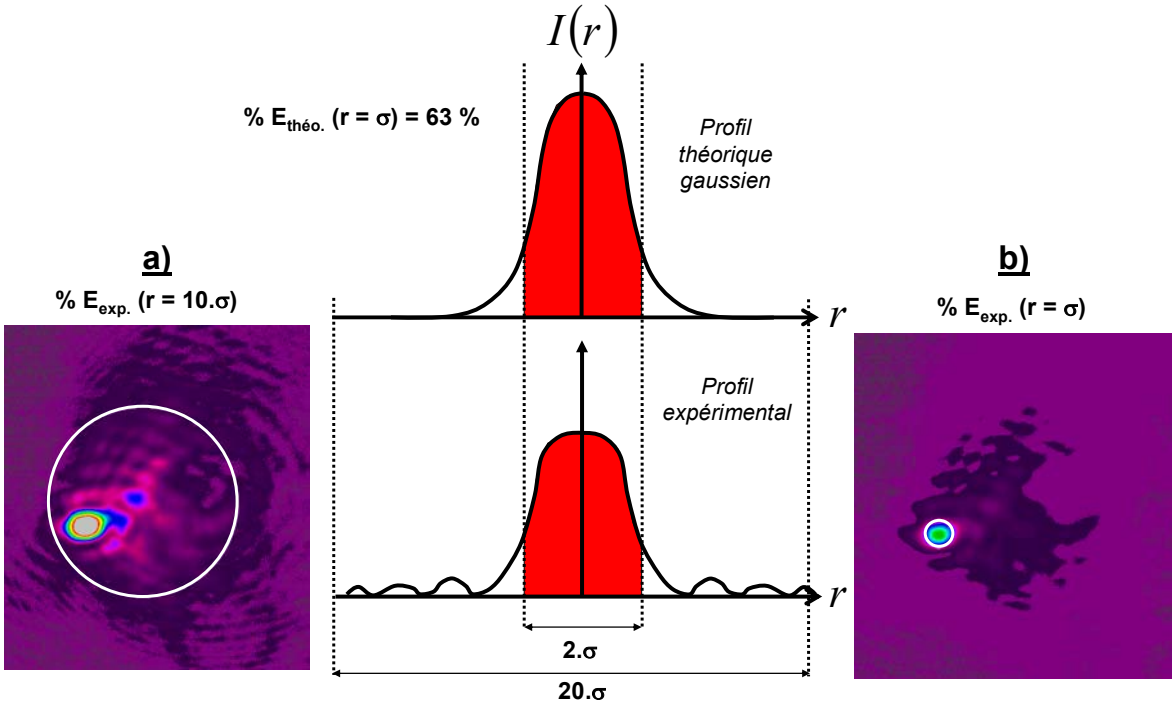


***Figure II-16 :** Principe de la méthode permettant de déterminer le facteur correctif κ sur l'énergie mesurée. Les cercles blancs représentent a) r = 10σ et b) r = 1σ.*

2°) Résultats

Nous présentons sur la *Figure II-17* la valeur de ce facteur correctif κ obtenu pour toutes les images de la tâche focale à une énergie mesurée de 45 *mJ* et de 5 *mJ*.

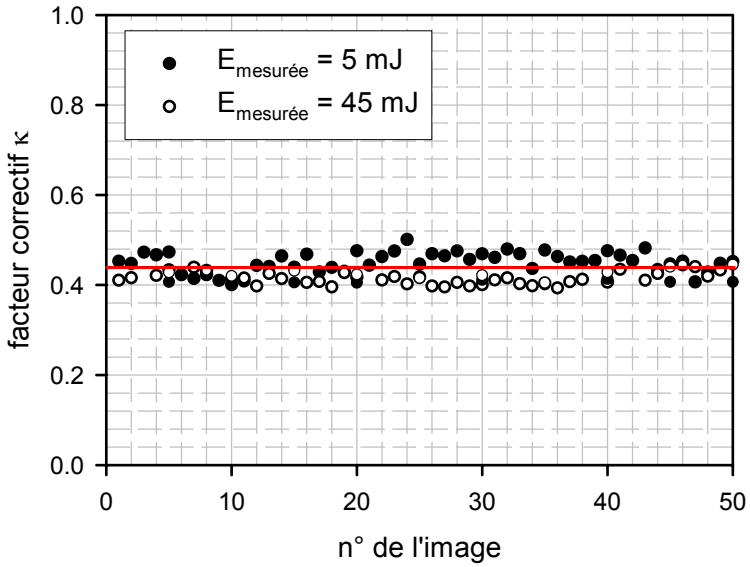


***Figure II-17 :** Facteur correctif κ pour les différentes images à deux énergies mesurées (45 mJ et 5 mJ).*

La valeur moyenne de ce facteur correctif, indépendant de l'énergie, est :

$$\kappa = 0{,}45 \pm 0{,}05$$

B-3] Contraste

Dans les expériences d'interaction à haut flux, le niveau d'intensité du piédestal, constitué principalement par l'émission spontanée amplifiée (ASE), est un problème présent sur de nombreuses chaînes de puissance. Il est ainsi nécessaire de s'assurer que l'intensité de ce piédestal soit bien inférieure au seuil de première ionisation des gaz rares situé vers 10^{14} W/cm^2 (*cf. Tableau I-1* du Chapitre I) afin de ne pas modifier la dynamique des agrégats sous champ laser intense **avant** l'arrivée de l'impulsion principale. Dans le cas contraire, l'interaction de l'impulsion principale aurait alors lieu avec un plasma déjà en expansion et non avec les agrégats : les mécanismes élémentaires pourraient alors être modifiés par ce pré – chauffage. Les autocorrélateurs à 2ω que nous avons vu au §I-B-2-a ne permettent pas de mesurer le profil temporel des impulsions sur plus de 6 – 7 ordres de grandeurs à cause principalement de problèmes de diaphonie : une faible partie du signal à ω est diffusée dans la direction d'accord de phase créant à son tour un effet de doublage de fréquence à 2ω et limitant par conséquent la dynamique de cette technique. Pour des mesures de grande dynamique (de l'ordre de 10 ordres de grandeurs), une technique de corrélation d'ordre 3 est utilisée dont le principe schématique est présenté sur la *Figure II-18*.

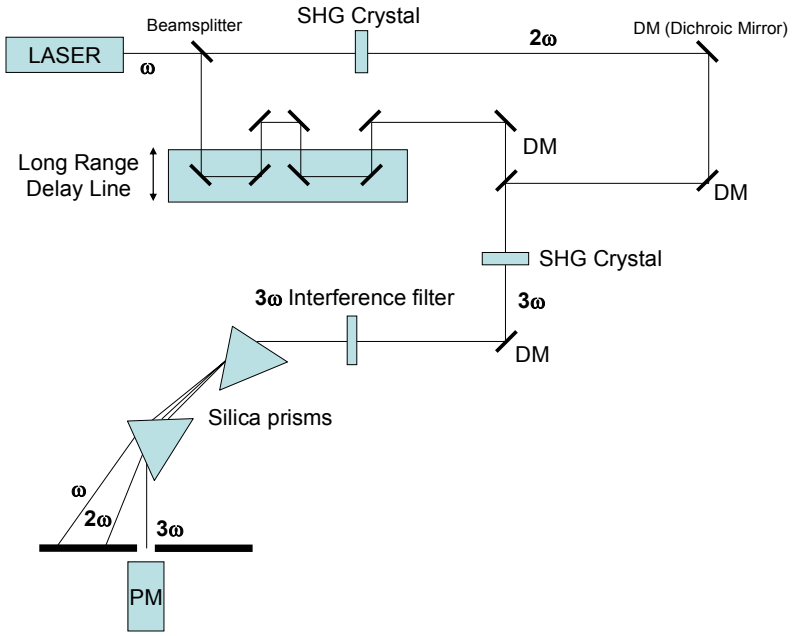


Figure II-18 : Schéma de principe du corrélateur d'ordre 3 de grande dynamique du DRECAM.

Le faisceau à caractériser est envoyé dans un interféromètre sur lequel est installé un système doubleur de fréquence dans l'un des bras. Les deux demi – faisceaux (l'un à ω l'autre à 2ω) sont recombinés à travers une lame dichroïque et envoyés sur un cristal tripleur de fréquence ($\omega + 2\omega = 3\omega$). Le signal à la fréquence triple est ensuite séparé des 2 signaux incidents (celui à ω et celui à 2ω) à l'aide de prismes et est détecté après filtrage sur un photomultiplicateur.

La valeur obtenue pour le signal à 3ω peut alors être normalisée, pour chaque délai dans l'un de bras de l'interféromètre, par $I^3(\omega)$ obtenu sur une photodiode de référence. La dynamique accessible par cette technique peut alors être supérieure à 10 ordres de grandeurs. En outre, et contrairement au corrélateur à 2ω, cette méthode permet de discriminer l'avant de l'impulsion ($t < 0$) de l'arrière ($t > 0$). Ceci est primordial dans l'étude de l'interaction, les défauts à l'arrière de l'impulsion n'étant pas pénalisants contrairement à ceux apparaissant à l'avant. La *Figure II-19* présente le profil obtenu sur la voie *femto 2* du LUCA sur une grande gamme de durée (de -100 *ps* à 100 *ps*). On observe ainsi qu'à 100 *ps*, et jusqu'à 30 *ps* du pic principal, le niveau inférieur est constant et de l'ordre de 10^{-7} représentant le fond d'émission spontanée amplifiée de part et d'autre de l'impulsion principale. Notons qu'il n'existe aucune pré – impulsion ($t < 0$) pouvant pré – chauffer les agrégats jusqu'à 100 *ps* avant l'impulsion principale et que la post – impulsion présente à + 55 *ps* n'est pas dommageable pour l'interaction de l'impulsion principale avec les agrégats.

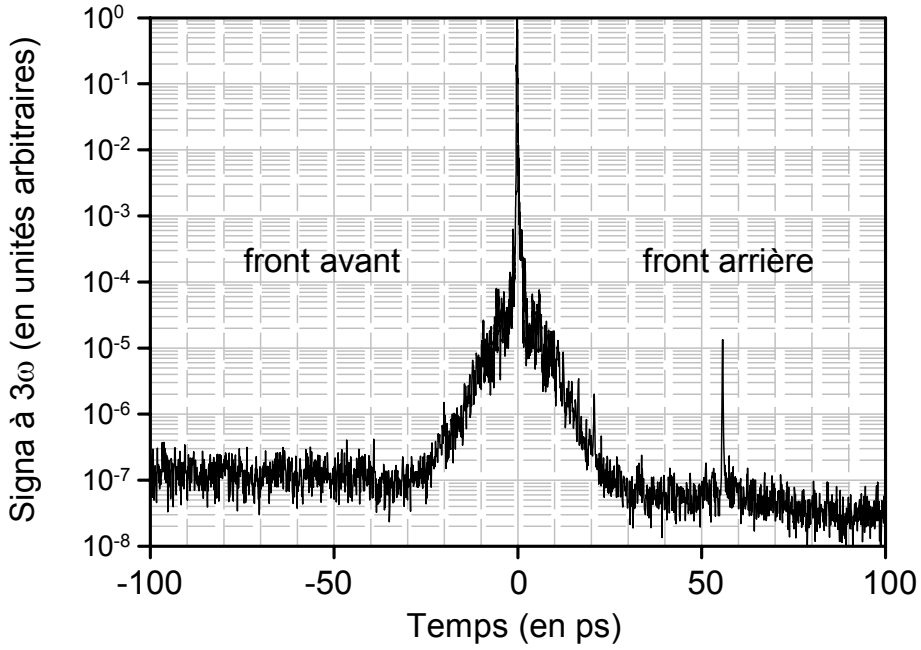


Figure II-19 : Trace de corrélation obtenue sur la voie femto 2 du LUCA par séquoia début 2002.

Nous présentons sur la *Figure II-20* et la *Figure II-21*, les traces de corrélation pour des intervalles de temps plus faibles, *i.e.* à proximité de l'impulsion principale, réalisées à l'aide respectivement du corrélateur à 3ω du DRECAM ainsi qu'avec celui du LOA. En référence à ces mesures réalisées en 2002, la valeur du contraste de l'impulsion de la voie *femto 2* est inférieure à 10^{-4}, à ± 2 *ps* de part et d'autre du maximum, sans la présence de pré – impulsion. La présence de structures à proximité du pic principal est associée à des différences de phase

spectrale obtenues lors de la recompression imparfaite. Les éclairements atteints sur notre dispositif expérimental sont compris, à 50 *fs*, entre 10^{15} et 10^{17} *W/cm²*, ce qui permet d'évaluer l'intensité du piédestal, **au maximum**, entre 10^{11} et 10^{13} *W/cm²* ; ces valeurs sont bien inférieures à l'éclairement nécessaire pour la première ionisation des atomes de gaz rare sous champ laser intense, qui est de quelques 10^{14} *W/cm²*. Les résultats que nous venons de présenter, ainsi que la vérification régulière du contraste sur le serveur LUCA, permettent de s'assurer du contrôle du contraste lors de nos expériences.

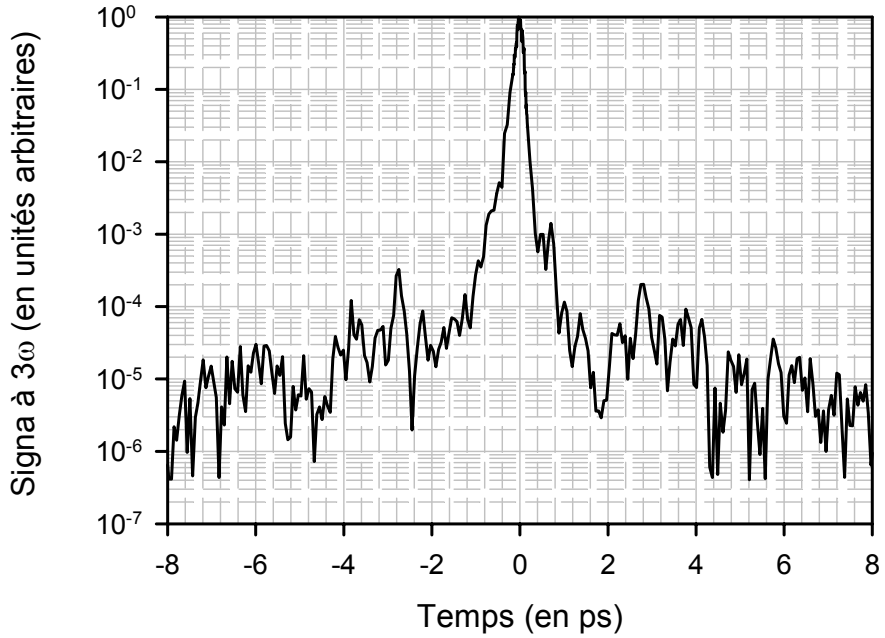


***Figure II-20 :** Trace de corrélation obtenue sur la voie femto 2 du LUCA par le cross corrélateur du DRECAM début 2002.*

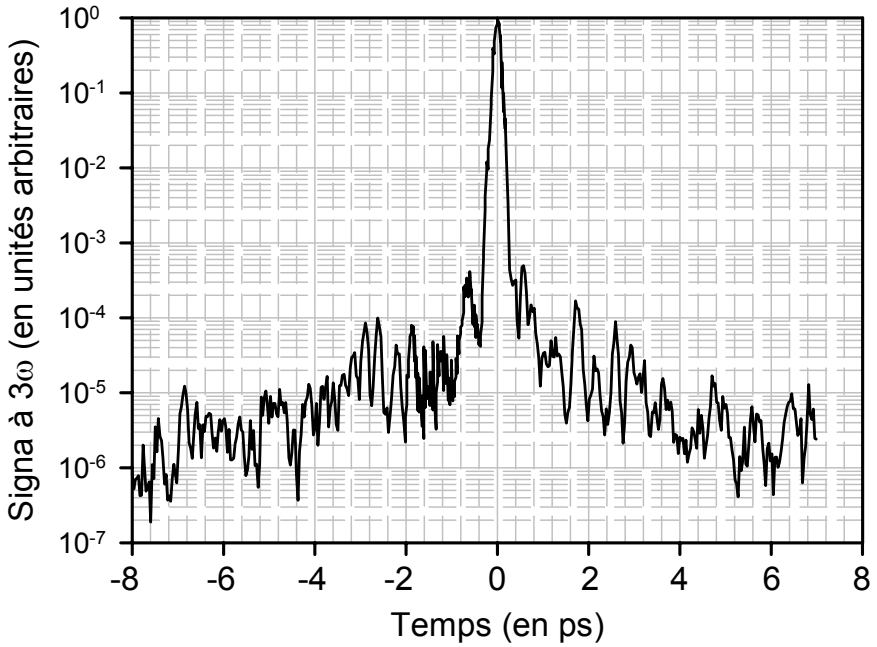


***Figure II-21 :** Trace de corrélation obtenue sur la voie femto 2 du LUCA par le cross – corrélateur du LOA.*

B-4] Génération d'impulsion à 400 nm

Le faisceau laser issu du serveur LUCA a une longueur d'onde fondamentale de 800 *nm* correspondant à des impulsions dans le proche infra – rouge. La génération d'un rayonnement laser à 400 *nm* ("bleu" ou proche UV) se fait par doublage de fréquence dans un cristal non – linéaire de KDP. Ce cristal est taillé de façon à satisfaire l'accord de phase et ainsi générer un rayonnement optimum à la fréquence double (2ω soit 400 *nm*). Nous ne présenterons pas d'une manière exhaustive la génération d'harmoniques dans un cristal doubleur [Bruhat, 1965] mais nous allons nous intéresser, dans ce paragraphe, à déterminer les caractéristiques spatiales et temporelles de l'impulsion "bleue"[1] déduites à partir de l'impulsion IR initiale. Il est en effet difficile de caractériser expérimentalement ses impulsions UV ; c'est pourquoi nous ne présenterons que les prédictions théoriques concernant les caractéristiques spatiale et temporelle de l'impulsion UV.

B-4-a) Caractéristique spatiale

Pour déterminer le rayon de la tâche focale à 400 *nm*, par rapport à celui mesuré à 800 *nm*, nous nous basons sur l'évolution, avec la longueur d'onde, du diamètre du disque d'Airy au foyer de la lentille donnée par :

$$d_{Airy} \propto \lambda \cdot \frac{f}{D} \text{ ainsi : } \frac{d_{Airy}^{400\ nm}}{d_{Airy}^{800\ nm}} = \frac{1}{2} \qquad \textbf{[II-B.11]}$$

Nous en déduisons alors d'après [II-B.11] : $d_{400\ nm} = \frac{1}{2} d_{800\ nm} = 9{,}15 \pm 0{,}40\ \mu m$

Les autres caractéristiques spatiales de la tâche à 400 *nm* déduites de cette valeur seront données dans le *Tableau II-5* du paragraphe récapitulatif B-6.

B-4-b) Caractéristique temporelle

Pour évaluer la durée de l'impulsion UV, nous avons utilisé le code SNLO[2] qui est un logiciel de calcul résolvant les équations de l'optique non – linéaire en chaque point du cristal doubleur de fréquence en fonction du temps pour le faisceau harmonique (400 *nm*) moyennant l'hypothèse d'un faisceau fondamental (800 *nm*) temporellement gaussien. Connaissant les caractéristiques du cristal doubleur utilisé (nature du cristal, épaisseur, indice ordinaire et

[1] Par abus de langage, nous désignerons dans la suite de ce manuscrit les impulsions à 400 nm comme étant de l'UV.

[2] Ce logiciel libre est accessible *via* la page web suivante : http://www.sandia.gov/imrl/X1118/xxtal.htm. Nous avons utilisé la version 36 de ce code.

extraordinaire, vitesse de groupe suivant les deux directions …), il est alors possible de simuler l'allure temporelle de l'impulsion UV à la sortie de ce cristal. Nous présentons sur la *Figure II-22* de telles simulations pour les deux cristaux que nous avons utilisés : cristal de KDP d'une épaisseur de 2 *mm* et de 3 *mm*, et pour une énergie initiale de l'impulsion IR de 50 *mJ*.

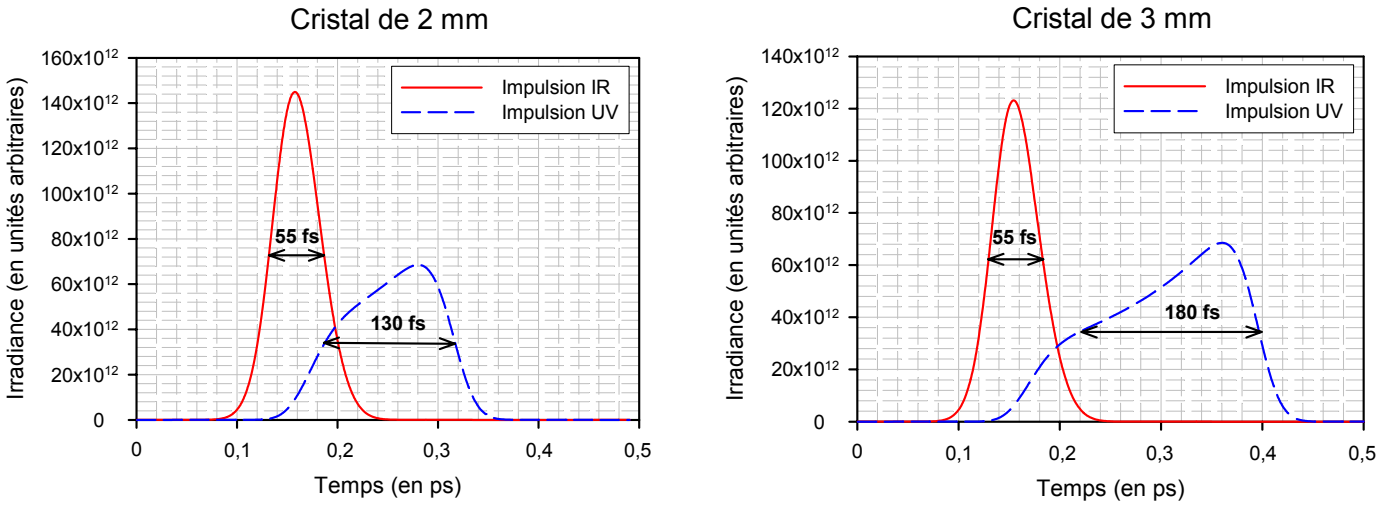


Figure II-22 : Simulations du profil temporel de l'impulsion UV après la traversée du cristal de KPD pour des épaisseurs de 2 mm et de 3 mm (données obtenues par le code SNLO avec E_{IR} = 50 mJ).

Nous remarquons d'ores et déjà que si l'impulsion initiale IR présente un profil temporel gaussien, ceci n'est absolument pas le cas pour l'impulsion UV à la sortie du cristal doubleur qui présente un profil fortement dissymétrique. D'autre part, le principal effet temporel du cristal doubleur est d'allonger la durée d'impulsion à cause de la dispersion de la vitesse de groupe nettement plus importante ici avec un cristal non – linéaire que pour la lentille. Nous avons voulu contrôler la stabilité de la durée de l'impulsion UV calculée par rapport à l'impulsion IR incidente en ce qui concerne :

- la durée IR initiale : les simulations réalisées à l'aide du logiciel SNLO ont montré que pour une durée d'impulsion IR comprise entre 40 *fs* et 100 *fs*, la durée d'impulsion UV n'est modifié que très peu (< 5 *fs*) par doublage de fréquence quelque soit l'épaisseur du cristal de KDP (2 *mm* ou 3 *mm*) ;
- l'énergie IR initiale : les résultats des simulations sont ici un peu plus complexes. Pour commencer comme nous pouvons le voir sur la *Figure II-23*, la durée d'impulsion en UV pour le cristal de 2 *mm* et à une énergie IR de 5 *mJ* n'est que très peu modifiée (135 *fs* au lieu de 130 *fs* précédemment à 50 *mJ*). Nous avons donc tenu compte de cette faible modification dans l'erreur commise sur la détermination de la durée d'impulsion en UV avec ce cristal. Pour le cristal de 3 *mm* par contre, la durée d'impulsion à une énergie IR de 5 *mJ* est de 220 *fs*

contre 180 *fs* à une énergie en IR de 50 *mJ*. Nous avons donc explicitement pris en compte cette modification de la durée d'impulsion en UV par rapport à l'énergie dans le calcul de l'intensité. Nous avons ainsi examiné l'évolution de la durée d'impulsion UV calculée par le code SNLO en fonction de l'énergie UV résultant du passage dans le cristal doubleur et nous présentons sur la *Figure II-24* le résultat de cette étude. La durée en UV varie de 170 *fs* pour une énergie UV de 30 *mJ* à 215 *fs* pour une énergie proche de 1 *mJ*.

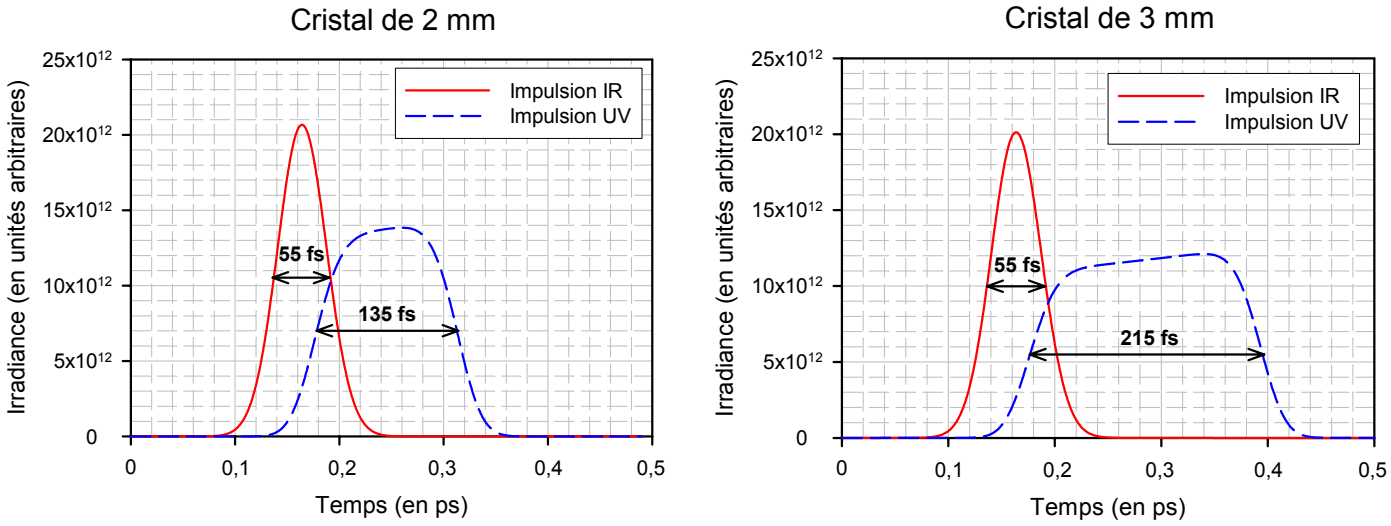


***Figure II-23 :** Simulations du profil temporel de l'impulsion UV après la traversée du cristal de KPD pour des épaisseurs de 2 mm et de 3 mm (données obtenues par le code SNLO avec E_{IR} = 5 mJ).*

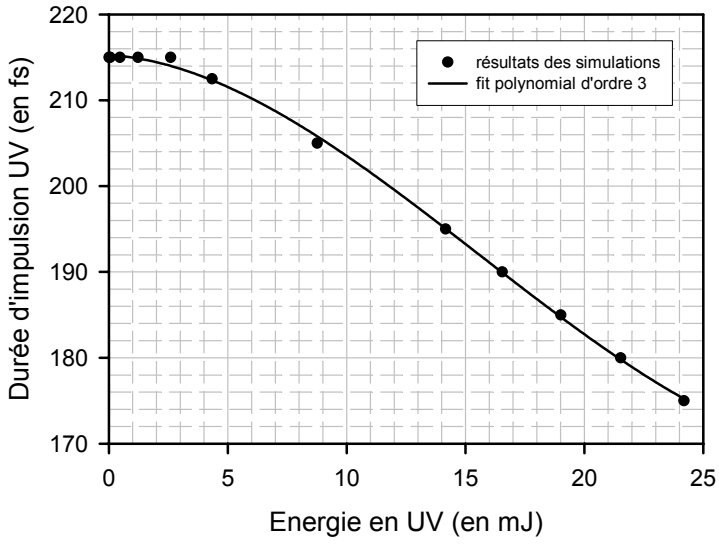


***Figure II-24 :** Évolution de la durée d'impulsion UV en fonction de l'énergie contenue dans l'impulsion UV pour le cristal de 3 mm (données obtenues par le code SNLO pour τ_{IR} = 55 fs).*

B-5] Polarisation linéaire / circulaire

Le faisceau laser, en sortie de la source LUCA, est polarisé linéairement. La modification en une polarisation circulaire s'effectue à l'aide d'une lame cristalline quart d'onde (λ / 4) placée avant la lentille de focalisation. Il s'agit d'une lame taillée parallèlement à son axe optique et qui introduit entre les deux vibrations privilégiées (ordinaire et extraordinaire) une différence de phase de π / 2 si la vibration incidente rectiligne est dirigée à 45° des lignes neutres de la lame. La vibration émergente est alors circulaire (droite ou gauche). Dans le cas contraire, la vibration en sortie présente une polarisation elliptique. Nous avons voulu nous assurer de la conservation de la polarisation (linéaire ou circulaire) au niveau de la zone d'interaction après la traversée du hublot d'entrée de la chambre d'interaction. En effet, en dehors des phénomènes bien connus [Bruhat, 1965] tels que l'effet Coton – Mouton (biréfringence magnétique) ou l'effet Faraday (polarisation rotatoire électromagnétique) non présents ici, des biréfringences accidentelles ou des effets de dépolarisation peuvent se produire à la traversée d'un milieu cristallin comme le hublot. Dans ce but, il a été étudié *in situ* l'état de la polarisation après le hublot à l'aide d'un polariseur de Glan. Ce polariseur est constitué de deux prismes de Spath d'Islande adossés et taillés de telle façon que la face d'entrée contienne l'axe optique et soit normale à la direction de propagation. Ainsi, un tel polariseur biréfringent, représenté schématiquement sur la *Figure II-25*, ne laisse passer que la lumière incidente qui est parallèle à l'axe optique (rayon extraordinaire) tandis que le rayon perpendiculaire est arrêté au niveau du premier prisme (rayon ordinaire) par réflexion totale.

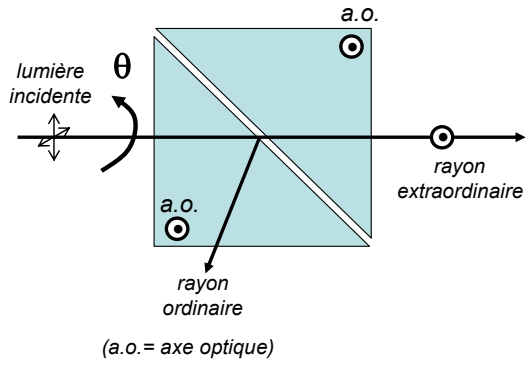


Figure II-25 : Schéma de principe du polariseur de Glan.

Il est alors possible, en faisant tourner le polariseur de Glan d'un angle θ et en mesurant l'intensité transmise, d'analyser l'état de la polarisation incidente :

- si la vibration en entrée du polariseur est parfaitement rectiligne, alors on doit observer une modulation de l'intensité transmise en $\sin^2 \theta$ et donc la présence d'extinction totale tous les $\Delta\theta = 180°$.
- si la vibration en entrée du polariseur est parfaitement circulaire, alors l'intensité transmise est constante en sortie du polariseur quelque soit l'angle d'orientation θ.

Nous présentons sur la *Figure II-26* le résultat de ces mesures. On voit très nettement que le hublot ne modifie pas la polarisation linéaire (extinction totale tous les 180°). Pour la polarisation circulaire, l'intensité transmise n'est pas parfaitement constante mais présente une évolution très différente de la polarisation linéaire. On observe une très légère ellipticité de la vibration lumineuse au niveau de la zone d'interaction par rapport à une polarisation circulaire. Précisons pour finir, que ces mesures n'ont pu être réalisées sous vide, c'est à dire lorsque le hublot est soumis d'un coté à la pression atmosphérique et de l'autre au vide : les effets de dépolarisation qui en résultent peuvent cependant être considérées comme peu importante pour un matériau tel que la silice qui compose notre hublot.

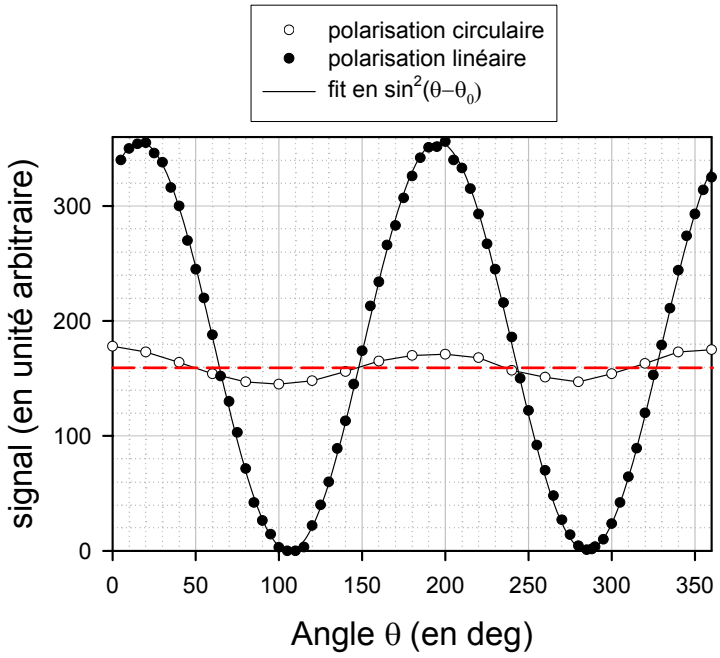


Figure II-26 : Évolution du signal transmis par le polariseur de Glan pour les deux polarisations (linéaire / circulaire) en fonction de son angle d'orientation θ.

B-6] Récapitulatif

Le *Tableau II-3* résume les caractéristiques nominales de la lentille, du hublot et du faisceau laser incident issu de la source LUCA. Nous présentons dans les tableaux suivants les caractéristiques spatiales et temporelles des impulsions laser à une longueur d'onde de 800 *nm* (*cf. Tableau II-4*) et de 400 *nm* (*cf. Tableau II-5*) issues des études que nous avons présentées précédemment.

Distance focale	f = 480 *mm*
Epaisseur du hublot	e = 3 *mm*
Diamètre du faisceau laser	D = 47,4 *mm*

***Tableau II-3 :** Caractéristiques nominales de la lentille, du hublot et du faisceau laser.*

Diamètre à mi – hauteur	$d = 18{,}30 \pm 0{,}80 \ \mu m$
Rayon à mi – hauteur	$r_{FWHM} = d/2 = 9{,}15 \pm 0{,}40 \ \mu m$
Rayon à $1/e^2$	$w_0 = \sqrt{\frac{2}{\ln 2}} \cdot r_{FWHM} = 15{,}55 \pm 0{,}70 \ \mu m$
Diamètre à $1/e^2$	$d^{exp}_{1/e^2} = 2 \cdot w_0 = 31{,}10 \pm 1{,}40 \ \mu m$
Rayon effectif σ	$\sigma = \frac{w_0}{\sqrt{2}} = 11{,}00 \pm 0{,}50 \ \mu m$
Distance de Rayleigh z_r	$z_r = \frac{\pi \cdot w_0^2}{\lambda} = 0{,}95 \pm 0{,}10 \ mm$
Divergence angulaire	$\theta_{div.} = \frac{\lambda}{\pi \cdot w_0} = 0{,}93 \pm 0{,}08°$
Volume focal nominal	$V_{foc.nom.} = \frac{(\pi \cdot w_0^2)^2}{\lambda} = (7{,}2 \pm 1{,}3) \times 10^{-7} \ cm^3$

Durée d'impulsion	Relation	Valeurs	
Largeur totale à mi – hauteur mesurée	$\Delta t_{mesurée}$	50 fs	100 fs
Largeur totale à mi – hauteur avec aberrations	$\Delta t_{eff.}$	56 fs	105 fs
Largeur totale à $1/e^2$ en intensité	$2 \cdot \tau = \sqrt{\frac{2}{\ln 2}} \cdot \Delta t_{eff.}$	95 fs	178 fs
Durée effective	$2 \cdot \tau_{eff.} = \frac{\sqrt{\pi}}{2\sqrt{\ln 2}} \cdot \Delta t_{eff.}$	59 fs	112 fs

***Tableau II-4 :** Tableaux récapitulatif pour λ = 800 nm.*

Diamètre à mi – hauteur	$d = 9{,}15 \pm 0{,}40 \ \mu m$
Rayon à mi – hauteur	$r_{FWHM} = d/2 = 4{,}58 \pm 0{,}20 \ \mu m$
Rayon à $1/e^2$	$w_0 = \sqrt{\frac{2}{\ln 2}} \cdot r_{FWHM} = 7{,}78 \pm 0{,}35 \ \mu m$
Diamètre à $1/e^2$	$d^{exp}_{1/e^2} = 2 \cdot w_0 = 15{,}55 \pm 0{,}70 \ \mu m$
Rayon effectif σ	$\sigma = \frac{w_0}{\sqrt{2}} = 5{,}50 \pm 0{,}25 \ \mu m$
Distance de Rayleigh z_r	$z_r = \frac{\pi \cdot w_0^2}{\lambda} = 0{,}48 \pm 0{,}05 \ mm$
Divergence angulaire	$\theta_{div.} = \frac{\lambda}{\pi \cdot w_0} = 0{,}94 \pm 0{,}08°$
Volume focal nominal	$V_{foc.nom.} = \frac{(\pi \cdot w_0^2)^2}{\lambda} = (9{,}0 \pm 1{,}6) \times 10^{-8} \ cm^3$

Durée d'impulsion	Relation	Valeurs	
Largeur totale à mi – hauteur mesurée	$\Delta t_{mesurée}$	130 fs	180 fs
Largeur totale à mi – hauteur avec aberrations	$\Delta t_{eff.}$	150 fs	196 fs
Largeur totale à $1/e^2$ en intensité	$2 \cdot \tau = \sqrt{\frac{2}{\ln 2}} \cdot \Delta t_{eff.}$	255 fs	333 fs
Durée effective	$2 \cdot \tau_{eff.} = \frac{\sqrt{\pi}}{2\sqrt{\ln 2}} \cdot \Delta t_{eff.}$	160 fs	209 fs

***Tableau II-5 :** Tableaux récapitulatif pour λ = 400 nm.*

C] Le jet d'agrégats

La première observation expérimentale concernant la condensation d'atomes d'argon au sein d'un jet effusif est due à Becker et collaborateurs en 1956 [Becker, Bier & Henkes, 1956]. Depuis cette date, les physiciens ont réalisé de nombreuses études, tant expérimentales que théoriques, afin de maîtriser la production et la caractérisation de tels jets d'agrégats ([Becker, 1986] , [Scoles, 1988]). D'un point de vue pratique, la production d'agrégats à partir d'atomes de gaz rare ne présente donc pas de réelles difficultés à l'heure actuelle même si des problèmes demeurent en ce qui concerne **une caractérisation complète** *in situ* de cette cible (taille des agrégats, distribution en taille, taux de condensation…). Dans un premier temps, nous allons présenter les principales considérations physiques (propriétés, formation, croissance) concernant les agrégats. Puis nous discuterons dans un second temps les travaux expérimentaux et théoriques qui nous ont permis d'évaluer les caractéristiques intrinsèques de notre jet d'agrégats (taille des agrégats, densité atomique) et quelques idées sur la distribution en taille des agrégats.

C-1] Généralités physiques des agrégats de gaz rare

Les agrégats, composés d'un nombre fini d'atomes, constituent un pont entre un atome isolé et un solide infini. En particulier, l'effet de la taille de ces objets nanométriques continue d'être intensivement étudié tant sur leurs propriétés physiques (optiques, électroniques, magnétiques…) que sur leurs propriétés chimiques (réactivité, solvatation…) : le papier de revue de J. Jortner [Jortner, 1992] donne à ce sujet de nombreuses informations.

Il sera présenté, dans ce paragraphe, les principales considérations physiques concernant le potentiel d'interaction entre deux atomes de gaz rare au sein d'un agrégat, la structure des agrégats ainsi que des informations quantitatives à propos de l'énergie de liaison des électrons des atomes présents au sein d'un tel édifice nanométrique.

C-1-a) Potentiel d'interaction

Les agrégats de gaz rare (Ar, Kr et Xe) que nous avons utilisés lors des différentes campagnes d'expériences sont des agrégats de type "Van der Waals" dont les atomes constituant l'édifice moléculaire ont une énergie de liaison de l'ordre de la dizaine de *meV*. Dans ces agrégats, l'interaction entre deux atomes de gaz rare est généralement décrit par un potentiel d'interaction [Klein & Aziz, 1984] de type Lennard – Jones dont l'expression

analytique (*cf. Figure II-27*), comportant une partie répulsive à courte distance internucléaire et une partie attractive à grande distance, est de la forme :

$$V(R) = \varepsilon \cdot \left[\left(\frac{R}{R_0} \right)^{-12} - 2 \cdot \left(\frac{R}{R_0} \right)^{-6} \right] \qquad \textbf{[II-C.1]}$$

avec ε la profondeur maximale du puit de potentiel pour lequel la distance internucléaire est égale à la distance d'équilibre ($R = R_0$). Les valeurs de ε, R_0 ainsi que le rayon classique de collision σ (encore appelé distance minimale d'approche, défini tel que $V(\sigma) = 0$) sont récapitulées dans le *Tableau II-6*.

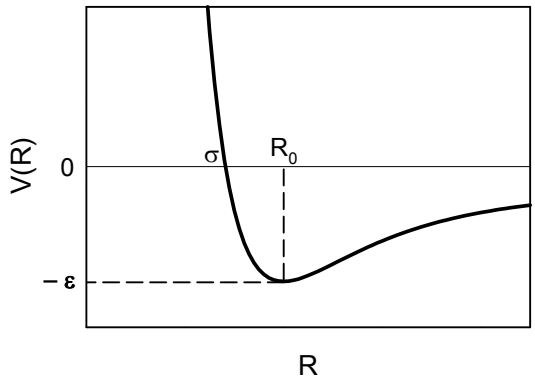


Figure II-27 : Potentiel de Lennard – Jones utilisé pour modéliser l'interaction de deux atomes de gaz rare.

Gaz	ε (en *meV*)	R_0 (en Å)	σ (en Å)
Ar	10,30	3,84	3,42
Kr	14,88	4,03	3,59
Xe	19,34	4,56	4,06

Tableau II-6 : Caractéristiques du potentiel de Lennard – Jones utilisé pour modéliser l'interaction entre deux atomes de gaz rare (données d'après [Gray, 1963] [Klein & Aziz, 1984]).

C-1-b) Structure cristalline

La structure géométrique de tels arrangements polyatomiques est bien connue grâce, notamment, aux nombreux travaux de Farges et collaborateurs dans ce domaine [Farges, Raoult & Torchet, 1973] [Farges et al., 1981] [Farges et al., 1983] [Farges et al., 1986] [Drake, 1996]. Dans le cas des petits agrégats de gaz rare, l'assemblage poly – icosaédrique (de symétrie pentagonale) domine [Haberland, 1994] (*cf. Figure II-28*). A partir d'une taille critique encore débattue, se trouvant approximativement vers 800 atomes par agrégat d'après les résultats obtenus par diffraction d'électrons [Bartell, 1986], la structure icosaédrique devient de moins en moins stable par rapport à la structure cristalline classique *cfc* (Cubique

Face Centrée) ; et les agrégats de gaz rare changent ainsi progressivement de phase cristalline [Farges et al., 1981] [Miehle et al., 1989].

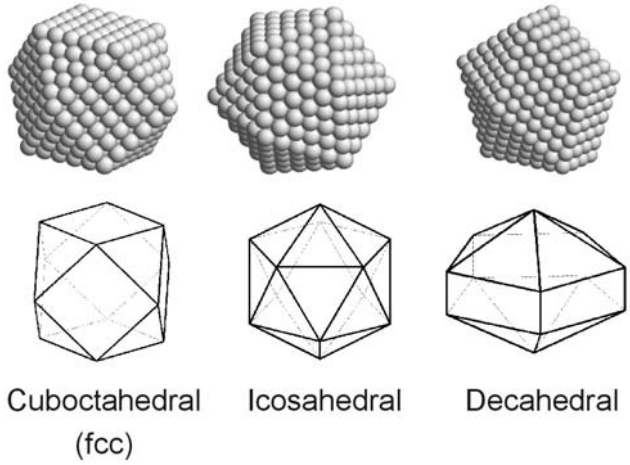


***Figure II-28 :** Arrangements cristallins observés pour les agrégats de gaz rare. Les structures de symétrie d'ordre 5 (icosaédrique et décaédrique) dominent pour les petits agrégats contenant moins de 800 atomes tandis que l'arrangement cubique face centrée (cuboctaédrique) domine pour les agrégats plus gros.*

A partir de 1000 à 2000 atomes / agrégat (ce qui est le domaine de taille d'agrégats dans laquelle nous travaillons), il est généralement admis que l'édifice cristallin a atteint la même structure stable *cfc* que celle observée dans le cas du solide massif ; les constantes pour la structure cristalline du solide sont récapitulées dans le *Tableau II-7*. La stabilité de la structure cristalline cubique, plutôt qu'hexagonale compact plus stable pour ce type d'interaction, reste cependant encore à l'heure actuelle sujet à de nombreuses investigations [Van de Waal, 1993] [Van de Waal, Torchet & de Ferauday, 2000] [Ikeshoji et al., 2001].

Gaz	Paramètre de la maille *a* (en Å)	Distance entre plus proche voisin (en Å)	Densité atomique locale $n_{at.loc.}$ (en $at./cm^3$)
Ar	5,32	3,76	$2{,}66\times10^{22}$
Kr	5,81	4,11	$2{,}04\times10^{22}$
Xe	6,34	4,49	$1{,}57\times10^{22}$

***Tableau II-7 :** Constantes liées à la structure cristalline de type cubique face centrée dans le cas des agrégats de gaz rare. Le paramètre de maille a est définie comme étant l'arête du cube élémentaire de la maille cristalline, la distance entre deux plus proche voisins, dans le cas d'un réseau cfc, est egale a/√2 et le nombre d'atomes par maille est de 4 [Gray, 1963].*

C-1-c) Déplacement des niveaux d'énergie

Des changements dans la structure électronique des atomes apparaissent lorsque l'on compare les agrégats de taille nanométrique avec les mêmes atomes en phase gazeuse. En effet, l'interaction dipolaire entre les atomes de l'agrégat de Van der Waals, responsable de la cohésion de la macromolécule, va induire des déplacements des niveaux d'énergie des électrons par rapport à l'atome isolé, se traduisant *in fine* par une modification des potentiels

d'ionisation des atomes à l'intérieur de l'agrégat. Il n'existe pas, à notre connaissance, de données complètes sur l'évolution de l'énergie de liaison pour tous les électrons des atomes présents à l'intérieur de l'agrégat en fonction de leur taille. Cependant, certaines études expérimentales permettent d'évaluer **quantitativement** l'effet de la taille sur l'énergie de liaison des électrons.

1°) Evolution du premier potentiel d'ionisation avec la taille

Le premier potentiel d'ionisation des petits atomes d'agrégats de gaz rare (inférieur à 30 atomes) a été étudié par l'équipe de Ding et collaborateurs du *HMI* (Hahn Meitner Institut) à Berlin en utilisant une méthode de coïncidence électrons – ions lors de l'ionisation par un rayonnement synchrotron d'agrégats de gaz rare produits par expansion adiabatique [Ganteför et al., 1989]. Leurs résultats expérimentaux montrent qu'asymptotiquement le premier potentiel d'ionisation des atomes de l'agrégat tend vers le travail d'extraction du solide. Celui – ci diffère de l'ordre de 10 % (pour l'argon) à 20 % (pour le xénon) du premier potentiel d'ionisation des atomes isolés. Ceci se traduit par une baisse de l'éclairement d'apparition donnée typiquement par I_{BSI} comme nous l'avons vu dans le paragraphe I-B-1-a (Chapitre I). Pour l'argon, I_{BSI} est déplacé de $2{,}5\times10^{14}$ W/cm^2 (atome) à $1{,}5\times10^{14}$ W/cm^2 (solide) et pour le xénon cet éclairement de saturation passe de $8{,}7\times10^{13}$ W/cm^2 (atome) à $3{,}5\times10^{13}$ W/cm^2 (solide). Cet effet sur les électrons de valence n'est, à l'heure actuelle, pris en compte dans aucun modèle traitant de la dynamique d'un agrégat sous champ laser intense.

2°) Evolution de l'énergie de liaison des électrons internes avec la taille

La détermination des énergies de liaison des électrons internes pour les atomes d'un agrégat s'obtient par des mesures de spectroscopie d'absorption X (EXAFS : *"Extended X – ray Absoption Fine structure Spectroscopy"*) [Rühl, 2003] [Rühl et al., 1993] ou de spectroscopie de photoélectron induite par rayonnement X (XPS : *"X – ray Photoemission Spectroscopy"*) [Tchaplyguine et al., 2003] [Tchaplyguine et al., 2004].

En ce qui concerne l'argon, les niveaux *1s*, $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$ ont été étudiés expérimentalement et nous présentons sur la *Figure II-29* les spectres qui permettent d'en extraire l'énergie de liaison. En ce qui concerne le seuil K (*1s*) de l'argon, les auteurs estiment que le seuil d'absorption *1s* est décalé d'un *eV* plus haut pour l'agrégat par rapport à un atome libre. De même, les spectres XPS dans la région *2p* pour différentes tailles d'agrégats indiquent un décalage d'un *eV* pour les énergies de liaison des niveaux $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$ dans le cas du solide par rapport à une cible purement atomique.

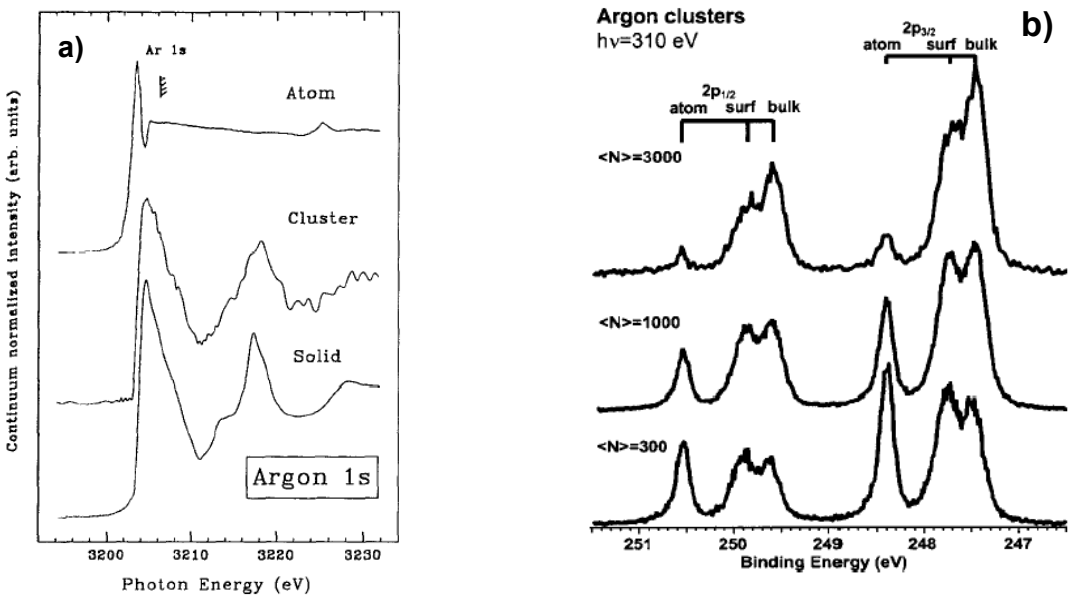


***Figure II-29 :** a) Comparaison des spectres d'ions obtenus à proximité du seuil K (1s) de l'argon pour un atome, un agrégat de 400 atomes et un solide en fonction de l'énergie du photon incident [Rühl et al., 1993] b) Spectres XPS d'agrégats d'argon obtenus pour trois tailles différentes et pour une énergie de photon de 310 eV [Tchaplyguine et al., 2004].*

Globalement, les énergies de liaison des électrons de cœur (couche K et L) de l'argon ne sont donc déplacées au maximum que d'un *eV* lorsque l'on passe d'un atome isolé à une structure massive comme le solide (*cf.* *Tableau II-8*).

	Energie de liaison (en eV)		
Niveau	Atome	Surface	Solide
1s	3205,9 [a]		3204,9 [d]
$2p_{1/2}$	250,6 [a]	249,8 [b]	249,6 [b]
$2p_{3/2}$	248,4 [b]	247,7 [b, c]	247,4 [b, c]

***Tableau II-8 :** Tableau récapitulatif des énergies de liaison concernant les niveaux 1s, $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$ de l'argon (a : [Cowan, 1981], b : [Tchaplyguine et al., 2004], c : [Björneholm et al., 1996] et d : [Rühl et al., 1993]).*

Des données similaires pour le krypton et le xénon montrent également que, pour la couche électronique immédiatement après la couche de valence, les énergies de liaison des électrons ne sont déplacées que d'un *eV*. Ainsi, quelque soit l'espèce atomique, l'écart très faible entre l'énergie de liaison de ces électrons internes et celle d'un atome isolé est donc tout à fait négligeable pour les études que nous avons menées sur les transitions X.

C-2] Formation des agrégats

C-2-a) Principe de fonctionnement d'une source d'agrégats

Les éléments essentiels d'une source produisant un jet d'agrégats tel que ceux que nous avons utilisés lors de nos différentes campagnes d'expériences sont récapitulés sommairement sur la *Figure II-30*.

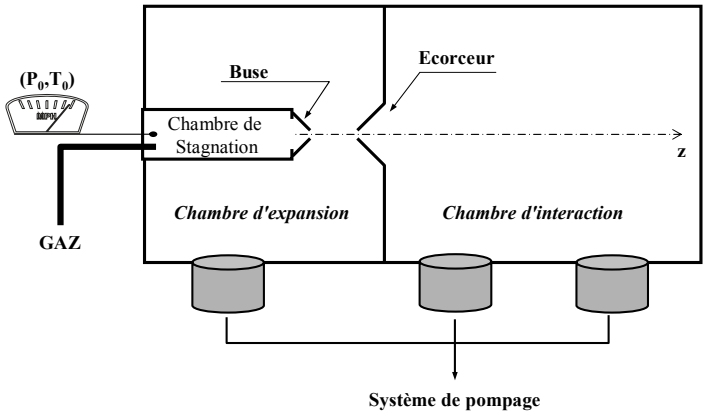


***Figure II-30 :** Représentation schématique du dispositif expérimental produisant un jet d'agrégats.*

Brièvement, le dispositif expérimental [Schaber & Martin, 1985] fonctionne de la manière suivante : le gaz résiduel amont, maintenu dans une chambre de stagnation à la pression P_0 et à la température T_0, se détend **adiabatiquement** à travers un embout (buse), d'un diamètre de 300 μm, vers une chambre d'évacuation maintenue en vide secondaire en permanence par un système de pompage. Une vanne à action rapide placée en amont de la buse de production d'agrégats permettant ainsi de former des "paquets" d'agrégats à la même fréquence et en coïncidence avec les impulsions laser au niveau de la zone d'interaction. Nous étudierons cette synchronisation entre le laser et les agrégats au §E de ce chapitre et son influence sur l'émission X. La durée d'ouverture est typiquement comprise entre 400 μs et 500 μs et le taux de répétition est égal à une fréquence harmonique de celle du laser (20 Hz). La durée d'ouverture ainsi que le taux de répétition de la vanne à action rapide sont choisis de façon à optimiser l'émission X tout en maintenant un bon vide dans la chambre d'interaction ($< 10^{-3}$ *mbar*). D'autre part, sur le dispositif expérimental, deux pompes turbo – moléculaires permettent de maintenir un vide résiduel inférieur à 10^{-3} *mbar* au niveau de la chambre d'interaction pour une pression en amont de la buse de condensation de l'ordre de quelques dizaines de *bars*. Dans le cadre de nos expériences, nous avons travaillé dans deux configurations différentes :

- avec écorceur pour les expériences réalisées avec une faible densité atomique moyenne : la zone d'interaction est alors située à une distance de 500 *mm* de la buse ;

- sans écorceur, ce qui permet de réaliser des expériences avec une grande densité atomique moyenne : la zone d'interaction est alors située à quelques *mm* de la sortie de la buse.

Dans le cadre de nos études, nous avons utilisé une buse de condensation de type conique (*cf. Figure II-31*) dont les caractéristiques sont récapitulées dans le *Tableau II-9*.

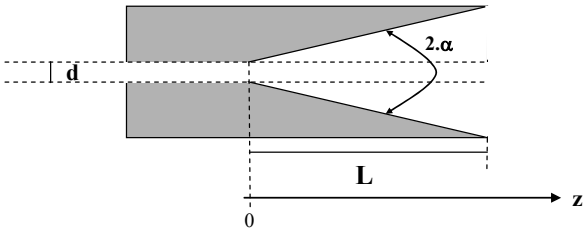


Figure II-31 : Représentation schématique de la buse de type conique utilisée sur notre dispositif expérimental de production d'agrégats.

Angle total d'ouverture du cône	$2\alpha = 15°$	
Longueur totale de la buse	$L = 25\ mm$	
Diamètre d'entrée de la buse	En 2001 et 2003	$d = 300\ \mu m$
	En 2002	$d = 1\ 000\ \mu m$

Tableau II-9 : Caractéristiques de la buse conique utilisée pour la production d'agrégats.

C-2-b) Thermodynamique de la formation et de la croissance des agrégats

Par un refroidissement du milieu, l'expansion adiabatique et isentropique d'un gaz rare à travers un petit orifice induit la condensation des atomes du gaz et provoque ainsi la croissance de nano – objets au sein du jet gazeux (phénomène de nucléation). En effet, dans le cas d'une transformation adiabatique pour un gaz parfait, nous pouvons écrire la loi de Laplace entre un point A situé juste au niveau de la buse (P_0, T_0) et un point quelconque sur l'axe du jet (P_1, T_1) :

$$\left(\frac{T_1}{T_0}\right) = \left(\frac{P_1}{P_0}\right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} \qquad \textit{[II-C.2]}$$

Pour un gaz rare, le rapport des capacités spécifiques massiques γ est égal à 5/3. Comme $P_1 < P_0$ (typiquement $P_0 \sim bar$ et $P_1 < mbar$) alors $T_1 < T_0$ (en effet, avec $T_0 \sim 300\ K$ alors $T_1 < 20\ K$). Il y a donc, localement, $T_1 < T_{condensation}$ dans les conditions expérimentales de pression (sous 1 *bar*, $T_{condensation} \sim 88\ K$ pour l'argon par exemple). D'un point de vue

thermodynamique, et dans un diagramme de phase *PT* (*cf. Figure II-32*), les deux phases (gazeuse et condensée) sont séparées entre elles par la ligne de pression de vapeur saturante (P_v), donnée approximativement par la formule de Rankine :

$$LogP_V = \alpha - \frac{\beta}{T} \qquad \textbf{[II-C.3]}$$

les constantes positives α et β étant spécifiques du gaz étudié ainsi que de la région *(P, T)* thermodynamiquement explorée. Dans ces conditions, on montre facilement que pour une détente de type isentropique, la pente de la courbe *P(T)* est toujours inférieure à celle de la courbe de pression de vapeur saturante $P_v(T)$.

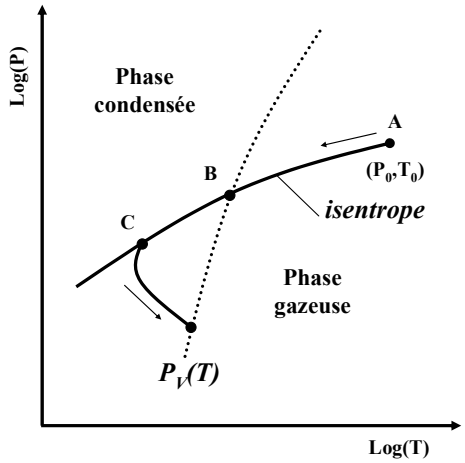


Figure II-32 : Diagramme d'état (log P, log T). La courbe de pression de vapeur saturante (P_V) sépare la phase gazeuse d'une phase condensée (solide ou liquide).

Lors de l'expansion adiabatique du milieu, la courbe isentropique croise la courbe de pression de vapeur saturante jusqu'à ce que le gaz devienne localement super saturé (entre le point B et C). Le moment à partir duquel la condensation se produit (point C) dépend à la fois de la cinétique du système et de l'échelle de temps de l'expansion, qui sont déterminées :

- par la géométrie de la buse [Hagena & Obert, 1972] [Obert, 1978] ;
- ainsi que par l'état thermodynamique de départ (point A : P_0,T_0) [Hagena, 1969].

En général, l'intersection de la courbe de pression de vapeur saturante avec l'isentrope (point B) n'est pas instantanément accompagnée de l'apparition de la phase condensée. Ce retard à la condensation provient du fait que, bien que la phase condensée soit plus stable que la phase gazeuse à (*P*, *T*) données, la situation intermédiaire (phase gazeuse + phase condensée), qui est un passage obligé, est moins stable que la phase gazeuse. Par conséquent, il n'existe pas de théorie thermodynamique générale permettant de connaître le point de départ du phénomène de condensation ainsi que la formation et la croissance des agrégats au sein du jet pouvant en résulter. Enfin, des contraintes expérimentales, telles que la vitesse du système de pompage ou bien encore la géométrie de l'écorceur, peuvent influées notablement sur les conditions de formation des agrégats, et donc sur les propriétés intrinsèques du jet d'agrégats. Depuis

certains travaux expérimentaux [Hagena & Obert, 1972], il a été démontré que ce phénomène de nucléation est favorisé par :

- une augmentation de la densité n_0 initiale (*via* la pression P_0) ;
- une diminution de la température initiale T_0 du gaz ;
- une augmentation du diamètre d de la buse au travers de laquelle se produit l'expansion adiabatique dans les limites des contraintes expérimentales (système de pompage).

Nous présenterons au §I-C-3-a la théorie semi – empirique d'Hagena qui permet d'estimer la taille des agrégats en fonction des conditions thermodynamiques et géométriques de départ.

C-2-c) Conditions thermodynamiques et cinématiques d'un jet supersonique pulsé

Le jet supersonique [Anderson, Andres & Fenn, 1966], tel que celui que nous avons utilisé, est le plus sûr moyen d'obtenir de gros agrégats. Dans ce type de dispositif, l'orientation aléatoire des vitesses des atomes à l'intérieur du réservoir (ou chambre de stagnation) est profondément modifiée à l'issue du processus de formation des agrégats. Dans ce type de jet supersonique, la température T en un point quelconque sur l'axe du jet s'exprime en fonction de T_0 suivant [Becker, 1968] :

$$T = T_0\left[1 + \frac{1}{2}\cdot(\gamma - 1)\cdot M^2\right]^{-1} \qquad \textbf{[II-C.4]}$$

avec M, le nombre de Mach, défini comme le rapport entre la vitesse d'entraînement u et la vitesse c du son dans le milieu $\left(c = \sqrt{\frac{\gamma \cdot k_B \cdot T}{m}}\right)$. L'évolution de ce nombre de Mach sur l'axe du jet en fonction de la distance réduite à la buse pour un jet de symétrie axiale (buse conique) est présentée sur la *Figure II-33*. La distance réduite à la buse est définie de la façon suivante :

$$\delta = \frac{z}{d} \qquad \textbf{[II-C.5]}$$

avec z la distance ayant pour origine l'entrée de la buse et d le diamètre d'entrée de la buse. A l'aide de la relation de Laplace donnée par l'équation [II-C.2], il est alors possible de suivre l'évolution des différentes variables d'état (T température ; P pression ; ρ densité atomique) avec le nombre de Mach M en fonction de la distance réduite à la buse, et nous présentons l'évolution de ces différentes grandeurs sur la *Figure II-34*. L'utilisation d'une buse de type conique permet d'obtenir un nombre de Mach largement plus grand que l'unité tout le long de l'axe du jet, ceci permettant finalement au gaz de se refroidir d'une manière beaucoup plus

importante que pour un jet subsonique ($M < 1$), toutes choses étant égales par ailleurs. Le jet supersonique favorise ainsi la condensation des atomes et incite la croissance de gros agrégats au sein du jet gazeux.

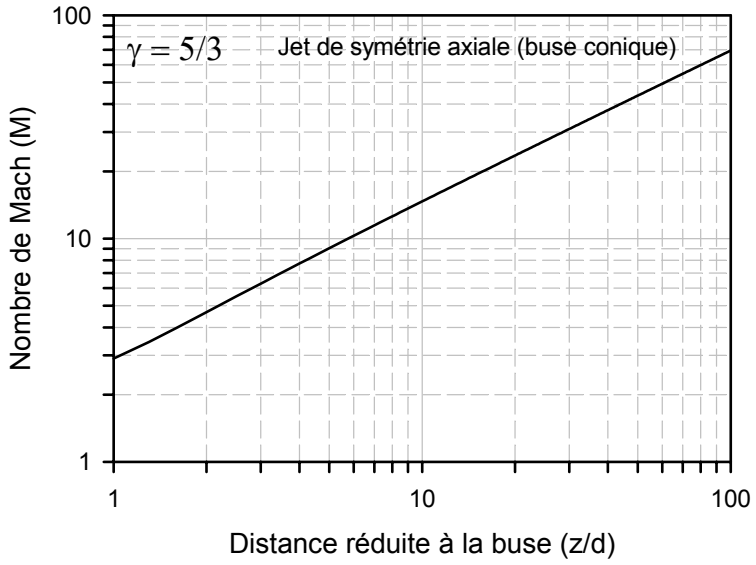


***Figure II-33 :** Évolution du nombre de Mach en fonction de la distance réduite à la buse (z/d) pour un gaz rare et un jet de symétrie axiale (courbe réalisée d'après les données issues de [Scoles, 1988] et [Haberland, 1994]).*

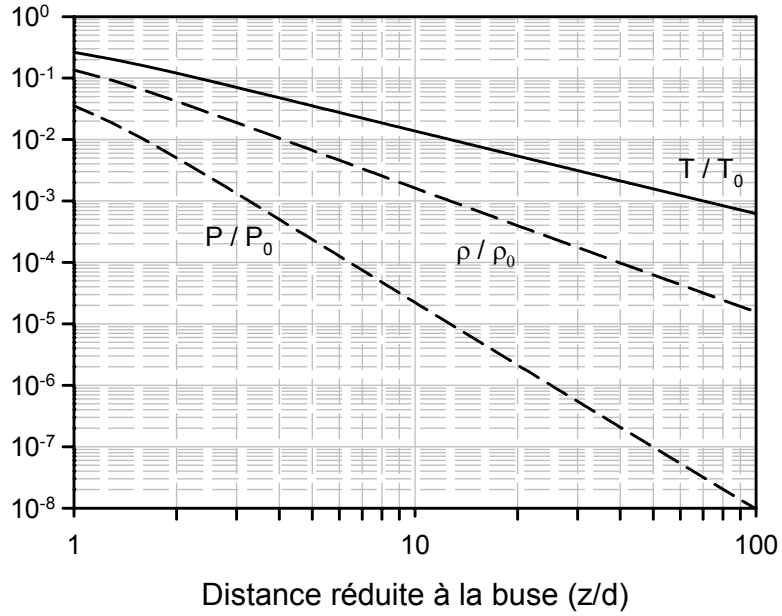


***Figure II-34 :** Évolution des variables d'état (T, P et ρ) en fonction de la distance réduite à la buse (z/d) dans le cas d'un régime supersonique (courbes réalisées en utilisant la Figure II-33 pour l'évolution du nombre de Mach avec la distance réduite).*

Expérimentalement, la pression ne peut chuter indéfiniment au sein du jet. En effet, le système de pompage présent sur notre dispositif expérimental limite la pression finale dans le jet et dans la chambre d'interaction : $P_{res} \sim 10^{-3}$ *mbar* au maximum pour une pression amont de l'ordre de 10 *bars* ($P / P_0 \approx 10^{-7}$). Ceci conduit alors à une **limite théorique** supérieure, pour le nombre de Mach, de l'ordre de 40 pour notre jet. Précisons que cette valeur théorique sur – estime le nombre de Mach car, dans ce traitement, nous avons négligé les pertes d'énergie du système lors de la formation des agrégats.

D'après un modèle développé par K. Saenger du MIT [Saenger & Fenn, 1983], la durée minimale d'ouverture de la vanne action permettant d'atteindre un régime stationnaire

pour un jet supersonique pulsé se détermine comme le temps nécessaire pour le gaz pour parcourir la distance entre l'entrée de la buse de condensation et l'endroit où se produit la saturation du nombre de Mach dans le jet gazeux. Cette durée minimale est donnée par l'expression suivante :

$$\Delta t_{ouv}^{\min} = \frac{d_{eff.}}{c_0} \times \int_0^{\delta_{\max}} \frac{\left(1 + \frac{d_{eff.} \cdot \delta - 1}{2} \cdot M^2\right)^{1/2}}{M(M+1)} \cdot d(\delta) \qquad \textbf{[II-C.6]}$$

avec $d_{eff.}$ le diamètre effectif de la buse que nous définirons dans le paragraphe I-C-3.a (équation [II-C.9]), c_0 la vitesse du son dans le réservoir à la température T_0 ($c_0 \approx 320$ *m/s* à 300 *K*), M le nombre de Mach et $\delta_{max.}$ la distance réduite à partir de laquelle le nombre de Mach sature (dans le cas présenté ci – dessus $\delta_{max.} \approx 50$). L'intégrale de l'expression [II-C.6] est tabulée et est comprise entre 0,4 pour $M_{sat.} = 2{,}8$ et 2,3 pour $M_{sat.} = 70{,}0$; nous rappelons que dans le cadre du modèle simplifié présenté précédemment, $M_{sat.}^{Max.} = 40$. Nous pouvons donc écrire que cette durée d'ouverture **minimale** est typiquement donnée par :

$$\Delta t_{ouv}^{\min} \approx [1-3] \times \frac{d_{eff.}}{c_0} \text{ avec } \frac{d_{eff.}}{c_0} \approx (5{,}2 - 17{,}3)\ \mu s \qquad \textbf{[II-C.7]}$$

D'une manière générale, la durée minimale d'ouverture de la vanne à action rapide est au maximum de 50 μs ce qui est inférieure aux temps d'ouverture utilisés lors des expériences qui était de l'ordre de 400 à 500 μs. D'après ce modèle, il est donc raisonnable de penser que le régime stationnaire pour l'écoulement du gaz est atteint sur notre dispositif expérimental.

C-3] Caractéristiques intrinsèques du jet d'agrégats

Afin de déterminer la taille des gros agrégats de Van Der Waals (plusieurs milliers d'atomes), la plupart des travaux expérimentaux repose sur une ionisation "douce" (par impact électronique [Hagena & Obert, 1972] ou par lumière laser [Bobbert et al., 2002]) puis sur une sélection en q / M des fragments chargés par spectroscopie de masse. Les résultats issus de telles expériences sont à analyser avec prudence (notamment ceux antérieurs à 1985) du fait que des processus d'évaporation et de fragmentation ont été observés depuis [Schütte & Buck, 2002]. Ceci est à l'origine de nombreuses études, parfois contradictoires, amenant à une détermination de la taille pouvant varier d'un ordre de grandeur.

Dans ce paragraphe, nous présenterons, tout d'abord, les principales idées théoriques conduisant à la détermination de la taille des agrégats, en nous appuyant, notamment, sur les

importants travaux d'Hagena dans ce domaine et en les appliquant à nos conditions expérimentales. Et, dans un second temps, nous présenterons l'apport des expériences utilisant des diagnostics optiques permettant de déterminer la densité atomique moyenne ainsi que la taille des agrégats *via* l'utilisation d'un code de simulation (travaux de l'équipe du CELIA de Bordeaux).

C-3-a) Estimation de la taille des agrégats *via* des lois semi – empiriques issues de la spectroscopie de masse

Dès 1972, Hagena et Obert établissent les premières lois d'échelle concernant la taille des agrégats au sein d'un jet supersonique [Hagena & Obert, 1972] [Hagena, 1981] [Obert, 1978]. Leur dispositif expérimental [Falter et al., 1970] consiste, sommairement, à ioniser les agrégats par un canon à électrons et à analyser, *via* un potentiel retardateur, les fragments chargés. Leur études pionnières montrent que les variables (P_0, T_0, d) sont **les variables pertinentes** (variables d'état) pour décrire la production d'agrégats. Ces variables d'état peuvent être considérées comme les coordonnées d'un espace à trois dimensions dans lequel chaque point donnant une taille d'agrégats $\overline{n}$ est défini par une surface de dimension deux. Hagena a montré, expérimentalement et théoriquement, que cette surface est paramétrée de la manière suivante [Hagena, 1974] :

- à T_0 constante : $P_0 \cdot d_{eff.}^{0,8} = cst$
- à P_0 constant : $d_{eff.} \cdot T_0^{-2,9} = cst$ ***[II-C.8]***
- à $d_{eff.}$ constant : $P_0 \cdot T_0^{-2,35} = cst$

Dans ces expressions, le diamètre d de la buse est remplacé par le diamètre effectif de condensation d_{eff} définie, pour une buse conique d'angle α, par [Hagena, 1981] :

$$d_{eff.} = K_{15} \cdot \frac{d}{\tan(\alpha)} \quad \text{avec } K_{15} = 0{,}736 \text{ pour les gaz rares} \qquad \textit{[II-C.9]}$$

Pour notre buse de production d'agrégats : $d_{eff.} = 1{,}68\ mm$ pour $d = 300\ \mu m$

$d_{eff.} = 5{,}59\ mm$ pour $d = 1\,000\ \mu m$

1°) Théorie d'Hagena

Afin de prédire la nucléation d'agrégats, Hagena a proposé d'introduire un paramètre d'échelle Γ pour tenir compte des réactions uni – et bi – moléculaires en le définissant de la manière suivante :

$$\Gamma = n_0 \cdot d_{eff.}^{\,q} \cdot T_0^{\,0,25 \cdot q - 1,5} \qquad \text{avec} \qquad (0,5 < q < 1) \qquad \textbf{[II-C.10]}$$

l'exposant q (lié à l'agrégation) étant déterminé uniquement à partir des expériences (q = 0,85 pour les gaz rares). Cependant, ce paramètre d'échelle Γ ne tient pas compte des spécificités physiques des atomes constituant les agrégats (enthalpie de sublimation Δh_0, énergie potentielle d'interaction ε et distance minimale d'approche σ du *Tableau II-6*). Ainsi, Hagena a proposé d'introduire un nouveau paramètre réduit (appelé depuis paramètre d'Hagena) Γ^* sans dimension [Hagena, 1987] [Hagena, 1992] dans lequel les variables d'état dimensionnées (n_0, d, T_0) sont remplacées par des variables réduites (n_0^*, d^*, T_0^*) :

$$n_0^* = n_0 \cdot r_{ch}^{\,3} \qquad d^* = \frac{d_{eff}}{r_{ch}} \qquad T_0^* = \frac{T_0}{T_{ch}} \qquad \textbf{[II-C.11]}$$

Les grandeurs caractéristiques de longueur et de température du gaz où se produit la nucléation sont données par :

$$r_{ch} = \left(\frac{m}{\rho}\right)^{1/3} \propto \sigma \qquad T_{ch} = \frac{\Delta h_0}{k_B} \propto \frac{\varepsilon}{k_B} \qquad \textbf{[II-C.12]}$$

avec m la masse atomique, ρ la densité atomique du solide, Δh_0 l'enthalpie de sublimation par atome à 0 K, σ le paramètre de collision et ε l'énergie d'interaction obtenus dans le cadre du potentiel de Lennard – Jones. Les grandeurs de longueur (r_{ch}) et de température (T_{ch}) définissent également une pression caractéristique p_{ch} donnée par :

$$p_{ch} = \frac{k \cdot T_{ch}}{r_{ch}^{\,3}} \qquad \text{et} \qquad p^* = \frac{P_0}{p_{ch}} \qquad \textbf{[II-C.13]}$$

Dans ces conditions, la courbe de pression de vapeur saturante est alors absolument identique pour toutes les espèces chimiques (principe d'état correspondant) [Wegener, 1974]. En combinant, les équations [II-C.10], [II-C.11] et [II-C.12] nous obtenons alors l'expression suivante pour le paramètre Γ^* :

$$\Gamma^* = \Gamma \cdot r_{ch}^{\,3-q} \cdot T_{ch}^{\,1,5-0,25 \cdot q} = \Gamma / \Gamma_{ch} \qquad \textbf{[II-C.14]}$$

Des flux hydrodynamiques ayant le même Γ^* induisent donc, en théorie, une nucléation similaire, ce qui conduit à une taille d'agrégat identique. Le *Tableau II-10* résume les valeurs caractéristiques définies précédemment pour les agrégats de gaz rare.

Elément	$r_{ch}(10^{-12}\ m)$	$T_{ch}(10^{3}\ K)$	$p_{ch}(10^{9}\ Pa)$	$\Gamma_{ch}(10^{14}\ m^{-2,15}K^{-1,29})$
Ar	339 (342)	0,927 (0,924)	0,329 (0,318)	347,0 (341,4)
Kr	352 (359)	1,285 (1,282)	0,406 (0,382)	210,0 (201,5)
Xe	(394)	(1,797)	(0,405)	(106,9)

***Tableau II-10 :** Valeurs caractéristiques intervenant dans le paramètre d'échelle d'Hagena [Hagena, 1987]; les valeurs entre parenthèses sont calculées à partir des valeurs thermodynamiques tabulées.*

En reprenant les équations [II-C.10] et [II-C.14], et en exprimant la densité atomique moyenne n_0 en fonction de la pression amont P_0 à l'aide de la relation des gaz parfaits, l'expression finale de Γ^* est [Hagena, 1992] :

$$\Gamma^* = K_{ch} \cdot P_0(mbar) \cdot \left(\frac{d(\mu m)}{\tan \alpha} \cdot K_{15} \right)^q \cdot T_0^{0,25 \cdot q - 2,5}(K) \qquad \textbf{[II-C.15]}$$

avec q = 0,85 et K_{15} = 0,736. La valeur de la constante caractéristique K_{ch} (spécifique pour chaque espèce chimique) est donnée dans le *Tableau II-11* pour les éléments étudiés.

Elément	K_{ch}
Ar	1650 (1685)
Kr	2890 (2855)
Xe	5500 (5381)

***Tableau II-11 :** Valeurs numériques de la constante K_{ch} pour l'expression [II-C.15] (les valeurs entre parenthèses sont calculées à partir des valeurs thermodynamiques tabulées, les autres sont issues de [Wörmer et al., 1989]).*

Dans le but de relier la taille "mesurée" des agrégats avec ce paramètre d'Hagena Γ^*, de nombreuses lois empiriques ont été avancées ; nous rappelons ci-dessous, les données les plus récentes correspondant à nos conditions :

- pour $1800 < \Gamma^*$: $\bar{n} = 33 \cdot \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{2,35}$ [Hagena, 1992] ***[II-C.16a]***

  ou bien encore $\bar{n} = \exp\left[-12,83 + 3,51 \left(\ln \Gamma^* \right)^{0,8} \right]$ [Buck & Krohne, 1996] ***[II-C.16b]***

- pour $1000 < \Gamma^*$: Wörmer propose également l'expression suivante :

  $$\bar{n} = 2,1 \times 10^{-4}\ \Gamma^{*1,95} \quad \text{[Wörmer et al., 1990]} \qquad \textbf{[II-C.16c]}$$

2°) Application à nos conditions expérimentales

En utilisant les caractéristiques de notre buse de production d'agrégats reportées dans le *Tableau II-9*, nous pouvons en déduire la dépendance du paramètre réduit d'Hagena Γ^* avec la pression dans nos conditions expérimentales à partir de l'équation [II-C.15] (T_0 est supposée égale à 293 K) :

Pour $d = 300\ \mu m$:

- Agrégats d'argon : $\Gamma^* = 2067{,}3 \times \left[P_0(bar)\right]$ ***[II-C.17a]***
- Agrégats de krypton : $\Gamma^* = 3621{,}0 \times \left[P_0(bar)\right]$ ***[II-C.17b]***
- Agrégats de xénon : $\Gamma^* = 6891{,}1 \times \left[P_0(bar)\right]$ ***[II-C.17c]***

Pour $d = 1\ 000\ \mu m$:

- Agrégats d'argon : $\Gamma^* = 5752{,}5 \times \left[P_0(bar)\right]$ ***[II-C.17d]***
- Agrégats de xénon : $\Gamma^* = 19175{,}0 \times \left[P_0(bar)\right]$ ***[II-C.17e]***

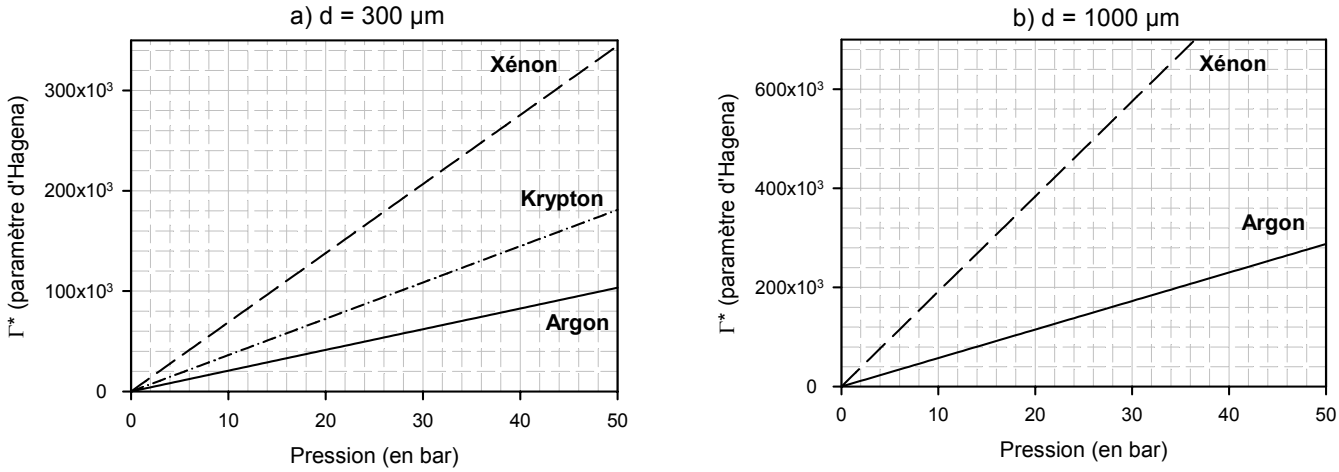


Figure II-35 : Évolution du paramètre réduit d'Hagena en fonction de la pression amont dans nos conditions expérimentales pour les trois espèces atomiques utilisées (argon, krypton et xénon) et pour les deux diamètres d'entrée de la buse de production d'agrégats a) d = 300 µm et b) d = 1000 µm.

Nous sommes dans un régime tel que $\Gamma^* >> 1800$; les lois empiriques d'Hagena (formule [II-C.16a]), de Buck (formule [II-C.16b]) ou de Wörmer (formule [II-C.16c]) sont alors utilisables pour prédire la taille des agrégats. Dans ces conditions, ces estimations sont résumées sur la *Figure II-36* pour deux pressions extrêmes que nous illustrons ici avec le diamètre de 300 μm uniquement. Nous voyons sur cette figure qu'il existe systématiquement un ordre de grandeur de différence entre, d'une part, les lois prédictives d'Hagena et de Wörmer et celles de Buck, d'autre part.

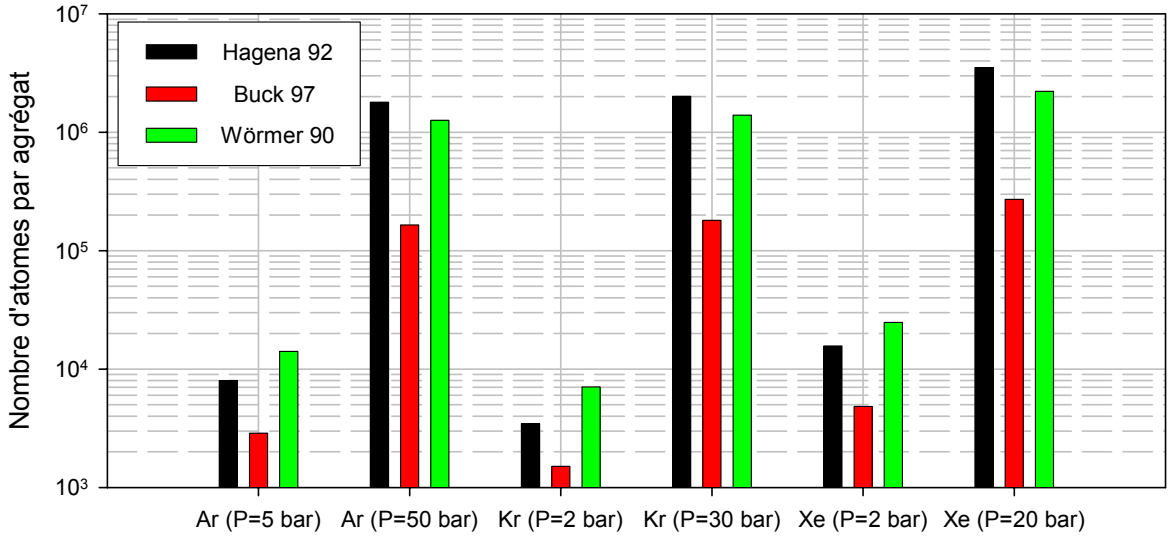


***Figure II-36.** Représentation graphique de l'estimation de la taille des agrégats d'après les différentes lois prédictives.*

C-3-b) Apport des mesures optiques

Comme nous venons de le voir précédemment, les méthodes les plus employées pour déterminer la taille des agrégats de Van der Waals reposent essentiellement sur la spectrométrie de masse à temps de vol. Ces méthodes ont le principal avantage d'être sensibles et résolues en masse mais une ionisation des agrégats peut toutefois induire une fragmentation souvent mal contrôlée, ce qui rend difficile l'interprétation des résultats. A *contrario*, des méthodes optiques, telles que la diffusion Rayleigh couplée à des mesures d'interférométrie Mach – Zender, sont d'une utilisation plus souple, mais l'information partielle qui en résulte doit ensuite être complétée par une calibration arbitraire ou par un code de simulation hydrodynamique. Afin de résumer, nous pouvons dire que :

- l'interférométrie Mach – Zender permet de mesurer uniquement la densité atomique moyenne du milieu (atomes agrégés ou pas) ; aucune information directe sur la taille ne peut en découler ;
- la diffusion Rayleigh, comme elle est utilisée par Ditmire [Smith, Ditmire & Tisch, 1998] ou par Mestadgh [Bell et al., 1993], permet de suivre l'évolution du signal Rayleigh (S_r) fonction de la pression amont P_0 ; une calibration absolue est cependant indispensable afin de remonter à la taille des agrégats [Liu et al., 2002] ;
- la combinaison de ces deux méthodes, telle qu'elle a été faite par Blasco, Dorchies et collaborateurs [Blasco et al., 2003] [Dorchies et al., 2003], nécessite une simulation

numérique [Boldarev et al., 2001] afin de remonter à l'information manquante : la taille des agrégats.

Succinctement, dans le modèle hydrodynamique [Boldarev et al., 2001], le flux gazeux est considéré dans un régime non – turbulent et les effets de viscosité sont négligés. La formation et la croissance des agrégats sont traitées en considérant les effets de tension de surface d'un agrégat supposé sphérique ainsi que l'évaporation éventuelle (pour plus d'informations sur ce code hydrodynamique voir [Boldarev et al., 2001] et [Dorchies et al., 2003]). Il ressort de leurs études que trois paramètres sont importants pour la caractérisation d'un jet d'agrégats :

- la densité atomique moyenne totale $n_{at.\,moy.}$; cette quantité est la somme des contributions des atomes en phase agrégée ainsi que des atomes en phase gazeuse ;
- le degré de condensation η défini comme étant le rapport entre le nombre d'atomes en phase agrégée sur le nombre total d'atomes ;
- le rayon moyen R des agrégats.

Nous allons présenter, dans la suite, les estimations de ces grandeurs pour notre jet d'agrégats.

1°) Densité atomique moyenne

En reprenant les travaux d'Hagena, la densité atomique moyenne au sein d'un jet gazeux se détermine à partir de ses propriétés thermodynamiques, des conditions d'écoulement dynamique et du diamètre effectif de la buse de condensation (équation [II-C.9]) [Hagena, 1981] et s'exprime par :

$$n_{at.\,moy.}\,(at/cm^3) = 5{,}885\times10^{20}\cdot\frac{P_0(bar)}{T_0(K)}\cdot\left(\frac{d(m)}{z(m).\tan\alpha}\right)^2 \qquad \textbf{[II-C.18a]}$$

soit numériquement : $n_{at.\,moy.}\,(at/cm^3) = 1{,}043.10^{13}\times\frac{P_0(bar)}{z(m)^2}$ (pour $d = 300\ \mu m$) **[II-C.18b]**

$$n_{at.\,moy.}\,(at/cm^3) = 1{,}159.10^{14}\times\frac{P_0(bar)}{z(m)^2}\ \text{(pour } d = 1000\ \mu m\text{)} \qquad \textbf{[II-C.18d]}$$

Pour des conditions données (d, T_0 et α), la densité atomique moyenne varie linéairement avec la pression ($n_{at.\,moy.} \propto P_0$) mais est inversement proportionnelle au carré de la distance par rapport à l'entrée de la buse ($n_{at.\,moy.} \propto 1/z^2$). Les estimations obtenues à l'aide de la formule [II-C.18a] des densités atomiques sur notre dispositif expérimental sont présentées dans le *Tableau II-12*. Les densités atomiques moyennes sont typiquement comprises entre quelques 10^{13} *at. /cm³* et 10^{15} *at. / cm³* dans la configuration où la zone d'interaction est loin

de la buse de condensation et de quelques 10^{15} *at. / cm³* à quelques 10^{18} *at. / cm³* dans la configuration où la zone d'interaction est proche de la buse de condensation.

Distance *z*	P_0 = 1 *bar*	P_0 = 20 *bars*	P_0 = 50 *bars*
z = 38 *mm* (zone d'interaction dans la configuration proche du jet) ***d* = 300 *µm*[3]**	$7{,}2\times10^{15}$ *at / cm³*	$1{,}4\times10^{17}$ *at / cm³*	$3{,}6\times10^{17}$ *at / cm³*
z = 38 *mm* (zone d'interaction dans la configuration proche du jet) ***d* = 1000 *µm*[4]**	$8{,}03\times10^{16}$ *at / cm³*	$1{,}61\times10^{18}$ *at / cm³*	$4{,}01\times10^{18}$ *at / cm³*
z = 500 *mm* (zone d'interaction dans la configuration loin du jet) ***d* = 300 *µm*[5]**	$4{,}2\times10^{13}$ *at / cm³*	$8{,}3\times10^{14}$ *at / cm³*	$2{,}1\times10^{15}$ *at / cm³*

***Tableau II-12 :* Estimations de la densité atomique moyenne sur notre dispositif expérimental.**

Dans le cas des mesures de densités atomiques réalisées par l'équipe de Bordeaux, ils ont utilisé une buse de type conique ayant des caractéristiques proche de la notre et leurs mesures expérimentales sont présentées sur la *Figure II-37* ainsi que les prédictions de la formule [II-C.18a] (ligne en traits pointillés) et celles du code de simulation hydrodynamique de Boldarev à deux dimensions (ligne en traits pleins).

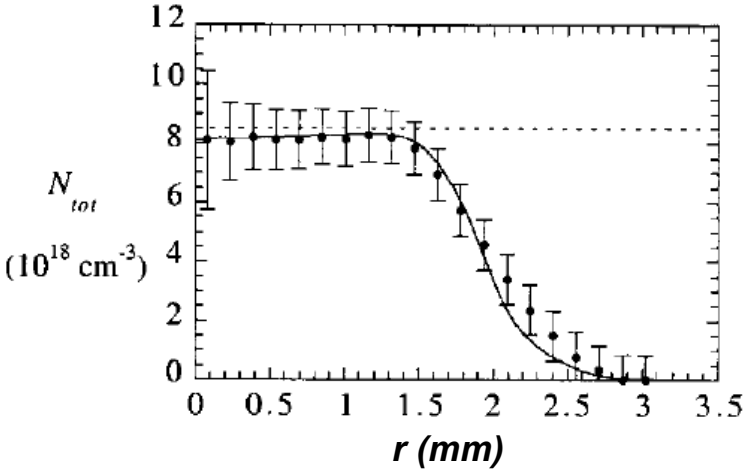


***Figure II-37 :* Profil de densité atomique moyenne de la buse conique de Bordeaux pour une pression de 40 bars et à une distance de 1,5 mm sous la sortie de la buse. La courbe en traits pleins est issue du code hydrodynamique de Boldarev (calcul 2D) et la ligne en pointillés représente l'estimation par la formule d'Hagena [Dorchies et al., 2003].**

[3] Campagne d'expériences de 2003.
[4] Campagne d'expériences de 2002.
[5] Campagne d'expériences de 2001.

Les estimations de densités atomiques moyennes prédites dans le cadre de la théorie d'Hagena (calcul à 1 dimension) sont donc en excellent accord avec les mesures réalisées par le CELAI sur l'axe du jet, c'est à dire pour $r = 0$, l'information supplémentaire apportée par ce type de mesures étant la distribution radiale de densité atomique moyenne. Ces mesures sont, par ailleurs, très bien reproduites par les calculs du code hydrodynamique de Boldarev. Sur notre dispositif expérimental, les densités atomiques moyennes estimées sont beaucoup plus faibles que celle obtenues sur le dispositif expérimental du CELIA : toutes choses étant égales, il y a plus d'un ordre de grandeur de différence entre les deux dispositifs. Le seuil de détection d'un tel dispositif interférométrique étant de l'ordre de quelques 10^{17} *at / cm*^{3}, il n'est donc pas possible d'effectuer de telles expériences avec notre système de production d'agrégats. Cependant, les résultats issus du code hydrodynamique Boldarev ayant été validés pour plusieurs types de buse et sur une large gamme de pression (de 20 à 60 *bars*) par les expériences de l'équipe de Bordeaux, nous avons fait réaliser des simulations identiques à l'aide de ce code pour notre buse de production d'agrégats comme nous l'illustrons sur la *Figure II-38* pour une pression amont de 20 *bars* d'argon et à une distance de 13 *mm* sous la buse de production d'agrégats.

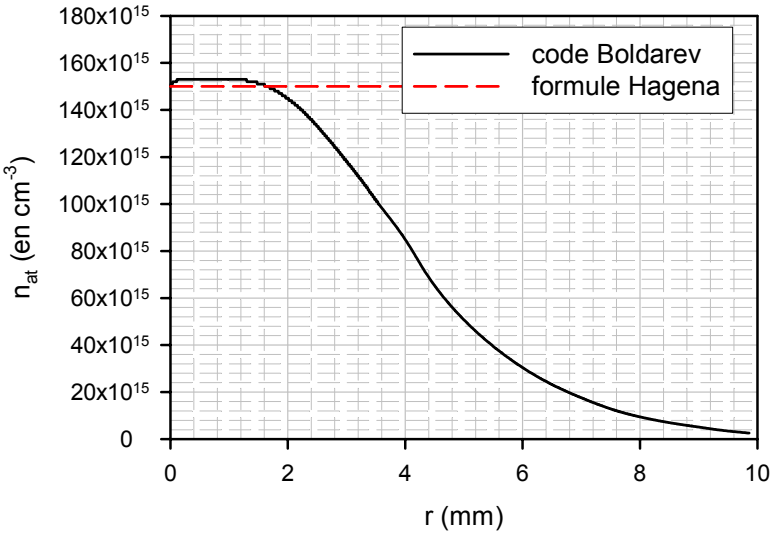


Figure II-38 : Courbe en trait plein : profil de densité atomique moyenne calculé à l'aide du code hydrodynamique de Boldarev pour une pression de 20 bars d'argon et à 13 mm de la sortie de la buse pour notre buse conique de production d'agrégats ; courbe en traits pointillés : prédictions d'Hagena.

Encore une fois l'accord entre les prédictions d'Hagena pour la densité atomique moyenne et le code de Boldarev est excellent sur l'axe du jet. La formule [II-C.18a] reproduit donc très bien la densité atomique moyenne au niveau de la zone d'interaction.

2°) Taux de condensation et rayon moyen des agrégats

Lors des expériences de diffusion Rayleigh réalisées par Blasco et collaborateurs, ils ont considéré que le taux de condensation (η) n'était pas de 100% et que le signal diffusé provenait donc à la fois des atomes des agrégats mais également des atomes non agrégés

présents en phase gazeuse [Blasco et al., 2003] [Dorchies et al., 2003]. Le taux de condensation η est extrait en comparant les résultats expérimentaux concernant la diffusion Rayleigh avec les calculs du code de Boldarev. Dans le cas de notre buse de production d'agrégats, la proportion d'atomes agrégés a été calculée par ce code de l'ordre de 33 % et est trouvée quasi – constante sur toute l'expansion transverse du jet. A l'aide ce code, il est enfin possible d'extraire le rayon des agrégats ainsi que l'évolution transverse de ce rayon. Pour une pression amont de 20 *bars*, le rayon moyen est trouvé quasi – constant sur toute l'expansion transverse du jet et est de l'ordre de 86 Å.

3°) Taille moyenne des agrégats

Ce rayon R permet de déterminer le nombre moyen d'atomes par agrégat $\overline{n}$ d'après la relation générale suivant (sous l'hypothèse d'un agrégat sphérique):

$$\frac{4}{3}\pi \cdot R^3 \times n_{at.loc.} = \overline{n} \qquad \textbf{[II-C19]}$$

avec $n_{at.loc.}$ la densité atomique locale donnée dans le *Tableau II-7*. Nous en déduisons alors les relations suivantes pour les agrégats que nous avons étudiés plus particulièrement :

- Pour l'argon : $R^3 \approx 9 \times \overline{n}$ **[II-C.20a]**
- Pour le krypton : $R^3 \approx 11{,}71 \times \overline{n}$ **[II-C.20b]**
- Pour le xénon : $R^3 \approx 15{,}28 \times \overline{n}$ **[II-C.20c]**

(dans ces expressions le rayon est exprimé en Angströms)

Enfin, les mesures de l'équipe de Bordeaux sont bien reproduites par une loi de type Hagena de la forme suivante :

$$\overline{n} \approx 100 \cdot \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{1,8} \qquad \textbf{[II-C.21]}$$

C-4] Bilan

Pour finir cette partie concernant les agrégats de gaz rare, il est présenté tout d'abord quelques idées concernant la distribution en taille des agrégats de gaz rare et enfin nous récapitulons les différentes caractéristiques des agrégats produits sur notre dispositif expérimental (taille, rayon, densité atomique moyenne, densité d'agrégats, distance entre les agrégats, nombre d'agrégats dans le volume focal nominal).

C-4-a) Distribution en taille des agrégats

Très récemment, des travaux entrepris par l'équipe de Buck et collaborateurs [Bobbert et al., 2002] [Schütte & Buck, 1999] [Schütte & Buck, 2002], ont permis, pour la première fois, d'établir la distribution "réelle" en taille des agrégats lors d'une ionisation "contrôlée" (faible évaporation et sans fragmentation induite). Le principe de leur méthode consiste à attacher un atome de sodium sur un agrégat de gaz rare. L'électron *3s* du sodium se délocalise alors sur tout l'agrégat et il est ensuite photoionisé à l'aide d'un laser excimer à 193 *nm* (E_{hv} = 6,42 *eV*), le régime d'ionisation multiphotonique étant, bien entendu, à éviter dans ces expériences. A l'aide d'un réflectron de grande résolution, le tri en vol des fragments chargés permet de remonter *in fine* à la distribution en taille des agrégats comme nous le présentons sur la *Figure II-39* pour des agrégats de xénon et de krypton.

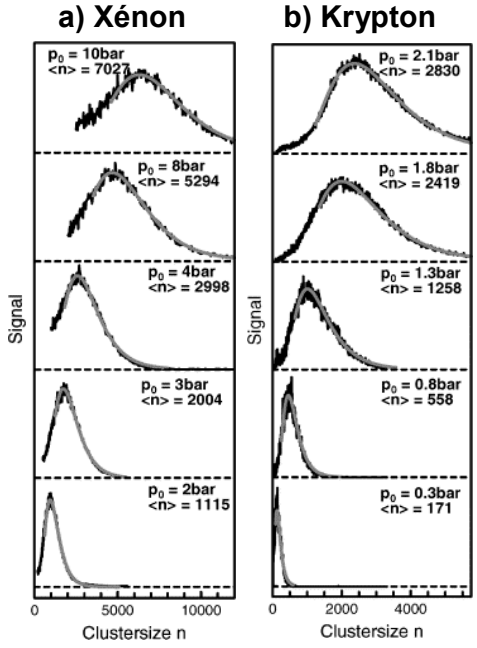


***Figure II-39 :** Spectres de masse obtenus pour des agrégats de xénon et de krypton dopés au sodium et photoionisés par un laser excimer. Les tailles moyennes indiquées sont déterminées à l'aide d'une distribution log – normale [Schütte & Buck, 2002].*

Toutes ces distributions en taille sont bien reproduites par une distribution de type log – normale donnée par l'expression :

$$f(n) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\cdot\sigma\cdot n}\cdot\exp\left(-\frac{(\ln n-\mu)^2}{2\sigma^2}\right) \qquad \textit{[II-C.22]}$$

avec deux paramètres ajustables : μ le logarithme de la moyenne géométrique et σ le logarithme de la déviation standard géométrique. De telles expériences pourraient être envisagées sur notre dispositif de production d'agrégats afin de maîtriser la distribution en taille des agrégats interagissant avec le laser. Ainsi, cela permettrait de déconvoluer le taux de

photons X obtenu de la distribution en taille et donc de déterminer précisément le nombre de photons X pour une taille d'agrégat unique.

C-4-b) Récapitulatif : estimation de la taille des agrégats

Il est présenté sur la *Figure II-40* l'ensemble des estimations concernant les tailles des agrégats de gaz rare issues de la spectroscopie de masse et des études optique présentées précédemment, à savoir :

- Les différentes lois prédictives issues de la spectrométrie de masse : équations [II-C.16a] (Hagena 92), [II-C.16b] (Buck 96) et [II-C.16c] (Wörmer 90) ;
- Les estimations issues de l'équipe de Bordeaux : les trois points pour $\Gamma^* > 10^5$ correspondent à leurs mesures couplées à la simulation de Boldarev et le point à $\text{Log}(\Gamma^*) = 4{,}6$ correspond au résultat de la simulation du code de Boldarev pour notre buse de formation d'agrégats et pour une pression amont de 20 *bars* d'argon ;
- Les points expérimentaux récents de Buck et collaborateurs obtenus à partir de la *Figure II-39*.

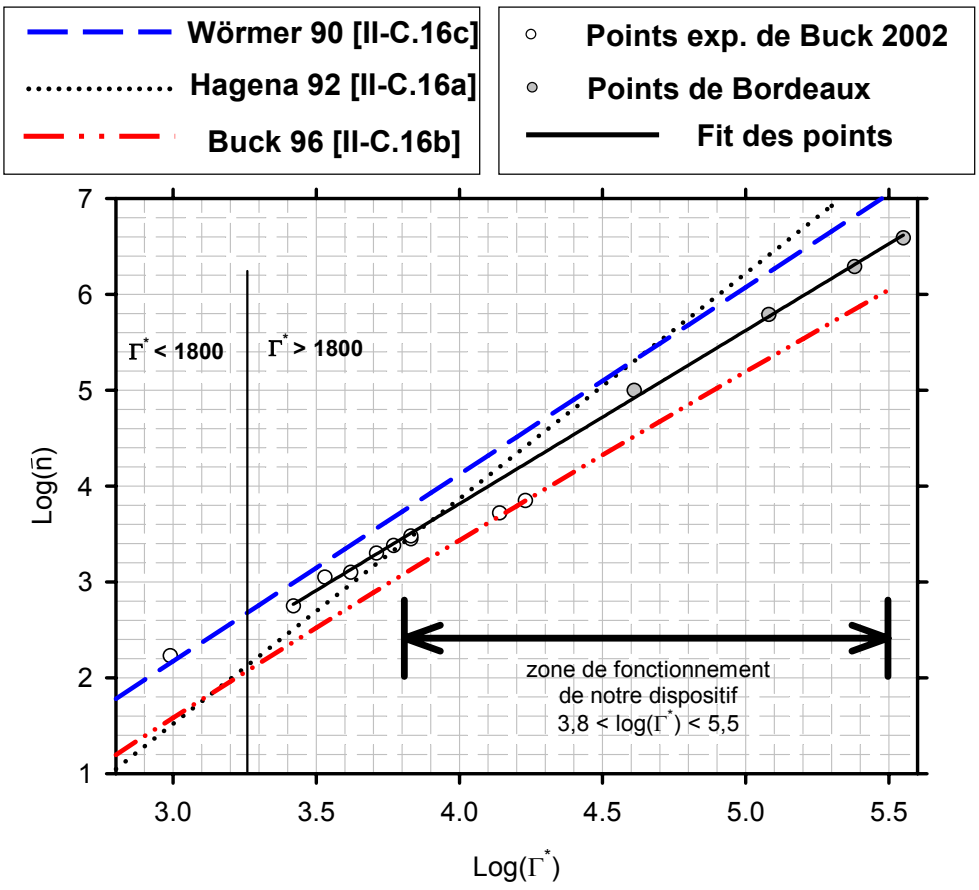


***Figure II-40 :** Récapitulatif des différentes lois prédictives estimant la taille moyenne des agrégats (Hagena 92, Buck 96 et Wörmer 90) et mesures de Buck 2002 et de Bordeaux en fonction du paramètre réduit d'Hagena.*

La droite d'ajustement linéaire entre les points expérimentaux de Buck 2002 et les points issus de Bordeaux *via* le code de simulation de Boldarev est absolument identique à l'équation [II-C.21] ; nous avons donc utilisé cette loi prédictive pour estimer la taille des agrégats produits sur notre dispositif expérimental. Notons également que cette estimation est un bon compromis entre les lois prédictives de Wörmer 96 (formule [II-C.16c]) et de Buck 96 (formule [II-C.16b]) et est identique à celle d'Hagena 92 (formule [II-C.16a]) pour $\Gamma^* \sim 10^4$. Nous récapitulons dans les *Tableaux II-13* l'ensemble des caractéristiques concernant les agrégats d'argon, de krypton et de xénon en fonction de la pression amont P_0 soit :

- Le paramètre d'Hagena (formules [II-C.17]), la taille des agrégats à partir de l'expression [II-C.21] et le rayon moyen des agrégats (formules [II-C.20]);
- La densité atomique moyenne (formule [II-C.18]), la densité d'agrégats moyenne, la distance entre les agrégats et le nombre d'atomes contenus dans le volume focal nominal (à 800 *nm* et à 400 *nm*) et ceci pour les deux distances entre l'entrée de la buse et la zone d'interaction : z = 500 *mm* et z = 38 *mm*.

Ces grandeurs sont calculées pour chacune des différentes campagnes d'expériences qui ont été réalisées en 2001, 2002 et 2003.

Argon (d = 300 *µm*)						
P_0 (en *bar*)	5	10	20	30	40	50
Paramètre d'Hagena Γ*	1.0E+04	2.1E+04	4.1E+04	6.2E+04	8.3E+04	1.0E+05
Taille : n (at./ag.)	6.7E+03	2.3E+04	8.1E+04	1.7E+05	2.8E+05	4.2E+05
Rayon (en Angström)	39	59	90	115	137	156
	1er cas : z = 500 *mm* (manip 2001)					
Densité atomique : $n_{at.\ moy.}$ (at./cm^3)	2.09E+14	4.17E+14	8.34E+14	1.25E+15	1.67E+15	2.09E+15
Densité d'agrégats : n (ag./cm^3)	3.11E+10	1.79E+10	1.03E+10	7.43E+09	5.90E+09	4.94E+09
Distance entre agrégats (en *µm*)	3.2	3.8	4.6	5.1	5.5	5.9
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (800 *nm*)	2.2E+04	1.3E+04	7.4E+03	5.3E+03	4.2E+03	3.6E+03
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (400 *nm*)	2.8E+03	1.6E+03	9.2E+02	6.7E+02	5.3E+02	4.4E+02
	2ème cas : z = 38 *mm* (manip 2003)					
Densité atomique : $n_{at.\ moy.}$ (at./cm^3)	3.61E+16	7.22E+16	1.44E+17	2.17E+17	2.89E+17	3.61E+17
Densité d'agrégats : n (ag./cm^3)	5.4E+12	3.1E+12	1.8E+12	1.3E+12	1.0E+12	8.5E+11
Distance entre agrégats (en *µm*)	0.6	0.7	0.8	0.9	1.0	1.1
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (800 *nm*)	3.9E+06	2.2E+06	1.3E+06	9.3E+05	7.4E+05	6.2E+05
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (400 *nm)*	4.9E+05	2.8E+05	1.6E+05	1.2E+05	9.2E+04	7.7E+04

Argon (d = 1000 *µm*)						
P_0 (en *bar*)	5	10	20	30	40	50
Paramètre d'Hagena Γ*	2.9E+04	5.8E+04	1.2E+05	1.7E+05	2.3E+05	2.9E+05
Taille : n (at./ag.)	4.2E+04	1.5E+05	5.1E+05	1.1E+06	1.8E+06	2.7E+06
Rayon (en Angström)	72	110	166	212	252	288
	3ème cas : z = 38 *mm* (manip 2002)					
Densité atomique : $n_{at.\ moy.}$ (at./cm^3)	4.01E+17	8.03E+17	1.61E+18	2.41E+18	3.21E+18	4.01E+18
Densité d'agrégats : n (ag./cm^3)	9.5E+12	5.5E+12	3.1E+12	2.3E+12	1.8E+12	1.5E+12
Distance entre agrégats (en *µm*)	0.5	0.6	0.7	0.8	0.8	0.9
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (800 *nm*)	6.8E+06	3.9E+06	2.3E+06	1.6E+06	1.3E+06	1.1E+06
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (400 *nm*)	8.5E+05	4.9E+05	2.8E+05	2.0E+05	1.6E+05	1.4E+05

Krypton (d= 300 *µm*)				
P_0 (en *bar*)	2	10	20	30
Paramètre d'Hagena Γ*	7.2E+03	3.6E+04	7.2E+04	1.1E+05
Taille : n (at./ag.)	3.5E+03	6.4E+04	2.2E+05	4.6E+05
Rayon (en Angström)	35	91	138	176
	1er cas : z = 500 *mm* (manip 2001)			
Densité atomique : $n_{at.\ moy.}$ (at./cm^3)	8.34E+13	4.17E+14	8.34E+14	1.25E+15
Densité d'agrégats : n (ag./cm^3)	2.36E+10	6.52E+09	3.75E+09	2.71E+09
Distance entre agrégats (en *µm*)	3.5	5.4	6.4	7.2
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (800 *nm*)	1.7E+04	4.7E+03	2.7E+03	2.0E+03
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (400 *nm*)	2.1E+03	5.9E+02	3.4E+02	2.4E+02

Xénon (d = 300 μm)				
P_0 (en *bar*)	2	10	20	30
Paramètre d'Hagena Γ*	1.4E+04	6.9E+04	1.4E+05	2.1E+05
Taille : n (at./ag.)	1.1E+04	2.0E+05	7.1E+05	1.5E+06
Rayon (en Angström)	56	146	221	282
	1er cas : z = 500 *mm* (manip 2001)			
Densité atomique : $n_{at.\ moy.}$ (at./cm^3)	8.34E+13	4.17E+14	8.34E+14	1.25E+15
Densité d'agrégats : n (ag./cm^3)	7.42E+09	2.05E+09	1.18E+09	8.51E+08
Distance entre agrégats (en μm)	5.1	7.9	9.5	10.6
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (800 *nm*)	5.3E+03	1.5E+03	8.5E+02	6.1E+02
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (400 *nm*)	6.7E+02	1.8E+02	1.1E+02	7.7E+01
	2ème cas : z = 38 *mm* (manip 2003)			
Densité atomique : nat. moy. (at./cm^3)	1.44E+16	7.22E+16	1.44E+17	2.17E+17
Densité d'agrégats : n (ag./cm^3)	1.3E+12	3.5E+11	2.0E+11	1.5E+11
Distance entre agrégats (en μm)	0.9	1.4	1.7	1.9
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (800 *nm*)	9.3E+05	2.6E+05	1.5E+05	1.1E+05
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (400 *nm*)	1.2E+05	3.2E+04	1.8E+04	1.3E+04

Xénon (d = 1000 μm)				
P_0 (en *bar*)	2	10	20	30
Paramètre d'Hagena Γ*	3.8E+04	1.9E+05	3.8E+05	5.8E+05
Taille : n (at./ag.)	7.1E+04	1.3E+06	4.5E+06	9.3E+06
Rayon (en Angström)	103	270	409	522
	3ème cas : z = 38 *mm* (manip 2002)			
Densité atomique : $n_{at.\ moy.}$ (at./cm^3)	1.61E+17	8.03E+17	1.61E+18	2.41E+18
Densité d'agrégats : n (ag./cm^3)	2.3E+12	6.2E+11	3.6E+11	2.6E+11
Distance entre agrégats (en μm)	0.8	1.2	1.4	1.6
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (800 *nm*)	1.6E+06	4.5E+05	2.6E+05	1.9E+05
$N_{ag.}$ dans Vol. foc. Nom. (400 *nm*)	2.0E+05	5.6E+04	3.2E+04	2.3E+04

***Tableaux II-13 :** Estimations des différents paramètres concernant les agrégats d'argon, de krypton et de xénon pour toutes les campagnes d'expériences (2001 – 2002 et 2003).*

D] La détection X

L'analyse en absolu du rayonnement X émis à la suite de l'interaction du faisceau laser avec les agrégats de gaz rare constitue un outil particulièrement précieux *in situ* pour le travail présenté dans ce manuscrit. Ainsi, lors des différentes campagnes d'expériences que nous avons réalisées, deux types de systèmes de détection ont été utilisés pour observer précisément les photons X émis lors de l'interaction :

- Des détecteurs à jonction (diodes semi – conductrices Si(Li)) détectant l'ensemble des X émis sur une large plage en énergie (typiquement comprise entre 1,5 *keV* et quelques dizaines de *keV*) ;
- Un spectromètre à cristal mosaïque équipé d'un détecteur à localisation permettant de faire un zoom en énergie sur l'émission X observée par les détecteurs à jonction.

L'implantation générale de ces différents détecteurs est présentée sur la *Figure II-41*.

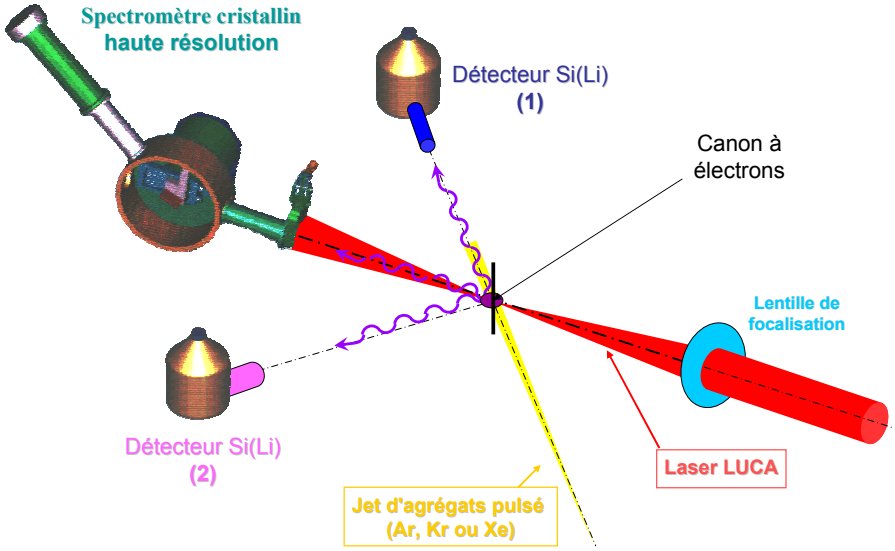


Figure II-41 : ***Représentation schématique de l'implantation des différents détecteurs sur le dispositif expérimental.***

Précisons que la position relative de ces différents détecteurs n'a pas été guidée par les problèmes de polarisation du rayonnement X émis car, comme nous l'avons vu dans le Chapitre I, les études précédentes de l'équipe ont montré que l'émission X résultant de l'interaction d'un laser de puissance avec des agrégats est complètement isotrope.

Ces détecteurs ayant fait l'objet d'études détaillées lors de précédentes thèses [Adoui, 1994] [Despiney, 1994] [Lamour, 1997], nous ne décrirons pas en détail leur fonctionnement mais nous présenterons uniquement, dans la suite de cette partie, les informations essentielles permettant d'en comprendre le principe de fonctionnement, ainsi que leurs caractéristiques intrinsèques (résolution, étalonnage, transmission) qui ont servies au dépouillement des

spectres. Ces différentes données ont été obtenues lors d'expériences spécifiques de calibration réalisées en combinant deux méthodes :

- tout d'abord grâce à l'enregistrement de données correspondant à la production de rayons X durs suite à la désexcitation radiative d'espèces ionisées en couche interne (fluorescence X) par impact électronique sur des cibles de *KAlCl* et d'inox (mélange de Fe, de Cr et de Ni) ;
- mais également grâce aux radiations électromagnétiques (rayons X durs ou γ de faibles énergies) émises par des sources radioactives de ^{109}Cd, ^{57}Co et ^{55}Fe.

Ces expériences ont permis de déterminer la résolution des détecteurs, leur efficacité relative l'un par rapport à l'autre mais également leur étalonnage respectif.

D-1] Détecteurs Si(Li)

Les jonctions semi – conductrices utilisées pour la détection X sont constituées d'une pastille de silicium dopé par un élément donneur d'électrons (lithium). Soumise à une tension de polarisation de l'ordre de quelques *kV* (entre 1,0 et 1,5 *kV*), il apparaît une zone de déplétion d'autant plus importante que la polarisation est grande. L'arrivée d'un photon X d'énergie E_X sur la zone sensible de déplétion éjecte un électron, principalement par effet photoélectrique, qui passe de la bande de valence à la bande de conduction, entraînant la création d'une cascade de paires électrons – trous dans le matériau. La collection de charge, obtenue grâce au champ électrique dans la zone de déplétion, fournit alors un signal électrique dont l'amplitude est directement proportionnelle à l'énergie des photons incidents : la relation entre l'amplitude de ce signal électrique et l'énergie E_X du photon incident nécessite un étalonnage préalable du détecteur à l'aide de cibles ou de sources radioactives émettant des raies X d'énergie connue et tabulée. Enfin, la transmission globale de ce type de détecteur, rapport du nombre d'X détectés sur le nombre d'X émis par la source X dans 4π s'écrit sous la forme :

$$T_{Si(Li)} = \varepsilon_{dét.} \times \left(\frac{\Omega}{4\pi} \right) \times T_{filtre} \qquad \textbf{[II-D.1]}$$

avec :

- $\varepsilon_{dét.}$: l'efficacité de détection ;
- $\left(\frac{\Omega}{4\pi} \right)$: l'angle solide de détection ;
- T_{filtre} : la transmission des filtres placés éventuellement devant le détecteur.

Cette transmission globale du détecteur va nous permettre, comme nous le verrons plus précisément dans le Chapitre III, de déterminer le nombre absolu de photons émis par la source X dans 4π. Les deux détecteurs Si(Li) ont un rôle complémentaire dans les études que nous avons réalisées :

- l'un des détecteurs Si(Li) permet, de pas sa grande dynamique énergétique, de déterminer sur une grande dynamique dans le taux de comptage le taux absolu de photons X émis lors de l'interaction ;
- tandis que l'autre détecteur Si(Li) permet de contrôler en permanence l'ensemble des radiation électromagnétiques émises pendant l'interaction.

Le rôle précis des ces détecteurs et l'exploitation des spectres qui en résultent seront détaillés dans le Chapitre III de ce manuscrit. Nous allons détailler, dans la suite de ce paragraphe, chacun de ces termes ainsi que l'étalonnage en énergie pour ce type de détecteur.

D-1-a) Efficacité des détecteurs Si(Li)

L'efficacité d'un détecteur est définie comme le rapport entre le nombre d'événements enregistrés par le détecteur sur le nombre d'événements atteignant le détecteur. Cette efficacité dépend du processus physique conduisant à la détection (effet photoélectrique), de la nature du matériau constituant la pastille détectrice (silicium) ainsi que de la nature des autres milieux traversés par le photon incident (fenêtre de béryllium) avant la détection. Des mesures d'efficacité de ces détecteurs ont fait l'objet de nombreuses études dans l'équipe et nous présentons sur la *Figure II-42* et sur la *Figure II-43* les courbes d'efficacité pour les deux détecteurs Si(Li) que nous avons utilisés. Nous présentons également dans le *Tableau II-10* l'efficacité des deux détecteurs Si(Li) à l'énergie des photons X émis par les agrégats de gaz rare lors de nos expériences. L'incertitude relative associée à l'efficacité des détecteurs Si(Li) est estimée inférieure à 5 %, celle – ci provenant principalement de l'épaisseur de la zone morte du détecteur ainsi que de l'épaisseur de la fenêtre de Be.

Elément	Energie (en *keV*)	$\varepsilon_{dét.}$ Si(Li) (1)	$\varepsilon_{dét.}$ Si(Li) (2)
Ar	~ 3,1	0,92	0,82
Kr	~ 1,7	0,71	0,51
Xe	~ 4,4	0,97	0,92

***Tableau II-14 :** Efficacité des détecteurs Si(Li) pour chacune des transitions X observées lors de l'interaction des agrégats avec le laser femtoseconde.*

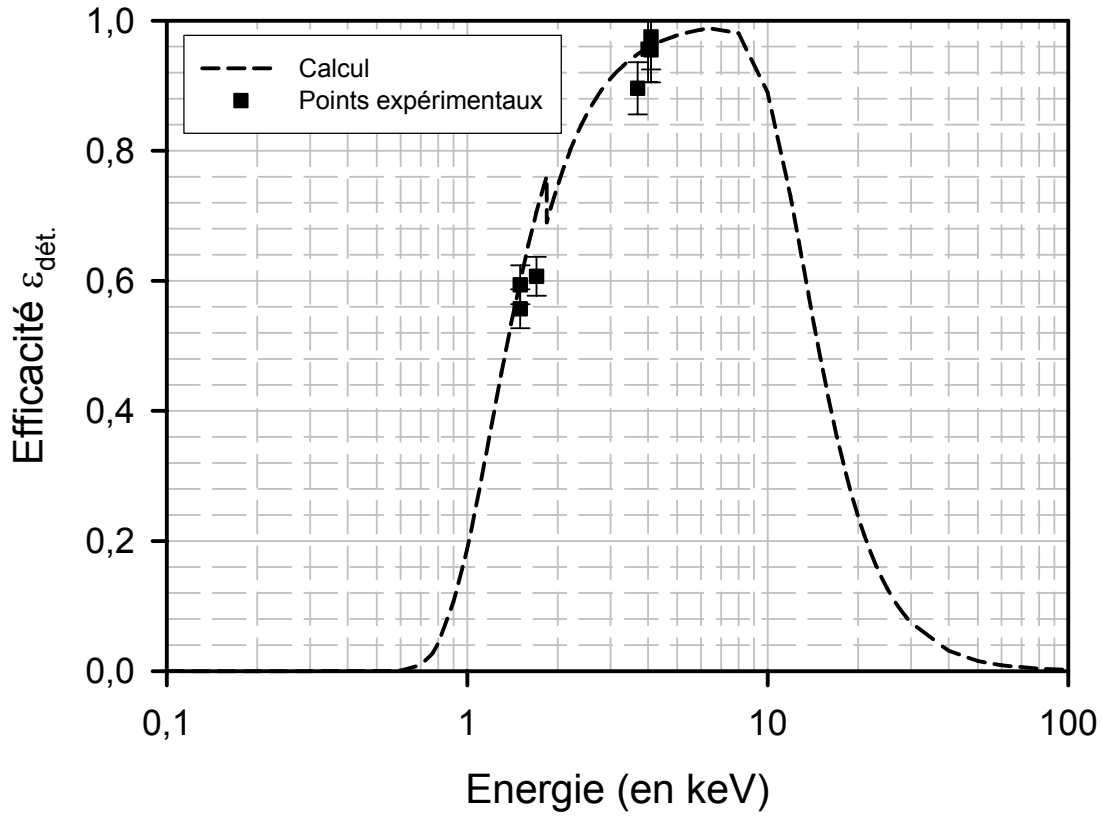


***Figure II-42 :** Efficacité du détecteur Si(Li) (1) en fonction de l'énergie du rayonnement X incident détecté.*

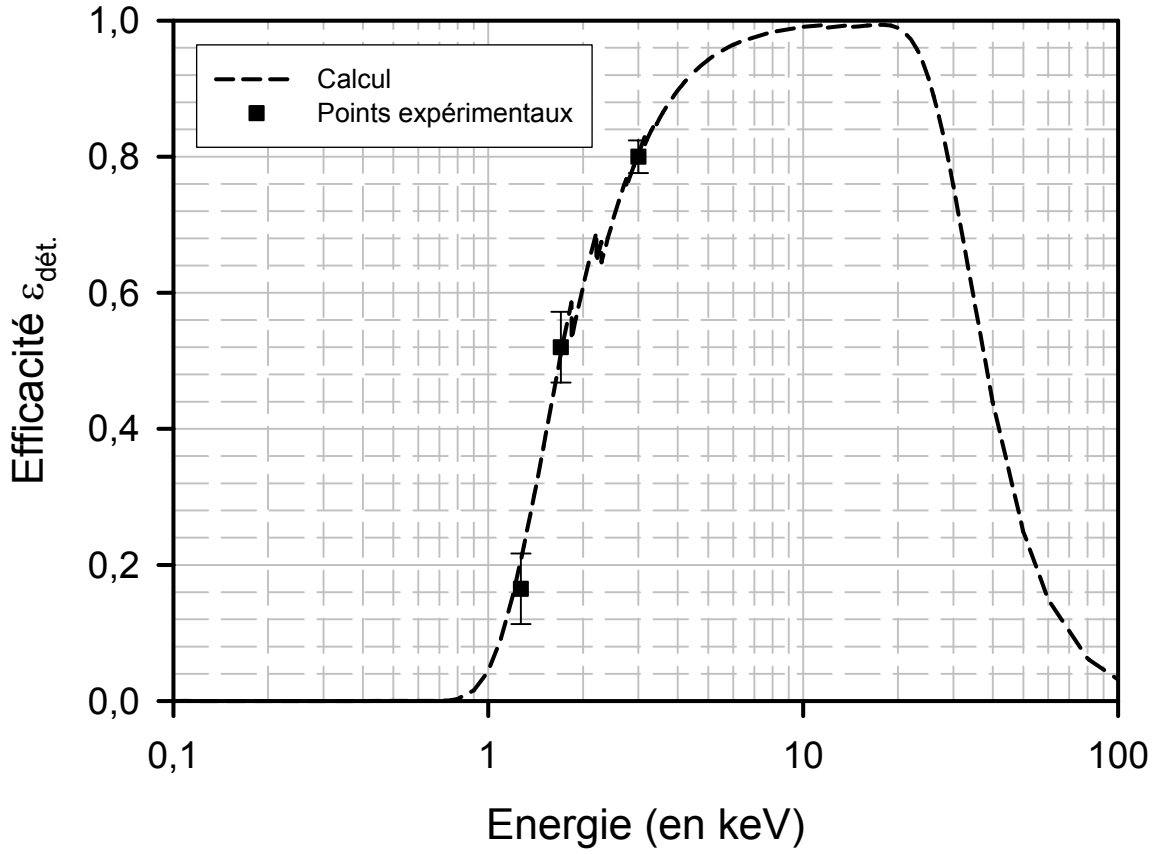


***Figure II-43 :** Efficacité du détecteur Si(Li) (2) en fonction de l'énergie du rayonnement X incident détecté.*

D-1-b) Angle solide

L'angle solide de détection, déterminant le nombre de photons atteignant la surface de détection, est défini par :

$$\left(\frac{\Omega}{4\pi}\right) = \frac{1}{2}\cdot\left(1-\cos\left(\arctan\frac{D}{2R}\right)\right) \approx \frac{D^2}{16\cdot R^2} \qquad \textit{[II-D.2]}$$

avec D le diamètre de la surface effective de détection et R la distance entre la source X et le détecteur (*cf.* *Figure II-44*).

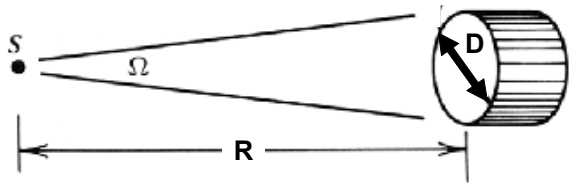


***Figure II-44 :** Schéma d'un détecteur cylindrique en face d'une source ponctuelle définissant l'angle solide.*

Les valeurs des angles solides des deux détecteurs Si(Li) sont présentées dans le *Tableau II-15* lors de chaque campagne d'expériences (2001, 2002 et 2003) et ont été adaptées au taux de comptage. Pour augmenter la dynamique dans le taux de comptage, on a placé un collimateur et / ou un filtre (absorbant). Le collimateur agissant de façon géométrique sur l'angle solide (*cf.* [II-D.2]), on présente dans le *Tableau II-16* les différents diamètres des collimateurs utilisés. En présence de collimateur, l'angle solide est alors modifié, puisque ce n'est plus le diamètre D de la pastille de détection qui est à prendre en compte mais le diamètre du collimateur dans la formule [II-D.2].

	R (en *mm*)	D (en *mm*)	$\left(\frac{\Omega}{4\pi}\right)$ ($\times 10^6$)	Incertitude relative (en %)
2001 et 2002				
Si(Li) (1)	215 ± 2	2	5,4	6
Si(Li) (2)	300 ± 2	10	69,4	8
2003				
Si(Li) (1)	219 ± 2	2	5,2	6
Si(Li) (2)	290 ± 2	10	74,3	8

***Tableau II-15 :** Angles solides des détecteurs Si(Li) lors des différentes campagnes d'expériences.*

Diamètre mesuré (en *mm*)	Incertitude (en *mm*)	Incertitude relative (en %)
0,55	< 0,05	< 10,0 %
1,00	< 0,05	< 5,0 %
1,05	< 0,05	< 5,0 %
2,10	0,08	4,0 %
3,20	0,10	3,0 %
8,05	0,20	2,5 %

Tableau II-16 : Diamètres des diaphragmes utilisés devant les détecteurs Si(Li).

D-1-c) Résolution

D'une manière générale, la résolution (*R*) d'un détecteur dépend de l'énergie des photons X détectés et des caractéristiques intrinsèques de détection (effet photoélectrique pour les Si(Li)). La définition exacte de la résolution est donnée au moyen de la largeur à mi – hauteur des raies enregistrées, FWHM, et de la position du pic E_0 :

$$Rés. = \frac{FWHM}{E_0} = f(\sqrt{E_0}) \qquad \textbf{[II-D.3]}$$

Nous présentons dans le *Tableau II-17* la largeur à mi – hauteur des raies X de fluorescence obtenue à partir de différentes cibles (*KAlCl* et inox) par impact électronique pour les deux détecteurs Si(Li).

Raie	E_0 (en *keV*)	FWHM détecteur Si(Li) (1)	FWHM détecteur Si(Li) (2)
$K_\alpha(Cl)$	2,63	105 eV	
$K_\alpha(K)$	3,33	120 eV	
$K_\alpha(Cr)$	5,95		230 eV
$K_\alpha(Fe)$	6,40	145 eV	290 eV

Tableau II-17: Résolution des détecteurs Si(Li).

D-1-d) Étalonnage en énergie

Afin de pouvoir déterminer, avec la précision accessible avec ce type de détecteur, l'énergie des raies observées, il a été nécessaire de procéder à un étalonnage préalable des appareils de détection à l'aide de raies X d'énergie connue. Les droites d'étalonnage sont

obtenues par régression linéaire des différents couples (énergie [en *keV*], position [en numéro de canal]) et sont de la forme :

$$n°de\ canal = a \times Energie + b \qquad \textbf{[II-D.4]}$$

ou de la forme équivalente : $Energie = A \times n°de\ canal + B$

Précisons que le signal électrique était codé sur 2 048 canaux pour les détecteurs Si(Li). Le signal électrique provenant d'un détecteur (préamplificateur) étant ensuite envoyé sur un amplificateur, ces différents paramètres (a et b / A et B) vont dépendre de la valeur du gain appliqué sur l'amplificateur associé à chaque détecteur. Les deux jonctions semi – conductrices ont été utilisées de deux façons différentes :

- pour le détecteur Si(Li) (1) : gain d'amplification unique ;
- pour le détecteur Si(Li) (2) : gain d'amplification variable (×20, ×50, ×100, ×200, ×500 et ×1000).

Cette liberté au niveau du gain d'amplification du signal issu de la jonction (2) permet d'obtenir une grande dynamique énergétique d'observation des X comme nous l'illustrons à partir de la *Figure II-45* présentant les droites d'étalonnage associées à ce détecteur pour deux gains différents (×50 et ×500) lors de l'une de nos campagnes d'expériences (2002). En effet, alors qu'avec le gain ×500 il est possible d'observer des X uniquement jusqu'à une énergie de l'ordre de 26 *keV*, avec le gain ×50, la dynamique en énergie de ce détecteur s'étend jusqu'à approximativement 260 *keV*. Ceci est mis à profit pour le phénomène d'empilement que nous détaillerons dans le Chapitre III. Notons pour finir que nous avons réalisé ces étalonnages avant et après chaque campagne d'expériences pour les deux détecteurs et à tous les gains du Si(Li)(2) afin de nous assurer qu'ils n'étaient pas modifiés au cours du temps. Les différents coefficients d'étalonnage sont présentés, pour mémoire, dans l'annexe D.

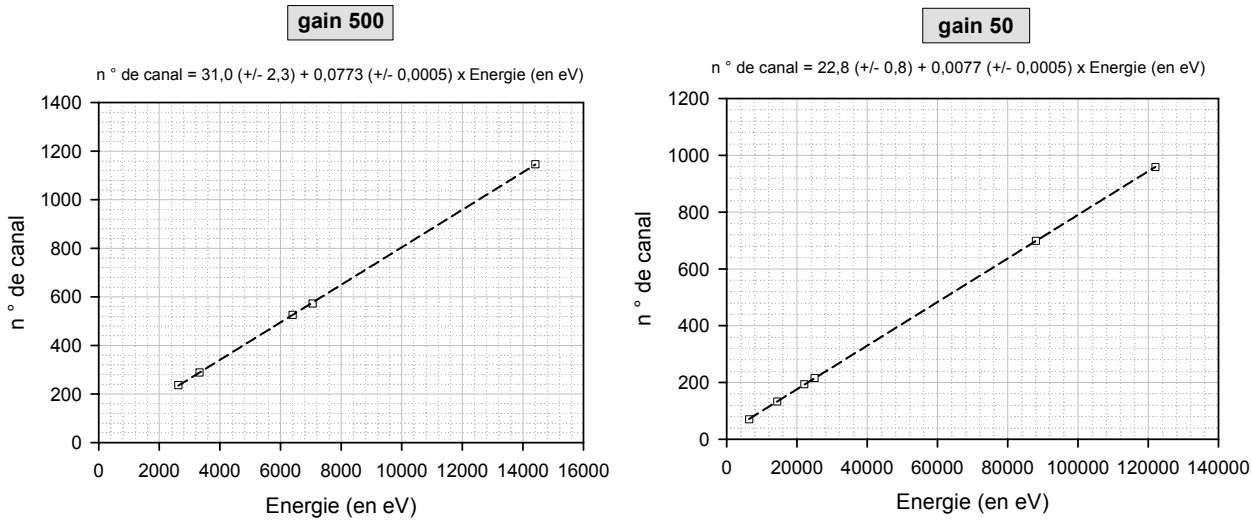


***Figure II-45 :** Droites d'étalonnage pour le détecteur Si(Li) (2) à deux gains différents (×500 et ×50).*

D-1-e) Transmission des filtres

Différents filtres (Inox, Cuivre et Aluminium) ont été placés devant les détecteurs afin, entre autre, d'augmenter la dynamique de comptage, tout comme les collimateurs, lorsque le fait de jouer sur le gain de l'amplificateur ne suffit plus. Nous avons mesuré l'épaisseur de ces filtres en mesurant la transmission T en intensité d'une raie d'énergie connue avec et sans absorbant. L'épaisseur x du filtre est alors déduite en utilisant la loi de Beer – Lambert :

$$T = \frac{I_{avec\ abs.}}{I_{sans\ abs.}} = \exp(-\mu \cdot x) \qquad \textbf{[II-D.5]}$$

avec μ le coefficient d'absorption massique[6] des X parfaitement connu et tabulé, dépendant de la nature de l'absorbant ainsi que de l'énergie des photons X traversant l'absorbant. Pour un absorbant de composition mixte (comme l'inox : Fe + Cr + Ni + impuretés), il est nécessaire de pondérer le coefficient d'absorption massique suivant le taux massique de chacun des éléments. Le *Tableau II-18* présente les épaisseurs mesurées avec leur incertitude. Précisons enfin que ces différents absorbants ont également été placés devant le spectromètre cristallin qui sera présenté dans le paragraphe D-2.

Feuille	Épaisseur nominale (en μm)	Épaisseur mesurée (en μm)	Incertitude Absolue (en μm)	Incertitude Relative
Inox 1	20,0	18,10	0,36	2,0 %
Inox 2	15,5	15,95	0,63	4,0 %
Inox 3	12,5	11,60	0,44	3,8 %
Cuivre	10,0	10,60	1,70	16,0 %
Alu 1	10,0	10,17	0,93	9,2 %
Alu 2	–	11,60	1,05	9,1 %

***Tableau II-18:** Épaisseur des absorbants utilisés devant les détecteurs.*

La transmission des différents filtres est présentée dans le *Tableau II-19* aux énergies moyennes correspondant à l'émission des photons X issus de l'irradiation des agrégats d'argon (3,1 *keV*) et de xénon (4,4 *keV*) pour lesquels ces filtres ont été utilisés. Nous voyons ainsi que ces absorbants permettent facilement d'augmenter de plusieurs ordres de grandeur la dynamique de comptage sur les différents détecteurs.

[6] Les coefficients d'absorption massique ont été obtenus *via* le programme accessible à la page web suivante : http://www.csrri.iit.edu/mucal.html

Transmission (en %)		Inox			Aluminium	
Agrégats	E (en *keV*)	18,10 μm	15,95 μm	11,60 μm	10,17 μm	11,60 μm
Argon	3,1	0,06	0,15	0,59	12,94	9,76
Xénon	4,4	5,79	8,12	13,73	45,67	41,00

***Tableau II-19 :** Transmission théorique (en %) des différents filtres utilisés devant les détecteurs Si(Li).*

D-1-f) Transmission totale des détecteurs Si(Li)

Il est présenté dans le *Tableau II-20* la transmission totale des deux détecteurs Si(Li) lors de l'une des campagnes d'expériences (2001) pour laquelle nous avons utilisé ni diaphragme, ni absorbant devant les différents détecteurs ; les tableaux concernant les transmissions totales lors des campagnes d'expériences de 2002 et 2003 sont présentés, pour mémoire, dans l'Annexe E.

	Argon (3,1 *keV*)	Xénon (4,4 *keV*)
Si(Li) (1)	$5{,}0\times10^{-6}$	$5{,}2\times10^{-6}$
Si(Li) (2)	$5{,}7\times10^{-5}$	$6{,}4\times10^{-5}$

***Tableau II-20 :** Transmission totale des détecteurs Si(Li) (1) et (2) pour les X émis par les agrégats d'argon et de xénon lors de la campagne d'expériences 2001.*

L'ajout de diaphragmes et / ou d'absorbant(s) devant les détecteurs Si(Li) permet d'ajuster la transmission totale de ces détecteurs entre quelques 10^{-5} et quelques 10^{-9} (*cf.* Annexe E). Au final, la dynamique de comptage est ainsi augmentée sur ces détecteurs de 4 ordres de grandeurs.

D-2] Spectromètre cristallin

Les spectromètres cristallins entièrement développés par l'équipe sont constitués de deux éléments essentiels que sont :

- un cristal mosaïque de graphite de grande réflectivité qui, par diffraction de Bragg, rend possible une forte sélectivité en énergie des X émis lors de l'interaction ;
- un détecteur à localisation de grande efficacité et de grande surface détectrice (60×60 mm^2) permettant de repérer la présence des raies, *via* une mesure de charge, et d'en déterminer *in fine* l'énergie après un étalonnage préalable.

Ces deux composants sont reliés ensemble par un long tube (bras de spectromètre) et la chambre cristal communique avec la chambre d'interaction par l'autre bras. L'ensemble du

dispositif fonctionne sous vide afin de s'affranchir de l'absorption des X émis par la source. Enfin, deux aimants parallèles établissant un fort champ magnétique (≅ 2 500 Gauss) sont placés dans la chambre d'interaction autour du diaphragme d'entrée (carré de 10 *mm* de coté) afin de réduire la contribution du bruit de fond provenant d'électrons émis lors de l'interaction.
Afin d'obtenir une information complémentaire par rapport à la spectroscopie basse résolution présentée précédemment, les exigences concernant le spectromètre cristallin sont les suivantes :

- avoir une bonne résolution : nous souhaitons en effet pouvoir distinguer la distribution en état de charge des ions émettant le rayonnement X en effectuant, en quelque sorte un zoom, des pics observés en spectroscopie basse résolution ;
- mais également avoir une bonne transmission : en effet, une bonne résolution se fait généralement au détriment d'une grande transmission, mais nous souhaitons néanmoins optimiser le taux de comptage sur les détecteurs et donc minimiser le temps d'acquisition nécessaire à une bonne statistique.

La transmission du spectromètre cristallin s'exprime par :

$$T_{spectro.} = \varepsilon_{glob.} \times \left(\frac{h_{dét.}}{4\pi \cdot (L_1 + L_2)} \right) \times R_\theta \qquad \textbf{[II-D.6]}$$

avec :

- $\varepsilon_{glob.}$: l'efficacité globale du détecteur à localisation ;
- R_θ : la réflectivité intégrée du cristal ;
- $h_{dét.}$: la hauteur de détection ;
- L_1 et L_2 : les longueurs des bras de liaison du spectromètre.

La flexibilité de ces spectromètres permet d'optimiser ces paramètres (résolution et transmission) en changeant de gaz détection (ε_{glob}) et / ou de cristal (R_θ) et / ou enfin en ajustant la longueur des bras (L_1 et L_2). Une étude complète de ces spectromètres cristallins ayant déjà été faite dans des thèses précédentes [Despiney, 1994] [Adoui, 1994], il ne sera donné dans la suite que les éléments essentiels à la compréhension de leur principe de fonctionnement ainsi que les paramètres propres à notre configuration expérimentale.

D-2-a) Détecteur à localisation

L'ensemble des radiations réfléchies par le cristal mosaïque est focalisé (suivant la condition $L_1 = L_2$) sur un détecteur à localisation fonctionnant sur le principe du compteur proportionnel. Un photon X incident crée, par effet photoélectrique, un électron qui est ensuite

accéléré vers une anode composé de 24 fils de tungstène aurifiés et portée à la haute tension (environ 1 900 *V*). Il se produit ensuite une émission d'électrons secondaires ce qui crée, par influence électrostatique réciproque sur la cathode résistive, une charge opposée que l'on détecte. La charge se propage ensuite vers chacune des extrémités de la cathode et il est possible de remonter à l'information localisation en mesurant les valeurs des charges Q_1 et Q_2 recueillies de chaque coté de la cathode :

$$LOC = \frac{Q_1}{Q_1 + Q_2} \qquad \textbf{[II-D.7]}$$

La cathode est composée de strips de cuivre reliés entre eux par des résistances, et permet d'atteindre une résolution spatiale propre au détecteur de 500 μm. Le gaz choisit pour son efficacité dans la gamme de rayonnement à détecter est un mélange de 90 % de xénon et de 10 % de CH_4 dont le rôle est d'éviter les claquages. Le détecteur à localisation est fermé par une fenêtre de mylar aluminisée. Cette fenêtre assure l'étanchéité entre le détecteur, où règne une pression de l'ordre de 1 *atm*, et le reste du spectromètre maintenu sous vide. La surface du détecteur est un carré de 60 *mm* par 60 *mm* $\left(\ell_{dét.} = 60\,mm\right)$ et cette surface a été choisie afin d'utiliser au mieux la surface réfléchissante du cristal. L'efficacité totale de détection dépend de la nature du gaz créant l'avalanche secondaire d'électron, de la pression de ce gaz dans le détecteur et de la profondeur de détection. Des études de l'efficacité des détecteurs à localisation ont été réalisées dans l'équipe et nous présentons sur la *Figure II-46* la courbe d'efficacité d'un détecteur à localisation ainsi que les mesures spécifiques faites à l'aide d'un canon à électron pour deux détecteurs à localisation similaires à celui que nous avons utilisé.

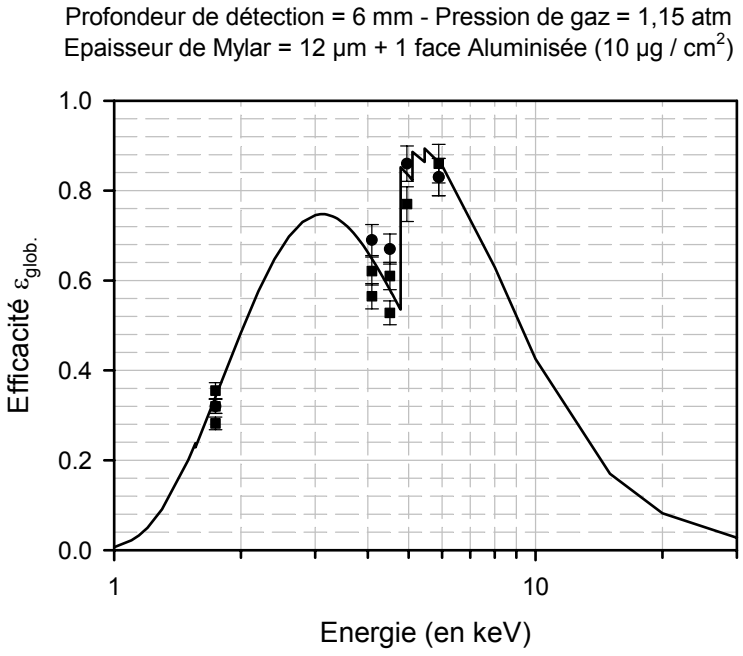


Figure II-46 : Efficacité des détecteurs à localisation pour un mélange de $Xe(CH)_4$.

D-2-b) Cristal

La réflexion de photons d'énergie E_X (ou de longueur d'onde λ) se produit sur un plan du cristal si la relation de Bragg, dont nous rappelons l'expression ci – dessous, est satisfaite :

$$2d \cdot \sin \theta_B = n \cdot \lambda \qquad \textbf{[II-D.8]}$$

avec :

- d : la distance réticulaire entre deux plans du cristal ($2d$ = 6,71 Å pour le cristal de graphite);
- θ_B : l'angle de Bragg correspondant à la réflexion des photons d'énergie E_x (ou de longueur d'onde λ) ;
- n : l'ordre de réflexion.

Il est présenté dans le *Tableau II-21* les angles de Bragg à l'ordre 1 ainsi que les énergies moyennes correspondant à chacune des poses que nous avons utilisées lors des différentes campagnes d'expériences pour les agrégats d'argon et de xénon. Pour l'argon, les deux poses utilisées ont permis d'observer les transitions $1s2pnl \rightarrow 1s^2nl$ et $1s3pnl \rightarrow 1s^2nl$. Pour le xénon, les trois poses indiquées dans le *Tableau II-21* ont permis de reconstituer complètement le spectre des X_L de Kondo *et al.* présenté dans le chapitre I (§I-D-2-b ; *cf. Figure I-60*).

Elément	Pose	$\overline{E}_X$ (en eV)	$\overline{\theta}_B$ (en °)
Argon	*1s2pnl*	3095	36,65
	1s3pnl	3610	30,79
Xénon	X_L "basse énergie"	4196	26,13
	X_L "moyenne énergie"	4404	24,81
	X_L "haute énergie"	4650	24,41

Tableau II-21 : Énergies moyennes des différentes poses et angles de Bragg correspondant.

Ainsi, à chaque photon d'énergie E_X correspond un seul angle de Bragg θ_B et s'identifie à une position unique sur le détecteur à localisation : il existe donc une relation bijective permettant de relier la position d'une raie sur le détecteur et l'énergie des photons X incidents (*cf. Figure II-47*).

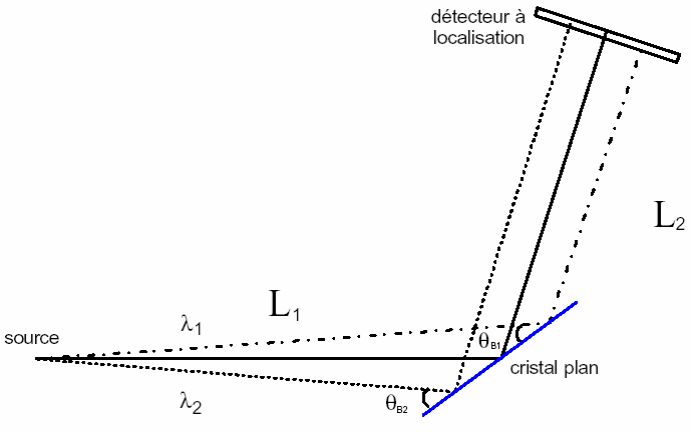


Figure II-47 : Schéma de principe du cristal plan en mode réflexion.

Si les performances atteintes par un cristal plan sont tout à fait remarquables du point de vue de la résolution (mieux que 10^{-3} dans la gamme de 3 *keV*), la transmission d'un tel cristal s'avère, elle, tout à fait insuffisante par rapport à nos exigences. C'est pourquoi le choix de l'équipe s'est porté sur un cristal mosaïque composé de plusieurs microcristaux plans orientés au hasard, dont la distribution est de forme gaussienne de largeur à mi – hauteur 2α. Son principe de fonctionnement est le même que celui d'un cristal plan pour chaque monocristal, mais il y a plusieurs endroits du cristal qui vont réfléchir le rayon incident à une énergie donnée. De la sorte, un rayon issu d'une source ponctuelle et arrivant sous un angle d'incidence $\theta_B \pm \alpha$ avec le plan du cristal pourra être réfléchi par celui – ci dés lors qu'il lui sera possible de trouver un microcristal "désorienté" d'un angle α par rapport à la normale de celui – ci : la transmission est ainsi largement augmentée. De plus, dans le cas particulier d'égalité des distances source – cristal et cristal – détecteur, le rayonnement incident sera semi – focalisé sur le détecteur dans une tâche de largeur *a* [Adoui, 1994] (*cf.* *Figure II-48*) :

$$a = \frac{2L \cdot \alpha^2}{\tan \theta_B} \qquad \textbf{[II-D.9]}$$

le cristal mosaïque utilisé présente une mosaïcité nominale $2\alpha = 0{,}4°$.

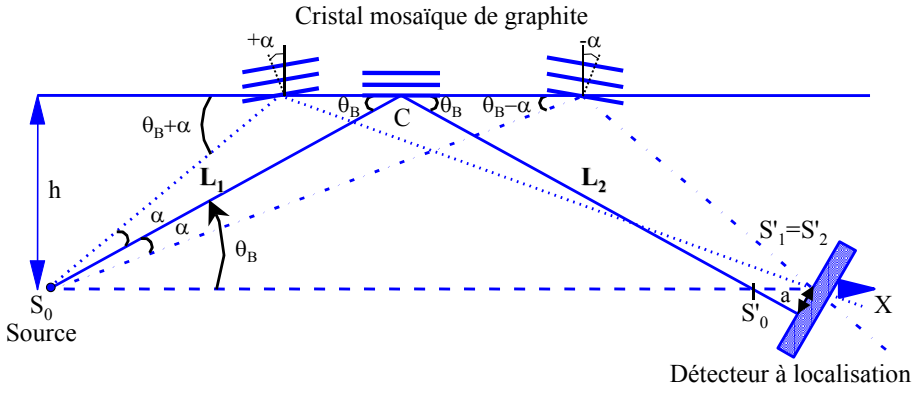


Figure II-48 : Schéma de principe du cristal mosaïque.

Enfin, la réflectivité intégrée de ces cristaux (R_θ) a également fait l'objet, dans l'équipe, d'une étude approfondie. En particulier, les mesures de calibration réalisées à l'aide du canon à électrons présentées précédemment ont permis de déterminer la réflectivité du cristal par la relation :

$$N_X^{Si(Li)} \times T_{Si(Li)} = N_X^{Spectro} \times T_{Spectro.} \qquad \textbf{[II-D.10a]}$$

$$N_X^{Si(Li)} \times \varepsilon_{Si(Li)} \times \left(\frac{\Omega}{4\pi}\right) = N_X^{Spectro} \times \varepsilon_{glob.} \times \frac{h_{dét.}}{4\pi \cdot (L_1 + L_2)} \times R_\theta \qquad \textbf{[II-D.10b]}$$

Chacune de ces quantités (efficacité et angle solide des Si(Li) et du spectromètre cristallin, nombre de coups dans une raie sur les Si(Li) et le spectromètre cristallin) sont connues, il est donc possible de remonter à la réflectivité du cristal à une énergie donnée (*i.e.* pour une raie déterminée). Nous présentons sur la *Figure II-49* les mesures réalisées ainsi que la courbe théorique de réflectivité du cristal utilisé (fit réalisé d'après les formules de [Chabot et al., 1991]). Cette réflectivité théorique dépend des caractéristiques intrinsèques du cristal (mosaïcité, facteur de structure cristalline, épaisseur du cristal, coefficient d'absorption) ainsi que de l'énergie du photon X incident.

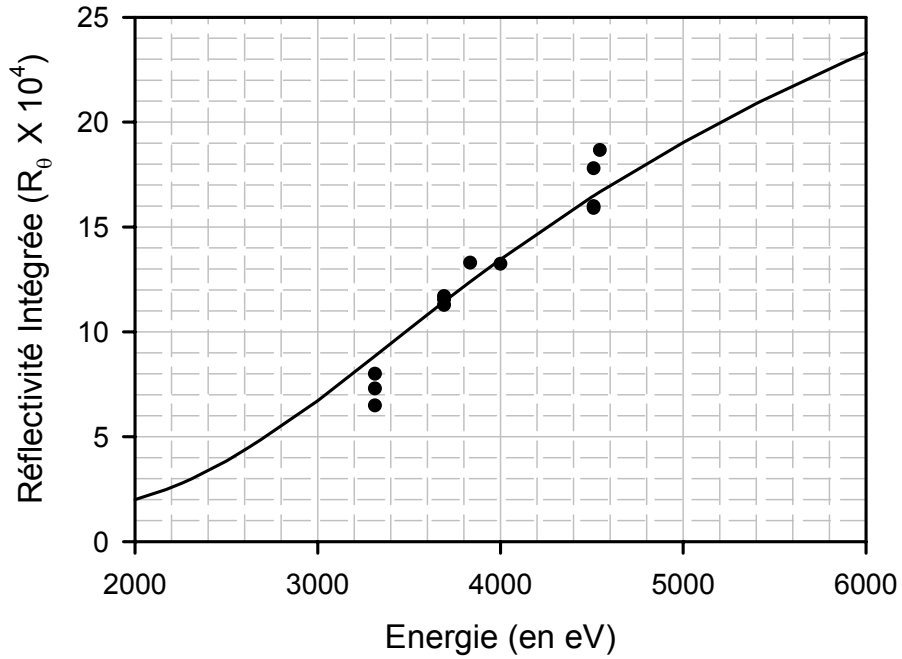


Figure II-49 : ***Ajustement de la réflectivité intégrée du cristal mosaïque (courbe) sur les mesures expérimentales (points).***

Précisons pour finir que la longueur des bras du spectromètre a été optimisée pour allier résolution, transmission et plage en énergie ; elle a été fixée à $L_1 = L_2 = 870$ *mm*.

D-2-c) Transmission totale

Il est donné dans le *Tableau II-22* la valeur de la transmission nominale $\left(T_{Spectro.}^{nom.} \right)$ du spectromètre cristallin pour les différentes poses qui ont été explicitées précédemment.

Poses	$\overline{E}_X$ (en eV)	Transmission nominale
Argon *1s2pnl*	3095	$1{,}5\times10^{-6}$
Argon *1s3pnl*	3610	$2{,}2\times10^{-6}$
Xénon "basse énergie"	4196	$2{,}5\times10^{-6}$
Xénon "moyenne énergie"	4404	$2{,}6\times10^{-6}$
Xénon "haute énergie"	4650	$2{,}7\times10^{-6}$

Tableau II-22 : Transmission nominale pour les différentes poses du spectromètre cristallin.

Différents absorbants ont également été placés, éventuellement, devant le spectromètre cristallin afin de ne pas déséquilibrer le taux de comptage sur les différents détecteurs ; il suffit alors pour avoir la transmission totale du spectromètre d'écrire :

$$T_{Spectro.}^{Tot} = T_{Spectro.}^{nom.} \times T_{Abs.} \qquad \textbf{[II-D.11]}$$

avec $T_{Abs.}$ la transmission des absorbants donnée dans le *Tableau II-19*.

D-2-d) Caractéristiques du spectromètre cristallin

1°) Contrôle de l'uniformité de l'efficacité du détecteur à localisation

Afin de pouvoir comparer les intensités des différentes raies et des différents états de charge, il est nécessaire de s'assurer de l'uniformité de l'efficacité de détection sur toute la surface détectrice. Pour cela, nous avons suivi l'intensité d'une raie de fluorescence obtenue par impact électronique sur une cible (Inox et KAlCl) en gardant l'angle d'incidence (θ_B) constant mais en faisant varier la position du détecteur à localisation d'une grandeur **connue** (Δd) autour de l'angle de sortie ($2.\theta_B$) : ainsi, une raie située au canal x_1 pour un déplacement Δd_1 va ainsi se retrouver au canal x_2 pour un déplacement Δd_2. La *Figure II-50* présente les mesures de l'intensité de la raie K_α(K) à 3,3 *keV* normalisée à l'intensité de la même raie sur un des deux détecteurs Si(Li). Ceci est fait afin de s'affranchir des fluctuations possibles du courant du faisceau d'électrons arrivant sur la cible. L'efficacité de détection est bien constante sur toute la zone de détection. Cette mesure nous a permis par ailleurs de calibrer la transmission du

spectromètre cristallin par rapport à celles connues en absolu des détecteurs Si(Li) comme nous venons de le voir à propos de la réflectivité du cristal (cf §I-D-2-b). Des mesures identiques ont également été faites pour la K_α(Fe) au deuxième ordre pour le cristal.

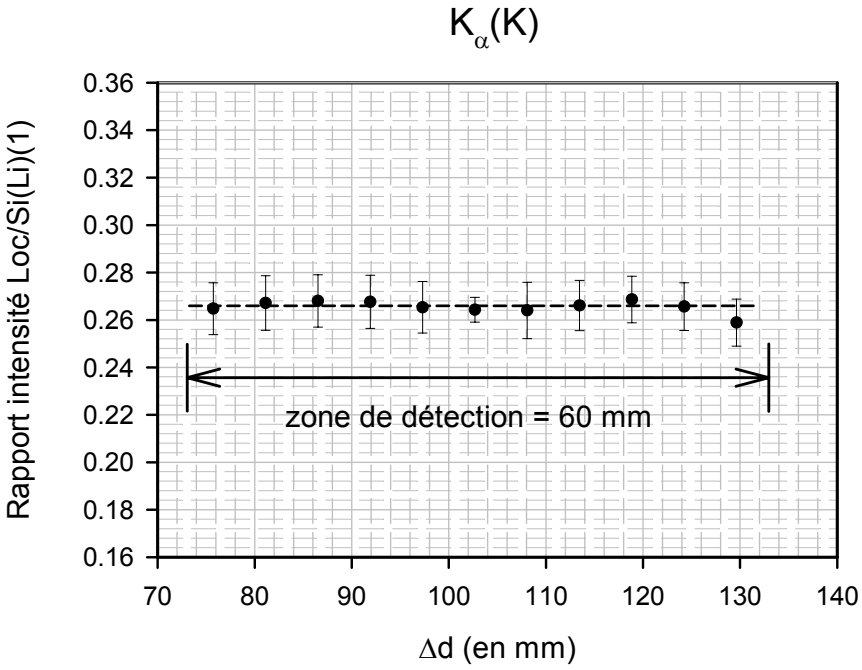


***Figure II-50 :** Réponse du détecteur en efficacité en fonction du déplacement de la raie K_α du K à 3,3 keV sur le détecteur à localisation.*

2°) Étalonnage en énergie du détecteur à localisation

L'étalonnage en énergie du détecteur a été réalisé en opérant de la même manière que décrit précédemment mais en suivant cette fois ci non plus l'intégrale des raies mais leur **position**. En faisant varier la position du détecteur d'une grandeur connue (Δd) exprimée en *mm* et en repérant le canal correspondant au centroïde d'une raie particulière, on détermine le coefficient de conversion *P* (canal $\rightarrow$ *mm*) et on vérifie que ce dernier est constant sur toute la plage de détection (*cf.* *Figure II-51*). La valeur de cette pente d'étalonnage a été trouvée :

- pour la K_α(K) à 3,3 *keV* au premier ordre : P = 6,43 ± 0,04 *canaux* / *mm* ;
- pour la K_α(Fe) à 6,4 *keV* au deuxième ordre : P = 6,49 ± 0,02 *canaux* / *mm*.

soit en moyenne P = 6,46 ± 0,03 *canaux* / *mm*.

La différence entre les positions (en n° de canal) de deux raies (1 et 2) sur le détecteur permet une identification en énergie puisqu'elle est reliée à la différence entre les angles de Bragg (θ_B) correspondants par la relation :

$$cnx(2) - cnx(1) = P \cdot 2L \cdot \tan\left[\theta_B(2) - \theta_B(1)\right] \qquad \textbf{[II-D.12]}$$

avec *L* la longueur du bras du spectromètre (*L* = 870 *mm*).

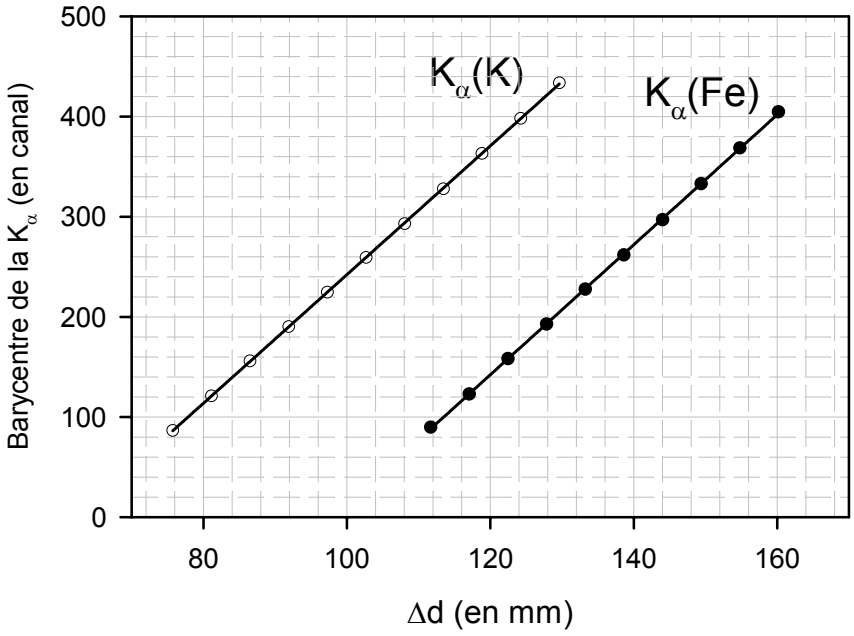


Figure II-51 : Droites d'étalonnage en énergie à 3,3 keV (K_α du K) et 6,4 keV (K_α du Fe).

3°) Plage angulaire et uniformité de la réflectivité du cristal

La plage en énergie explorée par le spectromètre positionnée à un angle $\overline{\theta}_B$ donné peut être limitée soit par le détecteur soit par le cristal, comme nous l'illustrons sur la *Figure II-52* pour un cristal plan. La plage en $\overline{\theta}_B$ accessible avec le cristal dans notre configuration expérimentale, que nous appellerons $\Delta\theta$ (correspondant à une plage en énergie *via* la loi de Bragg), est limitée par les valeurs de θ_{min} et θ_{max} données par les expressions suivantes pour un cristal plan :

$$\theta_{\min} = \overline{\theta}_B - \arctan\left[\frac{\frac{\ell_C}{2}\cdot\sin\left(\overline{\theta}_B\right)}{L+\frac{\ell_C}{2}\cdot\cos\left(\overline{\theta}_B\right)}\right] \quad \theta_{\max} = \overline{\theta}_B + \arctan\left[\frac{\frac{\ell_C}{2}\cdot\sin\left(\overline{\theta}_B\right)}{L-\frac{\ell_C}{2}\cdot\cos\left(\overline{\theta}_B\right)}\right] \qquad \textbf{[II-D.13]}$$

avec $\overline{\theta}_B$ l'angle de Bragg correspondant au milieu du cristal, ℓ_C est la longueur du cristal $\left(\ell_C = 75\ mm\right)$ et L la longueur des bras (L = 870 *mm*). Pour un cristal mosaïque, la plage angulaire correspondant à une réflexion uniforme est donnée par :

$$\Delta\theta = (\theta_{\max} - \theta_{\min}) - 2\alpha \qquad \textbf{[II-D.14]}$$

avec 2α la mosaïcité nominale du cristal. Nous donnons ces valeurs de θ_{min} et de θ_{max} ainsi que la plage en $\Delta\theta$ (formule [II-D.14]) explorée pour chacune des poses dans le *Tableau II-23*.

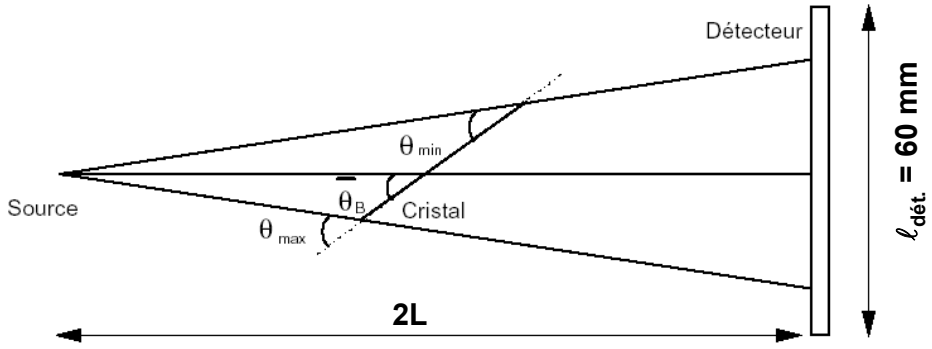


***Figure II-52 :** Angles limites observés par un spectromètre à cristal plan dans le cas où la plage en énergie est limitée par le cristal.*

	Pose	$\overline{\theta}_B$ (en °)	θ_{min} (en °)	θ_{max} (en °)	$\Delta\theta$ (en °)
Argon	*1s2pnl*	36,65	35,22	38,18	2,56
	1s3pnl	30,79	29,57	32,10	2,13
Xénon	X_L "basse énergie"	26,13	25,08	27,26	1,78
	X_L "moyenne énergie"	24,81	23,81	25,89	1,68
	X_L "haute énergie"	23,41	22,47	24,47	1,56

***Tableau II-23 :** Valeurs de θ_{min} et de θ_{max} pour les différentes poses.*

Afin de vérifier l'homogénéité de la réflexion du cristal sur la zone en $\Delta\theta$ accessible par le cristal nous avons réalisé des mesures de réflectivité dont le principe est le suivant : pour une raie donnée, nous suivons l'intensité de cette raie normalisée à la même raie sur un détecteur Si(Li) en faisant varier légèrement l'angle $\overline{\theta}_B$ d'inclinaison du cristal. Il est ainsi possible de suivre la réflectivité du cristal en fonction de l'angle d'incidence des photons X comme nous l'illustrons sur la *Figure II-53*. Sur cette figure, il est également indiquée la valeur de $\overline{\theta}_B$ pour la raie K_α(K) à 3,3 *keV* ainsi que les valeurs de θ_{min} et θ_{max} déterminées à partir des relations [II-D.13] à cet angle de Bragg. Nous voyons sur cette figure que le plateau de réflectivité du spectromètre est bien constant sur la plage en $\Delta\theta$ explorée.

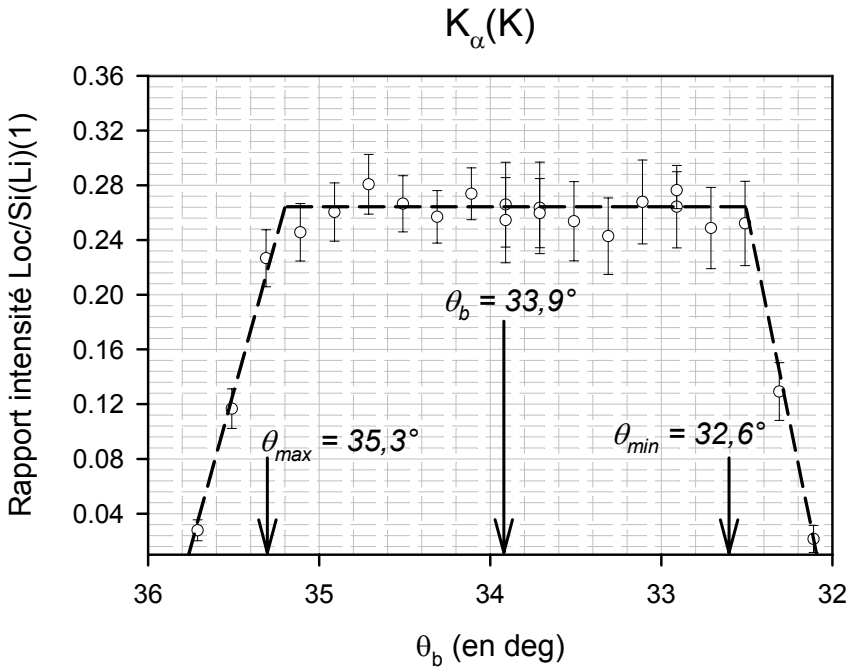


***Figure II-53 :** Courbe de réflectivité du cristal mosaïque à 3,3 keV.*

4°) Dispersion et plage en énergie du détecteur à localisation

La dispersion en énergie du spectromètre est donnée par la relation suivante :

$$Disp\ (eV\ /\ mm) = \frac{E_X(eV)}{2L\,(mm)\cdot \tan\overline{\theta}_B} \qquad \textbf{[II-D.15]}$$

Cette dispersion se traduit, au niveau du détecteur à localisation, par une plage en énergie accessible pour la détection lorsque l'on se place à un $\overline{\theta}_B$ donné et qui dépend de la longueur du détecteur $\ell_{dét.}$. Cette plage en énergie représentée sur la *Figure II-54* s'exprime par :

$$Plage\,(eV) = Disp\,(eV\ /\ mm)\times \ell_{dét.}\,(mm) \qquad \textbf{[II-D.16]}$$

avec $\ell_{dét.}$ = 60 *mm*.

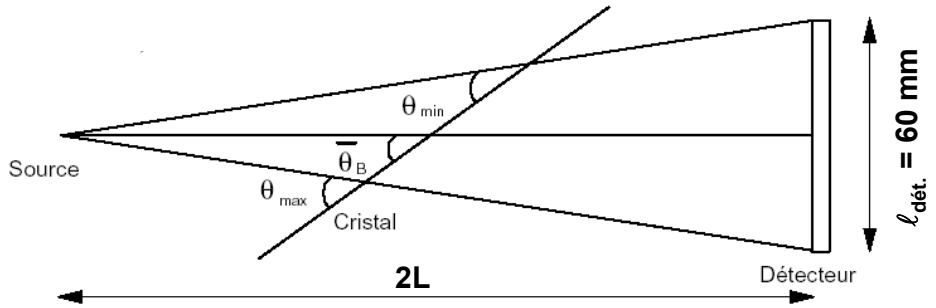


***Figure II-54 :** Angles limites observés par un spectromètre à cristal plan dans le cas où la plage en énergie est limitée par le détecteur.*

Il est récapitulé dans le *Tableau II-24* la valeur de la plage en énergie accessible par le détecteur pour les différentes poses. Ces valeurs seront comparées à celles du cristal dans le tableau récapitulatif (*cf. Tableau II-26*) à la fin de cette partie concernant la détection X.

	Pose	$\overline{E}_X$ (en eV)	$\overline{\theta}_B$ (en °)	Dispersion (en eV/mm)	Plage en énergie (en eV)
Argon	*1s2pnl*	3095	36,65	2,39	144
	1s3pnl	3610	30,79	3,48	209
Xénon	X_L "basse énergie"	4196	26,13	4,92	295
	X_L "moyenne énergie"	4404	24,81	5,48	329
	X_L "haute énergie"	4650	23,41	6,17	371

***Tableau II-24 :** Valeurs de la dispersion et de la plage en énergie pour chacune des poses.*

5°) Résolution

Plusieurs termes contribuent à la résolution totale du spectromètre et dépendent des caractéristiques géométriques de la source X, du cristal et du détecteur à localisation. Dans nos conditions de fonctionnement, ces différentes contributions sont :

- la hauteur h_s de source apparente :

Le terme de résolution associé à la hauteur de source X est donné par l'expression :

$$\left(\frac{\delta E}{E}\right)_{\substack{hauteur \\ apparente}} = \frac{h_S}{2L \cdot \tan \overline{\theta}_B} \qquad \textbf{[II-D.17]}$$

Cette hauteur apparente de source est déterminée par l'extension radiale du volume focal effectif que nous définirons dans le Chapitre IV. Cette hauteur dépend, en toute rigueur, du rapport entre l'éclairement laser maximal et l'éclairement d'apparition des X ainsi que de la dimension de la tâche focale. Une expression approchée de cette hauteur de source apparente est donnée par :

$$h_S \approx (2\sigma) \cdot \sqrt{\frac{I_{\max}}{I_{seuil}}} \qquad \textbf{[II-D.18]}$$

avec σ le rayon de la tâche focale (*cf.* *Tableau II-4*). Pour $I_{\max} = 10^{16} W/cm^2$ et $I_{seuil} \approx 10^{15} W/cm^2$, on trouve que $h_S \approx 70\ \mu m$.

- la résolution spatiale r des détecteurs :

$$\left(\frac{\delta E}{E}\right)_{détecteur} = \frac{r}{2L \cdot \tan \overline{\theta}_B} \qquad \textbf{[II-D.19]}$$

avec $r = 500\ \mu m$.

- la mosaïcité α du cristal :

$$\left(\frac{\delta E}{E}\right)_{cristal} = \left(\frac{\alpha}{\tan \bar{\theta}_B}\right)^2 \qquad \textbf{[II-D.20]}$$

avec $\alpha = 0{,}2°$.

- la réponse du détecteur et la chaîne d'acquisition électronique :

Ce terme dépend du montage électronique et de sa stabilité. Il a une contribution lorentzienne de largeur de l'ordre de 3 – 4 canaux.

Les deux premiers termes ont une contribution gaussienne et celui lié à la mosaïcité du cristal est de forme exponentielle décroissante vers les grandes énergies. La forme globale d'une raie sur le spectre est donc la convolution de deux gaussiennes, d'une exponentielle décroissante et d'une lorentzienne. La résolution totale peut être estimée par la somme des résolutions des termes gaussiens et lorentzien plus la moitié de celle du terme exponentiel. La résolution des termes gaussiens est donnée par la somme quadratique de chacune des contributions.

6°) Récapitulatif

Le tableau ci –dessous résume les caractéristiques de notre spectromètre cristallin.

Spectromètre	Longueur des bras	$L_1 = L_2 = L = 870\ mm$
Cristal de graphite	Mosaïcité	$2 \cdot \alpha = 0{,}4°$
	Distance inter – réticulaire	$2 \cdot d = 6{,}71$ Å
	Hauteur du cristal	$\ell_{cristal} = 75\ mm$
Détecteur à localisation	Résolution spatiale	$r = 500\ \mu m$
	Pente d'étalonnage	$P = 6{,}46 \pm 0{,}03\ cx / mm$
	Surface de détection	$\ell_{dét.} = 60\ mm$

***Tableau II-25 :* Récapitulatif des données pour le spectromètre cristallin.**

Il est récapitulé dans le *Tableau II-26* les angles de Bragg ainsi que la dispersion correspondant à chacune des poses. Les plages en énergies correspondant au cristal ainsi que celles du détecteur à localisation sont également indiquées dans ce tableau. La configuration expérimentale est généralement choisie de façon à ce que ce soit le détecteur à localisation qui limite la plage en énergie observée ; ceci permet de s'affranchir des effets de bord du cristal mosaïque.

	Pose	Energie moyenne de la pose (en eV)	Cristal		Détecteur	
			θ_B (en degré)	Plage en énergie (en eV)	Dispersion (eV/mm)	Plage en énergie (en eV)
Argon	1s2pnl	3095	36,65	*186*	2,39	***144***
	1s3pnl	3610	30,79	*226*	3,48	***209***
Xénon	Basse énergie	4196	26,13	*305*	4,92	***295***
	Moyenne énergie	4404	24,81	***325***	5,48	*329*
	Haute énergie	4650	23,41	***364***	6,17	*371*

Tableau II-26 : ***Récapitulatif des caractéristiques intrinsèques pour les différentes poses utilisées du spectromètre cristallin (cristal et détecteur).***

Enfin le *Tableau II-27* présente la valeur des différents termes contribuant à la résolution totale du spectromètre cristallin. Pour le terme lié à la hauteur de source il a été pris $h_S = 100\ \mu m$ qui est une valeur supérieure à celle que l'on a calculée précédemment ; précisons qu'une hauteur de source de 50 μm diminue la résolution d'une quantité inférieure à 0,2 eV. Ce terme est également systématiquement inférieur à la contribution du détecteur à localisation (résolution spatiale de détection). D'autre part, le cristal mosaïque est choisi pour optimiser la transmission, comme il a été vu précédemment, mais également la résolution. En effet le terme de résolution lié à la mosaïcité est aussi toujours largement inférieur à la résolution spatiale du détecteur. Au final, il s'agit de cette contribution à la résolution qui est prépondérante.

	Pose	Energie (en eV)	Résolution					
			$\left(\frac{\delta E}{E}\right)_{\text{hauteur apparente}}$ (×10⁴)	$\left(\frac{\delta E}{E}\right)_{\text{détecteur}}$ (×10⁴)	$\left(\frac{\delta E}{E}\right)_{\text{cristal}}$ (×10⁴)	$\left(\frac{\delta E}{E}\right)_{\text{lor.}}$ (×10⁴)	$\left(\frac{\delta E}{E}\right)_{\text{tot.}}$ (×10⁴)	Rés. (eV)
Argon	1s2pnl	3095	0,77	3,86	0,22	1,6	5,6	1,7
	1s3pnl	3610	1,00	4,82	0,34	2,0	7,1	2,6
Xénon	Basse énergie	4196	1,17	5,86	0,51	2,4	8,6	3,6
	Moyenne énergie	4404	1,24	6,22	0,57	2,6	9,0	4,0
	Haute énergie	4650	1,33	6,64	0,65	2,7	9,8	4,6

Tableau II-27 : ***Valeurs des résolutions pour les différentes poses.***

Ces valeurs permettent une identification sans ambiguïté des raies enregistrées par le spectromètre cristallin ainsi qu'une simulation très précise des spectres (largeur et forme des raies).

D-3] Électronique associée et chaîne d'acquisition

L'électronique se charge d'amplifier, de filtrer, de sélectionner et de transformer les signaux électriques issus des différents détecteurs. L'électronique associée aux trois détecteurs est schématisée sur la *Figure II-55*. Intégré à chaque détecteur Si(Li) se trouve un préamplificateur ayant trois rôles : collecter les charges et délivrer un signal dont l'amplitude sera proportionnelle à l'énergie des X détectés, donner à l'impulsion une forme compatible avec une électronique linéaire, adapter l'impédance pour cette électronique (50 Ω). Ce préamplificateur, par lequel transite la haute tension de l'ordre de 1000 à 1500 V nécessaire à la polarisation des détecteurs, possède un circuit de contre réaction permettant de diminuer le bruit électronique du détecteur. Pour le détecteur à localisation, seul le préamplificateur de l'anode fait transiter la haute tension qui est de l'ordre de 1 900 V environ.

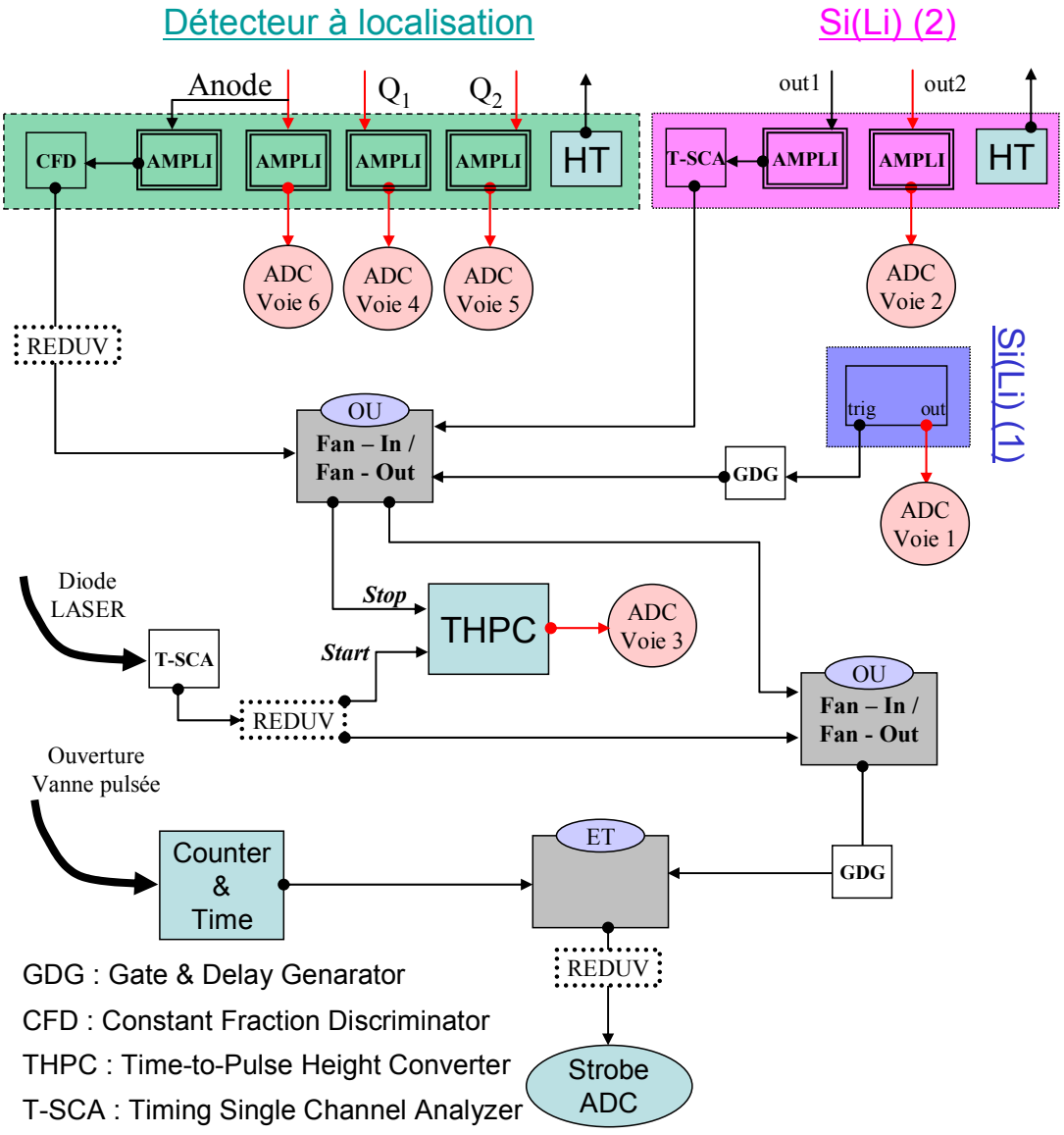


***Figure II-55 :** Schéma complet de l'électronique associée aux trois détecteurs.*

A chaque détecteur sont associées une voie d'électronique linéaire et une voie d'électronique logique. Les détecteurs Si(Li) possèdent 2 sorties correspondant à chacune des voies tandis que le détecteur à localisation possède 3 sorties : 2 pour les signaux Q_1 et Q_2 permettant de remonter à l'énergie du photon X (*cf.* équation [II-D.7]) et une pour le signal d'anode. Par un traitement du signal linéaire de l'anode par le microprocesseur de pré – traitement (MIPRE), il est également possible de faire un tri sur une fenêtre donnée en énergie des signaux provenant du détecteur à localisation ; ceci sera illustré dans le chapitre III.

- les voies linéaires sont constituées :

- d'un amplificateur linéaire amplifiant le signal sortant du préamplificateur ;
- d'un codeur analogique numérique (ADC pour "Analogical Digital Converter").

La voie d'électronique linéaire permet de remonter à l'information "énergie" du signal délivré par les détecteurs *via* une calibration préalable (canal / énergie) comme nous l'avons détaillé précédemment pour les différents détecteurs.

- d'une manière générale, les voies logiques (ou voie temps) sont constituées :

- d'un amplificateur linéaire ;
- d'un module qui crée une impulsion logique dont l'amplitude est indépendante de celle du signal entrant ;
- d'un module qui introduit un retard à durée variable pour la synchronisation entre les différents signaux[7] ;
- de modules d'action logique (OU / ET).

La voie d'électronique logique (ou voie "temps") sert, moyennant une synchronisation préalable des différents signaux (détecteurs, arrivée d'une impulsion laser et ouverture de la vanne à action rapide) à déclencher l'acquisition (Signal *Strobe* envoyé sur l'ADC). Cette voie logique, *via* le THPC, permet de ne comptabiliser que les coups arrivant lorsque le laser est présent dans la chambre d'interaction (soit environ 50 μs toutes les 50 *ms*) ce qui correspond à une diminution du bruit de fond de près de trois ordres de grandeur. Cette synchronisation permet également de corréler un événement unique (détection de photon sur l'un des trois détecteurs et arrivée d'une impulsion laser) avec l'interaction d'**une** impulsion laser **et** d'**un unique** pulse d'agrégats. Ceci permet d'obtenir exactement les mêmes conditions tir à tir. Le signal de déclenche de l'ouverture de la vanne à action rapide et des échelles de comptage est donné par une photodiode placée sur le trajet du faisceau laser.

[7] Un même module peut créer l'impulsion logique et introduire un retard à durée variable.

E] Optimisation du recouvrement spatial de l'impulsion laser et du jet d'agrégats

Lors de chaque campagne d'expériences, des contrôles ont été réalisés sur l'optimisation des paramètres concernant le recouvrement spatial de l'impulsion laser avec le jet d'agrégats pulsé en se basant sur **l'émission X**. Le schéma de principe de la configuration expérimentale est présenté sur la *Figure II-56* et les paramètres intervenant dans cette optimisation sont les suivants :

- Le délai entre l'ouverture de la vanne à action rapide et l'arrivée de l'impulsion laser $t_{V/L}$: un boîtier de commande ("Standford") permet d'introduire un retard variable pour l'ouverture de la vanne à action rapide par rapport au signal d'arrivée de l'impulsion laser détecté à l'aide d'une photodiode. Ceci permet, *via* un balayage temporel, d'optimiser le recouvrement spatial entre le pulse d'agrégats et l'impulsion laser femtoseconde au niveau de la zone d'interaction.
- La position XY du jet d'agrégats : une platine de translation, dans deux directions perpendiculaires au niveau du dispositif de formation des agrégats, permet également d'optimiser le recouvrement spatial entre les agrégats et le laser.
- La position $\mathscr{Y}$ de la lentille : la lentille est placée sur un translateur avec une vis micrométrique ce qui permet de modifier précisément la position du point focal dans le pulse d'agrégats suivant la direction de propagation de l'impulsion laser.

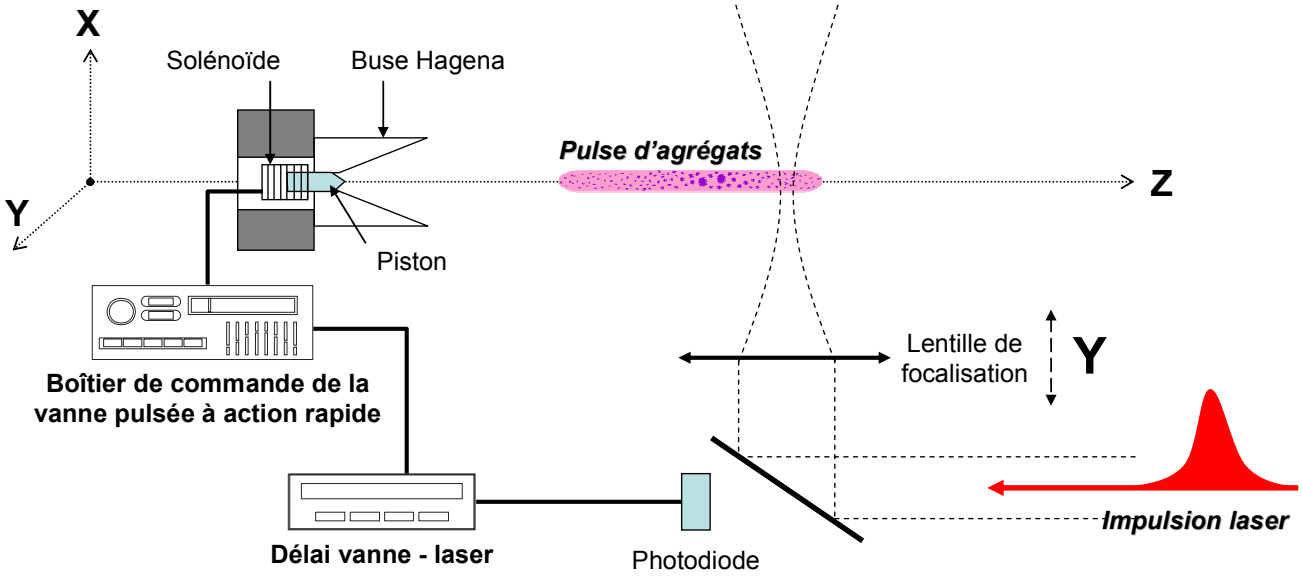


***Figure II-56 :** Schéma de principe de l'optimisation du recouvrement spatial entre l'impulsion laser et le jet d'agrégats pulsé.*

E-1] Délai vanne – laser

Comme nous nous l'avons déjà précisé au paragraphe §II-C-2-a, l'ouverture de la vanne à action rapide est synchronisée avec l'arrivée de l'impulsion laser de façon à ce que les deux interagissent au centre de la chambre d'interaction. En effet, le pulse d'agrégats est constitué d'une zone centrale où la condensation des atomes est maximale (agrégats les plus gros) tandis qu'au début et à la fin du pulse d'agrégats on ne trouve que des atomes voire des petits agrégats (dimères). Le temps entre l'ouverture de la vanne et l'arrivée du laser dans la zone d'interaction, noté t_{VL}, a été optimisé sur le signal X de manière à ce que l'impulsion laser interagisse avec la partie centrale du pulse d'agrégats. Pour un délai convenablement choisi, $t_{VL}^{optimum}$, le laser interagit avec les gros agrégats (taux d'X maximal) tandis que pour un délai plus grand ou plus petit le laser irradie une partie du jet où ne sont présents que des agrégats plus petits (voire des atomes) ce qui se traduit par une baisse du taux X (voire une extinction du taux X) par rapport au délai optimum (*cf.* *Figure II-57*)

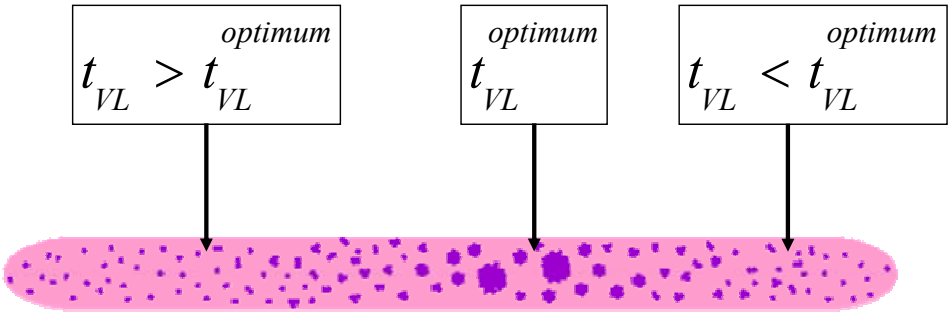


Figure II-57 : Schéma de principe de la distribution en taille d'agrégats dans le pulse d'agrégat en fonction du délai vanne – laser.

Nous présentons sur la *Figure II-59* les courbes obtenues lors des explorations réalisées en fonction du délai vanne – laser pour des agrégats de xénon (E = 20 *mJ* et $\tau = 55\,fs$) et pour différentes pressions en amont de la buse de condensation. La courbe présente un optimum à t_{VL} = 198,1 *ms* et il a aussi été vérifié que ce délai est indépendant de la pression en amont de la buse de condensation dans des conditions **normales** de fonctionnement. Précisons également que des études similaires réalisées lors d'une thèse précédente (*cf.* *Figure II-58*) ont montré que le signal ionique présente un optimum (production d'états de charge élevée) absolument identique au signal X (taux d'X maximal). Ceci permet ainsi de corréler la production d'un intense rayonnement X avec la production d'ions fortement multichargés et donc de renforcer l'idée que les agrégats les plus gros sont présents dans la zone d'interaction.

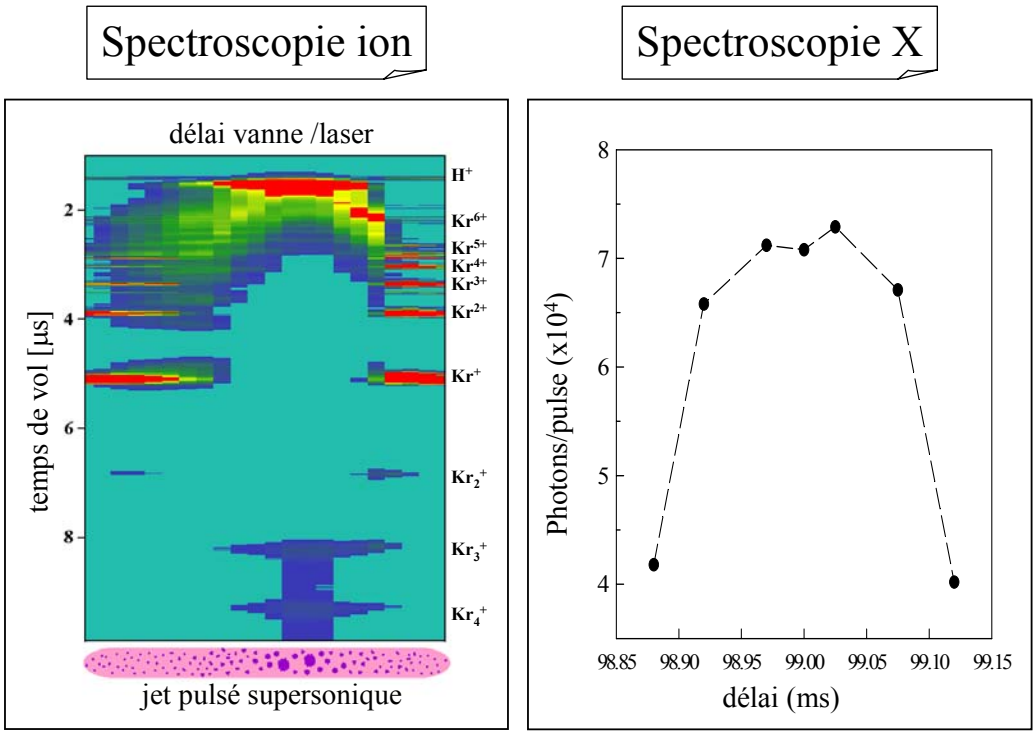


Figure II-58 : ***Évolution de la production d'ions multichargés et du taux d'X en fonction du délai vanne – laser pour des agrégats de krypton (thèse de S. Dobosz).***

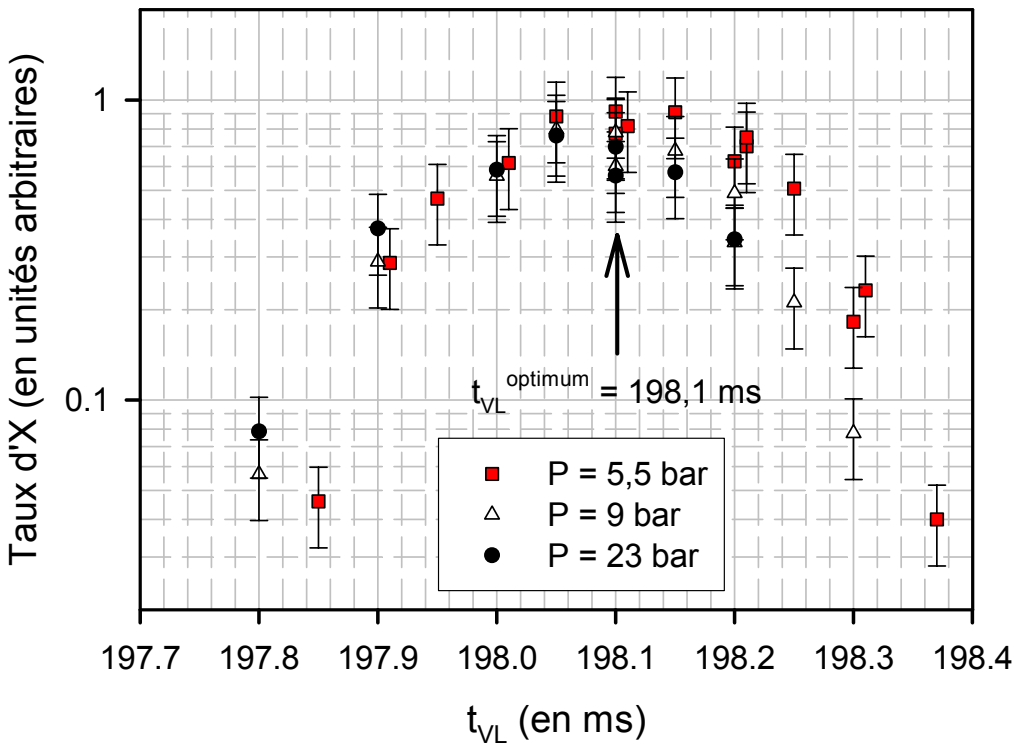


Figure II-59 : ***Évolution du taux d'X en fonction du délai entre l'ouverture de la vanne à action rapide et l'arrivée de l'impulsion laser pour des agrégats de xénon.***

En présence d'un piston usagé nous avons cependant remarqué que ce comportement est complètement différent comme nous l'illustrons ici pour mémoire sur la *Figure II-60* (E = 23 *mJ* et τ = 50 *fs*). Dans ce cas, le délai optimum dépend alors fortement de la pression en amont de la buse de condensation traduisant un dysfonctionnement dans le processus de formation des agrégats.

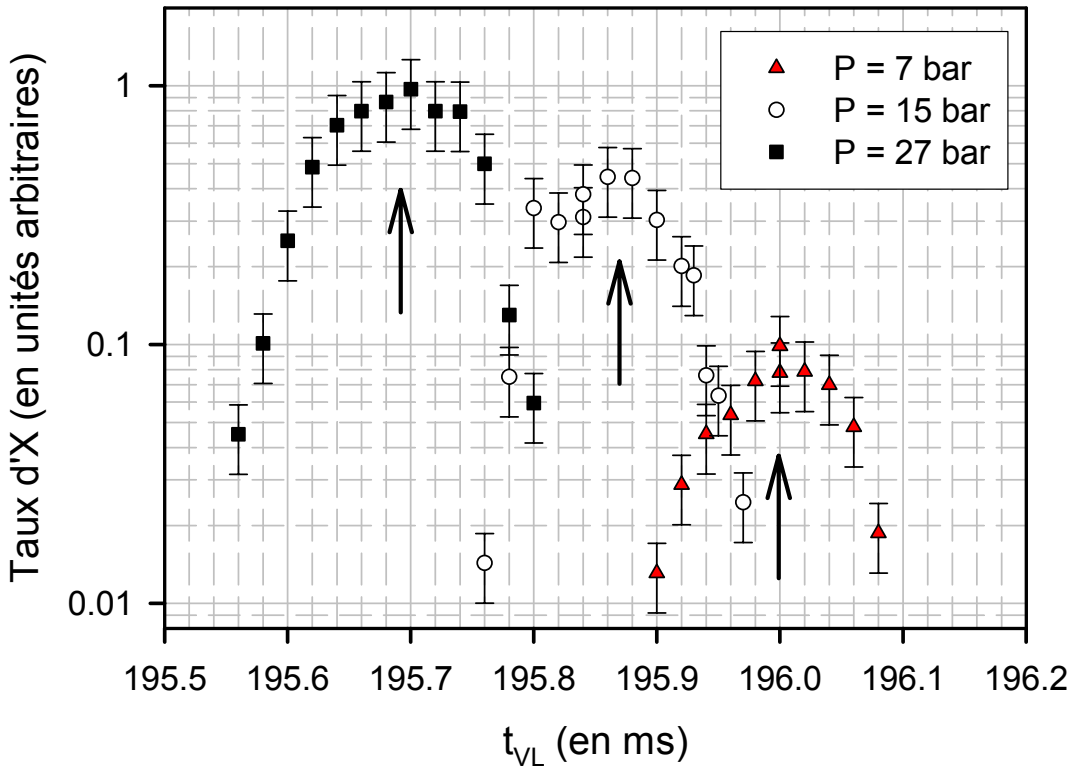


Figure II-60 : Évolution du taux d'X en fonction du délai entre l'ouverture de la vanne à action rapide et l'arrivée de l'impulsion laser pour des agrégats de xénon et avec un piston usé.

E-2] Translation XY du jet d'agrégats

La platine de translation XY du dispositif de formation des agrégats est équipée de deux vis micrométriques suivant deux directions perpendiculaires (illustrées *Figure II-56*) ce qui permet ainsi de contrôler le positionnement du jet d'agrégat par rapport au point focal. Ces expériences permettent de s'assurer que le recouvrement spatial entre le jet d'agrégats et l'impulsion laser est optimum. Lors de chaque campagne d'expériences nous avons optimisé le signal X par rapport à ces deux paramètres X et Y caractérisant la position du jet d'agrégats. A titre d'exemple nous présentons les résultats de telles études obtenues dans des conditions de faible densité atomique / avec un écorceur (*cf. Figure II-61*) et de grande densité atomique moyenne / sans écorceur (*cf. Figure II-62*).

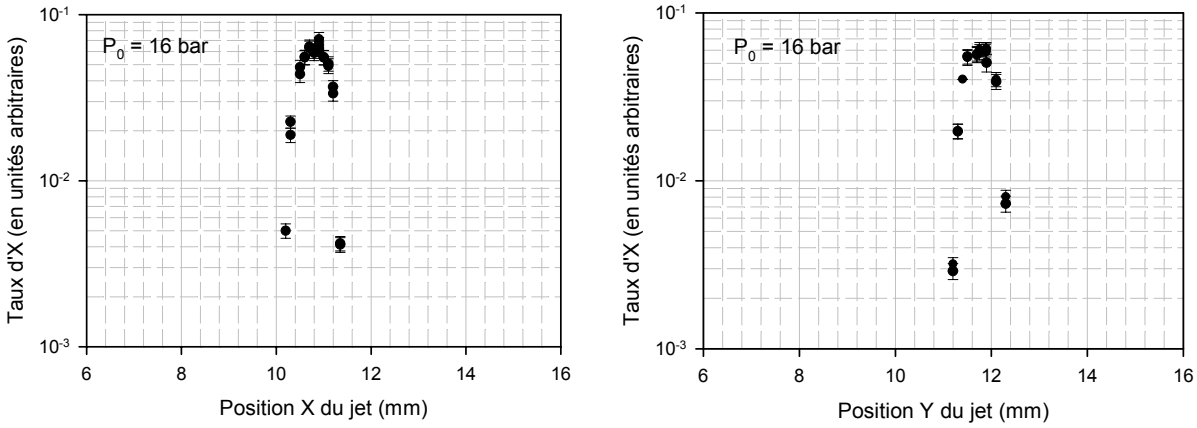


Figure II-61 : Étude XY du jet pour des agrégats d'argon (E = 50 mJ, IR, τ = 50 fs). Conditions de faible densité atomique moyenne (buse loin de la zone d'interaction) et avec écorceur.

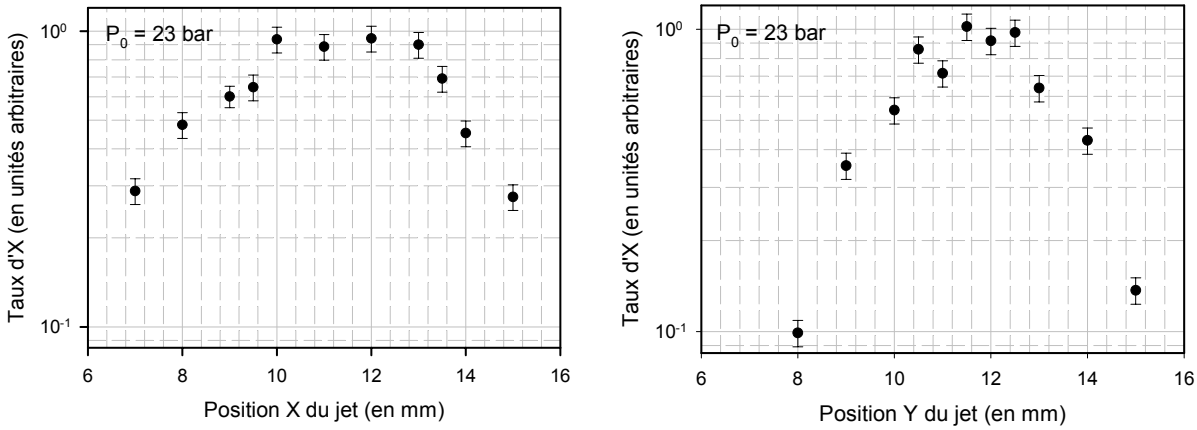


Figure II-62 : Étude XY du jet pour des agrégats de xénon ($E_{mesurée}$ = 20 mJ, IR, τ = 55 fs). Conditions de grande densité atomique moyenne (buse proche de la zone d'interaction) et sans écorceur.

Logiquement, lorsque la buse de formation des agrégats est proche de la zone d'interaction et sans écorceur, le plateau où le taux d'X est quasiment constant s'étend sur une zone plus grande que lorsque la buse est placée loin de la zone d'interaction et qu'un écorceur est présent sur le trajet du jet d'agrégats, et ce tant sur X que sur Y.

E-3] Déplacement en $\mathscr{y}$ de la lentille

La translation de la lentille suivant la direction de propagation ($\mathscr{y}$) de l'impulsion laser modifie le point de focalisation dans le pulse d'agrégats suivant cette même direction. Encore une fois, nous avons optimisé le signal X par rapport à ce degré de liberté sur notre dispositif expérimental lors de chaque campagne d'expériences. Ces études permettent également d'étudier la focalisation du faisceau laser dans le jet d'agrégats. Par exemple, nous présentons sur la *Figure II-63* l'évolution du taux d'X émis lors de l'interaction en fonction de la position

de la lentille pour deux pressions d'argon différentes en amont de la buse condensation ($E_{mesurée}$ = 40 *mJ* et τ = 55 *fs*, IR).

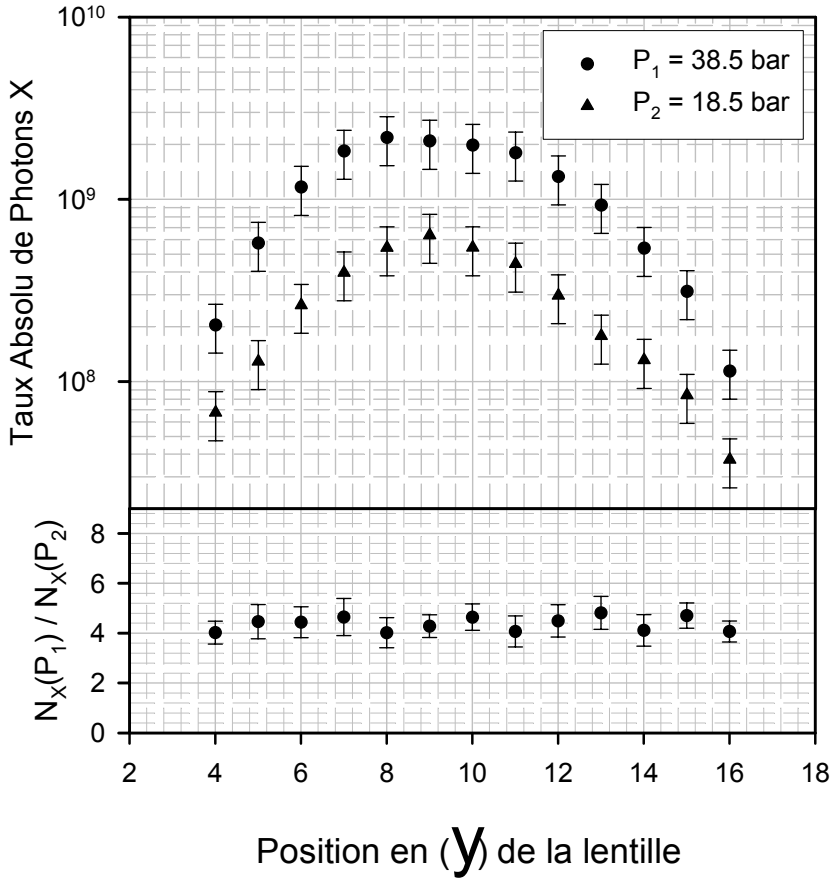


***Figure II-63 :** Étude en y de la lentille pour deux pressions différentes d'argon en amont de la buse de condensation (P_1 = 38,5 bars et P_2 = 18,5 bars) - (E = 20 mJ, IR, τ = 55 fs). Conditions de grande densité atomique moyenne (buse proche de la zone d'interaction) et sans écorceur.*

Nous observons également la présence d'un optimum traduisant, tout comme dans les cas précédemment exposés, une optimisation du recouvrement spatial de l'impulsion laser avec le jet d'agrégats. Nous montrons également ici que cette optimisation est indépendante de la pression en amont de la buse de condensation, et donc de la densité atomique moyenne au niveau de la zone d'interaction. La focalisation du faisceau laser est donc identique quelque soit la densité atomique moyenne au niveau de la zone d'interaction et il n'y a donc pas d'effet de modification de la propagation de l'impulsion dans ce milieu sous – dense. Ce résultat est cohérent avec ceux obtenus dans une thèse précédente [Monot, 1993] où il a été montré qu'il fallait une densité atomique moyenne supérieur à 10^{18} *at / cm*^{3} pour observer un effet de défocalisation, et donc une forte baisse de l'éclairement laser dans la zone d'interaction.

Chapitre III

Méthode d'analyse des spectres X

"On ne peut se passer d'une méthode pour se mettre
en quête de la vérité des choses…"
René Descartes (1596 – 1650)
Philosophe / Physicien / Mathématicien

Plan détaillé du Chapitre

CHAPITRE III METHODE D'ANALYSE DES SPECTRES X 191

A] INTRODUCTION 193

B] DETECTEURS SI(LI) 194

B-1] ROLE DES DETECTEURS SI(LI) 194
B-2] CALCUL DU TAUX D'X 195
B-2-a) Phénomène d'empilement ("Pile – up") 195
B-2-b) Principe du calcul du nombre moyen de photons détectés 197
1°) Cas général (Méthode A) : détecteur Si(Li) (2) 197
2°) Cas particulier (Méthode B) : le détecteur Si(Li) (1) 198
3°) Calcul du taux absolu 201
B-2-c) Discussions sur l'empilement 202
1°) Modélisation de l'empilement 202
2°) Statistique de l'empilement 204
B-2-d) Extraction du signal physique 207
B-3] FILTRES DEVANT LES DETECTEURS SI(LI) 209
B-3-a) Spectres X d'argon 209
B-3-a) Spectres X de xénon 210
B-4] ESTIMATION DES INCERTITUDES 213
B-4-a) Incertitudes sur la transmission 213
B-4-b) Incertitudes sur le nombre moyen de photons détectés 214

C] SPECTROMETRE CRISTALLIN 217

C-1] ROLE DU SPECTROMETRE CRISTALLIN 217
C-2] TRAITEMENT DES SIGNAUX DU DETECTEUR A LOCALISATION 218
C-3] ANALYSE DES SPECTRES X DU SPECTROMETRE CRISTALLIN 220
C-3-a) Transmission 221
1°) Réflectivité 221
2°) Efficacité 221
3°) Transmission des filtres 222
C-3-b) Correction de la multiplicité sur le signal d'anode 223
C-3-c) Spectres bruts et spectres corrigés 224
1°) Spectre d'argon : pose *1s2p* 224
2°) Spectre de xénon 225
C-4] CALCUL DU TAUX ABSOLU DE PHOTONS X 226
C-5] ESTIMATION DES INCERTITUDES 228
C-5-a) Incertitudes sur l'énergie moyenne 228
C-5-b) Incertitudes sur le taux absolu de photons X 228

D] TAUX ABSOLU DE PHOTONS X 230

A] Introduction

Notre dispositif expérimental, mis au point afin de réaliser des études **quantitatives**, dispose de trois détecteurs X comme il a été vu dans le chapitre précédent : 2 détecteurs Si(Li) et 1 spectromètre cristallin. D'une manière tout à fait générale, le rôle de chacun des détecteurs est le suivant :

- le détecteur Si(Li) (1) permet de contrôler en permanence l'ensemble des radiations X émises par le plasma sur une large gamme en énergie comprise typiquement entre 1 *keV* et 10 *keV* ;
- le détecteur Si(Li) (2) permet, de par sa grande dynamique de comptage, de calculer en absolu le nombre de photons X émis lors de l'interaction ;
- le spectromètre cristallin permet de discriminer, de par sa grande résolution spectrale, la distribution en état de charge des ions dont est issu le rayonnement X.

Enfin, en dehors de ces spécificités propres et grâce aux expériences de calibration présentées dans le chapitre précédent, les trois détecteurs permettent **individuellement** de calculer le taux absolu de photons X émis lors de l'interaction sur une grande dynamique de comptage. En particulier, à l'aide de ce dispositif expérimental, il est possible d'étudier l'évolution du taux absolu de photons X sur près de 5 ordres de grandeur grâce à l'adaptation de la transmission de chacun des détecteurs par l'ajout de diaphragmes et / ou d'absorbants.

Il a été vu au chapitre II le principe de fonctionnement des différents détecteurs ce qui a permis de définir un certain nombre de caractéristiques intrinsèques comme l'étalonnage en énergie, l'efficacité de détection, la transmission et la résolution de ces différents détecteurs. Dans ce chapitre, nous allons coupler ces données quantitatives à des techniques d'analyse des spectres X pour finalement extraire les résultats en terme de **taux absolus de photons X** ou encore **d'évolution des différents états de charge** des ions dont est issu le rayonnement X en fonction des divers paramètres régissant l'interaction (intensité laser, durée d'impulsion, longueur d'onde, polarisation, taille des agrégats…).

Il s'agit de ces diverses techniques d'analyses qui vont être explicitées en détail dans ce chapitre. Précisons que, pour que les résultats présentés dans le chapitre IV soient pertinents, une partie importante du travail de thèse présenté ici a été consacrée aux méthodes à appliquer pour analyser les spectres X ; c'est la raison pour laquelle elles sont particulièrement détaillées dans ce manuscrit.

B] Détecteurs Si(Li)

B-1] Rôle des détecteurs Si(Li)

Le rôle des détecteurs Si(Li) est double :

- avoir une **vision globale** du rayonnement X émis lors de l'interaction du laser femtoseconde avec les agrégats de gaz rare et ainsi identifier **le type de transition** à l'origine de l'émission X ;
- **calculer le taux absolu** de photons X émis dans 4π stéradians et par tir laser.

Nous présentons, sur la *Figure III-1*, à titre d'exemple, les spectres X obtenus à l'aide des détecteurs Si(Li) lors de l'irradiation d'agrégats d'argon, de krypton et de xénon. Ces détecteurs Si(Li) permettent également, en l'absence d'un spectromètre de haute résolution, de remonter à l'état de charge moyen des ions émettant le rayonnement X.

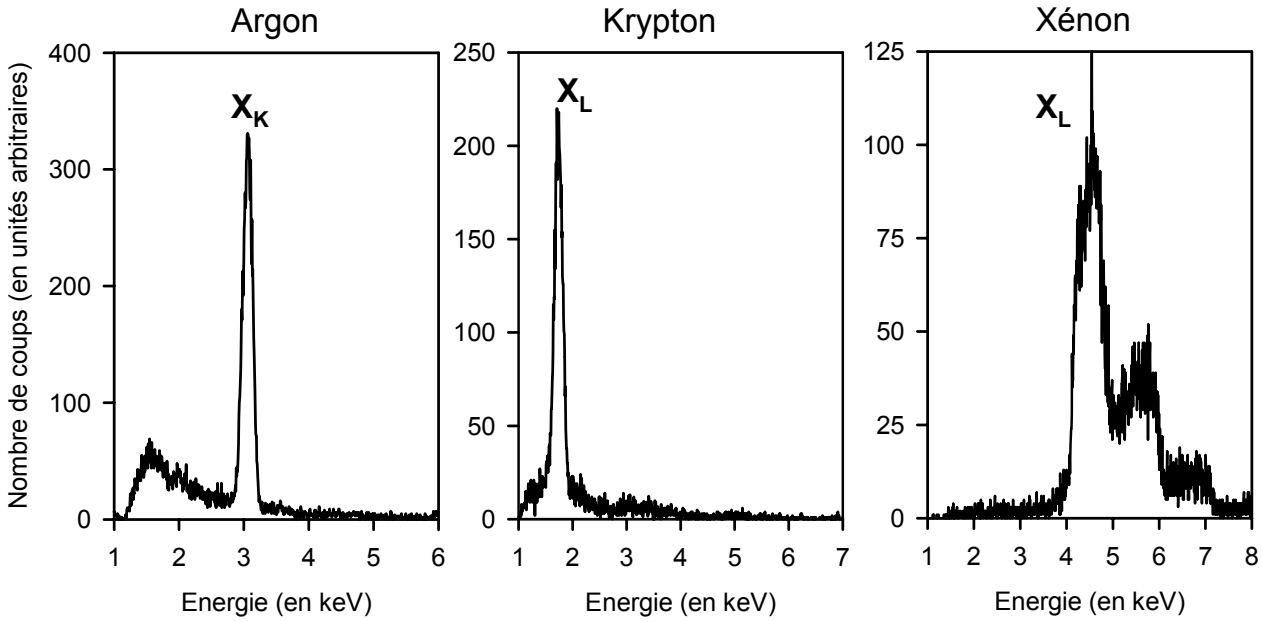


***Figure III-1 :** Spectres X bruts des détecteurs Si(Li) pour les agrégats d'argon, de krypton et de xénon.*

Type d'agrégat	Transitions	Energie moyenne (en *keV*)
Argon	X_K ($2\ell \rightarrow 1s$)	3,1
Krypton	X_L ($3\ell \rightarrow 2\ell'$)	1,7
Xénon	X_L ($3\ell \rightarrow 2\ell'$)	4,4

***Tableau III-1 :** Énergie moyenne et type de transitions observées lors de l'irradiation d'agrégats de gaz rare.*

Il sera détaillé dans la suite le principe de calcul du taux absolu de photons X à partir des spectres X obtenus expérimentalement ainsi que l'influence des filtres qui ont été, éventuellement, placés devant ces détecteurs. Ces différents aspects seront illustrés à l'aide des spectres X expérimentaux obtenus lors de l'irradiation d'agrégats d'argon (X_K à 3,1 *keV*) et de xénon (X_L à 4,4 *keV*).

B-2] Calcul du taux d'X

B-2-a) Phénomène d'empilement ("*Pile – up*")

Lorsqu'à l'entrée d'un amplificateur (ou de tout autre élément d'une chaîne d'analyse linéaire) une impulsion arrive avant que le signal de sortie correspondant à l'impulsion précédente soit retourné au zéro, le signal de sortie final est perturbé. En particulier, si plusieurs signaux arrivent pendant le temps d'intégration de l'amplificateur (de l'ordre de quelques dizaines de μs) alors les signaux s'additionnent et ceci conduit aux pics d'empilement observés sur les spectres Si(Li) : si le détecteur reçoit n photons d'énergie E_X pendant une durée de l'ordre de la picoseconde (~ durée **maximale** de l'émission X << μs) alors l'amplificateur délivre à sa sortie un signal électrique correspondant à un photon unique d'énergie $n \cdot E_X$. D'une manière tout à fait générale, l'intensité de ces pics dépend du taux de comptage *i.e.* du nombre de photons détectés par tir laser. Afin d'expliciter le principe de l'empilement sur ces détecteurs Si(Li) en fonction du taux de comptage, une illustration est présentée *Figure III-2* pour des agrégats d'argon :

- quand le taux de comptage est très inférieur à 1 photon par tir laser : la plupart du temps, 0 photon est détecté mais de temps en temps 1 photon de 3,1 *keV* est détecté ; on voit ainsi apparaître sur le spectre un pic unique à 3,1 *keV* correspondant à ce que nous appellerons dans la suite de ce manuscrit le régime monophotonique (pic 1 photon) ;
- quand le taux de comptage est de l'ordre de 1 photon par tir laser : la plupart du temps 1 seul et unique photon de 3,1 *keV* est détecté mais il peut arriver que 2 photons de 3,1 *keV* soient détectés en même temps, voire même 3 photons, 4 photons … ; on voit ainsi apparaître plusieurs pics sur le spectre X à des multiples entiers de 3,1 *keV* (pic à 6,2 *keV* ; 9,3 *keV* et même 12,4 *keV* sur la *Figure III-2*). L'intensité de chacun de ces pics suit une **loi statistique de Poisson** ;

- quand le taux de comptage devient très supérieur à 1 photon par tir laser : la distribution de Poisson précédente tend alors vers une distribution statistique de Gauss ce qui correspond à ce que nous appellerons le régime multiphotonique. L'énergie moyenne de la distribution multiphotonique $\overline{E}_{Nh\nu}$ sur la *Figure III-2* est de 60 *keV* correspondant, dans ce cas, à l'empilement de l'ordre de 19 photons de 3,1 *keV* détectés **simultanément**.

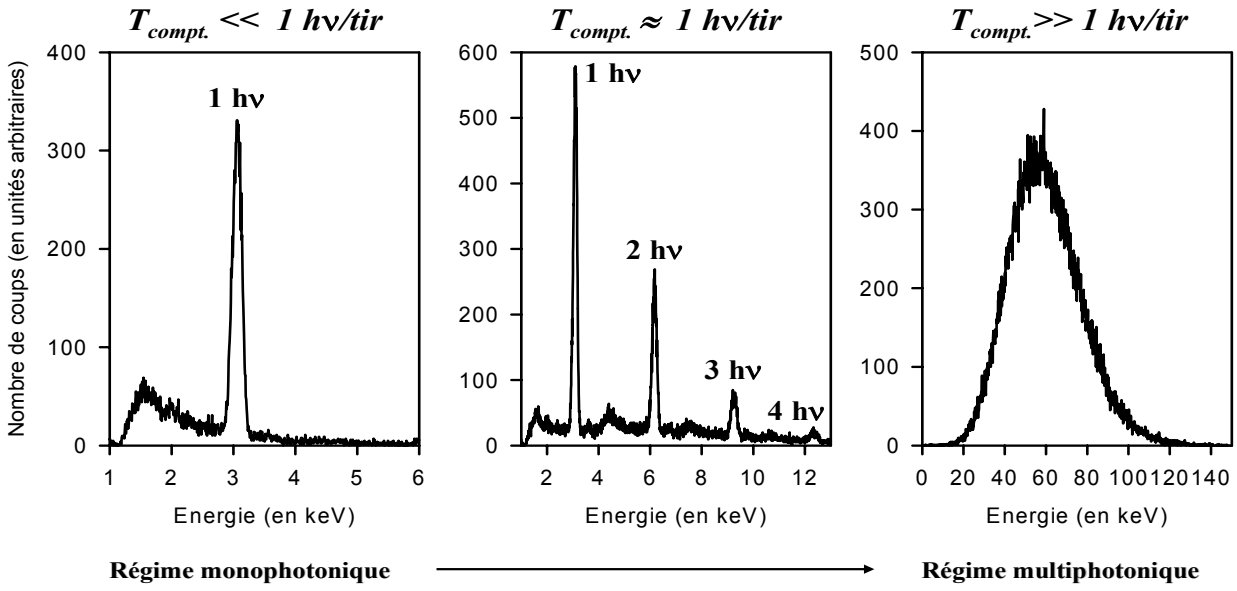


Figure III-2 : Illustration du phénomène d'empilement sur les détecteurs Si(Li) ; passage du régime monophotonique au régime multiphotonique en augmentant le flux de photons X arrivant sur les détecteurs (agrégats d'argon).

Les deux détecteurs Si(Li) dont nous avons présenté le principe de fonctionnement ainsi que les caractéristiques intrinsèques dans le chapitre II (§II-D-1) sont utilisés de deux façons différentes afin de maximiser la dynamique sur le taux de comptage en mettant à profit ce phénomène d'empilement :

- le détecteur Si(Li) (1) fonctionne dans un régime plutôt monophotonique permettant de contrôler en permanence l'énergie moyenne $\overline{E}_{1h\nu}$ soit la position du pic 1 photon ainsi que sa forme ;
- le détecteur Si(Li) (2) fonctionne dans un régime multiphotonique ; nous rappelons que le gain variable de l'amplificateur associé à ce détecteur permet d'observer des photons ayant une énergie de près de 260 *keV* (§II-D-1-d), soit, par exemple pour les agrégats d'argon, **la détection simultanée** de l'ordre de 84 photons de 3,1 *keV*.

Nous allons maintenant expliciter le principe de calcul du nombre moyen de photons X détectés sur les Si(Li) ce qui nous permettra ensuite de remonter au taux absolu de photons X émis dans 4π.

B-2-b) Principe du calcul du nombre moyen de photons détectés

1°) Cas général (Méthode A) : détecteur Si(Li) (2)

Les événements détectés sont statistiques et il est possible de modéliser le nombre moyen de photons détectés par tir laser $\overline{n}_X$ par une distribution de Poisson, dans le cas où ce nombre est faible, et par une distribution de Gauss quand $\overline{n}_X$ devient grand. La distribution de Poisson s'écrit :

$$P(n) = \frac{\overline{n}_X{}^n}{n!} \cdot \exp\left(-\overline{n}_X\right) \qquad \textbf{[III-B.1]}$$

avec *P(n)* la probabilité de détecter *n* photons simultanément par tir laser et $\overline{n}_X$ le nombre moyen de photons détectés simultanément par tir laser. Cette probabilité se déduit aisément des spectres expérimentaux en écrivant :

$$P(n) = \frac{N(n)}{N_{tirs\ laser}} \qquad \textbf{[III-B.2]}$$

avec *N(n)* le nombre de coups dans le pic à l'énergie E = n × $\overline{E}_{1h\nu}$ ($\overline{E}_{1h\nu}$ étant l'énergie moyenne du pic 1 photon) et $N_{tirs\ laser}$ le nombre de tir laser. Le nombre moyen de photons X détectés se détermine à partir de l'expression suivante :

$$\overline{n}_X = \frac{\overline{E}_{Nh\nu}}{\overline{E}_{1h\nu}} \cdot P(n \geq 1) \qquad \textbf{[III-B.3]}$$

avec $\overline{E}_{Nh\nu}$ l'énergie moyenne de la distribution du spectre et $P(n \geq 1)$ un facteur de correction qui tient compte du fait que, par définition, on enregistre sur un spectre au minimum 1 photon par tir laser, le cas à 0 photon n'étant pas comptabilisé. Cette probabilité de détecter **au moins** un photon par tir laser est donnée, d'une manière générale, par l'expression suivante :

$$P(n \geq 1) = \sum_{n=1}^{\infty} P(n) \qquad \textbf{[III-B.4]}$$

Expérimentalement, cette probabilité est donnée par l'expression :

$$P\left(n \geq 1\right) = \frac{N_{coups}}{N_{tirs\ laser}} \qquad \textbf{[III-B.5]}$$

avec N_{coups} le nombre total de coups enregistrés sur le spectre. Ainsi le nombre moyen de photons détectés s'écrit finalement sous la forme :

$$\overline{n}_X = \frac{\overline{E}_{Nh\nu}}{\overline{E}_{1h\nu}} \cdot \frac{N_{coups}}{N_{tirs\ laser}} \qquad \textbf{[III-B.6]}$$

où $\overline{E}_{1h\nu}$ est l'énergie moyenne de l'ensemble du spectre monophotonique. Les différentes informations apportées par les deux détecteurs Si(Li) sont résumées sur la *Figure III-3* ci – dessous. Précisons pour finir que le nombre de tirs laser est obtenu par l'échelle de comptage du système d'acquisition : module *"Time & Counter"* de la *Figure II-55*.

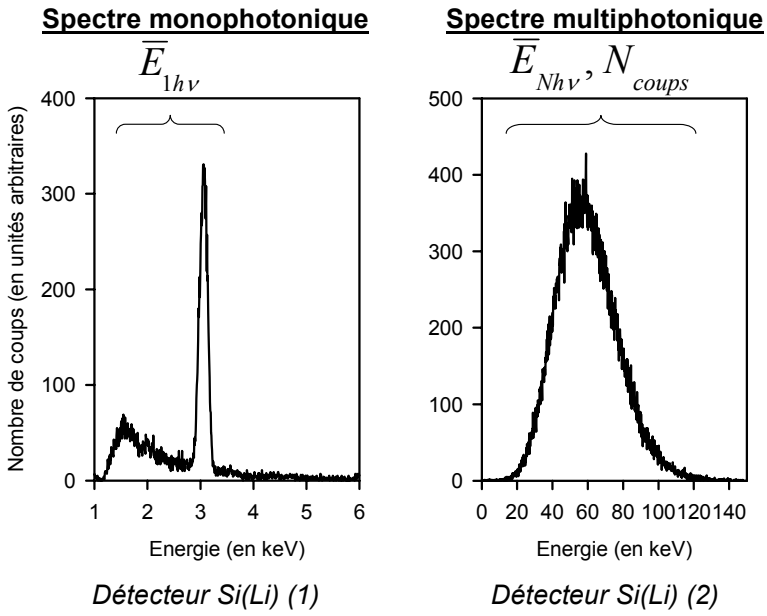


Figure III-3 : Informations apportées par les deux détecteurs Si(Li).

2°) Cas particulier (Méthode B) : le détecteur Si(Li) (1)

Une autre méthode pour déterminer le taux moyen de photons **(Méthode B),** appliquée plus particulièrement pour le détecteur Si(Li) (1), repose sur les propriétés de la loi de Poisson à partir des intégrales des pics $N_{1\,photon}$, $N_{2\,photons}$, $N_{3\,photons}$ et $N_{4\,photons}$ du spectre X (*cf. Figure III-4*). En effet, à partir des formules [III-B.1] et [III-B.2], il est possible d'écrire :

$$\frac{P(n=2)}{P(n=1)} = \frac{N_{2\,photons}}{N_{1\,photon}} = \frac{\overline{n}_X}{2} \qquad \textbf{[III-B.7a]}$$

$$\frac{P(n=3)}{P(n=2)} = \frac{N_{3\,photons}}{N_{2\,photons}} = \frac{\overline{n}_X}{3} \qquad \textit{[III-B.7b]}$$

$$\frac{P(n=4)}{P(n=3)} = \frac{N_{4\,photons}}{N_{5\,photons}} = \frac{\overline{n}_X}{4} \qquad \textit{[III-B.7c]}$$

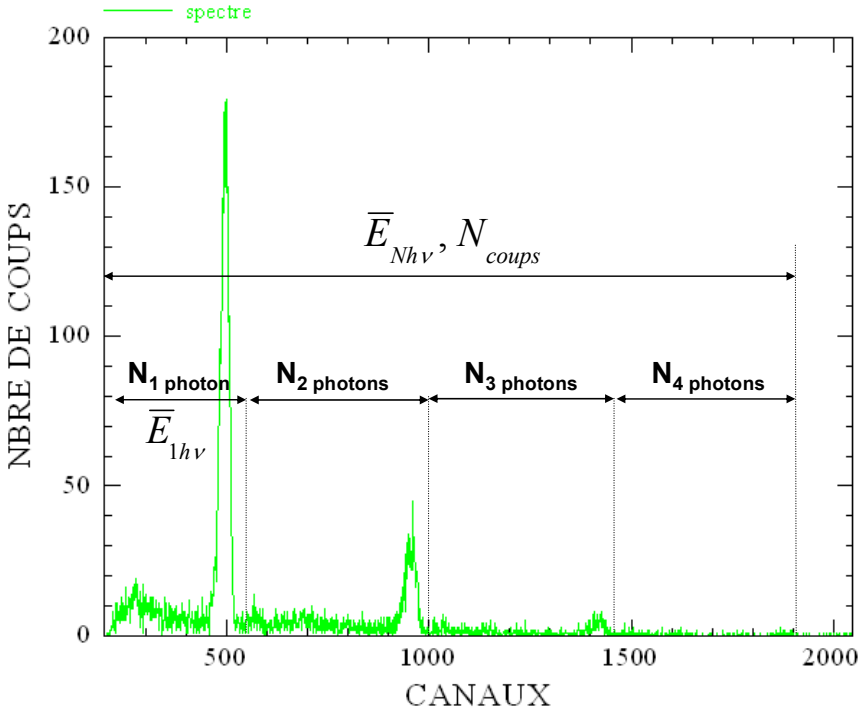


***Figure III-4 :** Spectre "multiphotonique" sur le détecteur Si(Li) (1) – Agrégats d'argon (P_0 = 40 bars, E = 25 mJ, τ = 60 fs, λ = 800 nm, $N_{tirs\ laser}$ = 20 000).*

Nous donnons dans le *Tableau III-2*, les valeurs moyennes obtenues par ces deux méthodes pour le spectre présenté sur la *Figure III-4*. A partir de ce tableau, nous voyons que $\overline{n}_X$ est assez identique quelque soit la méthode employée. Néanmoins, du fait de la dispersion des valeurs obtenues, la **Méthode B** est moins précise que la **Méthode A** mais celle – ci n'est utilisable que si, et seulement si, on a un taux de photons tel que l'on détecte tous les pics d'empilement sur le spectre. Dans le cas contraire, il est nécessaire d'utiliser la **Méthode B** et de faire une moyenne des différentes valeurs obtenues par les formules [III-B.7a], [III-B.7b] et [III-B.7c].

Méthode A	$\overline{n}_X$	**Méthode B**	$\overline{n}_X$
Formule [III-B.6]	0,65	Formule [III-B.7a]	0,61
		Formule [III-B.7b]	0,64
		Formule [III-B.7c]	0,66

***Tableau III-2 :** Comparatif des nombres moyens de photons X détectés sur le détecteur Si(Li) (1) obtenus par les deux méthodes expliquées dans le texte et correspondants au spectre de la Figure III-4.*

Cette **Méthode B** est mise à profit, par exemple, pour le spectre de la *Figure III-5* où il manque le pic 5 photons non comptabilisé entièrement. A partir des intégrales des pics $N_{1\,photon}$, $N_{2\,photons}$, $N_{3\,photons}$ et $N_{4\,photons}$ du spectre et des formules [III-B.7], il est alors possible de remonter à $\overline{n}_X$ comme nous le présentons dans le *Tableau III-3* pour ce spectre.

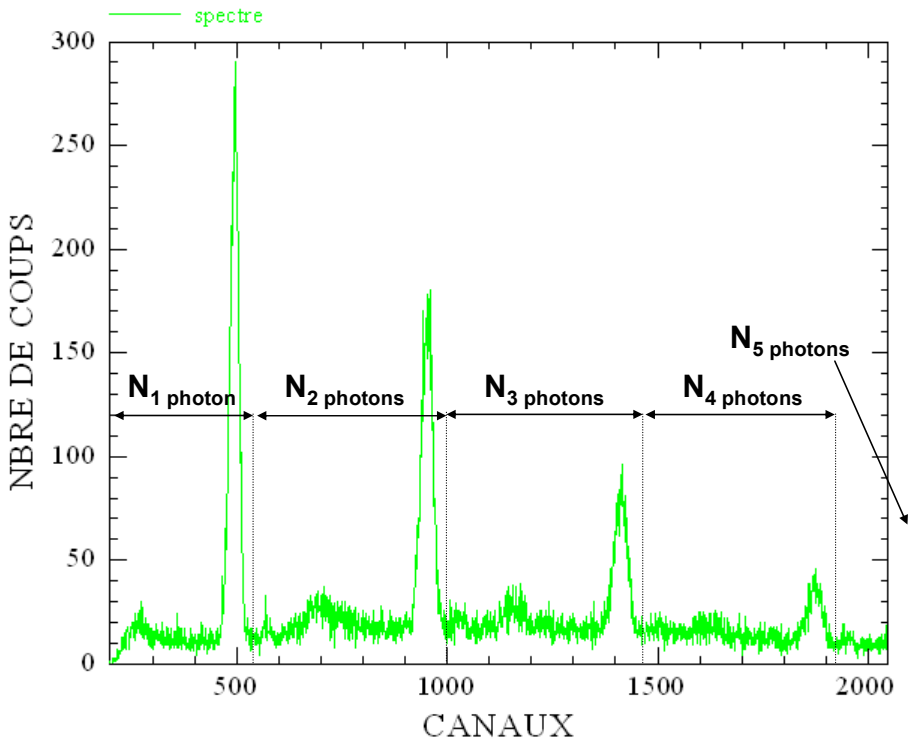


***Figure III-5 :** Spectre "multiphotonique" sur le détecteur Si(Li) (1) – Agrégats d'argon (P_0 = 57 bars, E = 72 mJ, τ = 60 fs, λ = 800 nm, $N_{tirs\ laser}$ = 55 500).*

Méthode B	$\overline{n}_X$	En moyenne :
Formule [III-B.7a]	2,60	2,55
Formule [III-B.7b]	2,50	
Formule [III-B.7c]	2,56	

***Tableau III-3 :** Nombre moyen de photons X détectés sur le détecteur Si(Li) (1) par la méthode B correspondant au spectre de la Figure III-5.*

Enfin, comme il est présenté sur la *Figure III-6*, la valeur moyenne du nombre de photons détectés X obtenue par cette méthode permet d'estimer correctement le nombre de coups enregistrés dans chacun des pics multiphotoniques du spectre de la *Figure III-5*.

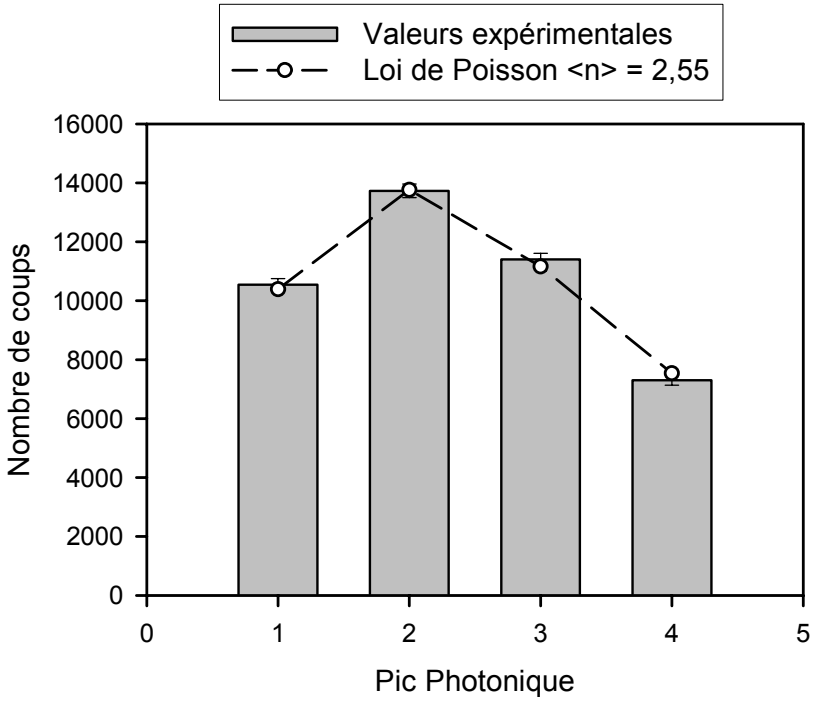


***Figure III-6 :** Comparaison du nombre de coups dans chacun des pics multiphotoniques obtenu expérimentalement (histogramme) et théoriquement (loi de Poisson – points) pour le spectre de la Figure III-5*

3°) Calcul du taux absolu

Une fois déterminé le taux de photons détectés sur **chacun** des deux détecteurs Si(Li), il est ensuite possible de remonter au taux absolu de photons X sur ces détecteurs *via* la connaissance de chacune des transmissions totales à partir des expressions :

$$(\overline{n}_X)_{absolu}^{Si(Li)\ (1)} = \overline{n}_{X.}^{Si(Li)\ (1)} \times \frac{1}{T_{Si(Li)\ (1)}} \qquad \textbf{[III-B.8a]}$$

$$(\overline{n}_X)_{absolu}^{Si(Li)\ (2)} = \overline{n}_{X.}^{Si(Li)\ (2)} \times \frac{1}{T_{Si(Li)\ (2)}} \qquad \textbf{[III-B.8b]}$$

avec $\overline{n}_{X.}^{Si(Li)}$ le nombre moyen de photons X détectés donné par la formule [III-B.6] **(Méthode A)** ou par les formules [III-A.7] **(Méthode B)** et $T_{Si(Li)}$ la transmission du détecteur Si(Li) considéré (1 ou 2) donnée par la formule [II-D.1]. Nous rappelons que cette transmission dépend de l'angle solide de détection (*Tableaux II-15* et *II-16*), de l'efficacité de détection (*Tableau II-14* et *Figures II-42* et *II-43*) et de la transmission éventuelle des filtres placés devant le détecteur **à l'énergie moyenne du 1 photon** ($\overline{E}_{1h\nu}$). Enfin, la transmission totale des détecteurs Si(Li) est récapitulée dans l'Annexe E.

B-2-c) Discussions sur l'empilement

1°) Modélisation de l'empilement

D'après les considérations statistiques énoncées précédemment, le spectre multiphotonique correspondant à un empilement **d'au moins** 15 photons doit tendre vers une gaussienne parfaitement symétrique du type :

$$P(n) = \frac{1}{\sqrt{2\pi \cdot \overline{n}_X}} \cdot \exp\left(- \frac{\left(n - \overline{n}_X\right)^2}{2 \cdot \overline{n}_X} \right) \qquad \textit{[III-B.9]}$$

avec $\overline{n}_X$ la valeur moyenne du nombre de photons X détectés. Les spectres expérimentaux multiphotoniques présentent néanmoins une déformation "haute énergie" comme cela est illustré sur la *Figure III-7*. En effet, si la partie "basse énergie" est bien reproduite par un fit gaussien, la partie "haute énergie" semble s'en écarter.

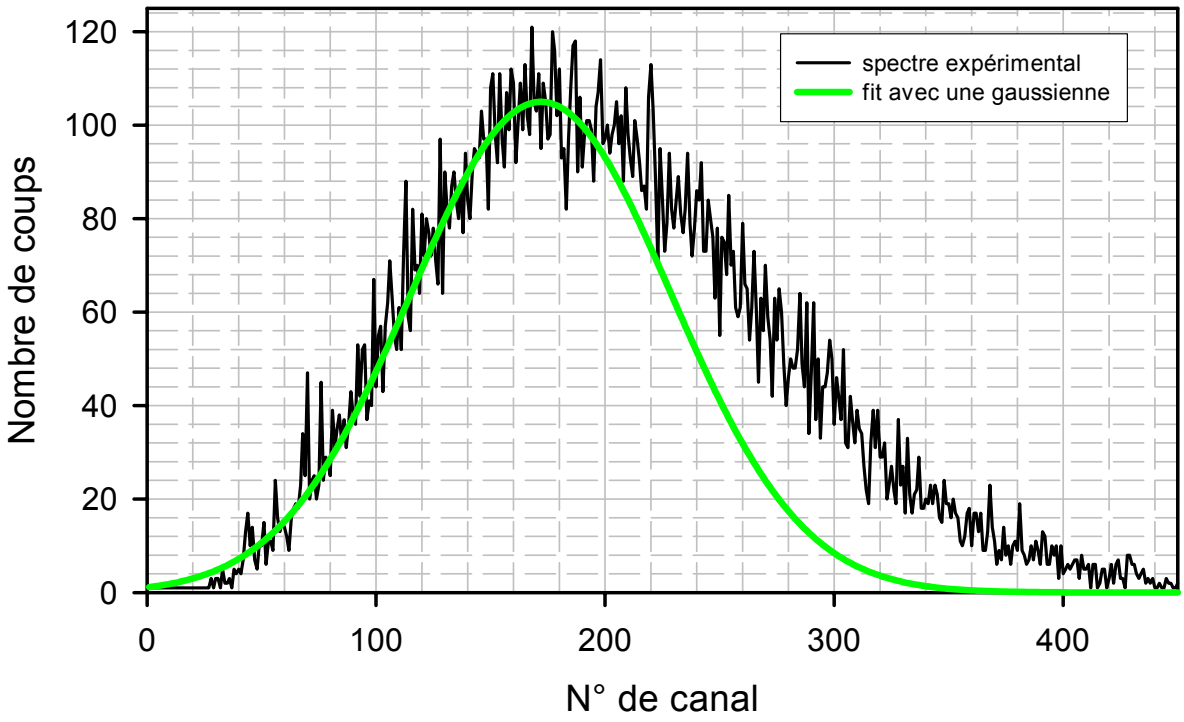


Figure III-7 : Spectre expérimental multiphotonique obtenu avec des agrégats d'argon et correspondant à la détection, en moyenne, de 18 photons et fit gaussien avec une valeur moyenne de 18.

Cette déformation "haute énergie" dans l'empilement multiphotonique s'explique par la présence dans le spectre monophotonique de plusieurs composantes contribuant à l'empilement comme nous l'illustrons sur la *Figure III-8* :

- Les transitions état libre – état libre (rayonnement de Bremsstrahlung) : elles sont dues aux électrons présents dans l'agrégat, s'étalent de 1 *keV* à plus de 3 *keV* (partie

hachurée notée A de la *Figure III-8*) et nous les désignerons dans la suite comme un **fond** de Bremsstrahlung ;

- Les transitions état lié – état lié (pic à 3,1 *keV* pour les agrégats d'argon noté B sur la *Figure III-8*) : il s'agit des transitions radiatives issues des ions multichargés que nous désignerons dans la suite comme le "signal physique".

En effet, si l'on voit très nettement sur la *Figure III-2* l'empilement du "signal physique" à 3,1 *keV* (pics à 6,2 *keV*, 9,3 *keV* …), il apparaît également des structures entre les pics multiphotoniques du signal physique qui correspondent à la fois à l'empilement propre du fond de Bremsstrahlung mais aussi à des empilement croisés entre le fond et le signal physique.

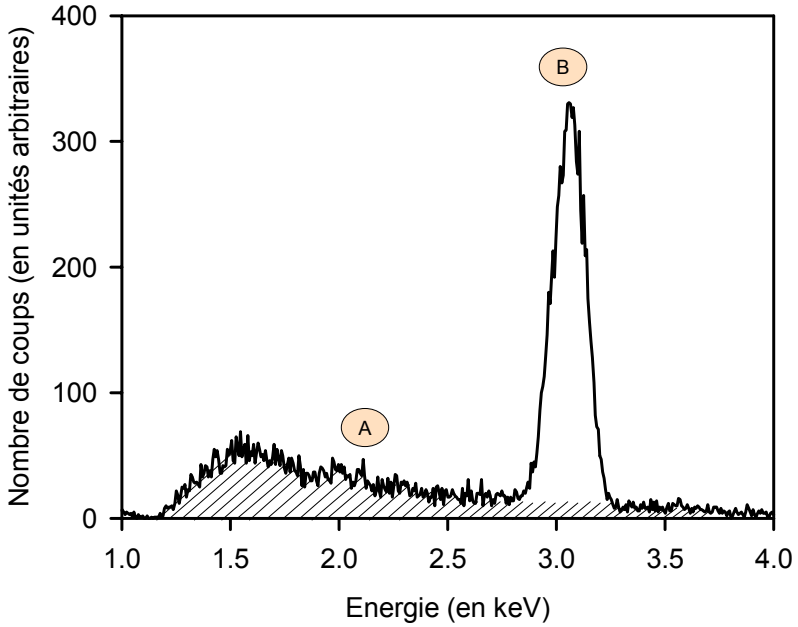


Figure III-8 : Spectre monophotonique obtenu avec des agrégats d'argon : la partie notée A sur cette figure correspond à un fond de Bremsstrahlung (partie hachurée) et le pic indiqué par B correspond aux X_K émis par les ions multichargés.

En simulant un empilement statistique avec ce type de spectre monophotonique, comme illustré sur la *Figure III-9*, on obtient une gaussienne déformée du côté haute énergie reproduisant parfaitement le spectre expérimental illustré sur la *Figure III-10*. On notera que cette simulation ne prend en compte que l'addition des termes propres ($2.E_A$, $3.E_A$ … et $2.E_B$, $3.E_B$...), les termes croisés étant négligés (E_A+E_B, $2.E_A+E_B$, $E_A+2.E_B$ …).

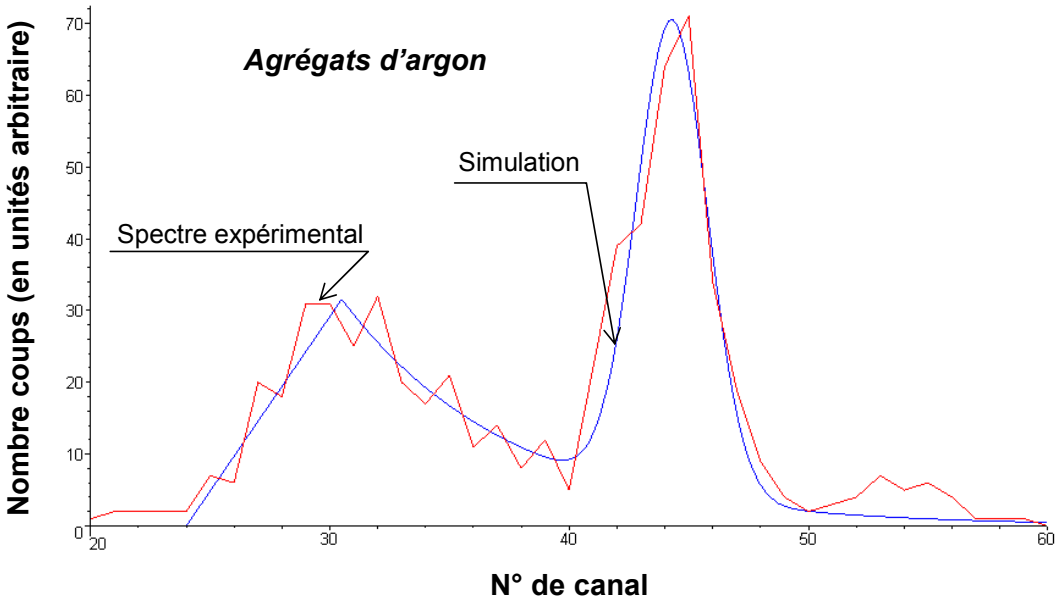


***Figure III-9 :** Spectre monophonique expérimental utilisé pour la modélisation du pic 1 photon.*

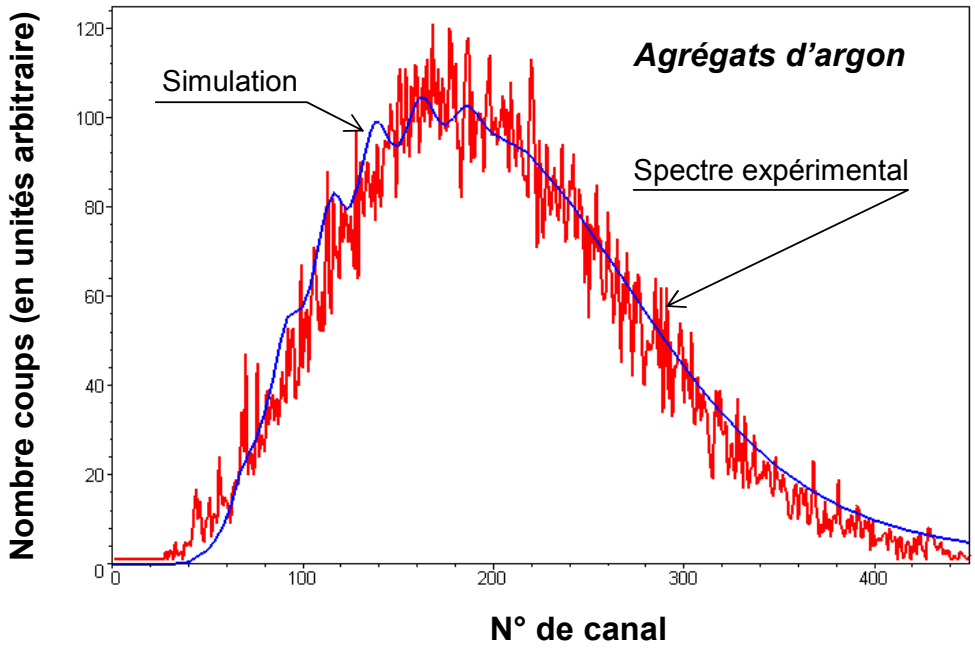


***Figure III-10 :** Spectre multiphotonique expérimental de la Figure III-7 et simulation de l'empilement à l'aide du spectre monophotonique présenté sur la Figure III-9.*

2°) Statistique de l'empilement

L'équipe de L.C. Tribedi et collaborateurs utilise une technique similaire à la notre (détecteur Si(Li)) afin de remonter également au taux de photons X émis lors de l'interaction avec un laser femtoseconde [Banerjee et al., 1998]. Il existe cependant une divergence dans l'interprétation des données entre nos travaux et ceux de L.C. Tribedi *et al.* concernant la

statistique associée à la **détection** des photons X. Tout d'abord, il est établi que le **temps d'arrivée** des photons issus d'une source cohérente (comme un laser par exemple) est décrit par une statistique Poissonienne tandis que le **temps d'arrivée** de ceux émis par une source "chaotique" ou une source "thermique" (source incohérente) est décrit par une distribution de Bose – Einstein (ou distribution géométrique) donnée par :

$$P(n) = \frac{1}{1+\overline{n}_X} \cdot \left(\frac{\overline{n}_X}{\overline{n}_X + 1} \right)^n \qquad \textbf{[III-B.10]}$$

avec $P(n)$ la probabilité d'arrivée simultanée de n photons sur le détecteur et $\overline{n}_X$ le nombre moyen de photons arrivant sur le détecteur. Ces auteurs se basent ainsi sur l'argument que l'émission X résultant de l'interaction laser – matière (agrégats et solide) est incohérente pour réfuter l'utilisation d'une statistique de Poisson et ils adoptent donc une distribution de Bose – Einstein afin de modéliser l'empilement. À titre d'exemple, nous présentons sur la *Figure III-11* un spectre qu'ils ont obtenu lors de l'irradiation d'une cible solide d'aluminium par un laser femtoseconde ainsi que la modélisation qu'ils ont réalisée à l'aide d'une statistique de Poisson et de Bose – Einstein (statistique appelée "thermique").

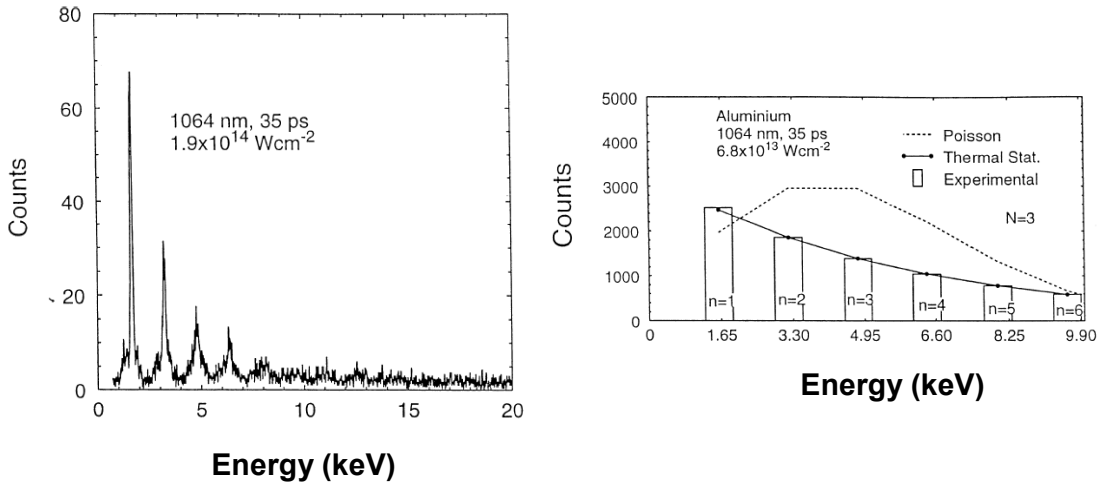


***Figure III-11 :** Spectre expérimental obtenu par Tribedi et al. à l'aide d'un détecteur Si(Li) et comparaison avec les différentes lois statistiques [Banerjee et al., 1998].*

Deux arguments peuvent être avancés pour démontrer que la statistique associée à l'empilement des photons X sur le détecteur ne peut pas être décrite par une distribution de Bose – Einstein :

- en premier lieu, il convient de dissocier la probabilité associée à **l'émission** des photons X de la probabilité associée à **la détection** des photons X et donc à leur empilement sur le détecteur. En effet, l'argument selon lequel l'émission incohérente du rayonnement X conduit **obligatoirement** à un empilement décrit par une loi géométrique ne peut être avancé

car c'est la réponse du détecteur qui conduit à l'empilement et non le type d'émission (cohérente ou incohérente). Pour considérer que l'empilement des photons X suit la statistique liée à l'émission X, il faudrait en effet que le temps de comptage τ du détecteur (quelques dizaines de μs) soit bien inférieur au temps de cohérence (si cohérence il existe) de la source X : il ne nous semble donc pas possible d'associer l'empilement des photons à la statistique de l'émission X. En fait, l'analogie pertinente peut être faite avec le nombre de désintégrations radioactives issues d'une source radioactive comptées à l'aide d'un compteur Geiger – Müller pendant une durée τ : dans ce cas, le phénomène physique à la base de l'émission est incohérent (désintégrations radioactives) et la loi de comptage de ces évènements est associée à une loi de Poisson.

- en second lieu, il est facile de montrer à partir de la formule [III-B.10] décrivant une distribution de Bose – Einstein que, dans le cas d'un nombre de photons détectés simultanément suffisamment grand (*i.e.* $\overline{n}_X \rightarrow \infty$), cette loi de probabilité ne peut jamais tendre vers la distribution Gaussienne observée expérimentalement.

Pour illustrer cette divergence, la *Figure III-12* présente les probabilités associées à la détection des photons X suivant ces deux lois de probabilité (Poisson et Bose – Einstein) pour un nombre moyen de photons détectés de 1 pour lequel les deux distributions ont un comportement similaire et pour un nombre moyen de photons détectés de 10.

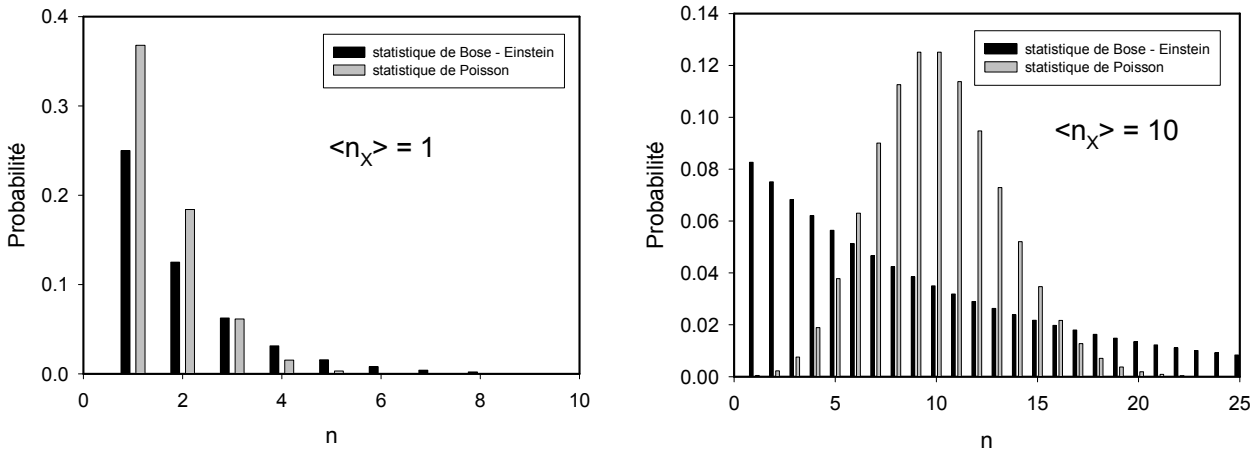


Figure III-12 : Probabilités associées à la détection des photons X en utilisant une loi de probabilité de type Poisson ou de type Bose – Einstein pour un nombre moyen de photons X détectés de 1 (figure de gauche) et de 10 (figure de droite).

Enfin, la *Figure III-13* présente le passage du régime monophotonique vers le régime multiphotonique obtenu sur un **détecteur unique** (détecteur Si(Li) (2)) lorsque que le flux de photons augmente (*via* l'énergie par impulsion), toutes choses étant égales par ailleurs (même taille d'agrégat, même durée d'impulsion, même longueur d'onde). Cette évolution continue,

observée expérimentalement, démontre, s'il en est encore besoin, que la statistique du nombre de photons X détectés présente bien la caractéristique essentielle d'une loi de Poisson, à savoir que celle – ci tend vers une gaussienne quand le nombre de photons X empilés est grand.

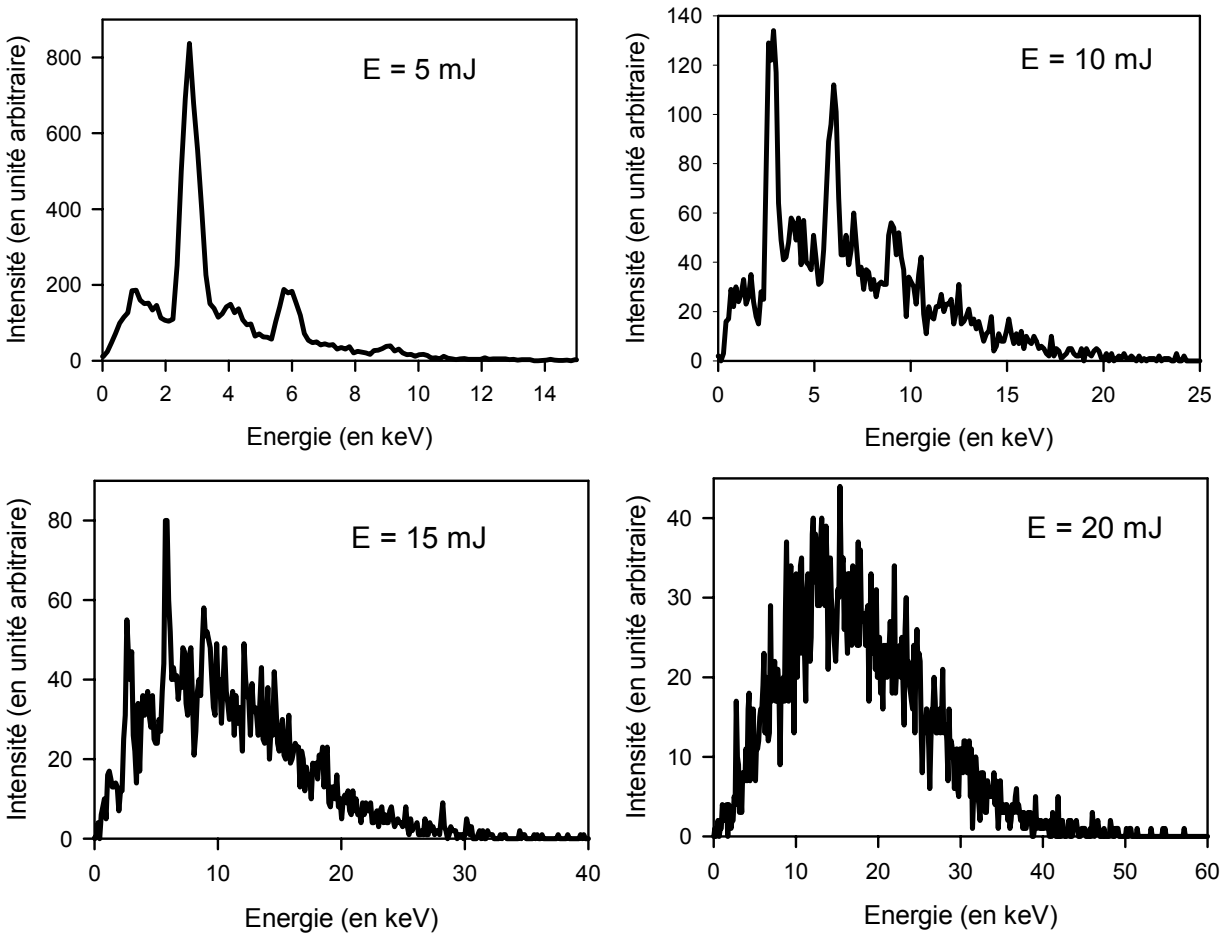


***Figure III-13 :** Spectres expérimentaux obtenus avec le détecteur Si(Li) (2) en augmentant l'énergie par impulsion (P_0 = 40 bars ; τ = 55 fs ; λ = 800 nm).*

B-2-d) Extraction du signal physique

Le but des expériences que nous avons réalisées étant de déterminer les taux absolus de photons X émis lors de la désexcitation radiative d'états discrets des ions multichargés formés lors de l'interaction du laser femtoseconde avec les agrégats, il fallait donc isoler le signal physique du fond de Bremsstrahlung quelque soit les conditions d'empilement. Pour cela, le pourcentage de "signal physique" a été systématiquement extrait à partir du spectre monophotonique enregistré en effectuant :

$$\%\ 3{,}1\ keV = \frac{N_{signal\ physique}}{N_{1\ photon}} \times 100 \qquad \textbf{[III-B.11]}$$

comme illustré sur la *Figure III-14*.

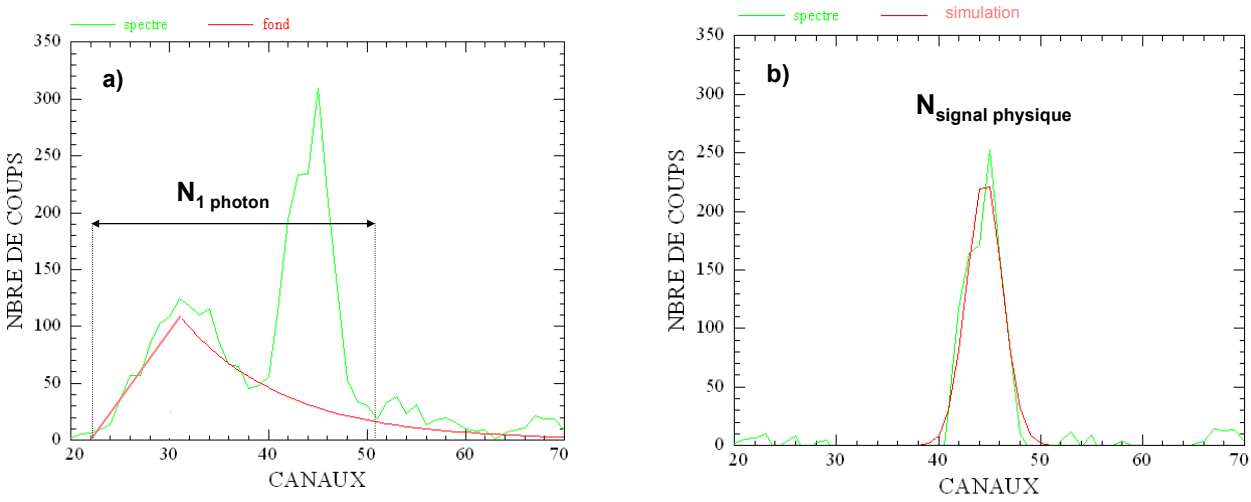


Figure III-14 : Méthode d'extraction de la proportion de signal physique sur le détecteur Si(Li) (2) : a) ensemble du pic 1 photon contribuant à l'empilement et simulation du fond – b) pic à 3,1 keV simulé par une gaussienne après soustraction du fond (P_0 = 40 bars ; τ = 55 fs ; λ = 800 nm et E = 15 mJ).

Dans le cas présenté sur la *Figure III-14*, ce pourcentage a été trouvé de l'ordre de 45 %, mais d'une manière tout à fait générale, cette proportion de signal physique change lorsque l'on fait varier les différents paramètres influant sur l'émission X. Lorsque l'empilement était grand, cette proportion était suivie par le détecteur Si(Li) (1) dont le montage était dédié spécifiquement à l'enregistrement des spectres monophotoniques et par le Si(Li) (2) quand le taux de comptage devenait particulièrement faible. A titre d'exemple, l'évolution de ce pourcentage de signal physique, dans le cas des agrégats d'argon, en fonction de l'énergie par impulsion est présentée *Figure III-15* en conservant constantes la taille des agrégats, la durée d'impulsion et la longueur d'onde. Ainsi $\overline{n}_X$ a systématiquement été corrigé de ce pourcentage pour déterminer réellement le taux absolu de photons X émis.

$$(\overline{n}_X)^{Si(Li)}_{absolu\ de\ signal\ physique} = \%\ 3{,}1\ keV \times (\overline{n}_X)^{Si(Li)} \qquad \textbf{[III-B.13]}$$

Précisons pour finir que ce travail systématique a été fait tant pour les agrégats d'argon que pour les agrégats de xénon que nous n'avons pas présentés pas ici.

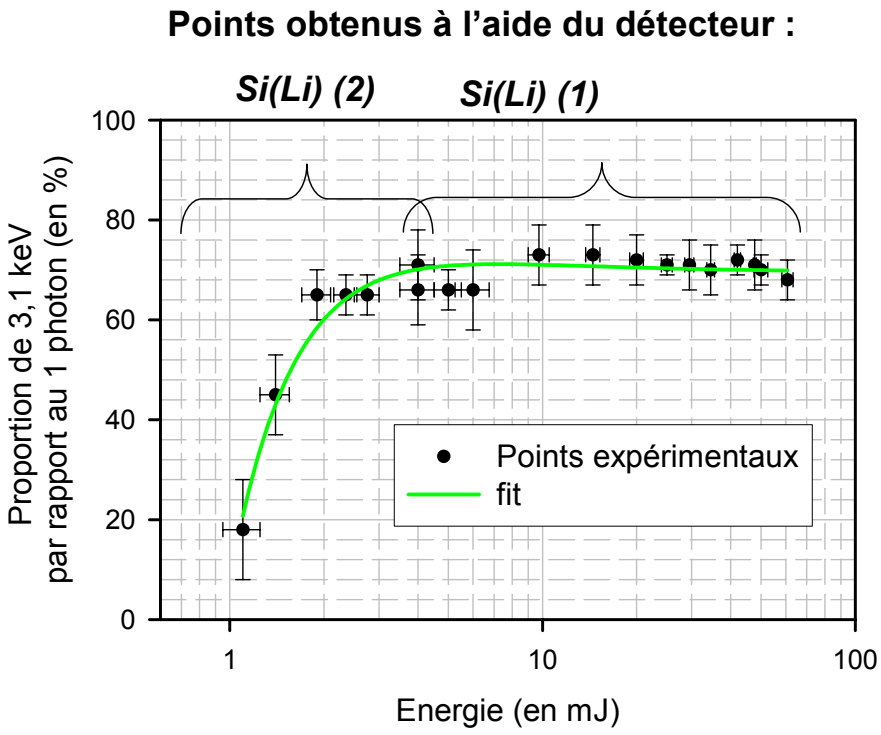


***Figure III-15 :** Évolution de la proportion de 3,1 keV en fonction de l'énergie par impulsion lors de l'irradiation d'agrégats d'argon par le laser femtoseconde (τ = 55 fs, λ = 800 nm, P_0 = 40 bars).*

B-3] Filtres devant les détecteurs Si(Li)

Des filtres d'inox, d'aluminium ou de cuivre (voire de Mylar aluminisé) ont été placés devant les détecteurs afin de remplir deux objectifs :

- diminuer le nombre de photons arrivant sur le détecteur et ainsi, tout comme en jouant sur les diaphragmes, augmenter la dynamique de comptage des détecteurs Si(Li) et étudier ainsi l'évolution du taux de photons X avec une grande latitude sur les différents paramètres expérimentaux ;
- supprimer d'emblée le fond présent dans le pic 1 photon et limiter ainsi, autant que possible, sa contribution à l'empilement.

B-3-a) Spectres X d'argon

La nécessité d'un filtre (Inox, Aluminium voire même Mylar aluminisé) devant les détecteurs se comprend bien à partir du spectre "monophotonique" présenté sur la *Figure III-16* obtenu lors de l'irradiation d'agrégats d'argon sans aucun filtre devant le détecteur Si(Li) (2). Il est en effet impossible à partir d'un tel spectre de pouvoir extraire le pic correspondant aux X_K de l'argon à 3,1 *keV* et *a fortiori* le taux de photons X émis lors de l'interaction lorsque l'empilement augmente.

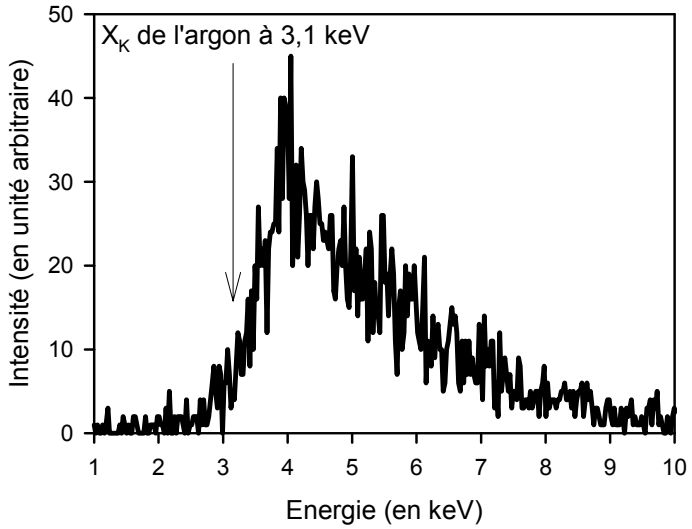


***Figure III-16 :** Spectre "monophotonique" obtenu avec un détecteur Si(Li) lors de l'irradiation d'agrégats d'argon sans aucun filtre devant le détecteur (P_0 = 13 bars, E = 6 mJ, τ = 50 fs, λ = 800 nm).*

A titre de comparaison, nous présentons sur la *Figure III-17* un spectre obtenu pour des conditions expérimentales proches de celles de la *Figure III-16* en présence, cette fois – ci, d'une feuille de Mylar aluminisée devant le même détecteur Si(Li). Cette feuille de Mylar permet de supprimer toutes les particules chargées pouvant être détectées par le Si(Li) et ainsi parasiter le spectre X. Précisons pour finir que la fenêtre d'entrée en béryllium des détecteurs permet déjà de couper tous les photons d'énergie inférieure à 1 *keV* et notamment l'important rayonnement UV émis lors de l'interaction ce qui nous assure que **l'empilement résultant n'est pas issu de photons UV**.

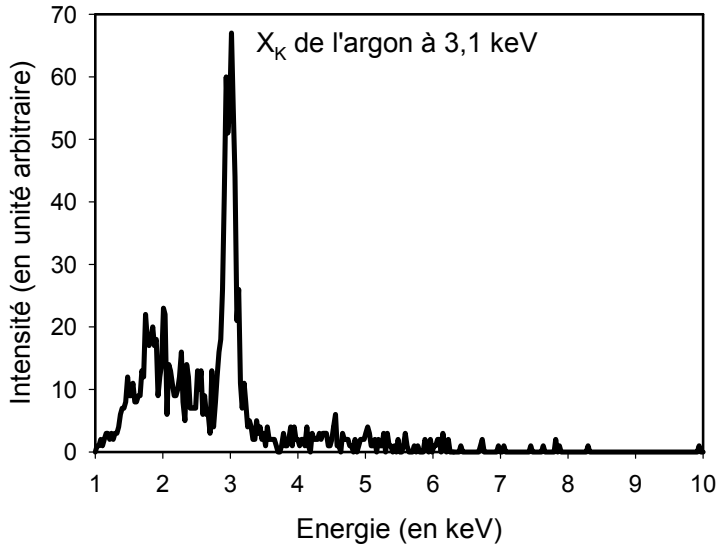


***Figure III-17 :** Spectre monophotonique obtenu avec un détecteur Si(Li) lors de l'irradiation d'agrégats d'argon avec du mylar aluminisé devant le détecteur (P_0 = 13 bars, E = 5 mJ, τ = 50 fs, λ = 800 nm).*

B-3-a) Spectres X de xénon

Pour les agrégats de xénon, le fond est encore beaucoup plus important qu'avec les agrégats d'argon et nous avons généralement utilisé des filtres d'inox. Il est présenté sur la *Figure III-18* le spectre monophotonique issu de l'irradiation d'agrégats de xénon en présence d'un filtre d'inox de 23,20 μm (2 feuilles d'inox de 11,60 μm). Les pics observés autour de

4,4 *keV* correspondent à l'émission d'X_L d'ions xénon fortement multichargés et les structures vers 6 *keV* et 7,2 *keV* sont associées, quand à elles, au seuil K d'absorption photonique respectivement du Fe et du Cr.

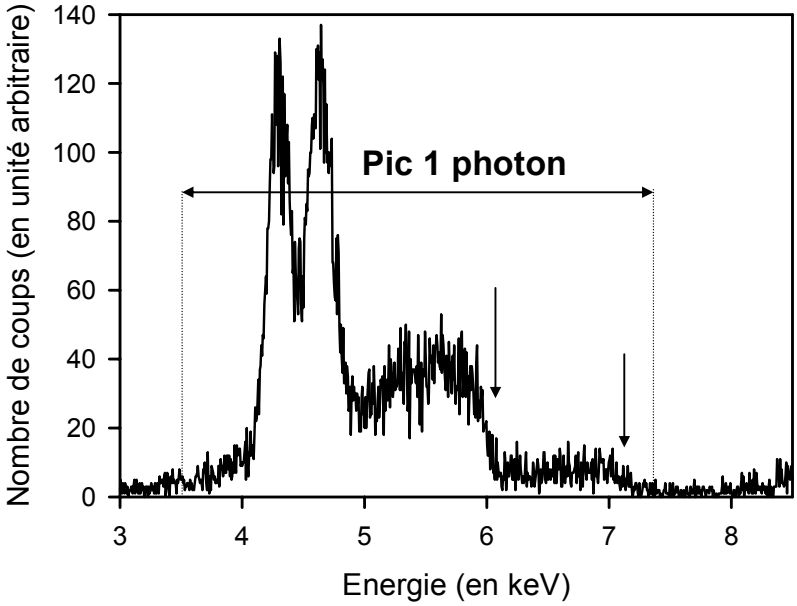


***Figure III-18 :** Spectre "brut" monophotonique sur le détecteur Si(Li) (1) avec un filtre d'inox de 23,20 µm – agrégats de xénon (P_0 = 10,7 bars – E = 5 mJ – λ = 400 nm).*

Pour mieux comprendre les structures observées sur le pic 1 photon, nous présentons sur la *Figure III-19* la transmission théorique du filtre d'inox de 23,20 *µm*.

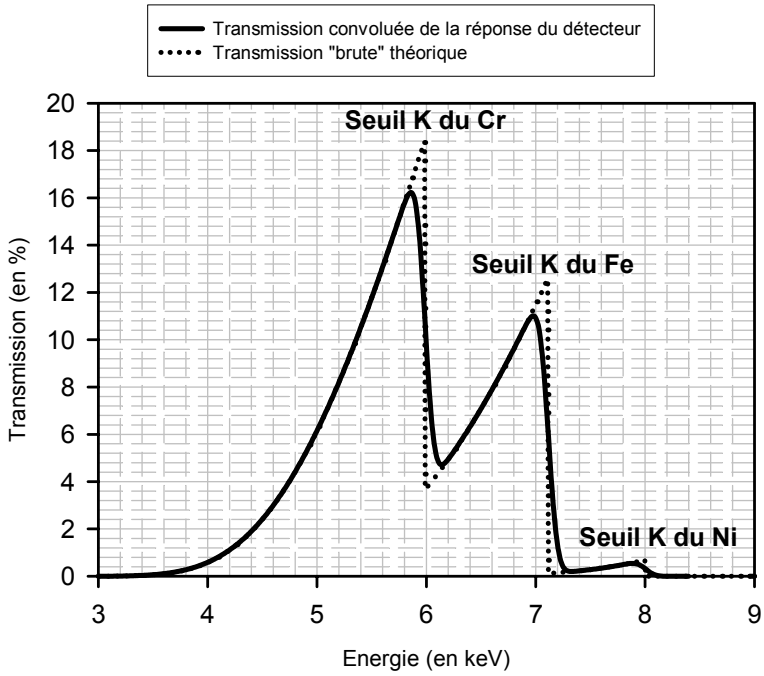


***Figure III-19 :** Transmission (en %) théorique et convoluée de la réponse du détecteur (gaussienne) pour le filtre d'inox de 23,20 µm.*

Comme le spectre présenté sur la *Figure III-20* le montre, ces structures disparaissent sur le spectre "corrigé" de la transmission du filtre d'inox. On peut constater par ailleurs que le

spectre corrigé fait ressortir la présence d'un important fond de Bremsstrahlung avant 4 *keV* qui contribuerait grandement à l'empilement sans la présence du filtre d'inox devant le détecteur. Ce filtre d'inox permet donc d'obtenir, avec les agrégats de xénon, un empilement "propre" sur les détecteurs Si(Li), *i.e.* en minimisant l'effet de l'empilement du fond de Bremsstrahlung.

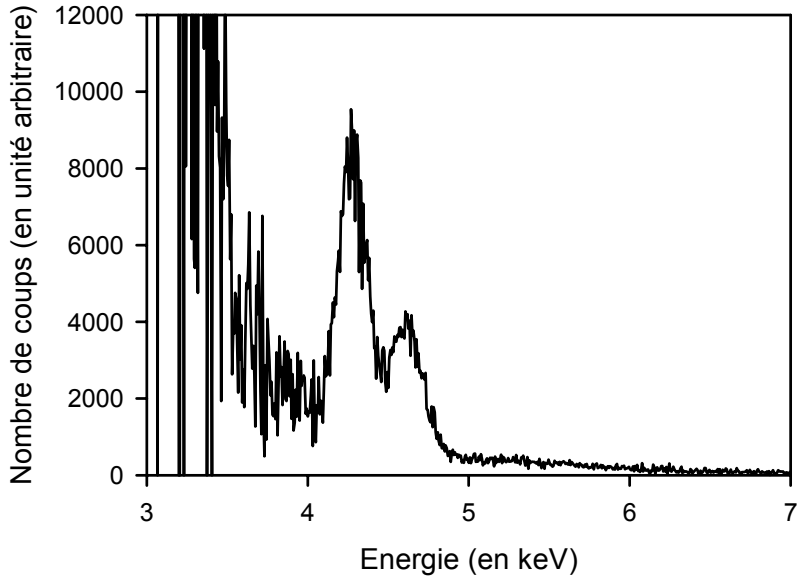


***Figure III-20 :** Spectre monophotonique sur le détecteur Si(Li) (1) corrigé de la transmission du filtre d'inox de 23,20 µm (2 feuilles de 11,60 µm). Agrégats de xénon (P_0 = 10,7 bars – E = 5 mJ – λ = 400 nm).*

Ainsi, à titre d'exemple, il est présenté sur la *Figure III-21* le spectre multiphotonique obtenu sur le détecteur Si(Li) (2) dans les mêmes conditions expérimentales que le spectre monophotonique de la *Figure III-18*.

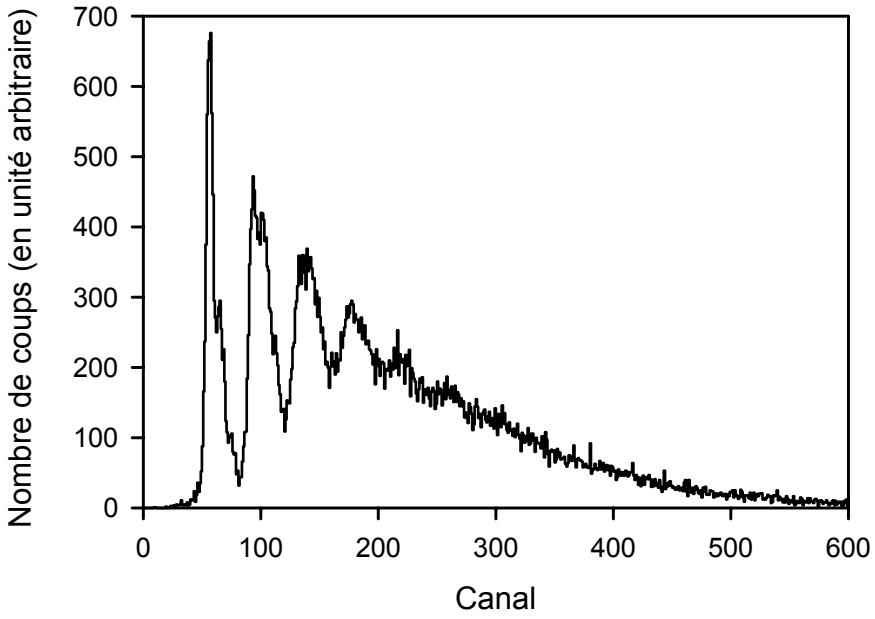


***Figure III-21 :** Spectre multiphotonique du détecteur Si(Li) (2) obtenu dans les mêmes conditions que la Figure III-18 – agrégats de xénon (P_0 = 10,7 bars – E = 5 mJ – λ = 400 nm).*

B-4] Estimation des incertitudes

D'après les formules [III-B.8] et [III-B.13], nous pouvons décomposer la discussion des incertitudes sur les détecteurs Si(Li) en deux points :

- l'incertitude associée à la transmission du détecteur : $T_{Si(Li)}$
- l'incertitude associée au nombre moyen de photons détectés par le Si(Li) : $\overline{n}_X$

B-4-a) Incertitudes sur la transmission

Reprenons la formule [II-D.1] donnant l'expression de la transmission :

$$T_{Si(Li)} = \varepsilon_{dét.} \times \left(\frac{\Omega}{4\pi} \right) \times T_{filtre} \qquad \textbf{[III-B.14]}$$

L'incertitude relative associée à la transmission dépend donc de l'incertitude relative sur :

- l'efficacité de détection : pour les deux détecteurs Si(Li), nous avons pris une incertitude relative de l'ordre de 2 % ;
- l'angle solide de détection : l'incertitude relative de l'angle solide est donnée dans le *Tableau II-15* et *II-16*, elle est typiquement de l'ordre de 5 % à 10 % ;
- la transmission des filtres : elle dépend uniquement de l'incertitude associée à la mesure de l'épaisseur des absorbants et elle est présentée dans le *Tableau III-4* en fonction de l'énergie des X émis ainsi que du type de filtre utilisé.

Feuille	Épaisseur mesurée (en μm)	Incertitude sur l'épaisseur (en %)	T(3,1 *keV*) (en %)	Incertitude sur T(3,1 *keV*)	T(4,4 *keV*) (en %)	Incertitude sur T(4,4 *keV*)
Inox 1	18,10	2,0	0,06	12 %	5,80	6 %
Inox 2	15,95	4,0	0,15	15 %	8,10	10 %
Inox 3	11,60	4,0	0,60	13 %	13,75	8 %
Alu 1	10,17	9,0	12,95	12 %	45,65	7 %
Alu 2	11,60	9,0	9,80	13 %	41,00	8 %

Tableau III-4 : Incertitudes relatives sur la transmission théorique des absorbants.

Au total, l'incertitude sur la transmission (efficacité + angle + filtre) permettant de déterminer le taux absolu de photons X émis dans 4π est donc typiquement comprise entre 15 % et 25 % et a été calculée explicitement pour chaque cas afin d'affecter une barre d'erreur pertinente aux points expérimentaux.

B-4-b) Incertitudes sur le nombre moyen de photons détectés

En premier lieu l'incertitude sur le pourcentage de signal physique est d'origine statistique soit d'après la formule [III-B.12] :

$$\frac{\Delta(\%\ Signal\ \ Physique)}{\%\ Signal\ \ Physique} = \frac{\Delta N_{Signal\ \ Physique}}{N_{Signal\ \ Physique}} + \frac{\Delta N_{1\ photon}^{tot}}{N_{1\ photon}^{tot}} = \frac{1}{\sqrt{N_{Signal\ \ Physique}}} + \frac{1}{\sqrt{N_{1\ photon}^{tot}}} \quad \textbf{[III-B.15]}$$

Cette incertitude relative sur le pourcentage de signal physique est de l'ordre de 5 à 10 %.

En second lieu, nous pouvons réécrire la formule [III-B.6] en utilisant la relation liée à l'étalonnage (n° de canal = a × Energie + b) dépendant de chaque détecteur et du gain sur le Si(Li) (2) :

$$\overline{n}_X = \frac{\overline{Bar_{Nh\nu}} - b}{\overline{Bar_{1h\nu}} - b} \cdot \frac{N_{coups}}{N_{tirs\ \ laser}} \quad \textbf{[III-B.16]}$$

avec $\overline{Bar_{Nh\nu}}$ le barycentre (en canal) de la distribution d'énergie moyenne $\overline{E}_{Nh\nu}$ et $\overline{Bar_{1h\nu}}$ le barycentre (en canal) de la distribution associée au spectre 1 photon $\overline{E}_{1h\nu}$. Mathématiquement, l'incertitude relative sur le nombre moyen de photons détectés $\overline{n}_X$ s'exprime par la relation suivante :

$$\frac{\Delta\overline{n}_X}{\overline{n}_X} = \frac{\Delta\overline{Bar_{Nh\nu}}}{\overline{Bar_{Nh\nu}} - b} + \frac{\Delta\overline{Bar_{1h\nu}}}{\overline{Bar_{1h\nu}} - b} + \Delta b \cdot \left(\frac{1}{\overline{Bar_{1h\nu}} - b} - \frac{1}{\overline{Bar_{Nh\nu}} - b} \right) + \frac{\Delta N_{coups}}{N_{coups}} + \frac{\Delta N_{tirs\ \ laser}}{N_{tirs\ \ laser}} \quad \textbf{[III-B.17]}$$

Posons : $\frac{\Delta\overline{n}_X}{\overline{n}_X} = f\left(\overline{Bar_{Nh\nu}}\right) + g\left(N_{coups}, N_{tirs\ \ laser}\right)$ avec :

$$f\left(\overline{Bar_{Nh\nu}}\right) = \frac{\Delta\overline{Bar_{Nh\nu}}}{\overline{Bar_{Nh\nu}} - b} + \frac{\Delta\overline{Bar_{1h\nu}}}{\overline{Bar_{1h\nu}} - b} + \Delta b \cdot \left(\frac{1}{\overline{Bar_{1h\nu}} - b} - \frac{1}{\overline{Bar_{Nh\nu}} - b} \right)$$

et $g\left(N_{coups}, N_{tirs\ \ laser}\right) = \frac{\Delta N_{coups}}{N_{coups}} + \frac{\Delta N_{tirs\ \ laser}}{N_{tirs\ \ laser}}$

L'erreur sur $\overline{n}_X$ a donc deux origines :

- la statistique ;
- l'erreur sur l'étalonnage du détecteur (*via* le paramètre *b* appelé "offset" du détecteur).

Examinons de plus près chacun des termes de la formule [III-B.17] :

- pour le terme $\frac{\Delta\overline{Bar_{Nh\nu}}}{\overline{Bar_{Nh\nu}} - b}$: l'erreur du barycentre de la distribution multiphotonique $\Delta\overline{Bar_{Nh\nu}}$ est de l'ordre de quelques canaux et est d'origine statistique (*cf.* Annexe F);
- pour le terme $\frac{\Delta\overline{Bar_{1h\nu}}}{\overline{Bar_{1h\nu}} - b}$: l'erreur du barycentre du spectre 1 photon $\Delta\overline{Bar_{1h\nu}}$ est également de l'ordre de quelques canaux et elle est liée aux incertitudes sur l'étalonnage ;
- pour le terme $\Delta b \cdot \left(\frac{1}{\overline{Bar_{1h\nu}} - b} - \frac{1}{\overline{Bar_{Nh\nu}} - b} \right)$: il s'agit d'une erreur issue de l'étalonnage obtenu par régression linéaire (*cf.* Annexe D) ;
- pour le terme $g\left(N_{coups}, N_{tirs\ laser}\right) = \frac{\Delta N_{coups}}{N_{coups}} + \frac{\Delta N_{tirs\ laser}}{N_{tirs\ laser}}$: il s'agit d'une erreur statistique et elle est habituellement prise en $\sqrt{N}$; notons que les spectres présentent généralement un nombre de coups supérieur à 1000 ce qui correspond à une erreur inférieure à 6 %.

Comme nous le remarquons à partir de la formule [III-B.17], l'erreur relative du nombre moyen de photons X détectés dépend de $\overline{Bar_{Nh\nu}}$ (dans la fonction $f\left(\overline{Bar_{Nh\nu}}\right)$, les autres termes sont fixes pour un gain donné). Nous présentons, à titre d'exemple et afin de quantifier cette erreur, l'évolution de cette quantité $f\left(\overline{Bar_{Nh\nu}}\right)$ en fonction de $\overline{Bar_{Nh\nu}}$ pour le détecteur Si(Li) (2) à trois gains différents (*Figure III-22*) et pour le détecteur Si(Li) (1) (*Figure III-23*) lors de l'une de nos campagnes d'expériences (2001). Comme nous le voyons sur la *Figure III-22*, la tendance générale observée est que plus le gain est faible plus l'erreur est importante, toutes choses étant égales par ailleurs.

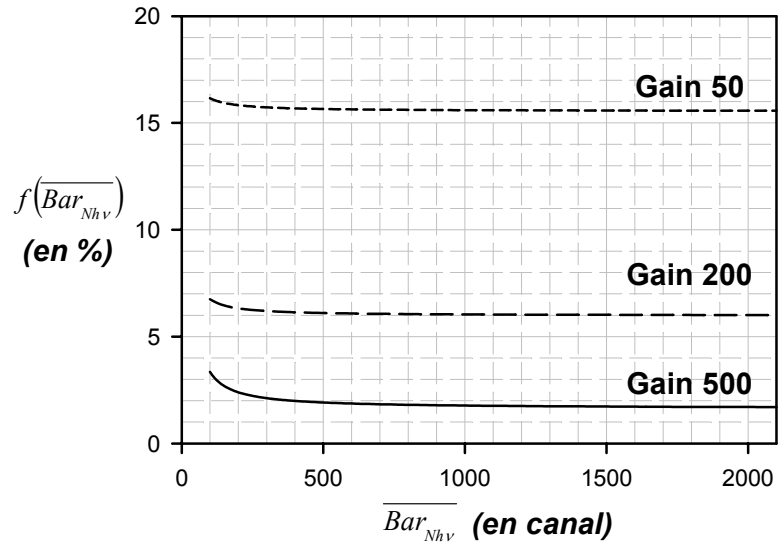


Figure III-22 : ***Incertitude relative sur le taux moyen de photons X détectés*** $f\left(\overline{Bar_{Nh\nu}}\right)$ ***en fonction du barycentre de l'empilement sur le détecteur Si(Li) (2).***

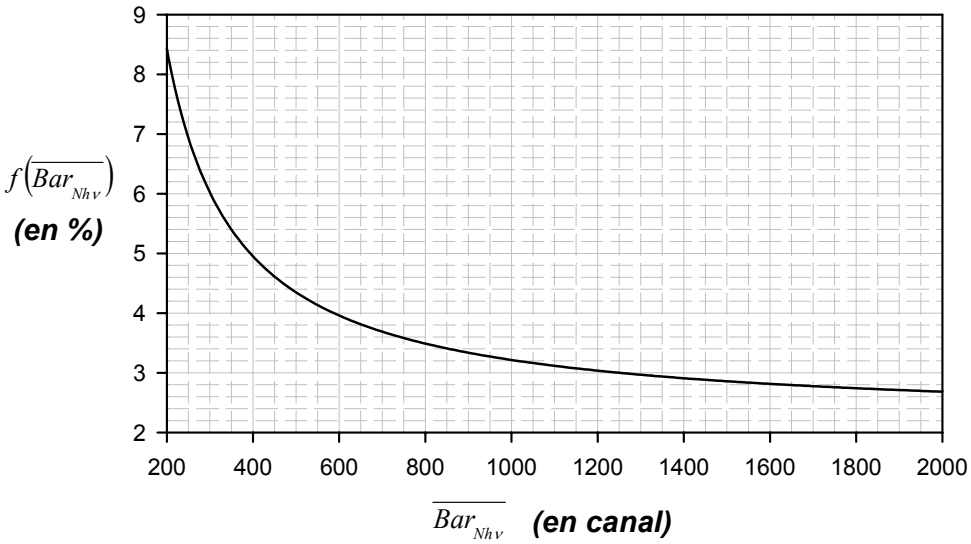


Figure III-23 : ***Incertitude relative sur le taux moyen de photons X détectés*** $f\left(\overline{Bar_{Nh\nu}}\right)$ ***en fonction du barycentre de l'empilement sur le détecteur Si(Li) (1).***

En conclusion, **l'incertitude relative totale** sur le taux absolu de photons X émis dans 4π par tir laser est finalement **de l'ordre de 25 à 45 %** sur les détecteurs Si(Li) et l'erreur attribuée à chaque point a été calculée systématiquement en fonction des différentes contributions explicitées ci – dessus.

C] Spectromètre cristallin

C-1] Rôle du spectromètre cristallin

Le rôle du spectromètre cristallin est double :

- **faire un zoom** des pics observés avec les détecteurs Si(Li) et ainsi pouvoir **identifier la distribution en état de charge** des ions dont est issu le rayonnement X ;
- **calculer**, comme avec les détecteurs Si(Li), **le taux absolu** de photons X émis dans 4π stéradians et par tir laser grâce aux calibrations absolues que nous avons présentées dans le Chapitre II.

A titre d'exemple, les spectres X "bruts" obtenus à l'aide du spectromètre cristallin et correspondant aux agrégats d'argon et de xénon sont présentés respectivement sur la *Figure III-24* et la *Figure III-25*. Dans la suite de ce paragraphe, nous allons illustrer l'analyse effectuée avec ces deux mêmes spectres.

- pour l'argon : la pose *1s2pnl* obtenue pour P_0 = 20 *bars*, E = 17 *mJ*, λ = 800 *nm*, τ = 60 *fs* et un filtre d'inox devant le spectromètre cristallin (épaisseur = 11,60 μm) ;
- pour le xénon : les trois poses reconstituant le spectre total obtenu pour P_0 = 4 *bars*, E = 28 *mJ*, λ = 400 *nm*, τ = 130 *fs* et un filtre d'inox devant le spectromètre cristallin (épaisseur = 15,95 μm).

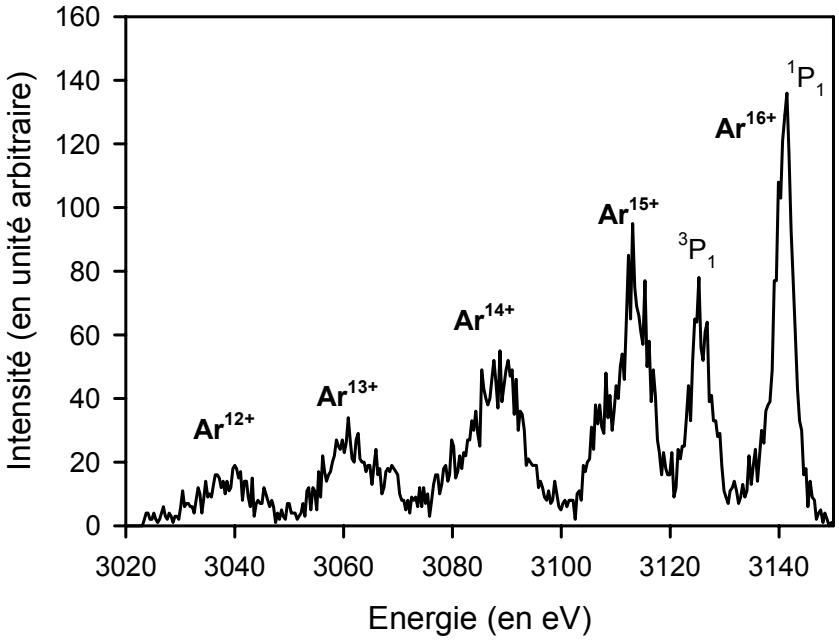


***Figure III-24 :** Exemple de spectre brut haute résolution obtenu lors de l'irradiation d'agrégats d'argon : transitions 1s2pnl → 1s²nl de l'Ar¹²⁺ à l'Ar¹⁶⁺ ($N_{tirs\ laser}$ = 20 000).*

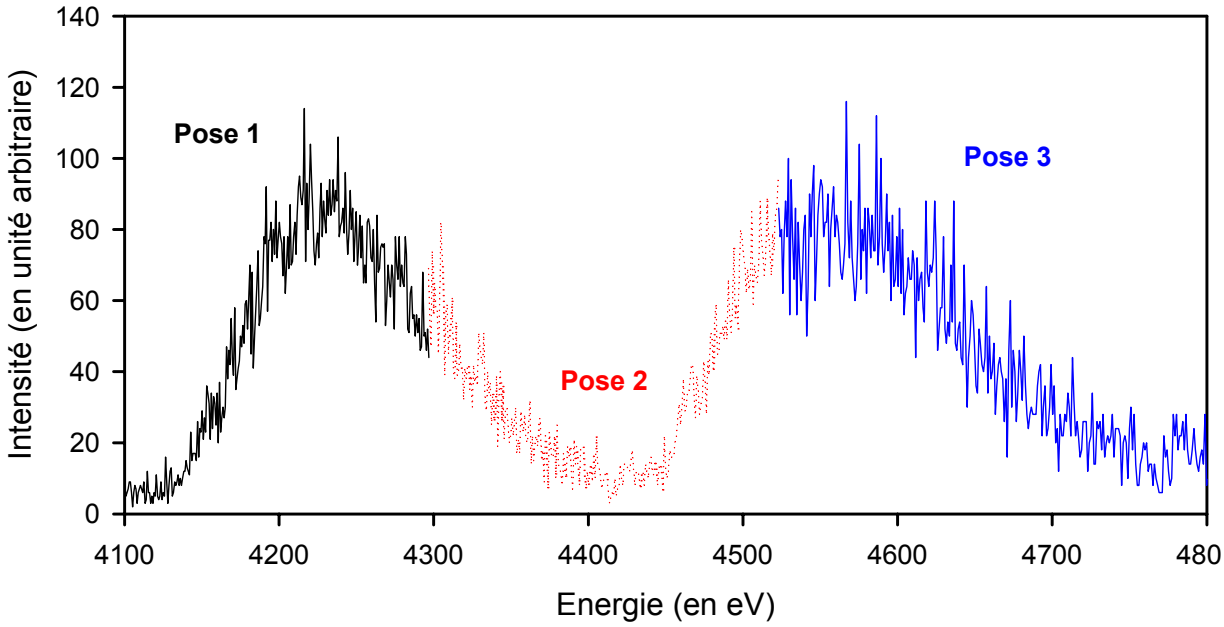


***Figure III-25 :** Exemple de spectre brut haute résolution obtenu lors de l'irradiation d'agrégats de xénon. Les trois poses nécessaires pour constituer l'ensemble du spectre sont indiquées et correspondent à trois angles de Bragg différents (cf. Chapitre II) - ($N_{tirs\ laser}$ ~ 3×12 000).*

C-2] Traitement des signaux du détecteur à localisation

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent (*cf.* §II-D-3), trois signaux proviennent du détecteur à localisation :

- le signal d'anode (voie énergie) ;
- les signaux des charges aux extrémités de la cathode (Q_1 et Q_2) permettant de reconstituer le spectre de localisation *via* la relation suivante :

$$LOC = \frac{Q_1}{Q_1 + Q_2} \qquad \textbf{[III-C.1]}$$

Il a également été vu dans le chapitre précédent que nous avons utilisé une voie logique (ou voie temps) afin de retenir uniquement que les signaux provenant des différents détecteurs qui arrivent en **synchronisation temporelle** avec l'arrivée d'une impulsion laser. Cette fenêtre temporelle réduit grandement le fond **sur tous les détecteurs** comme illustré *Figure III-26* pour un spectre LOC du spectromètre cristallin ; le spectre avec la fenêtre temporelle est appelé spectre LOCT. Sur le spectre présenté sur cette figure, le fond de Bremsstrahlung représente 36 % du spectre LOC.

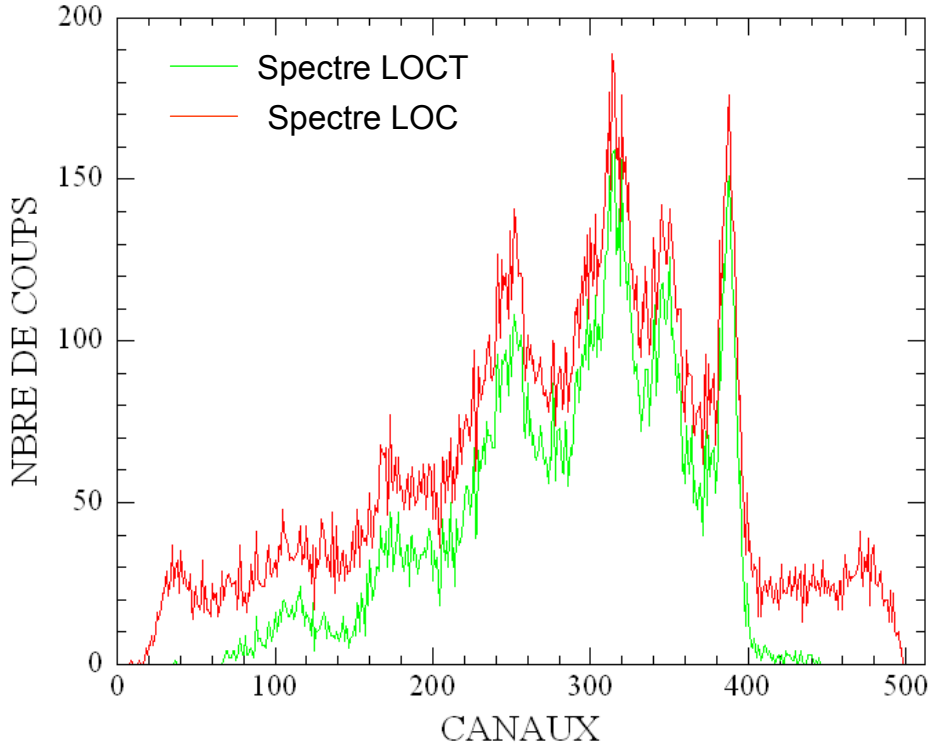


***Figure III-26 :** Spectres de LOC et de LOCT (i.e. avec fenêtre temporelle) issus de l'irradiation d'agrégats d'argon.*

Lorsque que le flux de photons X est trop important sur le spectromètre cristallin, il peut se produire, tout comme pour les détecteurs Si(Li), un empilement des photons sur la voie énergie (Anode) du détecteur à localisation. Cet empilement se traduit par la présence de pics multiphotoniques sur cette voie énergie du détecteur (*Figure III-27*) qui est obtenu simultanément aux spectres de localisation (LOC / LOCT).

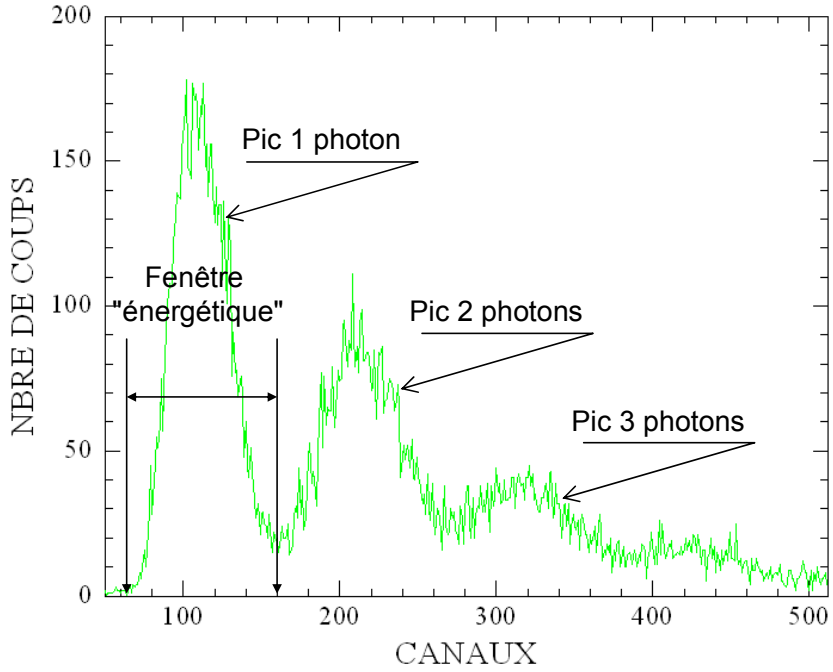


***Figure III-27 :** Spectre d'anode correspondant au spectre de LOC présenté sur la Figure III-26.*

Afin d'éliminer la contribution des pics 2 photons, 3 photons …, une fenêtre "énergétique" est sélectionnée sur le signal d'anode. Ceci permet finalement, après analyse par le Micro – Processeur de traitement des données (MIPRE), de ne retenir pour le spectre X que le pic 1 photon comme nous l'illustrons sur la *Figure III-28* ; le spectre avec la fenêtre temporelle et énergétique est appelé spectre LOCF. Sur ce spectre, obtenu dans des conditions très multiphotoniques sur l'anode, les pics d'empilement représentent 73 % du spectre LOCT.

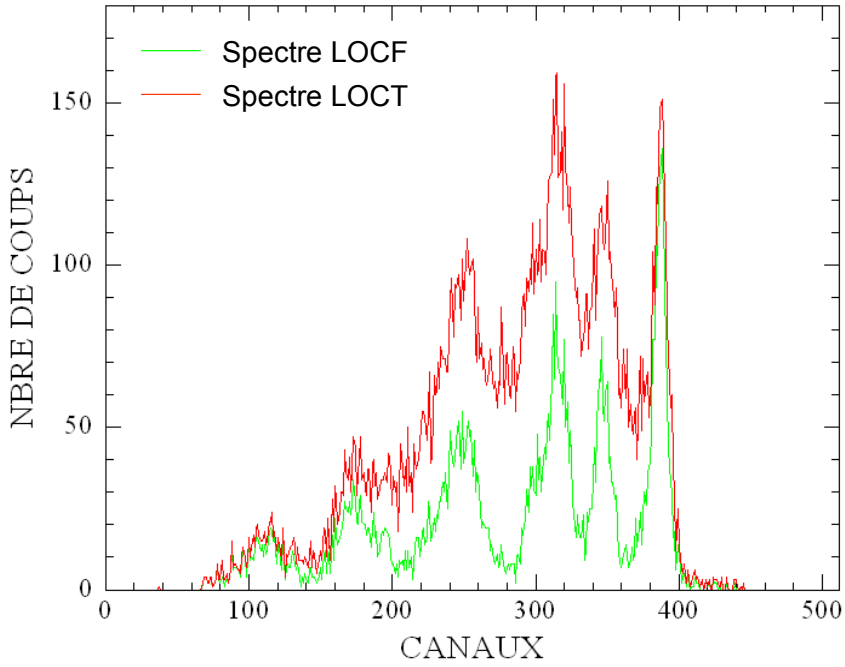


***Figure III-28 :** Spectres de LOCT et LOCF (i.e. avec, en plus de la fenêtre temporelle, une fenêtre énergétique) pour un spectre X issus d'agrégats d'argon (le spectre d'anode correspondant est celui de la Figure III-27).*

Au final, le spectre physique (LOCF) est obtenu en ajustant systématiquement la fenêtre temporelle (éliminant le bruit de fond) et la fenêtre énergétique (éliminant l'empilement). Nous allons, dans la suite de cette partie concernant le spectromètre cristallin, exposer la méthode d'analyse de ce spectre X que nous désignerons comme le spectre "brut".

C-3] Analyse des spectres X du spectromètre cristallin

Afin de pouvoir exploiter en absolu les spectres "bruts", il est nécessaire de tenir compte de la transmission du spectromètre cristallin ainsi que de l'empilement sur le signal d'anode (voie énergie) comme il est explicité dans ce paragraphe.

C-3-a) Transmission

Les différents termes intervenant dans la transmission (réflectivité – efficacité – transmission des filtres) ont été pris en compte tant pour les poses d'argon que pour les poses de xénon.

1°) Réflectivité

En toute rigueur, on doit prendre en compte la variation de réflectivité du cristal (*cf. Figure II-49*) sur la plage en énergie observée pour chaque angle de Bragg. Nous donnons sur la *Figure III-29* l'évolution de cet effet correspondant plus particulièrement aux poses de l'argon (*1s2p* et *1s3p*) et du xénon (les trois poses reconstituant le spectre).

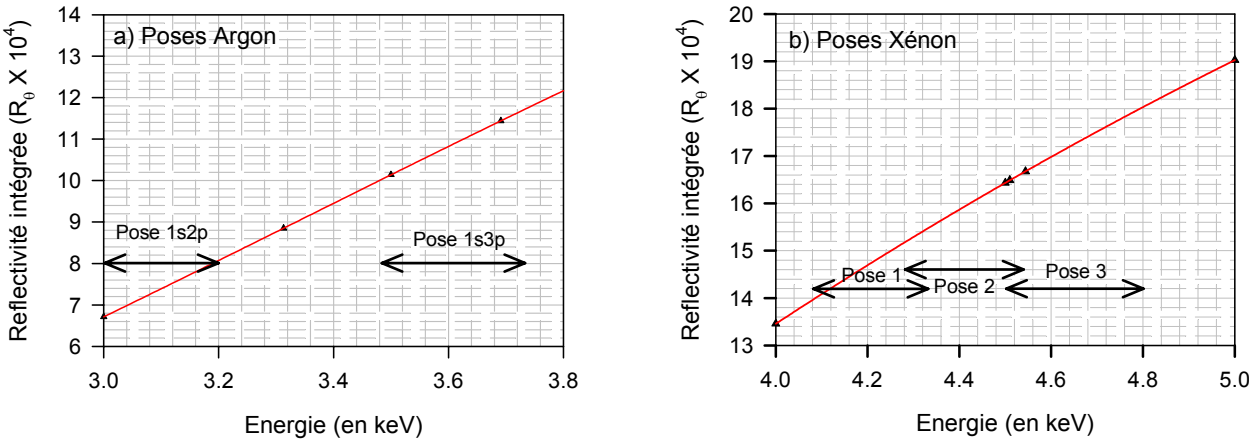


Figure III-29 : Zoom de la courbe de réflectivité pour a) les poses argon et b) les poses xénon.

Dans le cas de l'argon, la réflectivité du cristal est modifiée de l'ordre de 20 % entre les deux extrémités de la plage énergétique et dans le cas du xénon, cette réflectivité est modifiée de l'ordre de 30 %.

2°) Efficacité

L'efficacité du détecteur à localisation doit aussi être prise en compte pour chaque spectre LOCF (*cf. figure II-46*) et nous donnons sur la *Figure III-30* les parties correspondant plus particulièrement aux poses de l'argon (*1s2p* et *1s3p*) et du xénon.

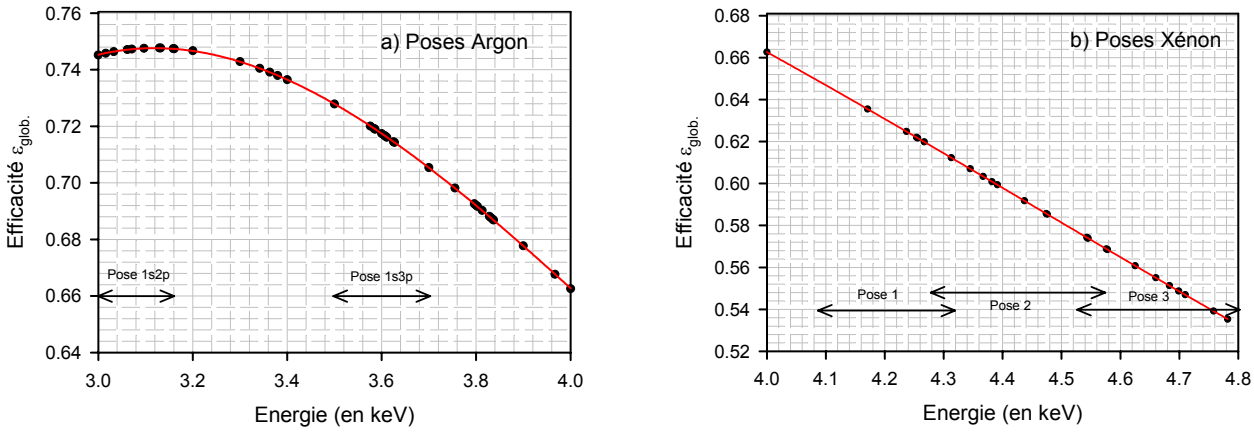


***Figure III-30 :** Zoom de la courbe d'efficacité du détecteur à localisation pour a) les poses argon et b) les poses xénon.*

L'efficacité du détecteur à localisation est constante pour la pose *1s2p* de l'argon mais varie beaucoup plus dans le cas du xénon où trois poses sont connectées (de l'ordre de ± 11 %).

3°) Transmission des filtres

Enfin, chaque spectre brut doit être corrigé de la transmission des filtres placés, éventuellement, devant le spectromètre cristallin. Comme nous l'avons vu précédemment plusieurs filtres ont été placés devant les détecteurs et nous présentons sur la *Figure III-31* la transmission du filtre d'inox de 11,60 *µm* pour la pose *1s2p* argon et sur la *Figure III-32* la transmission du filtre d'inox de 15,95 *µm* pour les poses xénon dont le traitement est explicité dans ce chapitre.

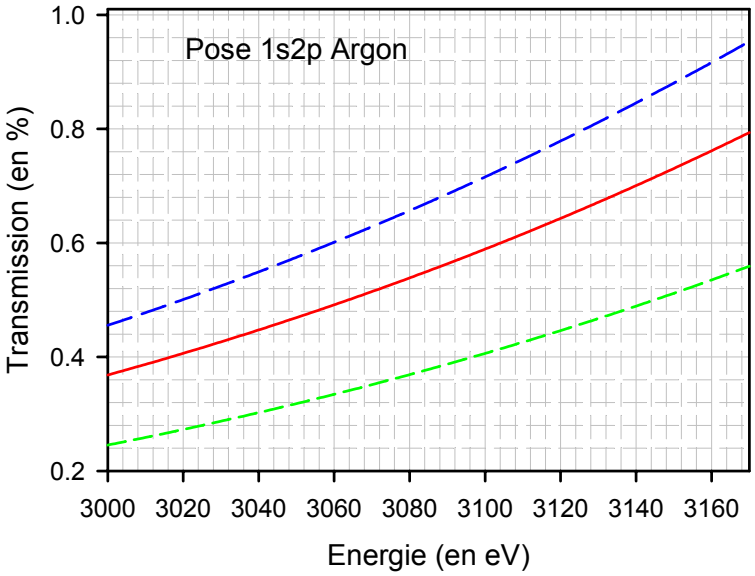


***Figure III-31 :** Zoom de la transmission du filtre d'inox de 11,60 µm placé devant le spectromètre cristallin pour les poses argon : la courbe en traits pleins correspond à la transmission pour une épaisseur de 11,60 µm d'inox et les courbes en traits pointillés correspondent aux transmissions à 11,60 ± 0,44 µm.*

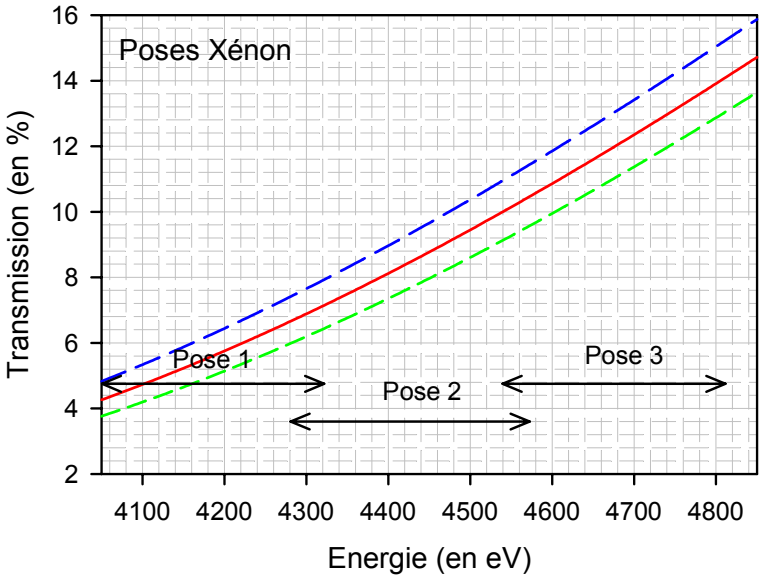


***Figure III-32 :** Zoom de la transmission du filtre d'inox de 15,95 µm placé devant le spectromètre cristallin pour les poses xénon : la courbe en traits pleins correspond à la transmission pour une épaisseur de 15,95 µm d'inox et les courbes en traits pointillés correspondent aux transmissions à 15,95 ±0,63 µm.*

C-3-b) Correction de la multiplicité sur le signal d'anode

Le spectre LOCF ne tient compte, comme il a été vu précédemment, que du pic 1 photon sur le signal d'anode (voie énergétique), les autres pics d'empilement étant éliminés. Afin de déterminer le taux absolu de photons X sur ce détecteur, l'intégrale des spectres "bruts" doit donc être corrigée d'un facteur de multiplicité sur l'anode. Ce coefficient se détermine par un traitement identique à celui que nous vu pour les détecteurs Si(Li) (Statistique de Poisson) et se calcule de la façon suivante :

$$\beta = \frac{N_{tot.\ h\nu\ dét.}}{N_{1\ h\nu}} = \frac{N_{1\ h\nu} + 2 \cdot N_{2\ h\nu} + 3 \cdot N_{3\ h\nu} + \ldots}{N_{1\ h\nu}}$$

$$\beta = \frac{N_{tirs\ laser}}{N_{1\ h\nu}} \times \sum_{n=1}^{\infty} n \cdot P(n) = \frac{N_{tirs\ laser}}{N_{1\ h\nu}} \times \overline{n}_X \qquad \textit{[III-C.2]}$$

Sachant que $P(n=1) = \dfrac{N_{1\ h\nu}}{N_{tirs\ laser}}$ alors $\beta = \dfrac{1}{P(n=1)} \times \overline{n}_X$

En utilisant la statistique de Poisson : $P(n=1) = \overline{n}_X \cdot \exp\left(-\overline{n}_X\right)$;

Nous avons finalement : $\beta = \exp\left(\overline{n}_X\right)$ ***[III-C.3]***

En utilisant l'expression [III-A.7a], le coefficient de multiplicité sur l'anode s'écrit :

$$\beta = \exp\left(\frac{2 \cdot N_{2\ h\nu}}{N_{1\ h\nu}}\right) \qquad \textit{[III-C.4]}$$

A titre d'exemple, nous explicitons dans le *Tableau III-5* le calcul de ce coefficient pour le spectre d'anode de la *Figure III-27* correspondant au spectre "brut" présenté sur la *Figure III-28*.

		β
$N_{1\,h\nu}$	7942 coups	4,18
$N_{2\,h\nu}$	5677 coups	

***Tableau III-5 :** Exemple de calcul du coefficient de multiplicité β sur l'anode (Figure III-27) du spectre LOCF de la Figure III-28.*

Ce travail systématique a été réalisé pour tous les spectres X obtenus à l'aide du spectromètre cristallin tant pour les agrégats d'argon que pour les agrégats de xénon.

C-3-c) Spectres bruts et spectres corrigés

Nous allons maintenant expliciter l'influence des différents termes qui ont été présentées précédemment (réflectivité / efficacité / transmission des filtres) en commentant les spectres X haute résolution.

1°) Spectre d'argon : pose *1s2p*

La *Figure III-33*, obtenue lors de l'irradiation d'agrégats d'argon, présente le spectre "brut" et le spectre "corrigé" de la réflectivité du cristal, de l'efficacité du détecteur à localisation et de la transmission d'un filtre d'inox de 11,60 μm placé devant le spectromètre cristallin ; pour plus de visibilité ces deux spectres ont été normalisés de façon à avoir une intégrale totale identique. Nous voyons ainsi sur cette figure que l'influence des différents paramètres décrit précédemment est faible pour les spectres haute résolution obtenus pour des agrégats d'argon : l'allure générale du spectre est assez semblable dans les deux cas. Une analyse plus précise concernant **l'énergie moyenne** de la pose *1s2p* pour le spectre brut et le spectre corrigé montre un décalage de l'ordre de 6 *eV* (*cf. Tableau III-6*).

	Spectre "brut"	Spectre "corrigé"
Énergie moyenne	3102,6 *eV*	3097,0 *eV*

***Tableau III-6 :** Comparaison de l'énergie moyenne de la pose 1s2p obtenue lors de l'irradiation d'agrégats d'argon avec le spectre "brut" et le spectre "corrigé" de la Figure III-33.*

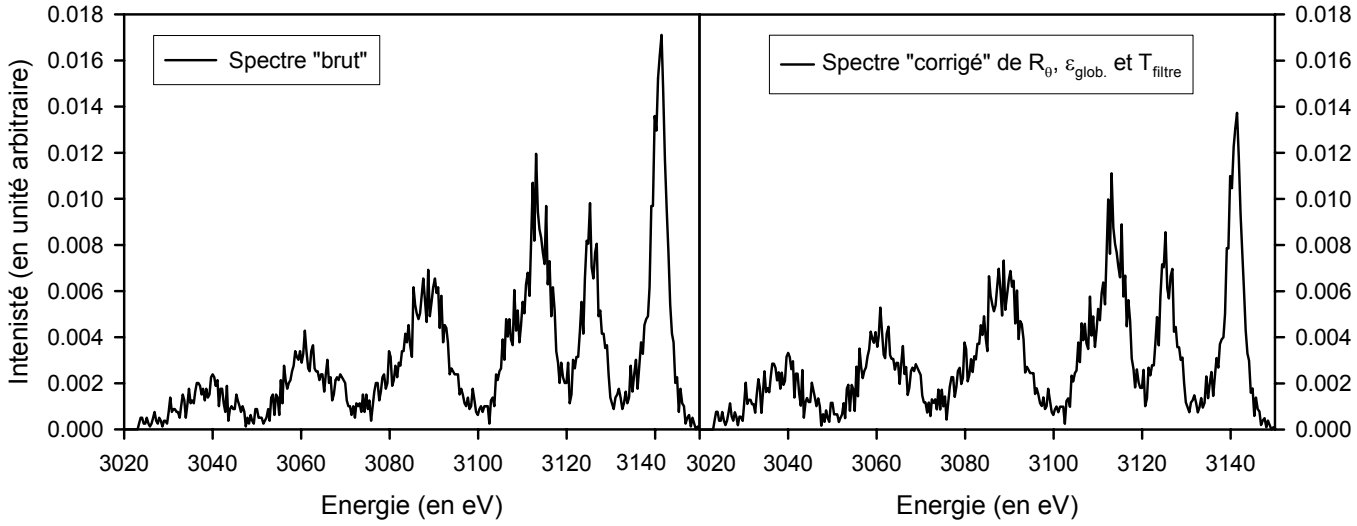


***Figure III-33 :** Spectre "brut" et spectre "corrigé" issus de l'irradiation d'agrégats d'argon.*

2°) Spectre de xénon

La *Figure III-34*, obtenue lors de l'irradiation d'agrégats de xénon, présente le spectre "brut" et le spectre "corrigé" de la réflectivité du cristal, de l'efficacité du détecteur à localisation et de la transmission d'un filtre d'inox de 15,95 μm placé devant le spectromètre cristallin ; ces deux spectres ont également été normalisés à une intégrale totale identique. Nous voyons ainsi sur cette figure que l'influence des différents paramètres décrits précédemment est plus importante que pour les agrégats d'argon tout simplement car la plage en énergie obtenue grâce aux trois poses est plus grande (700 *eV* contre 150 *eV*). En particulier, la contribution au spectre total de la distribution "basse" énergie (vers 4250 *eV*) devient plus importante que celle de la distribution "haute énergie (vers 4550 *eV*). Une analyse plus précise concernant **l'énergie moyenne** des trois poses pour le spectre brut et le spectre corrigé montre un décalage de l'ordre de 53 *eV* (*cf. Tableau III-7*).

	Spectre "brut"	Spectre "corrigé"
Énergie moyenne	4425,4 *eV*	4372,2 *eV*

***Tableau III-7 :** Comparaison de l'énergie moyenne du spectre "brut" et du spectre "corrigé" de la Figure III-34 obtenus lors de l'irradiation d'agrégats de xénon.*

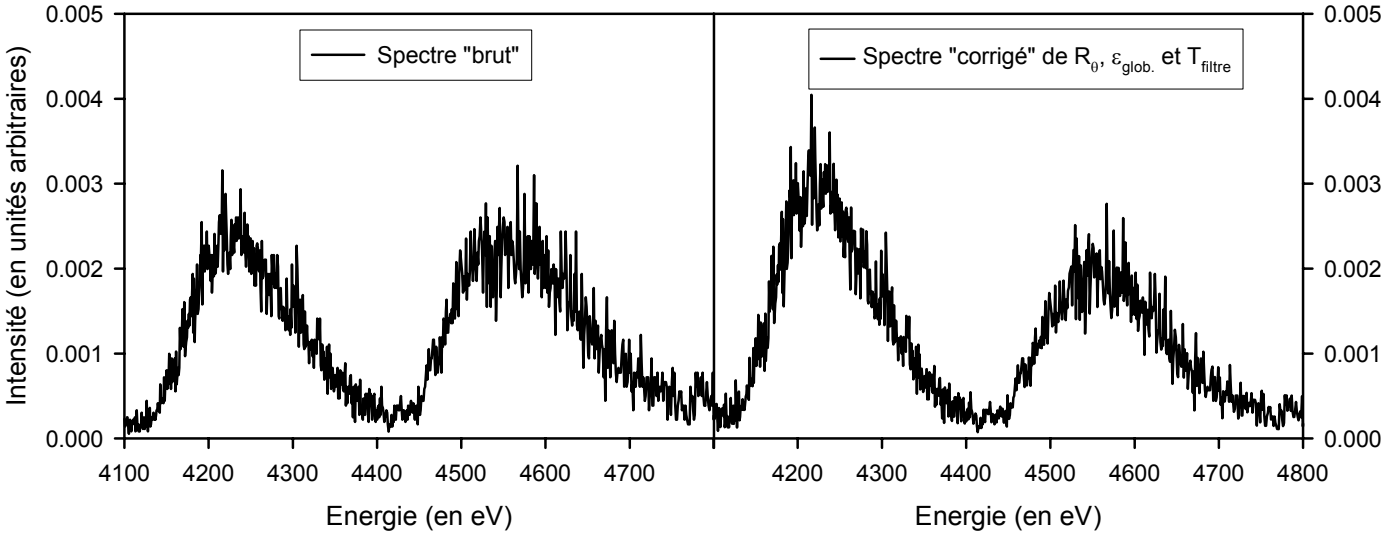


***Figure III-34 :** Spectre "brut" et spectre "corrigé" issus de l'irradiation d'agrégats de xénon (ces deux spectres sont normalisés à la même intégrale totale pour plus de visibilité).*

C-4] Calcul du taux absolu de photons X

Finalement, le taux absolu de photons X émis dans 4π et par tir laser se déduit à partir de l'intégrale des spectres "corrigés" $\left(N_{spectre\ corrigé}^{coups} \right)$ par :

$$N_{absolu} = \frac{\beta}{N_{tirs\ laser}} \times \frac{4\pi \cdot 2L}{h_{dét.}} \times N_{spectre\ corrigé}^{coups} \qquad \textbf{[III-C.5]}$$

avec :

- β : la multiplicité sur l'anode (*cf.* §III-C-3-b) ;
- $N_{tirs\ laser}$: le nombre de tirs laser lors de l'acquisition du spectre ;
- $\frac{h_{dét.}}{4\pi \cdot 2L}$: l'angle solide de détection du spectromètre cristallin ;
- $N_{spectre\ corrigé}^{coups}$: l'intégrale du spectre corrigé donnée par l'expression :

$$N_{spectre\ corrigé}^{coups} = \sum_i \frac{N_{specte\ brut}^{coups}(i)}{\varepsilon_{glob.}(i) \cdot R_\theta(i) \cdot T(i)} \qquad \textbf{[III-C.6]}$$

avec :

- $N_{specte\ brut}^{coups}(i)$: le nombre de coups sur le spectre "brut" au canal *i* (*i.e.* à l'énergie E_i) ;
- $\varepsilon_{glob.}(i)$: l'efficacité du détecteur à localisation au canal *i* (*i.e.* à l'énergie E_i) ;

- $R_\theta(i)$: la réflectivité du cristal au canal *i* (*i.e.* à l'énergie E_i) ;
- $T(i)$: la transmission, éventuelle, des filtres placés devant le spectromètre cristallin au canal *i* (*i.e.* à l'énergie E_i).

Précisons que pour le spectromètre cristallin, il n'est pas nécessaire de corriger ce taux par le pourcentage de signal physique car, comme il a été montré dans le paragraphe C-2, les spectres X issus du spectromètre cristallin ne comptabilisent que le signal physique (*i.e.* pas de fond de Bremsstrahlung). Nous présentons, à titre d'exemple, sur la *Figure III-35* et la *Figure III-36*, les spectres X **en absolu** dont nous avons explicité le traitement dans ce paragraphe respectivement pour les agrégats d'argon et de xénon.

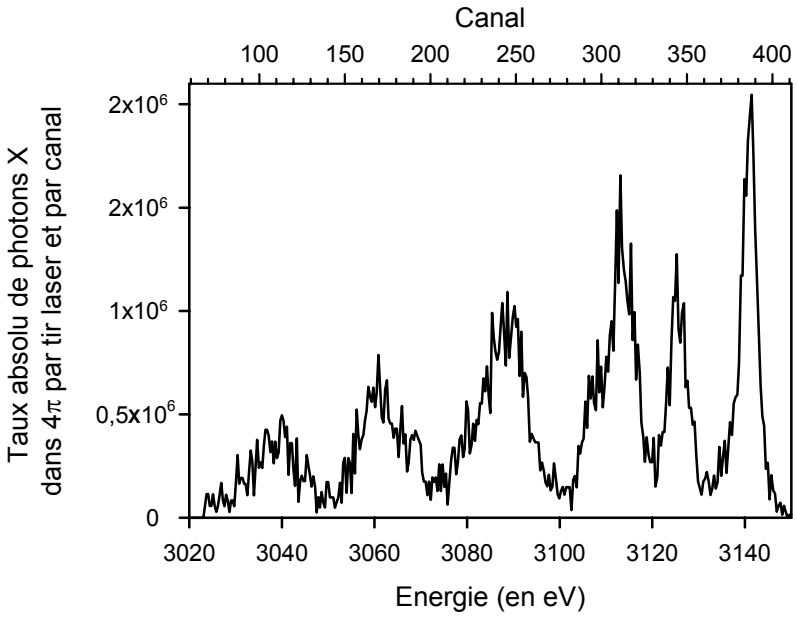


Figure III-35 :
Spectre X en absolu issu de l'irradiation d'agrégats d'argon.

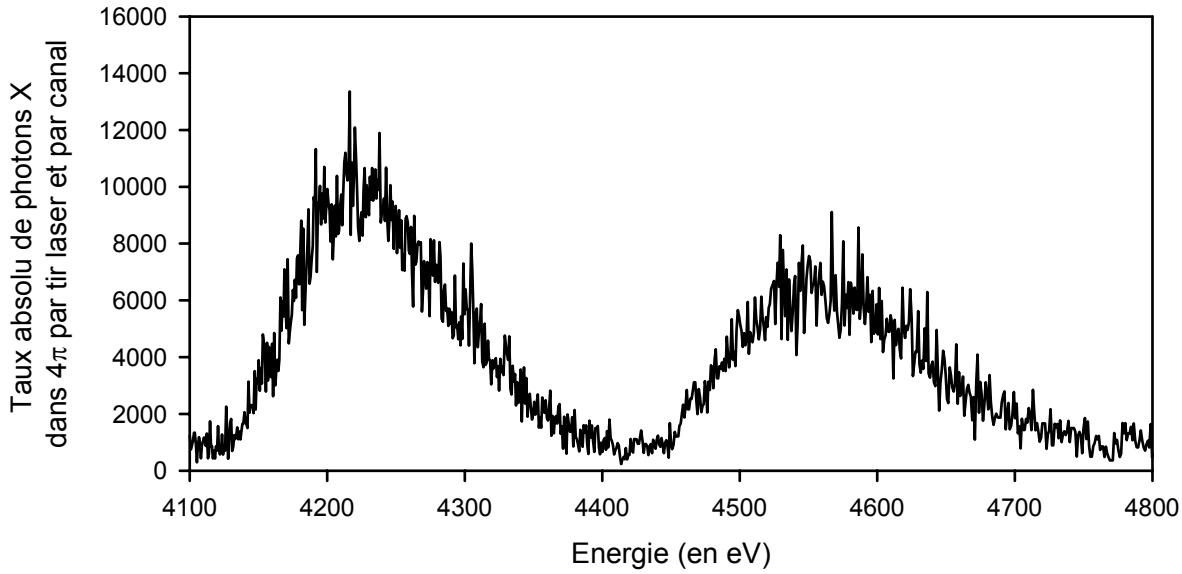


Figure III-36 : ***Spectre X en absolu issu de l'irradiation d'agrégats de xénon.***

C-5] Estimation des incertitudes

Les incertitudes ont été déterminées d'une part sur l'énergie moyenne et d'autre part sur le taux de photons X.

C-5-a) Incertitudes sur l'énergie moyenne

L'incertitude totale sur l'énergie moyenne d'une pose du spectromètre cristallin a trois origines :

- l'étalonnage : la position des raies ayant servies à l'étalonnage a été déterminée à ± 2 canaux ce qui correspond à une erreur sur l'énergie moyenne de l'ordre de 0,5 eV ;
- la statistique : une bonne statistique sur le spectre conduit à une détermination plus précise de l'énergie moyenne (*cf.* Annexe F pour le calcul de cette erreur) ;
- la transmission des filtres placés devant le spectromètre cristallin : l'incertitude sur l'épaisseur de l'absorbant induit une modification du barycentre d'une pose du spectromètre cristallin.

Nous présentons dans le *Tableau III-8* l'importance de chacun de ces termes pour les spectres X d'argon et de xénon dont nous avons explicité le traitement dans ce chapitre.

Agrégats	Énergie moyenne (en eV)	Erreur sur l'étalonnage (en eV)	Erreur liée à la statistique (en eV)	Erreur liée à la transmission (en eV)	Erreur totale (en eV)
Argon	3097,0	0,5	0,9	0,6	2 eV
Xénon	4372,2	0,5	1,5	1,2	3,2 eV

***Tableau III-8 :** Exemple d'incertitudes sur l'énergie moyenne des spectres X issus des agrégats d'argon (Figure III-35) et de xénon (Figure III-36).*

L'erreur liée à la statistique a été systématiquement calculée pour tous les spectres X haute résolution obtenus tandis que l'erreur sur la transmission a été déterminée uniquement lorsqu'un filtre était présent devant le spectromètre cristallin.

C-5-b) Incertitudes sur le taux absolu de photons X

D'après les formules [III-C.5] et [III-C.6], l'incertitude totale sur le taux absolu de photons X calculée à partir des spectres du spectromètre cristallin a plusieurs origines :

- l'erreur sur l'efficacité de détection $\varepsilon_{glob.}$ et la réflectivité du cristal R_θ : nous avons choisi de prendre une incertitude relative sur ces paramètres de 5 % (soit au total une incertitude relative de 10 %) ;

- l'erreur sur la transmission des absorbants qui est donnée dans le *Tableau III-4*; elle est comprise typiquement entre 10 % et 15 % pour les poses argon et 5 % à 10 % pour les poses xénon ;
- l'erreur sur l'angle solide de détection du spectromètre cristallin : cette incertitude relative est inférieure à 1 % ;
- l'erreur liée à la statistique : tout comme pour les détecteurs Si(Li), celle – ci est prise en $\sqrt{N_{spectre\ brut}^{coups}}$ et elle représente moins de 5 % pour un nombre de coups supérieur à 1000 sur le spectre brut.
- l'erreur sur la multiplicité β : cette erreur relative s'écrie sous la forme suivante :

$$\frac{\Delta\beta}{\beta} = 2 \cdot \frac{\Delta N_{2\,photons}}{N_{1\,photon}} + 2 \cdot \frac{N_{2\,photons}}{N_{1\,photon}^{2}} \cdot \Delta N_{1\,photon} \qquad \textbf{\textit{[III-C.7a]}}$$

$$\frac{\Delta\beta}{\beta} = 2 \cdot \frac{\sqrt{N_{2\,photons}}}{N_{1\,photon}} + 2 \cdot \frac{N_{2\,photons}}{\left(N_{1\,photon}\right)^{3/2}} \qquad \textbf{\textit{[III-C.7b]}}$$

Dans l'exemple présenté dans le *Tableau III-5*, cette incertitude relative est de 3,5 %.

Au total, l'incertitude relative sur le taux absolu de photons X obtenu à l'aide du spectromètre cristallin est comprise généralement entre **20 %** et **40 %** et a été calculée systématiquement pour chacun des spectres obtenus expérimentalement.

D] Taux absolu de photons X

Précisons pour finir ce chapitre, que les trois détecteurs (les deux Si(Li) + le spectromètre cristallin) enregistrent simultanément les spectres X mais permettent de calculer **d'une manière indépendante** un taux absolu de photons X comme cela est illustré *Figure III-37* obtenue lors de l'irradiation d'agrégats d'argon par une impulsion laser d'énergie variable. La valeur moyenne du taux absolu de photons X émis dans 4π et par tir laser peut alors être déterminée à partir de la moyenne pondérée de ces différentes valeurs :

$$< \bar{n}_X >= \frac{\sum_{i=1}^{3} \frac{\bar{n}_X^{dét(i)}}{\sigma_{dét(i)}^2}}{\sum_{i=1}^{3} \frac{1}{\sigma_{dét(i)}^2}} \qquad \textit{[III-D.1]}$$

avec $\sigma_{dét(i)}$ l'incertitude relative pour le détecteur i et $\bar{n}_X^{dét(i)}$ le taux absolu de photons X calculé à partir du détecteur i. Ainsi, malgré une incertitude individuelle sur les trois détecteurs comprise entre globalement 20 % et 45 %, l'incertitude relative sur le taux absolu de photons X est beaucoup plus faible et peut se calculer à l'aide de la relation suivante :

$$\sigma_{<\bar{n}_X>} = \frac{1}{\sqrt{\sum_{i=1}^{3} \frac{1}{\sigma_{dét(i)}^2}}} \qquad \textit{[III-D.2]}$$

En particulier, dans le cas d'une incertitude relative **maximale** sur les trois détecteurs de 40 %, l'incertitude relative **maximale** sur la moyenne pondérée n'est que de 23 %.

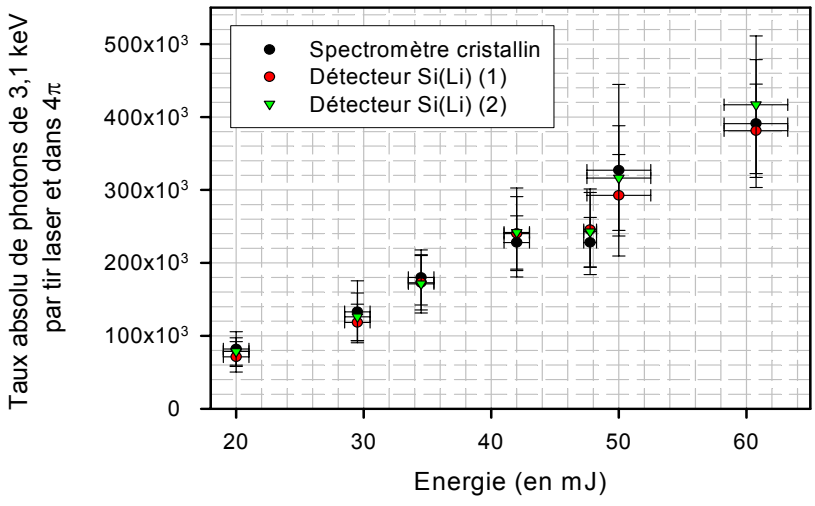


***Figure III-37 :** Comparaison des taux absolus de photons X calculés à l'aide des trois détecteurs (Si(Li) (1) + Si(Li) (2) + spectromètre cristallin) – Agrégats d'argon, P_0= 40 bars, τ = 55 fs et λ = 800 nm.*

Chapitre IV

Présentation des résultats

et discussions

"On fait la science avec des faits,
comme on fait une maison avec des pierres :
mais une accumulation de faits n'est pas plus une science
qu'un tas de pierre n'est une maison"
Henri Poincaré (1854 – 1912)
Physicien / Mathématicien

Plan détaillé du Chapitre

CHAPITRE IV PRESENTATION DES RESULTATS ET DISCUSSIONS 231

A] INTRODUCTION 234

B] MODELE DYNAMIQUE D'IONISATION EN COUCHE INTERNE 235

B-1] SCENARIO DE LA DYNAMIQUE DE L'INTERACTION 235
B-2] PREVISIONS DU MODELE 237
B-2-a) Lois d'échelle 237
1°) Évolution du taux d'X avec l'éclairement laser 237
2°) Évolution du taux d'X avec la taille des agrégats 239
B-2-b) Éclairement seuil et taux absolus 241
1°) Éclairement seuil 241
2°) Taux absolus 243

C] EFFET DE LA POLARISATION 245

C-1] INTRODUCTION 245
C-2] RESULTATS 247
C-3] DISCUSSIONS DES RESULTATS 250

D] EFFET DE L'ECLAIREMENT LASER *VIA* L'ENERGIE PAR IMPULSION 253

D-1] INTRODUCTION 253
D-2] PRESENTATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX 253
D-2-a) Agrégats d'argon 253
D-2-b) Agrégats de xénon 258
D-3] INTERPRETATIONS ET DISCUSSIONS 259
D-3-a) Validité de l'évolution du volume focal effectif dans nos conditions expérimentales 259
D-3-b) Conséquence sur l'optimisation du taux absolu d'X 261
D-3-c) Évolution de la probabilité d'ionisation 263
D-3-d) Étude du comportement du code nanoplasma avec l'éclairement laser 268

E] EFFET DE LA TAILLE DES AGREGATS *VIA* LA PRESSION 270

E-1] ÉVOLUTION DU TAUX ABSOLU DE PHOTONS X AVEC LA PRESSION 270
E-2] ÉVOLUTION DE LA PROBABILITE D'EMISSION X AVEC LA TAILLE 274
E-3] ÉVOLUTION DE L'ETAT DE CHARGE MOYEN 277
E-4] INFLUENCE DE LA TAILLE DES AGREGATS SUR LE SEUIL DE PRODUCTION DE RAYONS X DURS 282

F] EFFET DE LA DUREE D'IMPULSION 284

F-1] INTRODUCTION 284
F-2] ÉVOLUTION DE L'EMISSION X AVEC LA DUREE D'IMPULSION 284
F-2-a) Agrégats d'argon 285
1°) Étude à énergie constante 285
1°-i) Présentation des résultats 285
1°-ii) Confrontation aux comportements issus du modèle nanoplasma 291
2°) Étude à éclairement constant 294
2°-i) Évolution de l'émission X 294
2°-ii) Confrontation aux comportements du modèle nanoplasma 295
F-2-b) Agrégats de xénon 296
1°) Évolution du taux absolu de photons X 296
2°) Évolution de la distribution en état de charge 297
F-3] INFLUENCE DE LA DUREE D'IMPULSION SUR LE SEUIL DE PRODUCTION DE RAYONS X DURS 300
F-3-a) Présentation des résultats expérimentaux 300
F-3-b) Interprétation de l'optimum avec le volume focal effectif 303

G] EFFET DE LA LONGUEUR D'ONDE 307

G-1] ÉVOLUTION DE L'EMISSION X AVEC LA LONGUEUR D'ONDE 307
G-1-a) Agrégats d'argon 307
G-1-b) Agrégats de xénon 311

G-2] INFLUENCE DE LA LONGUEUR D'ONDE SUR LE SEUIL DE PRODUCTION DE RAYONS X DURS 314
G-3] DISCUSSIONS 317

A] Introduction

Afin d'expliquer les premiers résultats expérimentaux qui ont été résumés dans le Chapitre I (§I-D), l'équipe a développé un modèle dynamique d'ionisation en couche interne qui va être présenté dans la première partie de ce chapitre (§IV-B). L'approche de ce modèle fut d'isoler un seul et unique processus par lequel les électrons peuvent acquérir de l'énergie pendant l'interaction (accélération dans le champ laser) et, en l'analysant d'un point de vue collisionnel, d'établir certaines prédictions concernant la sensibilité de l'émission X avec certains paramètres influant sur la dynamique de l'interaction. Nous allons tout d'abord détailler le scénario associé à ce modèle ainsi que ces conséquences car l'une des motivations des campagnes d'expériences réalisées pendant ce travail de thèse était, en effet, de tester ses prédictions, tant pour les lois d'échelle qui en sont déduites que pour la recherche d'un éclairement seuil d'apparition des photons X.

Dans un second temps (§IV-C), et afin de maîtriser la signification des taux d'X mesurés, nous présenterons les résultats expérimentaux obtenus sur l'influence de l'état de la polarisation du laser en ce qui concerne l'émission X. En particulier, l'effet de la polarisation (linéaire *s* et *p* / circulaire) a été ici étudié d'une manière plus précise que lors des études précédentes, tant en ce qui concerne les taux absolus de photons X que la distribution en état de charge des ions émettant le rayonnement X.

Les travaux relatifs à l'influence des autres paramètres expérimentaux sur l'émission X comme l'éclairement laser (§IV-D), la taille des agrégats (§IV-E), la durée d'impulsion (§IV-F) et la longueur d'onde (§IV-G) seront ensuite exposés. Précisons que nous allons, plus particulièrement, présenter les résultats expérimentaux obtenus avec les agrégats d'argon et de xénon car l'irradiation des agrégats de krypton nous a servi principalement comme mesures de références lors de nos différentes campagnes d'expériences, ceux – ci ayant fait l'objet d'une étude plus approfondie lors d'une thèse précédente. Nous donnerons également pour chacun de ces paramètres les interprétations afférentes à nos mesures expérimentales. Les résultats présentés dans chacun de ces paragraphes seront également discutés dans le cadre du modèle dynamique d'ionisation en couche interne, mais nous verrons également si les tendances que l'on peut extraire du modèle nanoplasma, présenté dans le chapitre I de ce manuscrit, permettent de comprendre la sensibilité de l'émission X avec les différents paramètres étudiés.

B] Modèle dynamique d'ionisation en couche interne

Pour commencer ce paragraphe (§IV-B-1), il va être exposé le scénario envisagé pour expliquer la production de rayonnement X dans le cadre du modèle dynamique d'ionisation en couche interne développé par le groupe [Rozet et al., 2001] avant le début de ce travail de thèse. Ce modèle a permis d'établir certaines lois d'échelle en ce qui concerne l'évolution du taux d'X avec l'éclairement laser et la taille des agrégats qui seront explicitées dans le paragraphe IV-B-2-a. Enfin, les prédictions quantitatives déduites de ce modèle concernant l'éclairement seuil de production de rayonnement X ainsi que les taux absolus seront chiffrées plus précisément dans le paragraphe IV-B-2-b.

B-1] Scénario de la dynamique de l'interaction

Dès les premiers instants de l'interaction, les atomes et les ions sont ionisés par le champ électrique du laser et la densité électronique à l'intérieur de l'agrégat augmente. Ensuite, on considère que les électrons quasi – libres ainsi formés acquièrent leur énergie cinétique par oscillation sous l'effet du champ électrique du laser qui augmente au cours du temps. Au fur et à mesure, l'énergie cinétique des électrons devient suffisante pour permettre d'éplucher les ions, par ionisation collisionnelle, jusqu'à des états de charge plus élevée. Quand le champ électrique devient **suffisamment grand** pour que les électrons aient une **énergie maximale d'oscillation** de l'ordre de quelques *keV* (= $2.U_p$), la création de lacunes en couche interne débute comme illustré *Figure IV-1* pour un cas particulier qui sera chiffré plus loin (§IV-B-2-b-2). Le volume focal à l'intérieur duquel les électrons ont cette énergie de quelques *keV* commence à augmenter. Puis, dès que le rayon de l'agrégat augmente significativement sous l'action des forces de pression régnant à l'intérieur de l'agrégat, la densité électronique au sein de l'agrégat chute brutalement entraînant par conséquent une diminution importante des taux d'ionisation collisionnelle : on peut alors considérer que l'ionisation en couche interne s'arrête.

Ce modèle implique que :

- pour induire la création de lacunes en couche interne par des collisions électrons – ions, il est nécessaire d'avoir un éclairement laser suffisant pour que les électrons quasi – libres aient une énergie cinétique d'oscillation maximale de l'ordre de quelques *keV* de façon à être en mesure d'ioniser les ions de l'agrégat en couche interne ; nous désignerons cet éclairement seuil par I_{seuil} ;

- seuls les agrégats présents dans le volume focal où I_{seuil} est dépassé participent ainsi à l'émission X : nous définissons alors **le volume focal effectif** ($V_{foc.eff.}$) **comme le volume à l'intérieur duquel un éclairement seuil (I_{seuil}) est dépassé.**

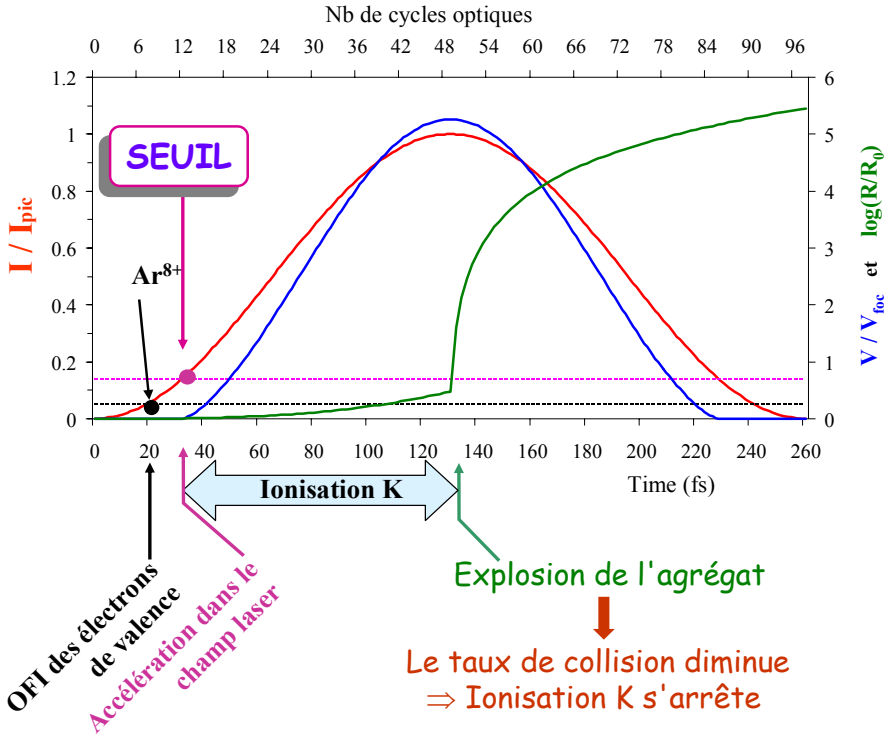


Figure IV-1 : Scénario du modèle dynamique d'ionisation en couche interne appliquée à l'argon.

Par ailleurs, les hypothèses de ce modèle dynamique sont les suivantes :

- peu d'électrons quittent l'agrégat afin d'avoir une densité électronique suffisante pour que l'ionisation collisionnelle puisse se produire pendant l'interaction ;
- le seul mode de chauffage des électrons est leur oscillation dans le champ électrique du laser ;
- le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat s'identifie au champ laser à l'extérieur de l'agrégat ;
- l'ionisation collisionnelle se produit au sein d'un agrégat unique (amplitude maximale d'oscillation ≤ rayon de l'agrégat) ;
- la section efficace d'ionisation (ou d'excitation) en couche interne reste constante pour une énergie d'électron supérieure au seuil d'ionisation (respectivement d'excitation).

Enfin, suivant ce scénario et en l'analysant d'un point de vue collisionnel, le nombre total d'ions présentant une lacune en couche interne et qui sont contenus dans le volume focal effectif est donné par :

$$N_{ions\ ayant\ 1\ lacune} = n_{cycle\ opt.} \times N_{e^-} \times \sigma \times n_{at.loc.} \times x \times N_{agrégats\ ds\ vol.\ foc.\ eff.} \qquad \textbf{[IV-B.1]}$$

avec :

- $n_{cycle\ opt.}$: le nombre de cycle optique pendant lequel se produit l'ionisation en couche interne ;
- N_{e^-} : le nombre d'électrons libres dans un agrégat ;
- $n_{at.loc.}$: la densité atomique locale au sein de l'agrégat ;
- σ : la section efficace d'ionisation (ou d'excitation) de la couche considérée (K pour l'argon, L pour le krypton et le xénon) ;
- x : l'épaisseur effective de collision ; si l'amplitude d'oscillation des électrons dans le champ laser est du même ordre de grandeur que le rayon de l'agrégat alors $x \sim R_{agrégat}$
- $N_{agrégats\ ds\ vol.\ foc.\ eff.}$: le nombre d'agrégats contenus dans le volume focal effectif.

Le taux absolu de photons X est donné finalement par :

$$N_X = \overline{\omega} \times N_{ions\ ayant\ 1\ lacune} \qquad \textbf{[IV-B.2]}$$

avec $\overline{\omega}$ la moyenne du rendement de fluorescence pondérée de la distribution en état de charge des ions ayant une lacune en couche interne et $N_{ions\ ayant\ 1\ lacune}$ le nombre d'ions ayant une lacune en couche interne défini précédemment.

B-2] Prévisions du modèle

B-2-a) Lois d'échelle

A partir des considérations énoncées ci – dessus, il est possible de déduire l'évolution du taux d'X avec deux paramètres expérimentaux importants :

- l'éclairement laser I ;
- la taille des agrégats (*via* la pression P_0 en amont de la buse de condensation).

1°) Évolution du taux d'X avec l'éclairement laser

Le nombre d'agrégats contenus dans le volume focal effectif est donné par :

$$N_{agrégats\ ds\ vol.\ foc.\ eff.} = n_{agrégats} \times V_{foc.eff.}(I > I_{seuil}) \qquad \textbf{[IV-B.3]}$$

avec $V_{foc.eff.}$ le volume focal effectif et $n_{agrégats}$ la densité d'agrégats par unité de volume.

Par conséquent : $$\boxed{N_X \propto V_{foc.eff.}(I > I_{seuil})} \qquad \textbf{[IV-B.4]}$$

Ce volume focal effectif dépend, bien évidemment, de l'éclairement seuil (I_{seuil}) mais aussi de la valeur de l'éclairement maximum (I). Sous l'hypothèse d'un faisceau gaussien, la répartition spatiale de l'intensité laser à proximité du point focal est donnée par la formule suivante :

$$I(\rho, z) = \frac{I}{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \times \exp\left(-\frac{2 \cdot \rho^2}{w_0^2 \times \left(1 + \left(z/z_R\right)^2\right)}\right) \qquad \textbf{[IV-B.5]}$$

où I est l'intensité maximale au point focal, z la coordonnée axiale (direction de propagation) et ρ la coordonnée transverse (perpendiculaire à la direction de propagation). La longueur de Rayleigh z_R ainsi que la largeur du faisceau laser au point focal[1] w_0 ont été définies et calculées dans le Chapitre II (*cf.* §II-B-6). A titre d'exemple, nous présentons sur la *Figure IV-2* la répartition de l'éclairement laser à proximité du point focal pour un éclairement laser maximum de $10^{17}\ W/cm^2$ dans nos conditions expérimentales ($z_R = 0{,}95\ mm$ et $w_0 = 15{,}55\ \mu m$) ainsi que les courbes d'iso intensité correspondantes. L'équation de la courbe d'iso intensité pour un éclairement I_{seuil} est donnée en inversant la formule [IV-B.5] par :

$$\rho^2\left(I_{seuil}, I\right) = \frac{w_0^2}{2} \cdot \left[1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2\right] \cdot \ln\left[\frac{I/I_{seuil}}{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}\right] \qquad \textbf{[IV-B.6]}$$

Le volume $V_{foc.eff.}$ à l'intérieur duquel cet éclairement seuil est dépassé est alors donné par la formule intégrale suivante :

$$V_{foc.eff.}(I > I_{seuil}) = \iint_{\frac{I}{I_{seuil}} > 1} 2\pi \cdot \rho\left(I_{seuil}, I\right) \cdot d\rho \cdot dz = \int_{\frac{I}{I_{seuil}} > 1} \pi \cdot \rho^2\left(I_{seuil}, I\right) \cdot d\rho \qquad \textbf{[IV-B.7]}$$

La présence d'un axe de symétrie de révolution rend le calcul de l'intégrale précédente plus aisée et la formule analytique du volume focal effectif est : ***[IV-B.8]***

[1] Nous désignerons dans la suite de ce chapitre la largeur à $1/e^2$ en intensité du faisceau laser au point focal (w_0) par l'appellation couramment admise de "beam – waist".

$$V_{foc.eff.}(I > I_{seuil}) = \pi \cdot z_R \cdot w_0^2 \cdot \left\{ \frac{4}{3} \cdot \left(\frac{I}{I_{seuil}} - 1 \right)^{1/2} + \frac{2}{9} \cdot \left(\frac{I}{I_{seuil}} - 1 \right)^{3/2} - \frac{4}{3} \cdot arctg \left(\frac{I}{I_{seuil}} - 1 \right)^{1/2} \right\}$$

a) Répartition spatiale b) Courbes d'iso intensité

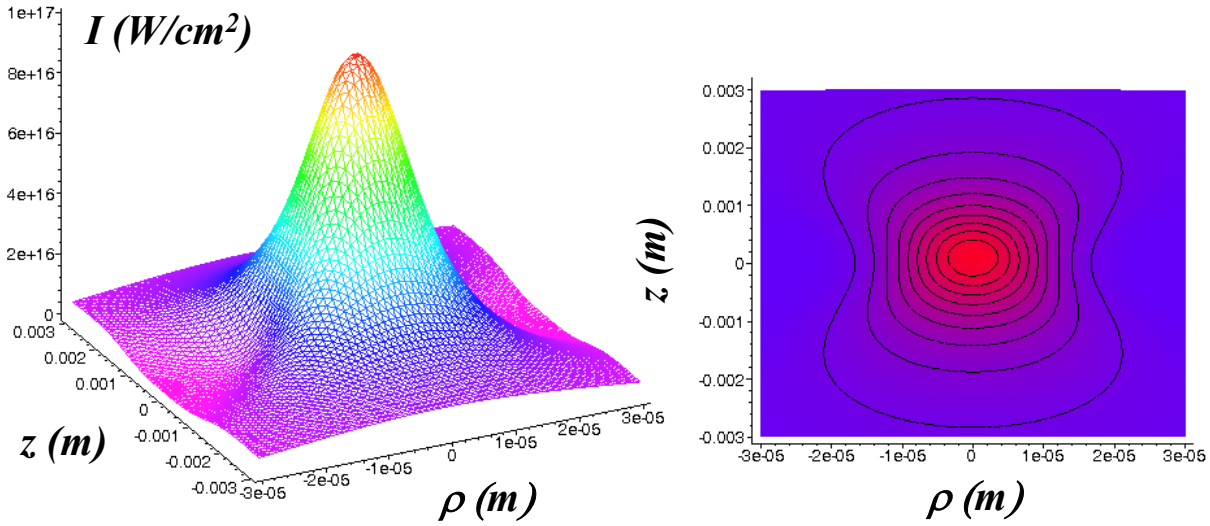


***Figure IV-2 :** Répartition de l'éclairement laser à proximité du point focal (z = 0 et ρ = 0).*

D'après le modèle dynamique d'ionisation en couche interne, le taux de photons X suit l'évolution du volume focal effectif en fonction de l'éclairement laser avec un éclairement seuil qui sera évalué dans le cadre de ce modèle au §IV-B-2-b-1. Néanmoins, quelque soit l'éclairement seuil et pour un éclairement laser suffisamment grand, on a toujours, pour autant que la densité d'agrégats à l'intérieur de ce volume soit constante :

$$\lim_{I >> I_{seuil}} V_{foc.eff.} \propto I^{3/2} \qquad \textbf{[IV-B.9]}$$

Ainsi, à grand éclairement, le taux de photons X suit une loi en $I^{3/2}$: une telle évolution a déjà été observée lors des premières études de l'équipe pour les agrégats d'argon et de krypton comme il a été vu au Chapitre I (*cf.* §I-D). Ce comportement traduit finalement une saturation de la production du rayonnement X : **le taux absolu de photons X augmente, dans ce cas, comme le nombre de partenaires émetteurs (agrégats) contenu dans le volume focal**.

2°) Évolution du taux d'X avec la taille des agrégats

Si on reprend les formules [IV-B-1] et [IV-B.2], le taux de photons X suit la relation suivante :

$$N_X \propto N_{e^-} \times \left(n_{at.loc.} \cdot x \right) \times N_{agrégats\ ds\ vol.foc.eff.} \qquad \textbf{[IV-B.10]}$$

avec N_{e^-} le nombre moyen d'électrons libres par agrégat, $n_{at.loc.} \times x = N(at/cm^2)$ le nombre d'atomes par unité de surface et $N_{agrégats\ ds\ vol.foc.eff.}$ le nombre d'agrégats dans le volume focal effectif. Explicitons maintenant la dépendance de ces trois termes avec la pression en amont de la buse de condensation (P_0) caractéristique de la taille des agrégats :

- le nombre moyen d'électrons libres par agrégat :

$$N_{e^-} = n_{e^-/atome} \times \overline{n}_{atomes/agrégat} \qquad \textbf{[IV-B.11]}$$

avec $n_{e^-/atome}$ le nombre moyen d'électrons libérés par effet de champ et par atome et $\overline{n}_{atomes/agrégat}$ le nombre moyen d'atomes par agrégat qui dépend de la pression suivant une loi **approximativement** en P_0^2 (*cf.* Chapitre II et plus particulièrement formule [II-C.21]), ainsi :

$$N_{e^-} \propto P_0^2 \qquad \textbf{[IV-B.12]}$$

- le nombre d'atomes par unité de surface :

$$N(at/cm^2) = n_{at.loc.}(at/cm^3) \times x \qquad \textbf{[IV-B.13]}$$

avec $n_{at.loc.}(at/cm^3)$ la densité atomique locale (*cf.* *Tableau II-7*) et x l'épaisseur effective de collision qui est du même ordre de grandeur que le rayon moyen de l'agrégat $R_{agrégat}$. Celui – ci est donné par (*cf.* formule [II-C.20]):

$$R_{agrégat} \propto \left(\overline{n}_{atomes/agrégat}\right)^{1/3} \propto \left(P_0^2\right)^{1/3} \qquad \textbf{[IV-B.14]}$$

Ainsi $$N(at/cm^2) \propto P_0^{2/3} \qquad \textbf{[IV-B.15]}$$

- le nombre d'agrégats dans le volume focal effectif :

$$N_{agrégats\ ds\ vol.foc.eff.} = \frac{n_{at.moy.}}{\overline{n}_{atomes/agrégat}} \propto \frac{P_0}{P_0^2} \qquad \textbf{[IV-B.16]}$$

avec $n_{at.moy.}$ la densité atomique moyenne (formule [II-C.18]) et $\overline{n}_{atomes/agrégat}$ le nombre d'atomes par agrégat. Précisons que ce calcul suppose que le taux de condensation des atomes participant à la formation des agrégats est indépendant de la pression en amont de la buse de condensation.

Finalement, le taux absolu de photons X dans le cadre du modèle dynamique d'ionisation en couche interne suit **approximativement** la loi d'évolution suivante :

$$N_X \propto P_0^2 \times P_0^{2/3} \times \frac{P_0}{P_0^2} = P_0^{5/3} \qquad \textit{[IV-B.17]}$$

Cette loi d'évolution a été observée pour les agrégats d'argon mais pour les agrégats de krypton une loi d'évolution en P_0^3 a été obtenue (*cf.* §I-D-2-a). Des expériences complémentaires devaient donc être entreprises afin de tenter de rationaliser ces différentes lois d'évolution.

B-2-b) Éclairement seuil et taux absolus

Nous allons chiffrer ici les taux absolus de photons X calculés à partir du modèle dynamique d'ionisation en couche interne qui vient d'être présenté et qui ont été comparés avec les résultats expérimentaux antérieurs obtenus par l'équipe. Pour commencer ce paragraphe, nous allons tout d'abord évaluer la valeur de l'éclairement seuil de production de rayonnement X qui intervient dans la détermination des taux absolus au travers du volume focal effectif et dans une moindre mesure du nombre de cycle optique "efficace" c'est à dire le nombre de cycle optique pendant lequel l'éclairement seuil est dépassé.

1°) Éclairement seuil

Afin de simplifier la discussion, nous allons détailler ici uniquement la détermination de l'éclairement seuil dans le cas de l'argon.

On peut évaluer l'éclairement laser seuil pour la production d'espèces multichargées à l'aide du modèle de suppression de la barrière coulombienne (modèle BSI) qui a été présenté dans le Chapitre I et notamment en se servant de la formule [I-B.3]. Comme il est présenté dans le *Tableau IV-1*, la production d'Ar^{1+} s'effectue dès $2{,}5\times10^{14}$ *W/cm²* et la production d'Ar^{8+} ne nécessite qu'un éclairement laser de $2{,}6\times10^{16}$ *W/cm²*. Par contre, il n'est pas possible de produire par effet de champ de l'Ar^{9+} dans la gamme d'éclairement où nous avons travaillé (10^{15} – 10^{17} *W/cm²*). Ceci est *a fortiori* valable pour la production d'Ar^{16+} qui est strictement impossible à créer uniquement par effet de champ dans cette même gamme d'éclairement.

Etat de charge	Potentiel d'ionisation	I_{BSI}
Ar^{1+} ($Ne3s^2 3p^5$)	15,76 *eV*	$2{,}5\times10^{14}$ *W/cm²*
Ar^{8+} ($He2s^2 2p^6$)	143,46 *eV*	$2{,}6\times10^{16}$ *W/cm²*
Ar^{9+} ($He2s^2 2p^5$)	422,45 *eV*	$1{,}6\times10^{18}$ *W/cm²*
Ar^{16+} ($1s^2$)	~ 918 *eV*	$1{,}1\times10^{19}$ *W/cm²*
Ar^{16+} ($1s\varepsilon\ell$)	~ 4 *keV*	$4{,}0\times10^{21}$ *W/cm²*

Tableau IV-1 : Valeurs des éclairements laser pour la production d'ions argon multichargés par abaissement de la barrière coulombienne.

Les électrons libérés initialement par effet de champ oscillent dans le champ laser avec une **énergie maximale** donnée par (*cf.* formule [I-B.9] du Chapitre I):

$$T_{e^-}^{max} = 2 \cdot U_p = 1{,}9 \cdot 10^{-13} \times \lambda^2(\mu m) \times I\left(W / cm^2\right) \qquad \textbf{[IV-B.18]}$$

Avec cette énergie, les électrons peuvent éplucher les ions à des états de charge plus importants lors des nombreuses collisions électrons – ions ayant lieu à l'intérieur de l'agrégat pendant l'interaction. En particulier, il devient envisageable, à l'aide de ce mécanisme, de produire de l'Ar^{9+} dès un éclairement de $3{,}5\times10^{15}$ *W/cm²* (*cf.* *Tableau IV-2*) alors qu'il était possible de produire cette espèce par l'unique effet du champ laser que pour une intensité supérieure à 10^{18} *W/cm²*.

	$T_{e^-}^{max}$ nécessaire	I_{seuil}
Ar^{9+} ($He2s^2 2p^3$)	422 *eV*	$3{,}5\times10^{15}$ *W/cm²*
Ar^{16+} ($1s\varepsilon\ell$)	~ 4,0 *keV*	$3{,}3\times10^{16}$ *W/cm²*
Ar^{16+} ($1s^2 \rightarrow 1s^1 2p^1$)	~ 3,1 *keV*	$2{,}6\times10^{16}$ *W/cm²*

Tableau IV-2 : Valeurs des éclairements laser seuil pour la production d'ions argon multichargés par des collisions électrons – ions.

Ainsi, les électrons accélérés dans le champ laser vont pouvoir induire la création de lacune en couche K, dans le cas de l'argon, s'ils ont **au minimum** une énergie de l'ordre de 3 – 4 *keV*. Cette énergie peut être atteinte si l'éclairement laser est au moins égal à **$(2{,}6 - 3{,}3)\times10^{16}$ *W/cm²*** dans le cadre de ce modèle où seul est introduit l'effet d'oscillation des électrons dans le champ laser pour augmenter leur énergie cinétique.

Un raisonnement analogue pour le cas du xénon conduit à une énergie maximale des électrons de l'ordre de 5 – 7 *keV* pour induire la création de lacune(s) en couche L (*2p*). Ceci est possible pour un éclairement laser de l'ordre de **(4,1 – 5,8)×10^{16} *W/cm^2***.

La plupart des expériences réalisées jusqu'à présent sur l'argon, le krypton et le xénon se sont situées dans une gamme en éclairement supérieure à plusieurs 10^{16} *W/cm^2* ; la production de lacune(s) en couche interne n'apparaît donc pas surprenante à ces éclairements laser lorsque l'on considère uniquement comme mode de chauffage l'oscillation des électrons dans le champ laser et la création de lacune(s) en couche interne par des collisions électrons – ions.

2°) Taux absolus

Les comparaisons des taux absolus, calculés dans le cadre du modèle dynamique (formules [IV-B.1] et [IV-B.2]) et obtenus expérimentalement pour des agrégats d'argon, de krypton et de xénon, sont présentées dans le *Tableau IV-4* et les conditions expérimentales sont données dans le *Tableau IV-3*. Il est également indiqué dans le *Tableau IV-4*, les valeurs des différents paramètres intervenant dans la formule [IV-B.1] et qui sont déduites du papier [Rozet et al., 2001]. Précisons que les taux calculés ici prennent en compte un volume focal effectif de l'ordre de deux fois le volume focal nominal (seuil vers 2×10^{16} *W/cm^2*). D'autre part, si le rendement de fluorescence $\overline{\omega}$ est évalué correctement pour l'argon car les configurations associées à l'émission X restent relativement simples (lacune en couche K et transitions $2p \rightarrow 1s$ pour des états de charge élevée), le rendement de fluorescence est plus difficile à estimer, même approximativement, pour les agrégats de krypton et de xénon (présence de nombreux états de charge ayant une lacune en couche L et de nombreuses transitions). Ainsi, ce rendement de fluorescence a été pris ici identique pour les trois espèces atomiques ce qui constitue une approximation mais cela permet néanmoins donner un ordre de grandeur du taux absolu de photons X. Une détermination précise de $\overline{\omega}$ nécessiterait une analyse plus complexe des spectres haute résolution. Dans ces conditions, l'erreur associée à ce rendement de fluorescence est de l'ordre de 2 à 3 pour le krypton et le xénon. D'autre part, les tailles données dans ce tableau ne correspondent pas à la formule [II-C.21] que nous avons vu dans le Chapitre II estimer beaucoup mieux les tailles d'agrégats que la formule d'Hagena (formule [II-C.16a]) dans ces gammes de taille. Ceci entraîne une surestimation de la taille des agrégats d'un ordre de grandeur mais qui est compensée par l'estimation du nombre d'agrégats dans le volume focal qui devient alors, dans ces conditions, sous – estimé d'un ordre de grandeur. Enfin, il est considéré, dans ce calcul, que les agrégats d'argon se sont

dilatés de l'ordre d'un facteur 2 à 3 pendant l'émission X entraînant par conséquent une diminution de la densité atomique locale de près d'un ordre de grandeur par rapport aux valeurs données dans le *Tableau II-7*; ceci n'est pas justifié d'après les simulations nanoplasma présentées dans le Chapitre I pour de telles tailles d'agrégats d'argon.

On peut finalement remarquer que les taux absolus de photons X, calculés dans ces conditions à l'aide du modèle dynamique d'ionisation en couche interne, donnent un ordre de grandeur des valeurs déterminées expérimentalement.

Pression	$P_0 = 18$ *bars*
Durée d'impulsion	$\Delta t = 130$ *fs*
Éclairement laser	$I = 6\times10^{16}$ *W/cm²*
Longueur d'onde	$\lambda = 800$ *nm*

Tableau IV-3 : Conditions expérimentales pour l'exemple de la dynamique d'ionisation en couche interne présenté sur la Figure IV-1.

	Argon	Krypton	Xénon
$n_{cycle\ opt.}$	38	38	38
$N_{e^-} = n_{e^-/atome} \times \overline{n}_{atomes/agrégat}$	$8\times5{,}9.10^5$	$8\times1{,}9.10^6$	$12\times6{,}4.10^6$
σ (en cm^2)	2×10^{-21}	8×10^{-21}	2×10^{-21}
$n_{at.loc.}$ (en cm^{-3})	$2{,}2\times10^{21}$	$1{,}4\times10^{22}$	$1{,}1\times10^{22}$
x (en nm)	40	20	20
$N_{agrégats\ ds\ vol.\ foc}$	50	70	10
$\overline{\omega}$ [2]	0,35	0,35**	0,35**
$N_X = \overline{\omega} \times N_{ions\ ayant\ 1\ lacune}$	6×10^4	3×10^6	4×10^5
$N_X^{exp.}$	7×10^4	4×10^6	$1{,}5\times10^5$

Tableau IV-4 : Comparaison des taux absolu de photons X calculés dans le cadre du modèle dynamique d'ionisation en couche interne et obtenus expérimentalement pour les agrégats d'argon, de krypton et de xénon (conditions expérimentales dans le Tableau IV-3).

[2] Le rendement de fluorescence pour l'argon est de 0,35 pour un état de charge moyen de 14,5+ mais pour le krypton et le xénon une détermination précise de ce rendement est nettement plus difficile, c'est pourquoi nous l'écrivons dans ce tableau avec ** afin de souligner l'approximation réalisée ici.

C] Effet de la polarisation

C-1] Introduction

A priori, l'état de la polarisation du laser incident est un paramètre qui peut jouer un rôle important dans la dynamique de l'interaction laser – agrégats. Du moins, les études antérieures dans le domaine de l'interaction laser – matière réalisées pour des atomes, des molécules ou des solides ont mis en évidence un réel effet de la polarisation sur l'interaction et qui est brièvement résumé ici :

- Pour l'ionisation d'atomes et de molécules en champ laser intense, il a été montré théoriquement [Ammosov, Delone & Krainov, 1986] et observé expérimentalement [Monot, 1993] [Banerjee, Ravindra-Kumar & Mathur, 1999] qu'une **augmentation** de l'ellipticité de la radiation laser incidente induit une **diminution** des taux d'ionisation.
- Les expériences de génération d'harmoniques d'ordre élevé ont montré une **réduction** importante du taux d'harmonique quand on **augmente** l'ellipticité de la radiation incidente [Budil et al., 1993]. Ceci peut s'interpréter, d'une manière schématique et classique, comme une diminution de la probabilité de "re – collision" (ou de recombinaison) de l'électron vers son ion parent à cause de son orbite elliptique en polarisation circulaire.
- Dans le cadre de l'interaction laser – solide, la polarisation joue un rôle très important dans le contrôle de l'efficacité de production d'un **plasma chaud et dense**. En effet, la polarisation *s* augmente le chauffage de la surface par rapport à une polarisation linéaire *p* [Geindre & Gauthier, 1997]. Certains auteurs [Banerjee, Ravindra-Kumar & Tribedi, 2000] ont également observé une baisse d'un facteur 2 de l'émission de rayons X durs avec une polarisation circulaire par rapport à une polarisation linéaire. Ils ont interprété ce phénomène par la production d'un plasma moins dense en polarisation circulaire à cause d'une moindre efficacité d'ionisation multiphotonique en polarisation circulaire (diminution du nombre de voie d'ionisation à cause des règles de sélection) qui joue ici un rôle pour ces mesures faîtes à faible éclairement ($\sim 3\times10^{13}$ W/cm^2).
- Dans le cadre de l'interaction d'une cible gazeuse de grande densité atomique ($\sim 10^{17}$ at. / cm^3) avec une impulsion laser femtoseconde ($I \sim 10^{15}$ W/cm^2), l'émission de rayons X mous (entre 10 *nm* et 30 *nm*) est trouvée plus importante en polarisation circulaire qu'en polarisation linéaire. Ce résultat, en contradiction avec ce qui a été observé en cible solide, est attribué à la présence d'électrons plus énergétiques produits par le champ laser [Corkum, 1993].

Nous voyons ainsi que l'effet de la polarisation dépend fortement du système ainsi que de l'observable étudiée. Si nous examinons maintenant de plus près l'influence de la polarisation du laser incident sur les différentes étapes intervenant lors de la dynamique de l'interaction laser – agrégats, il ressort que :

- **les probabilités d'ionisation** par effet de champ changent pour les 2 polarisations : en particulier, pour la production d'espèces faiblement chargées qui sont dominées par le champ laser, les taux d'ionisation attendus sont 2 fois plus faibles quand l'état de la polarisation du laser est changé de linéaire en circulaire [Ammosov et al., 1986] ;
- **l'énergie cinétique de dérive** des électrons libres produits par ionisation tunnel est plus élevée en polarisation circulaire que pour une polarisation linéaire. Dans le cadre de ce modèle d'ionisation, ceci résulte du déphasage existant entre la vitesse électronique et le champ laser à l'instant d'ionisation et a été mis en évidence expérimentalement par Corkum *et al.* [Corkum, 1993]. Les prédictions théoriques des distributions énergétiques des électrons sont présentées sur la *Figure IV-3* où l'on visualise nettement que l'énergie moyenne des électrons en polarisation circulaire n'est plus centrée sur les énergies nulles, comme dans le cas d'une polarisation linéaire.

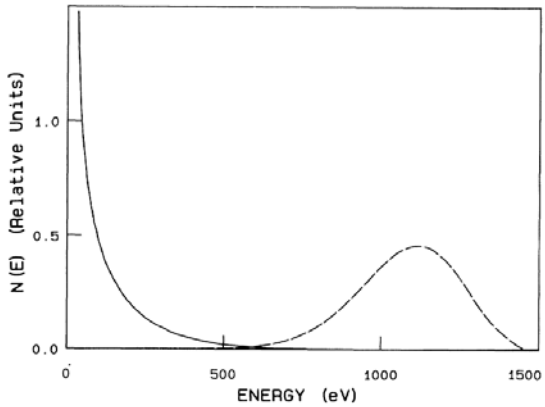


Figure IV-3 : Distribution en énergie des électrons calculée en utilisant le modèle d'ionisation par effet tunnel pour un ion hydrogénoïde avec un potentiel d'ionisation de 12,1 eV. La courbe en traits pleins est obtenue pour une polarisation linéaire ($I = 10^{14}$ W/cm^2) et la courbe entraits pointillés est obtenue pour une polarisation circulaire ($I = 2\times10^{14}$ W/cm^2) pour $\lambda = 10$ µm et $\tau = 2,5$ ps [Corkum, 1993]

- **l'énergie propre d'oscillation** d'un électron libre dans le champ laser change également en fonction de la polarisation : pour *une intensité laser donnée*, l'amplitude du champ électrique en polarisation linéaire est $\sqrt{2}$ fois plus grande qu'en polarisation circulaire. De ce point de vue, l'énergie d'oscillation des électrons est plus faible d'un facteur 2 pour une polarisation circulaire que pour une polarisation linéaire ;
- **les trajectoires des électrons** pour une polarisation linéaire et circulaire sont également différentes ce qui peut contribuer à modifier la fréquence de collision électrons – ions lors de la dynamique de l'interaction ; ceci pourrait alors influer sur le chauffage par Bremsstrahlung Inverse en présence d'un champ laser ayant une polarisation différente [Silin, 1965] mais il n'est pas évident ici d'en déduire une tendance générale.

C-2] Résultats

Nous avons voulu ici confirmer ou infirmer les tous premiers résultats qui ont été obtenus par le groupe sur cet effet de polarisation en effectuant des mesures précises et en spectroscopie haute résolution. Ces mesures ont été limitées au cas des agrégats d'argon et pour un éclairement assez élevé de $8{,}5\times10^{16}$ W/cm^2. Le rayonnement X a été étudié tant en ce qui concerne le taux absolu de photons X émis lors de l'interaction que la distribution en état de charge des ions émettant ce rayonnement X pour les différents types de polarisation linéaire (*s* et *p*) et pour une polarisation circulaire. Cette dernière est obtenue à l'aide d'une lame biréfringente quart d'onde (λ / 4) dont les lignes neutres sont dirigées à 45° de la polarisation linéaire du faisceau laser issu du LUCA. La conservation de la polarisation (linéaire et circulaire) au niveau de la zone d'interaction a été vérifiée comme cela a été présenté §II-B-5. Néanmoins de façon à fiabiliser les mesures et à s'assurer que les effets observés sont bien dus à l'état de polarisation du laser, nous avons utilisé une méthode expérimentale spécifique. En particulier, de façon à s'affranchir d'éventuels problèmes de stabilité du laser et / ou du fonctionnement du jet d'agrégats, nous avons alterné l'acquisition successive des spectres en polarisation linéaire et circulaire. Par ailleurs, nous avons intentionnellement utilisé diverses méthodes pour produire les polarisations *s* et *p* de façon à ce que la comparaison avec la polarisation circulaire produite avec la lame quart d'onde soit significative. Ces différentes expériences[3] sont récapitulées dans le *Tableau IV-5*.

Expérience	P_0 (bar)[4]	E (mJ)	État de la polarisation
1	39,9	54	Linéaire *s*
2	40,0	56	Circulaire (avec λ / 4)
3	40,0	56	Linéaire *s*
4	39,9	56	Circulaire (avec λ / 4)
5	40,0	55	Linaire *s* (avec λ / 4 suivant les axes neutres)
6	40,0	55	Linéaire *p* (avec λ / 2)

Tableau IV-5 : Conditions expérimentales pour les expériences dédiées à l'étude de l'influence de la polarisation sur l'émission X (λ = 800 nm et Δt = 60 fs).

[3] Cette série de mesures a été obtenue lors de la campagne d'expériences de 2001 sans écorceur et pour une distance entre la buse (d = 300 μm) et la zone d'interaction de 500 mm.
[4] La taille des agrégats est estimée à $2{,}8\times10^5$ atomes pour ces expériences.

Le taux absolu de chacun des états de charge (de l'Ar^{12+} à l'Ar^{16+}) dont est issu le rayonnement X est présenté sur la *Figure IV-4* pour ces expériences.

- polarisation linéaire *s* et *p* :

Pour les expériences réalisées en polarisation linéaire *s* et *p* (respectivement expériences n°1-3-5 et n°6), on voit très nettement qu'il n'existe aucune différence en ce qui concerne l'émission X tant sur la distribution en état de charge que sur le taux absolu de photons X dans la limite des barres d'erreur. Ces mesures sont confirmées par celles obtenues avec les détecteurs Si(Li) qui donnent un taux absolu de photons de $1{,}18\times10^{5}$ hν / tir laser dans 4π contre $1{,}20\times10^{5}$ hν / tir laser dans 4π pour le spectromètre cristallin. Ce résultat confirme ainsi l'insensibilité de l'émission X à la polarisation linéaire (horizontale ou verticale). L'émission X est donc complètement isotrope et les mesures en absolu effectuées à l'aide d'un détecteur placé à un angle donné par rapport à la polarisation du laser sont bien caractéristiques de l'émission X issue des agrégats et donc des processus intervenant lors de la dynamique de l'interaction.

- polarisation linéaire / circulaire :

Pour la polarisation circulaire, nous voyons que le taux absolu de photons X émis lors de l'interaction est systématiquement légèrement inférieur à celui obtenu pour une polarisation linéaire. On notera que l'extinction trouvée en polarisation circulaire dans les premières études (Dobosz, Thèse) était en fait due à un problème de déclenchement de l'acquisition. La différence de 20 % pour les taux absolus entre linéaire et circulaire est observée tant à partir des données obtenues à l'aide du spectromètre cristallin, présentées sur la *Figure IV-4*, qu'à partir des détecteurs Si(Li). Les trois détecteurs (les 2 Si(Li) + spectromètre cristallin) donnent, en effet, un rapport du taux absolu circulaire / linéaire identique :

$$\left(N_X\right)_{circulaire} \approx (81 \pm 2)\,\% \times \left(N_X\right)_{linéaire} \qquad \textbf{[IV-C.1]}$$

Les études menées avec le spectromètre cristallin permettent en plus d'attribuer clairement cette différence à la variation du taux absolu de production des faibles états de charge : le taux d'Ar^{12+} en polarisation circulaire est systématiquement deux fois plus faible qu'en polarisation linéaire. *A contrario*, le taux d'Ar^{16+} est identique quelque soit l'état de la polarisation du faisceau laser incident (aux incertitudes près).

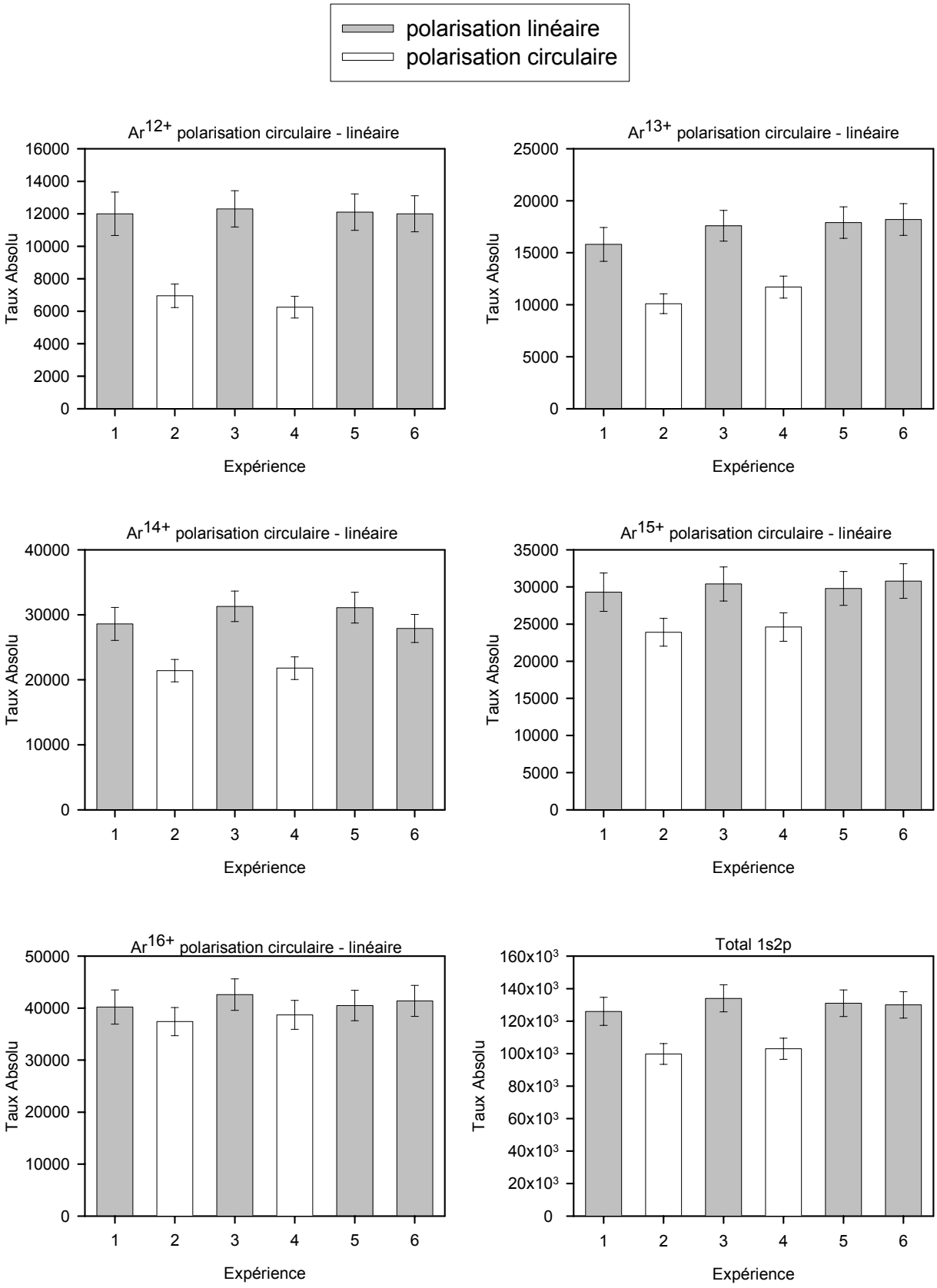


***Figure IV-4 :** Taux absolu (en nombre de photons X dans 4π et par tir laser) des différents états de charge pour les expériences réalisées en polarisation linéaire et circulaire dans le cas des agrégats d'argon.*

Cette différence dans la distribution en état de charge se retrouve également à partir de l'énergie moyenne déduite de l'analyse des spectres haute résolution (*cf. Figure IV-5*). En effet, la différence d'énergie moyenne des poses *1s2p* entre la polarisation linéaire et circulaire est de 5 *eV*. Précisons que cette différence est significative d'après l'erreur sur l'énergie moyenne qui est comprise typiquement entre ± 0,8 *eV* et ± 1,3 *eV* en ce qui concerne les spectres discutés ici.

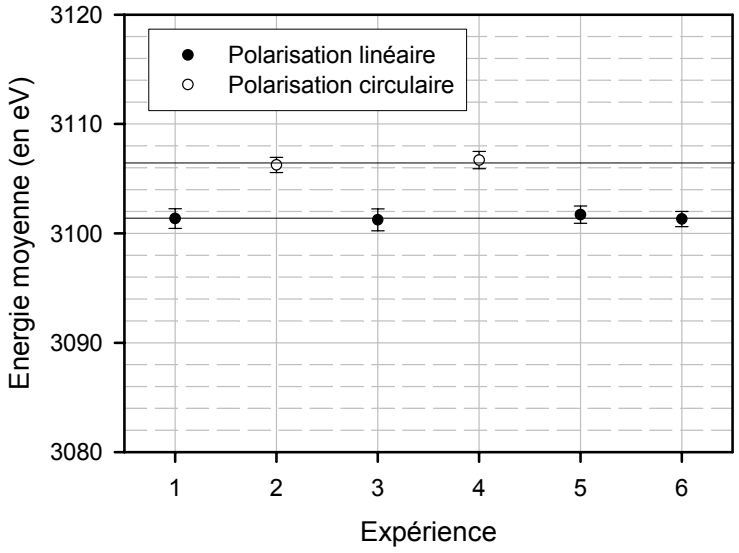


Figure IV-5 : Énergie moyenne des spectres haute résolution dont la distribution en état de charge est présentée sur la Figure IV-4.

C-3] Discussions des résultats

Nos résultats sont légèrement différents de ceux obtenus par l'équipe de Tribedi *et al.* qui n'ont observé **aucune différence** concernant l'effet de la polarisation sur le taux absolu de photons X émis, et cela quelque soit la taille des agrégats d'argon (entre 100 et 2 000 atomes par agrégat) et l'éclairement laser (entre $2{,}5\times10^{15}$ *W/cm²* et $2{,}5\times10^{16}$ *W/cm²*) [Kumarappan et al., 2001]. La faible déviation entre ces deux études peut être due aux différences de tailles d'agrégats entre les deux expériences : sur notre dispositif, la taille des agrégats est estimée, pour une pression de 40 *bars* d'argon, à $N = 2{,}8\times10^{5}$ atomes alors que Tribedi *et al*. n'ont étudié l'influence de la polarisation que jusqu'à une taille maximale de 2 000 atomes. D'autre part, leur système de mesure du taux d'X (1 seul détecteur Si(Li)) peut également expliquer le fait qu'ils n'aient pas pu observer cette faible influence que nous avons attribuée à une différence dans la distribution en état de charge des ions ayant une lacune en couche K grâce au spectromètre cristallin.

La faible sensibilité de l'émission X en polarisation circulaire par rapport à la polarisation linéaire (**au maximum** de l'ordre de 20 %) conduit à la présence, au sein de l'agrégat, d'électrons ayant une **énergie comparable** pour les deux polarisations (*i.e.*

température électronique sensiblement égale). Les différentes polarisations conduiraient alors à un chauffage des électrons assez identique pour les deux polarisations ce qui ne peut être compris ni en invoquant l'effet de l'énergie moyenne d'oscillation des électrons dans le champ laser (facteur 2 entre les deux polarisations) ni en invoquant les travaux de Corkum [Corkum, 1993] qui prédisent, pour un plasma sous – dense ($n_{at.moy.}$ ~ 10^{17} at. / cm^3), la présence d'électrons beaucoup plus énergétiques avec une polarisation circulaire qu'avec une polarisation linéaire.

Ces résultats peuvent néanmoins s'interpréter en se basant sur les travaux de Pert [Pert, 1999]. Il a étudié, à l'aide de simulations de type Monte – Carlo, l'évolution des distributions énergétiques des électrons libérés par effet tunnel sous champ laser intense dans le cas d'un gaz ayant une densité atomique moyenne comprise entre 0 (atome isolé) et 10^{20} atomes / cm^3. Ces simulations tiennent compte à la fois :

- de l'ionisation par effet tunnel (formule ADK – *cf.* équation [I-B.7]) ;
- de l'oscillation des électrons dans le champ laser ;
- du chauffage des électrons par Bremsstrahlung inverse lors des collisions électrons – ions ;
- des collisions électrons – électrons qui contribuent à "thermaliser" les distributions énergétiques des électrons.

Les valeurs des vitesses quadratiques moyennes $\left(\sqrt{\overline{V}^2}\right)$, calculées dans ces simulations pour des atomes d'hélium, sont présentées dans le *Tableau IV-6* pour une polarisation incidente linéaire et circulaire, ainsi que pour plusieurs densités atomiques. Dans ces simulations, les atomes d'hélium sont soumis à une impulsion laser femtoseconde d'éclairement laser 10^{16} W/cm^2 et la durée d'impulsion est de 160 fs

Densité (en at. / cm^3)	$\sqrt{\overline{V}^2}$ polarisation linéaire (10^8 cm/s)	$\sqrt{\overline{V}^2}$ polarisation circulaire (10^8 cm/s)	Rapport circulaire / linéaire
0	3,28	6,60	~ 2
10^{18}	3,32	6,61	~ 2
10^{19}	3,69	6,68	~ 1,8
10^{20}	5,93	7,64	~ 1,3

***Tableau IV-6 :** Comparaison des vitesses quadratiques moyennes pour une polarisation linéaire et une polarisation circulaire en fonction de la densité atomique moyenne.*

De telles simulations n'ont pas été faites pour des atomes ayant un numéro atomique plus élevé du fait de la complexité de la prise en compte de tous les électrons ionisés lors de l'interaction : en particulier, pour l'argon et sous un éclairement de 10^{16} W/cm^2, il y a de l'ordre de 7 à 8 électrons par atome qui peuvent être libérés. Une tendance générale peut néanmoins être extraite de ces résultats : plus la densité atomique augmente et plus la vitesse quadratique moyenne des électrons tend à être égale pour les deux types de polarisation (linéaire et circulaire). En particulier, pour une densité atomique proche de celle de l'agrégat (~ 10^{21} at. / cm^3), une extrapolation de ces résultats tendrait à montrer que les vitesses quadratiques moyennes des électrons sont égales en polarisation linéaire et circulaire. Ainsi, les températures associées à ces distributions énergétiques seraient du même ordre de grandeur avec ces deux polarisations, ce qui pourrait expliquer que l'émission X est peu ou pas sensible à la polarisation. Des calculs plus complets doivent cependant être menés avec cette fois – ci des atomes d'argon afin de vérifier que le comportement observé pour les atomes d'hélium reste identique.

Néanmoins, même si ces simulations Monte – Carlo prédisent des températures électroniques assez identiques quelque soit l'état de la polarisation du laser, elles ne permettent pas de comprendre l'apparente sélectivité sur la production des différents états de charge : la production d'Ar^{16+} est totalement insensible à la polarisation du laser alors que la production d'Ar^{12+} est divisée par deux avec une polarisation circulaire par rapport à une polarisation linéaire. Ceci signifie donc que l'épluchage en couche L des ions dépend assez fortement de la polarisation du laser alors que la production de lacune en couche K est semblable pour une polarisation linéaire et une polarisation circulaire (différence dans les taux absolu d'X de seulement 20 %).

D] Effet de l'éclairement laser *via* l'énergie par impulsion

D-1] Introduction

Le modèle dynamique d'ionisation en couche interne présenté §IV-B prévoit une évolution du taux absolu de photons X avec l'éclairement laser uniquement déterminé par le volume focal effectif : le taux de photons X augmente comme le nombre d'agrégats émettant le rayonnement X et contenus dans ce volume. Le volume focal effectif (formule [IV-B.8]) est déterminé par un seuil en éclairement pour la production de rayonnement X situé vers $\mathbf{(2-4)\times10^{16}}$ $\boldsymbol{W/cm^2}$ pour l'argon et vers $\mathbf{(4-6)\times10^{16}}$ $\boldsymbol{W/cm^2}$ pour le xénon sous l'hypothèse de l'unique chauffage des électrons par le champ électrique du laser. Nous avons donc voulu effectuer des mesures précises de l'évolution du taux de photons X en fonction de l'éclairement laser et plus spécifiquement déterminer la valeur de l'éclairement seuil pour infirmer ou confirmer les hypothèses du modèle dynamique. Dans ce but, nous avons utilisé comme système de focalisation une lentille convergente et non une parabole hors axe comme lors des études précédentes afin d'obtenir des éclairements laser inférieurs à 10^{17} W/cm^2.

D-2] Présentation des résultats expérimentaux

L'étude de l'évolution du taux absolu de photons X en fonction de l'éclairement laser (*via* l'énergie par impulsion) a été réalisée plus spécifiquement pour les agrégats d'argon et de xénon à une durée d'impulsion de 50 – 60 *fs* et pour une longueur d'onde de 800 *nm*. L'effet des autres paramètres expérimentaux sur la position du seuil en éclairement comme la taille des agrégats, la durée d'impulsion et la longueur d'onde, sera exposé dans les paragraphes suivants.

D-2-a) Agrégats d'argon

Les mesures expérimentales de l'évolution du taux absolu d'X (dans 4π et par tir laser) avec l'éclairement laser sont présentées sur la *Figure IV-6* pour lesquelles les conditions expérimentales sont récapitulées dans le *Tableau IV-7*[5].

[5] Cette série de mesures a été obtenue lors de la campagne d'expériences de 2001 avec écorceur et pour une distance entre la buse de condensation (d = 300 μm) et la zone d'interaction de 500 *mm*.

Pression	$P_0 = 40$ *bars*	Taille d'agrégats	N = $2{,}8\times10^5$ atomes
Durée mesurée	$\Delta t = 56$ *fs*	Durée effective[6]	$2.\tau_{eff.} = 65$ *fs*
Longueur d'onde	$\lambda = 800$ *nm*	Densité atomique moyenne	$n_{at.moy.} \sim 1{,}7\times10^{15}$ *at / cm³*

Tableau IV-7 : Conditions expérimentales de la courbe en éclairement de la Figure IV-6 obtenue avec des agrégats d'argon.

Entre 2×10^{15} *W/cm²* et 5×10^{15} *W/cm²*, le taux absolu de photons X augmente fortement (de plus de deux ordres de grandeur) puis, pour un éclairement laser supérieur à 5×10^{15} *W/cm²*, l'évolution est plus lente et suit globalement une loi en $I^{3/2}$. Cette dépendance en $I^{3/2}$ est parfaitement en accord avec les premières expériences réalisées pour des éclairements laser supérieurs à 10^{17} *W/cm²* (*cf.* Chapitre I : §I-D-3). Précisons également que les trois détecteurs donnent un taux absolu de photons X identique comme nous pouvons le voir sur la *Figure IV-6* pour un éclairement laser compris entre 10^{16} *W/cm²* et 10^{17} *W/cm²*. La courbe en traits pleins de la *Figure IV-6* représente l'évolution du volume focal effectif moyennée temporellement sur toute l'impulsion (formule [IV-B.8]) avec un éclairement seuil de $1{,}9\times10^{15}$ *W/cm²*. Le taux absolu de photons X suit exactement l'évolution de ce volume focal sur près de 5 ordres de grandeur dans le taux de comptage des photons X. Par contre, l'éclairement seuil obtenu expérimentalement est beaucoup plus faible que celui attendu dans le cadre du modèle dynamique d'ionisation en couche interne qui prévoyait un éclairement d'apparition du rayonnement X supérieur d'un ordre de grandeur : au minimum de l'ordre de $2{,}6\times10^{16}$ *W/cm²* et indiqué par la courbe en traits pointillés sur la *Figure IV-6*. Pour un éclairement laser de $1{,}9\times10^{15}$ *W/cm²*, l'énergie maximale d'oscillation des électrons dans le champ laser est de 230 *eV* (*cf. Tableau IV-8*) ; le chauffage des électrons uniquement induit par le champ électrique du laser ne peut donc pas expliquer la production de lacunes en couche interne à ces éclairements laser : il est nécessaire de faire appel à d'autre(s) mécanisme(s) de chauffage des électrons. Précisons que l'unique effet du champ laser à ces éclairements laser (ionisation par effet tunnel et / ou multiphotonique) ne peut expliquer la présence d'états de charge élevée (Ar^{16+} par exemple) et *a fortiori* la présence de lacune en couche K.

[6] La durée effective de l'impulsion laser est la durée d'impulsion intervenant dans le calcul de l'éclairement laser dans la formule [II-B.1] et qui tient compte des aberrations temporelles introduites par la lentille.

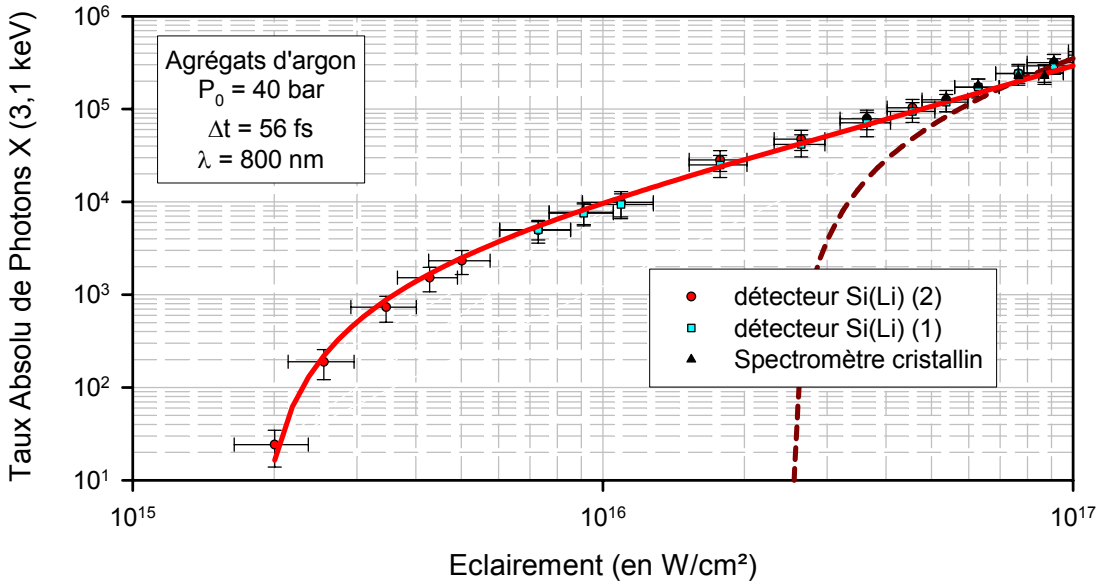


***Figure IV-6 :** Évolution du taux absolu de photons X de 3,1 keV avec l'éclairement laser (via l'énergie par impulsion) pour des agrégats d'argon (les conditions expérimentales sont présentées dans le Tableau IV-7).*

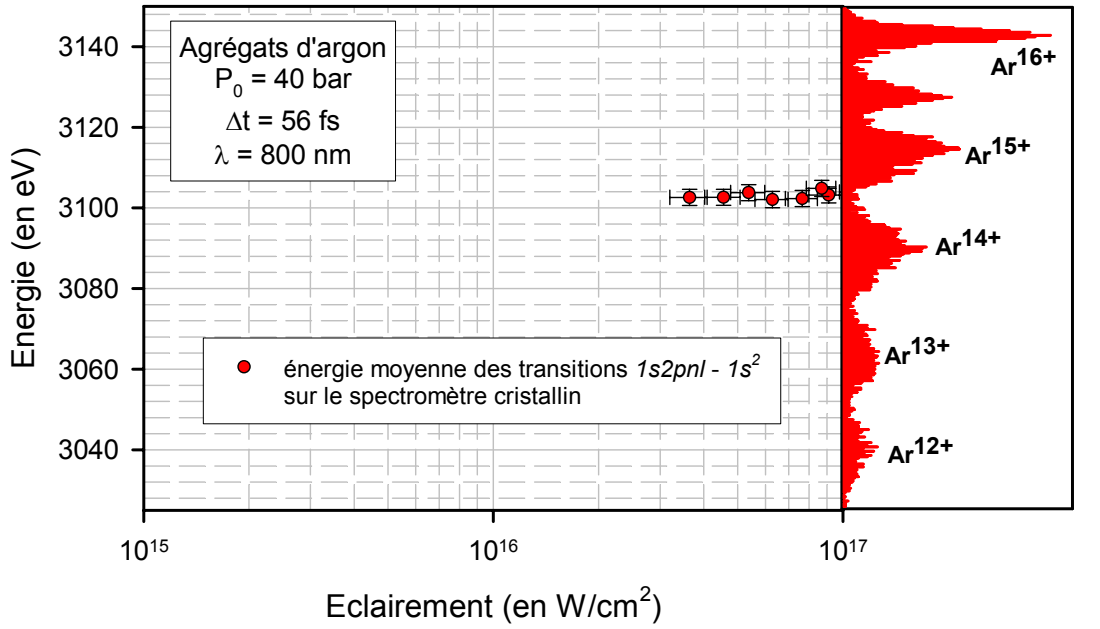


***Figure IV-7 :** Énergie moyenne des transitions 1s2pnl → $1s^2$ pour les ions argon ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ et pour un éclairement laser supérieur à quelques 10^{16} W/cm² (les conditions expérimentales sont présentées dans le Tableau IV-7).*

Durée mesurée Δt	Durée effective $2.\tau_{eff.}$	Éclairement seuil expérimental[7]	Énergie seuil mesurée	$2.Up$
56 *fs*	65 *fs*	$1{,}9\times10^{15}$ *W/cm²*	~ 1,0 *mJ*	~ 230 *eV*

***Tableau IV-8 :** Valeurs expérimentales de l'éclairement seuil et de l'énergie laser mesurée correspondante pour P_0 = 40 bars d'argon (N = $2{,}8\times10^5$ atomes) – λ = 800 nm.*

[7] Le calcul de l'éclairement laser dans ce chapitre tient compte systématiquement du facteur 0,45 entre l'énergie mesurée et l'énergie effective dans la tâche focale participant réellement à l'éclairement laser maximum.

Si l'on s'intéresse maintenant à l'évolution de la distribution d'états de charge des ions émettant le rayonnement X en fonction de l'éclairement laser, qui est déterminé précisément à l'aide du spectromètre cristallin (transitions $1s2pnl \rightarrow 1s^2nl$ des ions Ar^{q+} avec $12 < q < 16$), on montre que :

- dans le régime en $I^{3/2}$, l'état de charge moyen est égal à 14,5+ et reste constant sur toute cette gamme en éclairement comme l'illustre la *Figure IV-7*. Ceci traduit une saturation de l'épluchage en couche L des ions ayant une lacune en couche interne (K).
- à proximité du seuil en éclairement, l'état de charge moyen des ions est modifié comme l'illustre la *Figure IV-8* pour d'autres conditions expérimentales[8] (agrégats d'argon, $P_0 = 20$ *bars*, $n_{at.moy.} = 1{,}6\times10^{18}$ *at / cm³*). L'énergie moyenne des X_K passe de $(3083{,}0 \pm 2{,}2)$ *eV* pour un éclairement de $2{,}1\times10^{15}$ *W/cm²* à $(3096{,}6 \pm 1{,}6)$ *eV* pour $I = 4{,}2\times10^{15}$ *W/cm²* puis reste constante au dessus de cette intensité laser. Les spectres haute résolution correspondants à ces conditions expérimentales sont présentés sur la *Figure IV-9*. Ils mettent en évidence la grande sensibilité de la distribution en état de charge des ions ayant une lacune en couche K au voisinage du seuil en éclairement (dans ces conditions expérimentales, $I_{seuil} = 1{,}4\times10^{15}$ *W/cm²*). On observe ainsi une très nette diminution de la proportion des états de charge élevée (Ar^{15+} et Ar^{16+}). Ceci indique clairement une disparition progressive des différents états de charge à proximité du seuil en éclairement à partir de l'Ar^{16+} et non une extinction massive de tous les états de charge au voisinage du seuil.

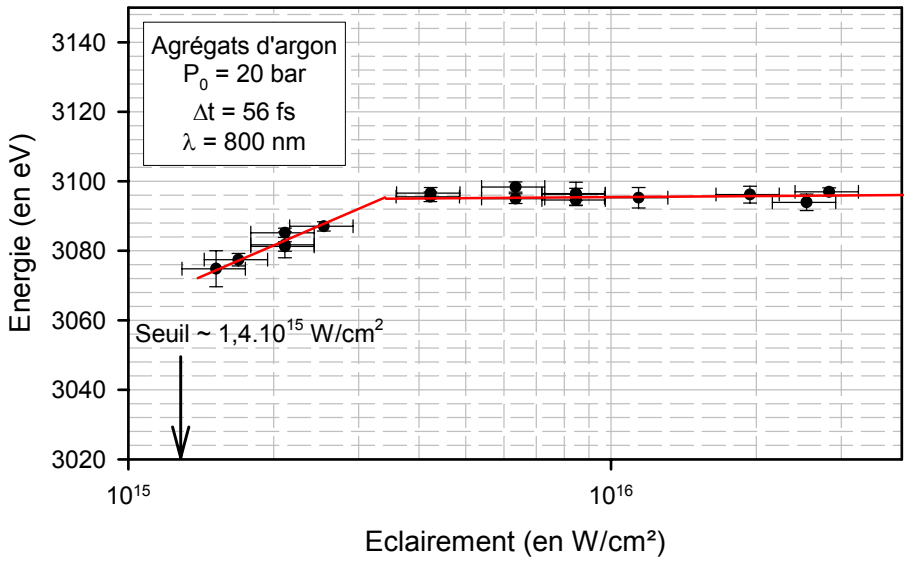


Figure IV-8 : Énergie moyenne des transitions $1s2pnl \rightarrow 1s^2$ pour les ions argon ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ pour un éclairement laser supérieur à 10^{15} W/cm².

[8] En particulier, cette série de mesures a été obtenue lors de la campagne d'expériences de 2002 sans écorceur et pour une distance entre la sortie de la buse de condensation (d = 1000 μm) et la zone d'interaction de 13 *mm*.

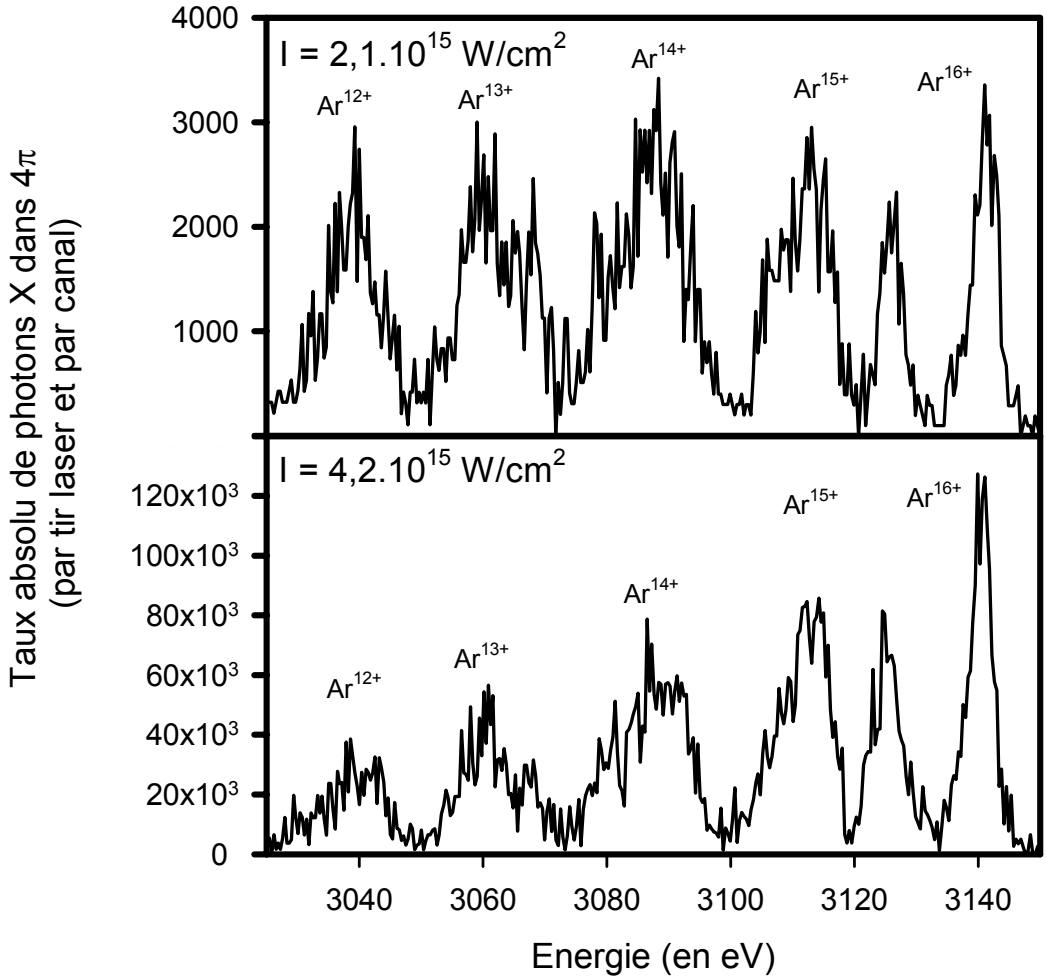


***Figure IV-9 :** Spectres haute résolution (transitions 1s2pnl → 1s²nl) pour des ions ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ pour deux éclairements laser (les autres conditions expérimentales sont identiques à celles de la Figure IV-8).*

En résumé, les mesures obtenues en fonction de l'éclairement laser avec des agrégats d'argon montrent :

- une évolution du taux absolu de photons X qui suit, **quelque soit l'éclairement laser**, le volume focal effectif avec une brusque augmentation du taux d'X à proximité de I_{seuil} puis une évolution plus lente pour un éclairement plus grand (loi en $I^{3/2}$).
- un état de charge moyen qui augmente à proximité du seuil en éclairement puis qui sature dans le régime en $I^{3/2}$.
- un éclairement seuil d'apparition du rayonnement X compris entre 1 et 2×10^{15} W/cm^2 pour une durée d'impulsion de 50 – 60 *fs*, soit un seuil plus faible d'un ordre de grandeur que celui prévu en considérant uniquement comme mode de chauffage l'oscillation des électrons dans le champ laser.

D-2-b) Agrégats de xénon

L'évolution du taux absolu de photons X de 4,4 *keV* avec l'éclairement laser pour les agrégats de xénon est présentée sur la *Figure IV-10*[9]. Cette évolution suit, là encore, le volume focal effectif, moyenné temporellement sur l'impulsion laser, sur plus de 5 ordres de grandeurs dans le taux de comptage pour un éclairement laser compris entre quelques 10^{15} W/cm^2 et 10^{17} W/cm^2. Comme pour les agrégats d'argon, nous observons une augmentation rapide du taux de photons X à proximité du seuil en éclairement qui est ici de $2{,}4\times10^{15}$ W/cm^2 puis une évolution plus lente en $I^{3/2}$ au dessus de 5×10^{15} W/cm^2. De la même façon que pour les agrégats d'argon, le seuil en éclairement expérimental est beaucoup plus faible que celui attendu en considérant uniquement l'oscillation des électrons dans le champ laser qui ont, à cette intensité laser, une énergie cinétique maximale de l'ordre de 290 *eV* (*cf. Tableau IV-10*).

Pression	$P_0 = 8{,}6$ *bars*	Taille d'agrégats	N = $9{,}8\times10^5$ atomes
Durée mesurée	$\Delta t = 50 - 60$ *fs*	Durée effective	$2.\tau_{eff.} = 60 - 70$ *fs*
Longueur d'onde	$\lambda = 800$ *nm*	Densité atomique moyenne	$n_{at.moy.} \sim 6{,}9\times10^{17}$ *at / cm³*

Tableau IV-9 : Conditions expérimentales de la courbe en éclairement de la Figure IV-10 obtenue avec des agrégats de xénon.

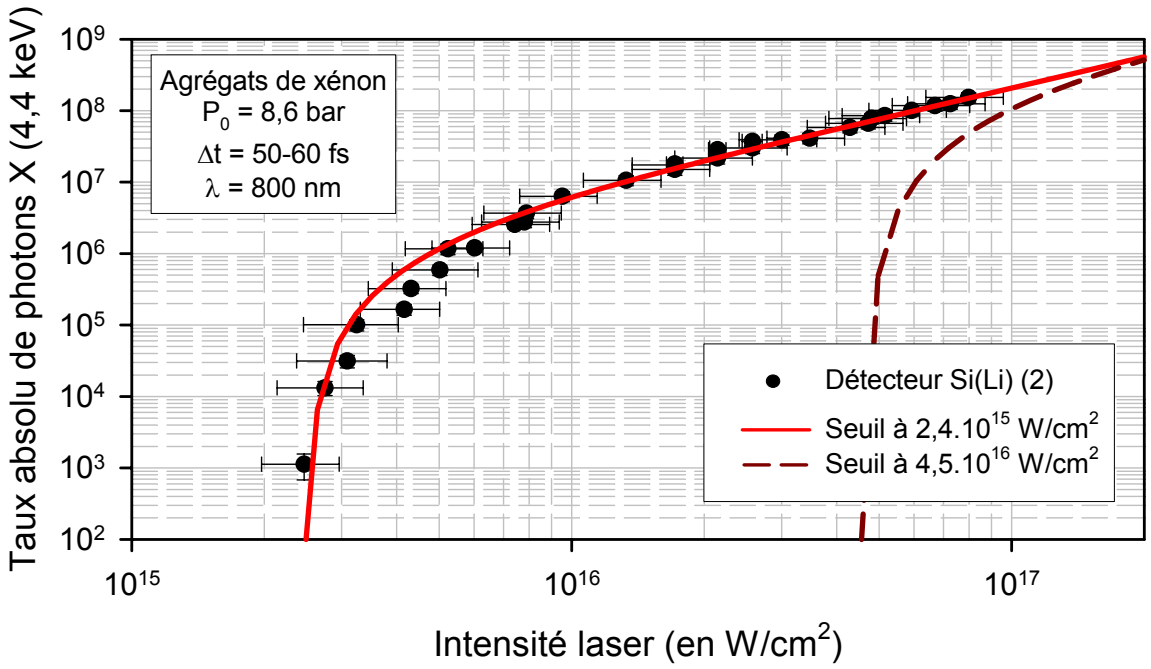


Figure IV-10 : Évolution du taux absolu de photons X de 4,4 keV avec l'éclairement laser (via l'énergie par impulsion) pour des agrégats de xénon (les conditions expérimentales sont présentées dans le Tableau IV-9).

[9] Cette série de mesures a été obtenue lors de la campagne d'expériences de 2002 sans écorceur et pour une distance entre la sortie de la buse de condensation (d = 1000 μm) et la zone d'interaction de 13 *mm*.

Durée mesurée Δt	Durée effective $2.\tau_{eff.}$	Éclairement seuil expérimental	Énergie seuil mesurée	$2.Up$
50 – 60 *fs*	60 – 70 *fs*	$2{,}4\times10^{15}$ *W/cm²*	~ 1,1 *mJ*	~ 290 *eV*

***Tableau IV-10 :** Valeurs expérimentales de l'éclairement seuil et de l'énergie laser mesurée correspondante pour P_0 = 8,6 bars de xénon ($N = 1{,}6\times10^5$ atomes) – λ = 800 nm.*

D-3] Interprétations et discussions

D-3-a) Validité de l'évolution du volume focal effectif dans nos conditions expérimentales

La présence d'un éclairement seuil de production de rayonnement X très bas ($I_{seuil} \sim 2\times10^{15}$ *W/cm²*) peut se traduire, à très fort éclairement, par une limitation du volume focal effectif par le jet d'agrégats. En d'autres termes, avec un tel éclairement seuil, le volume focal effectif peut devenir plus grand que l'expansion longitudinale du jet pour $I >> I_{seuil}$ et des inhomogénéités de la densité d'agrégats peuvent avoir lieu dans ce volume ; c'est ce point que nous avons examiné et qui est détaillé ici.

La *Figure IV-11* présente l'expansion transverse (suivant ρ) et longitudinale (suivant z) du volume focal effectif pour des éclairements laser compris entre 10 et 50 fois l'éclairement seuil dans un plan de symétrie du système, soit pour I compris entre 2×10^{16} *W/cm²* et 10^{17} *W/cm²*.

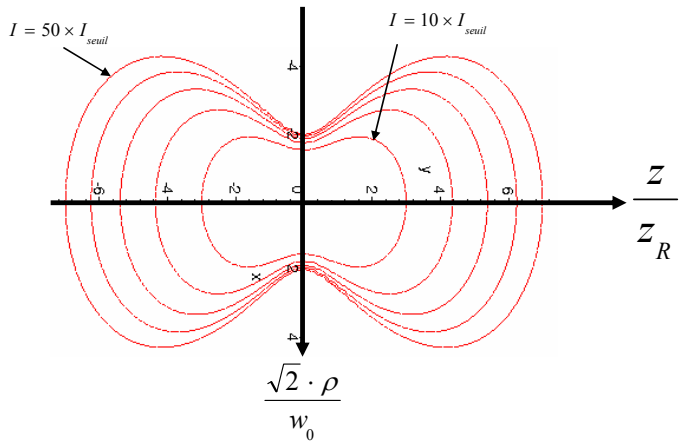


***Figure IV-11 :** Évolution transverse et longitudinale du volume focal effectif pour plusieurs éclairements laser.*

Pour un éclairement laser de 10^{17} *W/cm²* ($I = 50 \times I_{seuil}$), l'expansion longitudinale du volume focal atteint plus de 10 fois la longueur de Rayleigh ($z_R = 0{,}95$ *mm*), soit une distance de l'ordre de 1 *cm* dans nos conditions expérimentales. Par contre, pour un éclairement de 2×10^{16} *W/cm²* ($I = 10 \times I_{seuil}$), l'expansion du volume focal est plus petite (~ 0,5 *cm*) comme cela est illustré sur la *Figure IV-12*.

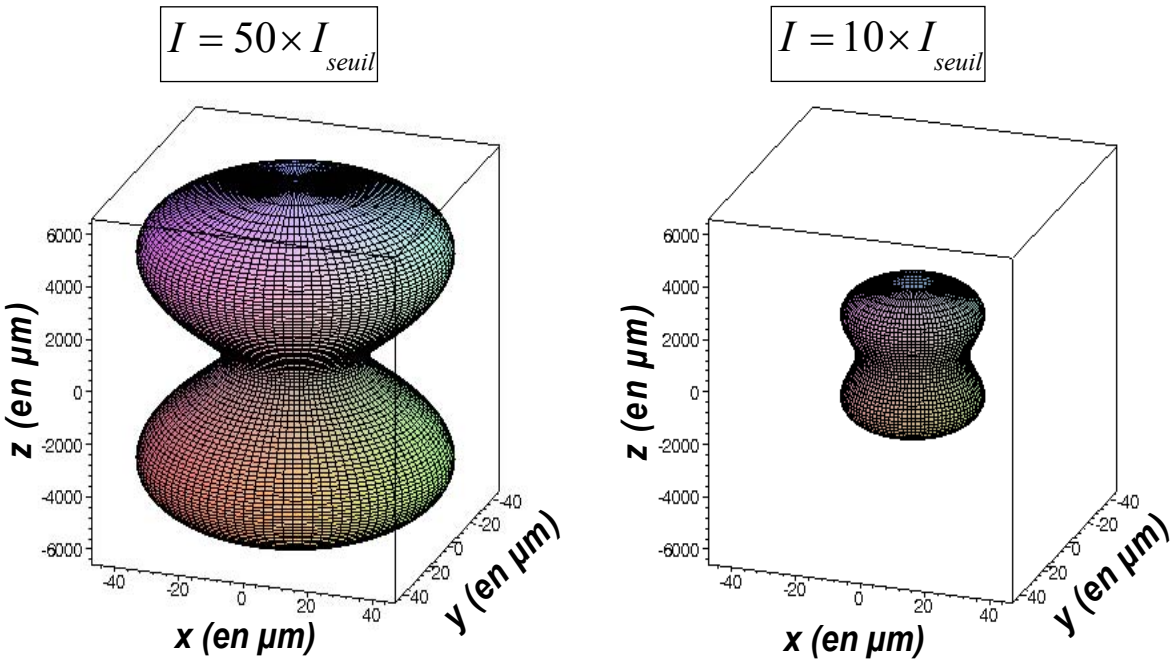


***Figure IV-12 :** Volume focal effectif dans nos conditions expérimentales (z_R = 0,95 mm et w_0 = 15,55 µm) pour deux éclairements laser.*

L'émission X se produisant, au maximum, sur 1 *cm* comme nous venons de le voir, il est légitime de s'interroger sur l'évolution de ce volume focal lorsque le jet limite le nombre d'agrégats participant à l'émission X sur une distance ℓ comme cela est illustré d'une manière schématique sur la *Figure IV-13*.

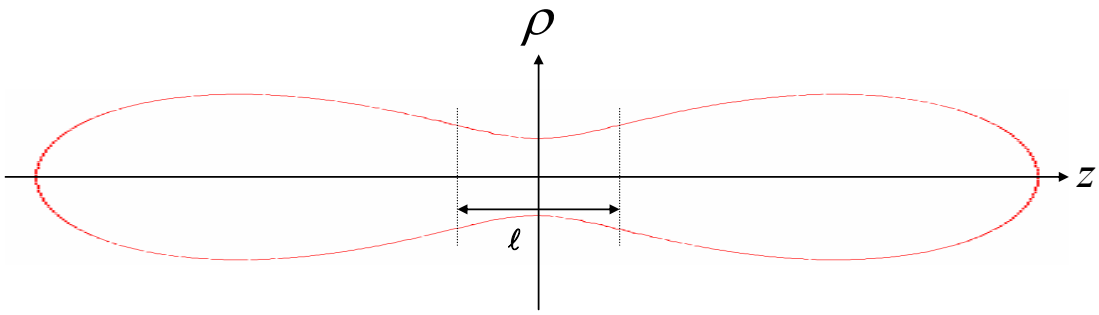


***Figure IV-13 :** Représentation schématique du volume focal effectif limité sur une longueur ℓ.*

Dans ces conditions, la courbe d'iso intensité correspondant à l'éclairement seuil est donnée, en première approximation, par [Posthumus, 2001] :

$$\rho^2(I_{seuil}, I) = \frac{w_0^2}{2} \ln\left(\frac{I}{I_{seuil}}\right) \qquad \textbf{[IV-D.1]}$$

Le volume focal effectif s'exprime alors suivant la relation :

$$V_{foc.eff.}(I >> I_{seuil}) = \frac{\pi}{2} \times \ell \times w_0^2 \times \ln\left(\frac{I}{I_{seuil}}\right) \qquad \textbf{[IV-D.2]}$$

avec ℓ l'expansion longitudinale du jet d'agrégats et w_0 le "beam – waist". Ainsi, à grand éclairement, le taux absolu de photons X ne devrait plus suivre une loi en $I^{3/2}$ mais une évolution en $\ln\left(\frac{I}{I_{seuil}}\right)$. Cette évolution n'étant pas observée, on peut raisonnablement conclure que, pour nos conditions expérimentales, la densité d'agrégats reste uniforme dans tout le volume focal (*i.e.* le jet d'agrégats ne limite pas l'évolution du volume focal effectif).

D-3-b) Conséquence sur l'optimisation du taux absolu d'X

Pour une durée d'impulsion donnée, nos études en fonction de l'éclairement laser montrent que le taux absolu de photons X suit, sur plusieurs ordres de grandeur, le volume focal effectif avec un seuil de production de rayonnement X très bas (de l'ordre de quelques 10^{15} *W/cm²*). Ce résultat fondamental a une conséquence directe sur l'optimisation du taux d'X en vue d'applications ultérieures. En effet, il est nécessaire, afin d'obtenir un taux d'X le plus grand possible, de maximiser ce volume focal qui dépend, pour une énergie laser donnée et une durée d'impulsion fixe, du "beam – waist" w_0 suivant la relation :

$$V_{eff.foc.} = \pi \cdot w_0^2 \cdot z_R \left\{ \frac{4}{3} \cdot \left(\frac{I(w_0)}{I_{seuil}} - 1 \right)^{1/2} + \frac{2}{9} \cdot \left(\frac{I(w_0)}{I_{seuil}} - 1 \right)^{3/2} - \frac{4}{3} \cdot arctg\left(\frac{I(w_0)}{I_{seuil}} - 1 \right)^{1/2} \right\} \textbf{[IV-D.3]}$$

Nous avons tracé sur la *Figure IV-14*, l'évolution de ce volume focal[10], pour plusieurs énergies par impulsion, en fonction de w_0 ($I_{seuil} = 2\times10^{15}$ *W/cm²* et $2.\tau_{eff.} = 50$ *fs*). Cette figure illustre la présence d'un optimum dans le volume focal qui est obtenu pour une largeur du faisceau laser (w_0) de 30 μm avec une impulsion laser contenant 10 *mJ* et de 100 μm avec une impulsion laser de 100 *mJ*. Ces valeurs sont, d'ailleurs, plus grandes que la largeur du faisceau laser au foyer de la lentille sur notre dispositif expérimental (w_0 = 15,55 μm); il serait donc encore possible d'augmenter le taux absolu d'X en augmentant w_0 c'est à dire **en augmentant la distance focale de la lentille**.

[10] Sur ces figures, le volume focal n'est pas moyenné temporellement sur l'impulsion.

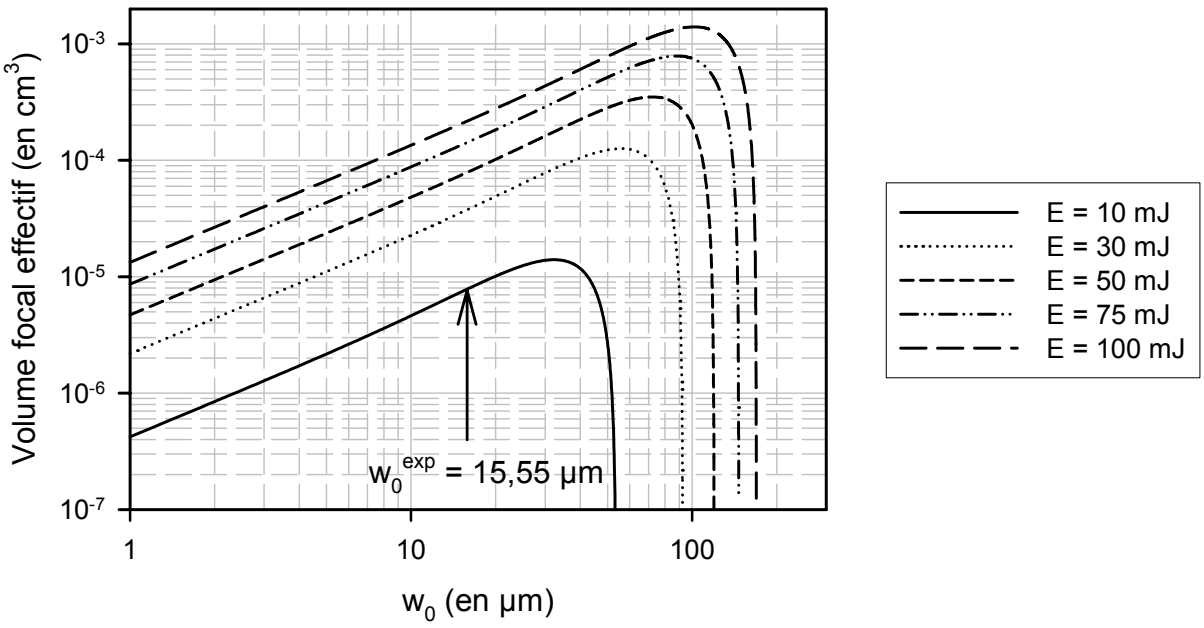


***Figure IV-14 :** Évolution du volume focal effectif avec la largeur du faisceau laser au foyer (w_0) pour un éclairement seuil de 2×10^{15} W/cm^2 et $2.\tau_{eff.} = 50$ fs. Ces courbes ont été tracées pour plusieurs énergies par impulsion entre 10 mJ et 100 mJ.*

Cet effet est d'autant plus accentué que l'intensité seuil d'apparition des X est faible comme l'illustre très bien la *Figure IV-15* où est reportée l'évolution du volume focal effectif en fonction de w_0 pour deux valeurs d'éclairement seuil et pour une énergie de 50 *mJ*.

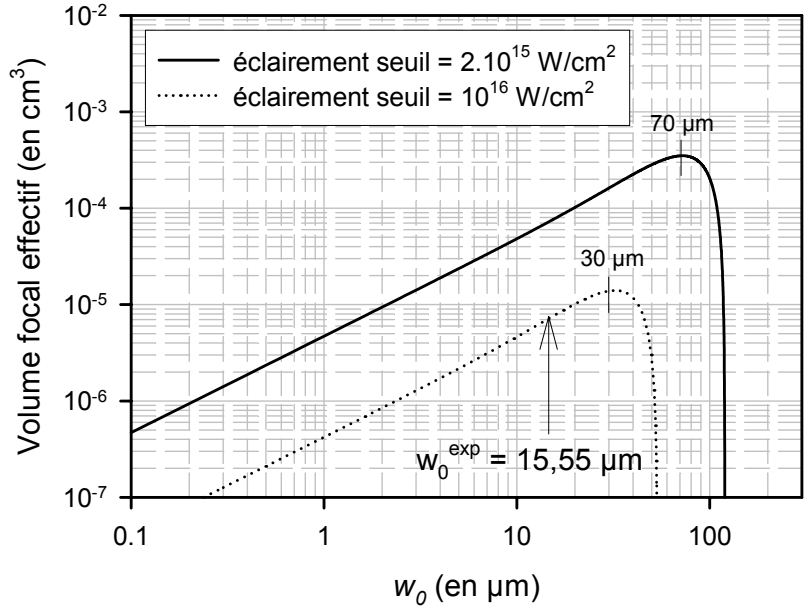


***Figure IV-15 :** Évolution du focal effectif en fonction de la largeur du faisceau laser au foyer (w_0) pour un éclairement seuil de 2×10^{15} W/cm^2 et de 10^{16} W/cm^2 ($E = 50$ mJ et $2.\tau_{eff.} = 50$ fs).*

En conclusion, une défocalisation du faisceau laser permettrait d'optimiser le taux d'émission X en maximisant le volume focal c'est – à – dire en maximisant le nombre d'ions multichargés ayant une lacune en couche interne. Ceci doit se faire en contrôlant la distance focale de la lentille par rapport à l'expansion longitudinale du jet d'agrégats comme nous

l'avons vu précédemment. Ce résultat est en contradiction avec l'idée qui prévalait, jusqu'alors, dans le domaine de l'interaction laser intense – agrégats selon laquelle une émission X intense était associée à la présence d'un éclairement laser maximum au niveau de la zone d'interaction.

D-3-c) Évolution de la probabilité d'ionisation

La probabilité d'ionisation en couche interne est reliée à la probabilité d'émission X *via* le rendement moyen de fluorescence $\overline{\omega}$:

$$P_{ionisation} = \frac{P_{émission\ X}}{\overline{\omega}} \qquad \textbf{[IV-D.4]}$$

La probabilité d'émission X se détermine facilement à partir des données expérimentales suivant la relation :

$$P_{émission\ X} = \frac{N_X}{N_{atomes\ ds\ vol.foc.eff.}} \qquad \textbf{[IV-D.5]}$$

avec N_X le taux absolu de photons X émis dans 4π et $N_{atomes\ ds\ vol.foc.eff.}$ le nombre d'atomes émettant le rayonnement X. On peut **estimer** ce nombre d'atomes émetteurs à partir de la densité atomique moyenne d'après la relation :

$$N_{atomes\ ds\ vol.foc.eff.} = n_{at.moy.} \times V_{foc.eff.}(I > I_{seuil}) \qquad \textbf{[IV-D.6]}$$

avec $n_{at.moy.}$ la densité atomique moyenne donnée par la formule [II-C.18b] et $V_{foc.eff.}(I > I_{seuil})$ le volume focal effectif calculé à partir de la formule [IV-B.8].

Calculons maintenant cette probabilité d'ionisation dans le cas des agrégats d'argon d'après les mesures expérimentales qui ont été présentées sur la *Figure IV-6*. Pour les agrégats de xénon, le rendement de fluorescence moyen $\overline{\omega}$ est trop entaché d'erreurs et d'incertitudes pour pouvoir obtenir une valeur significative de la probabilité d'ionisation. Dans ces conditions expérimentales, nous avons :

- un taux absolu de photons X : $N_X = 10^4\ h\nu$ pour un éclairement de $10^{16}\ W/cm^2$;
- une densité atomique moyenne : $n_{at.moy.} = 1{,}7 \times 10^{15}\ at/cm^3$ (*cf. Tableau IV-7*);

- un volume focal effectif moyen[11] à un éclairement de 10^{16} W/cm^2 et pour un éclairement seuil de $1{,}9\times10^{15}$ W/cm^2 : $V_{foc.eff.}(I > I_{seuil}) \approx 1{,}2\times10^{-6}\ cm^3$. Notons que l'on a de l'ordre de $7{,}1\times10^3$ agrégats dans ce volume focal effectif (en supposant un taux de condensation de 100 %).

Ainsi : $N_{atomes\ ds\ vol.foc.eff.} \approx 2\times10^9$ atomes, ce qui donne alors une probabilité d'émission X :

$$P_{émission\ X} \approx \frac{10^4}{2\times10^9} \approx 5\times10^{-6} \qquad \textbf{[IV-D.7]}$$

En considérant un rendement moyen de fluorescence en couche K $\overline{\omega} = 0{,}35$ pour un état de charge moyen de 14,5+, la probabilité d'ionisation en couche interne vaut ainsi :

$$P_{ionisation} \approx \frac{5\times10^{-6}}{0{,}35} \approx 10^{-5} \qquad \textbf{[IV-D.8]}$$

D'après les considérations énoncées précédemment, cela implique que la probabilité d'ionisation est indépendante de l'éclairement laser car :

$$P_{ionisation} \propto \frac{N_X \propto V_{foc.eff.}(I > I_{seuil})}{N_{atomes\ ds\ vol.foc.eff.} \propto V_{foc.eff.}(I > I_{seuil})} = cste \qquad \textbf{[IV-D.9]}$$

Ceci est une conséquence du modèle dynamique d'ionisation en couche interne qui suppose intrinsèquement indépendant de l'éclairement laser la section efficace d'ionisation ou d'excitation, le nombre d'électrons participant à l'ionisation en couche interne et le rendement de fluorescence moyen une fois que l'éclairement seuil a été dépassé.

Examinons maintenant comment évolue le taux absolu de photons X si on considère que cette probabilité d'ionisation varie avec l'éclairement laser une fois que l'éclairement seuil est dépassé (*cf.* *Figure IV-16*). Il a été récemment proposé [Caillaud, 2004] une évolution de la probabilité d'ionisation de la forme suivante :

$$P_{ionisation} \propto \frac{N_X}{N_{atomes\ ds\ vol.foc.eff.}} \propto \left(\frac{I}{I_{seuil}}\right)^{\alpha} \qquad \textbf{[IV-D.10]}$$

alors : $$N_X \propto \left(\frac{I}{I_{seuil}}\right)^{\alpha} \times N_{atomes\ ds\ vol.foc.eff.} \qquad \textbf{[IV-D.11]}$$

[11] Ce volume focal effectif est calculé à partir de la formule [IV-B.8] que nous avons moyennée sur toute la durée de l'impulsion laser.

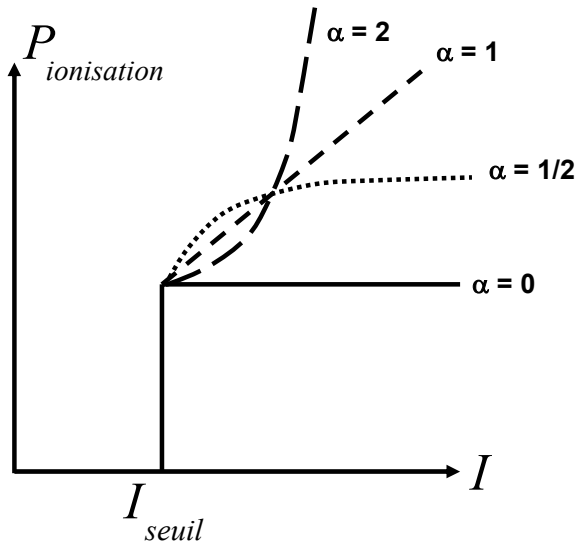


***Figure IV-16 :** Évolution de la probabilité d'ionisation avec l'éclairement laser en fonction du paramètre α (voir texte).*

Si on s'intéresse à un volume focal effectif élémentaire $dV_{foc.eff.}$, alors le taux d'X émis par ce volume est donné par :

$$dN_X \propto \left(\frac{I}{I_{seuil}}\right)^{\alpha} \times n_{at.moy.} \times dV_{foc.eff.} \qquad \textbf{[IV-D.12]}$$

avec $n_{at.moy.}$ la densité atomique moyenne (formule [II-C.18b]). Le taux absolu de photons X devient alors, en intégrant dans tout l'espace où l'éclairement laser est supérieur à l'éclairement seuil :

$$N_X \propto \iint_{\frac{I}{I_{seuil}}>1} \left(\frac{I(\rho,z)}{I_{seuil}}\right)^{\alpha} \times 2\pi \cdot \rho\left(I_{seuil}, I\right) \cdot d\rho \cdot dz \qquad \textbf{[IV-D.13]}$$

Cette expression est identique à celle qui a été calculée précédemment pour $\alpha = 0$ (*cf.* formule [IV-B.8] du volume focal effectif). Cette quantité a été évaluée pour plusieurs valeurs de α et nous donnons les expressions particulières en posant :

$$x = \frac{I}{I_{seuil}} \qquad \text{et } \beta = \sqrt{x-1} \qquad \textbf{[IV-D.14]}$$

- pour $\alpha = 0$: (formule identique à [IV-B.8])

$$N_X \propto \left(-\frac{4}{3}.\arctan\beta + \frac{4}{3}\cdot\beta + \frac{2}{9}\beta^3\right) \qquad \textbf{[IV-D.15a]}$$

- pour $\alpha = 1/2$:

$$N_X \propto \left(\frac{x\beta}{2} + \frac{x^{1/2}}{2}.\ln(\beta + x^{1/2}) - \beta - \frac{\beta^3}{3}\right) \qquad \textbf{[IV-D.15b]}$$

- pour $\alpha = 1$:

$$N_X \propto \beta^3 \qquad \textbf{[IV-D.15c]}$$

- pour $\alpha = 3/2$:

$$N_X \propto \left(x^{3/2} . \ln(\beta + x^{1/2}) - \beta - \frac{\beta^3}{3} \right) \qquad \textbf{[IV-D.15d]}$$

- pour $\alpha = 2$:

$$N_X \propto \left(x^2 . \arctan \beta - \beta - \frac{\beta^3}{3} \right) \qquad \textbf{[IV-D.15e]}$$

Ces différentes évolutions du taux d'X pour plusieurs valeurs du paramètre α sont tracées sur la *Figure IV-17* en comparaison avec les mesures expérimentales présentées sur la *Figure IV-6* (agrégats d'argon). Toutes les courbes ont été ajustées afin de reproduire au mieux l'évolution du taux d'X à proximité du seuil en éclairement (I_{seuil} compris entre $1{,}9\times10^{15}$ *W/cm²* et $2{,}1\times10^{15}$ *W/cm²* suivant la valeur du paramètre α).

Les courbes ayant un paramètre α compris entre 0 et 1 sont pratiquement indiscernables et elles reproduisent toutes nos mesures expérimentales de l'éclairement seuil vers 2×10^{15} *W/cm²* à 10^{17} *W/cm²*. Par contre pour $\alpha > 1$, il existe des différences majeures entre ces évolutions et les mesures expérimentales. En particulier, l'évolution suivant une loi en $I^{3/2}$ pour les grands éclairements laser devant l'éclairement seuil est difficile à reproduire dans ces conditions.

On peut donc conclure que si la probabilité d'ionisation évolue avec l'éclairement laser suivant une loi de puissance I^{α} au dessus du seuil alors cette évolution est au plus linéaire ($0 < \alpha < 1$). Par contre, une évolution plus rapide de la probabilité d'ionisation avec l'éclairement laser semble exclue à partir de nos mesures.

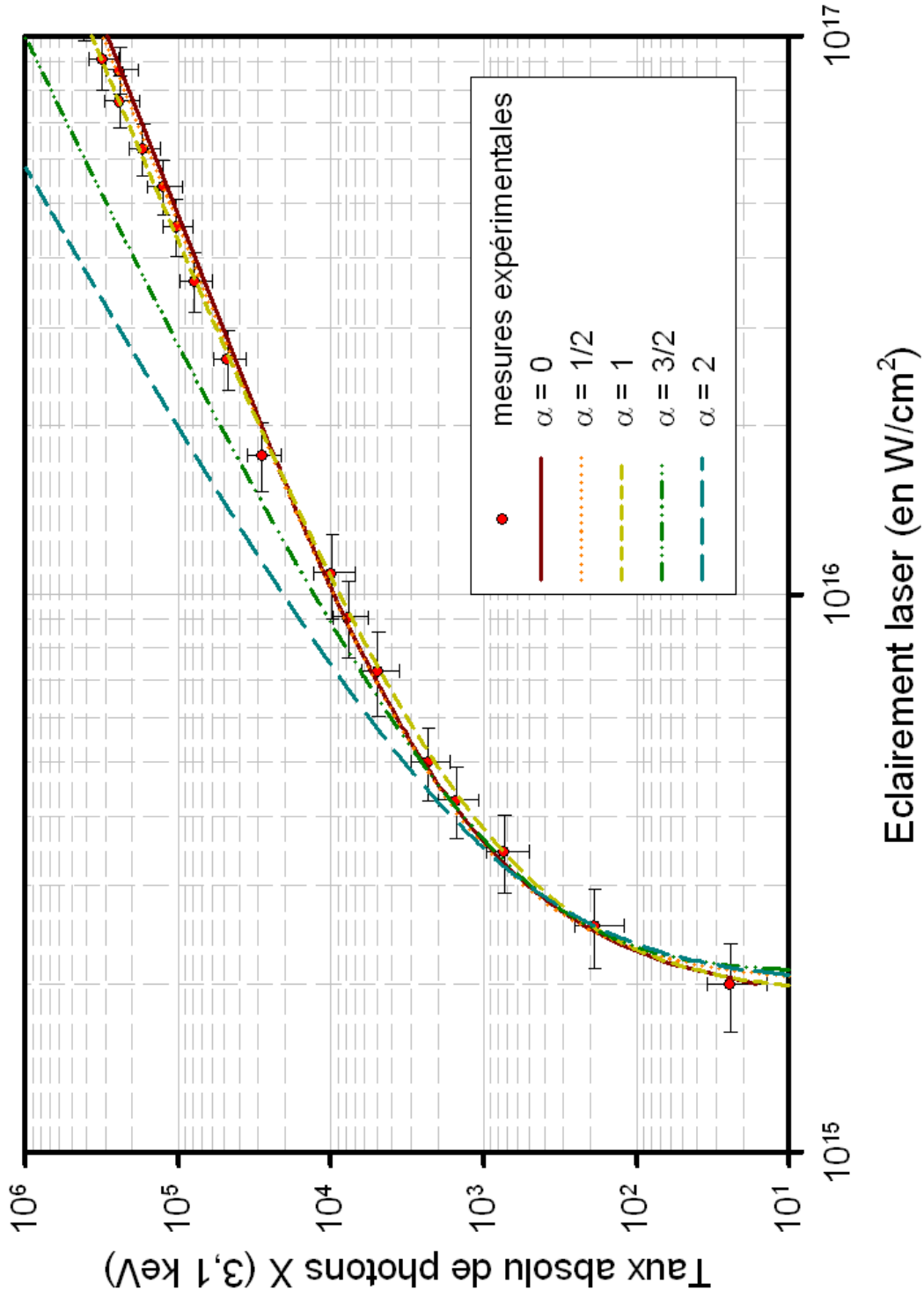


***Figure IV-17 :** Évolution du taux d'X suivant différentes lois d'évolution de la probabilité d'ionisation avec l'éclairement laser (voir texte) en comparaison avec les mesures expérimentales déjà présentées pour les agrégats d'argon[12] (Figure IV-6).*

[12] Campagne d'expériences 2001 avec écorceur et pour une distance entre la zone d'interaction et la buse de condensation de 500 *mm* (d = 300 μm).

D-3-d) Étude du comportement du code nanoplasma avec l'éclairement laser

Le modèle nanoplasma, qui est à l'heure actuelle le modèle le plus élaboré pour décrire l'interaction laser – agrégats, prend en compte, comme mécanisme de chauffage des électrons, l'oscillation des électrons dans le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat et le chauffage par Bremsstrahlung inverse *via* les collisions électrons – ions en présence d'un champ électrique comme cela a été décrit en détail dans le Chapitre I. Nous avons tracé sur la *Figure IV-18* l'évolution de la température électronique au cours de l'interaction pour plusieurs éclairements laser (entre 2×10^{15} W/cm^2 et 10^{17} W/cm^2) dans nos conditions expérimentales (P_0 = 40 *bars* d'argon soit $2{,}8\times10^5$ atomes, λ = 800 *nm* et Δt = 60 *fs*). Ces courbes ont été obtenues à l'aide du code nanoplasma décrit au Chapitre I et qui inclut les collisions électrons – surface. Quelque soit l'intensité laser (de 10^{15} W/cm^2 à 10^{17} W/cm^2), la température électronique moyenne lors de l'interaction ne dépasse jamais quelques centaines d'*eV* dans nos conditions expérimentales. Pour des intensités laser proches du seuil observé (~ quelques 10^{15} W/cm^2), la température électronique est même beaucoup plus faible que l'énergie maximale d'oscillation des électrons dans un champ électrique identique à celui du laser comme nous l'avons déjà signalé au Chapitre I : à 10^{16} W/cm^2, $2.Up \sim 1{,}2$ *keV* alors que les températures électroniques prédites par le modèle nanoplasma ne dépassent pas les 100 *eV* ! Ces températures électroniques extrêmement faibles pour ces éclairements laser sont dues principalement au fait que le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat est fortement écranté pendant une bonne partie de l'interaction réduisant d'autant le chauffage des électrons. Ceci est la conséquence d'une taille d'agrégat beaucoup plus grande que la taille optimale (*cf.* § I-C-1-d-7) ainsi que d'une durée d'impulsion trop faible pour que la seconde résonance se produise au moment où l'éclairement laser est encore important.

En chiffrant plus spécifiquement ces résultats et pour un éclairement laser inférieur à 10^{16} W/cm^2, soit pour des températures électroniques inférieures à 100 *eV*, on peut évaluer[13] le pourcentage d'électrons ayant une énergie cinétique supérieure à 3 *keV* de l'ordre de 10^{-10} %. En considérant un nombre d'électrons quasi – libres de l'ordre de 8 par atome au sein du nanoplasma soit au total $8\times(2{,}8\cdot10^5)$ électrons, le nombre d'électrons ayant une énergie cinétique supérieure à 3 *keV* est, dans ces conditions, inférieur à 2×10^{-4} par agrégat, soit

[13] Sous l'hypothèse d'une répartition énergétique des électrons suivant une distribution de Maxwell – Boltzmann comme c'est le cas dans le modèle nanoplasma.

$\sim 10^{-9}$ électrons énergétiques pouvant ioniser en couche K par atome ! Ceci ne peut en aucun cas prédire les probabilités d'ionisation que nous avons évaluées précédemment.

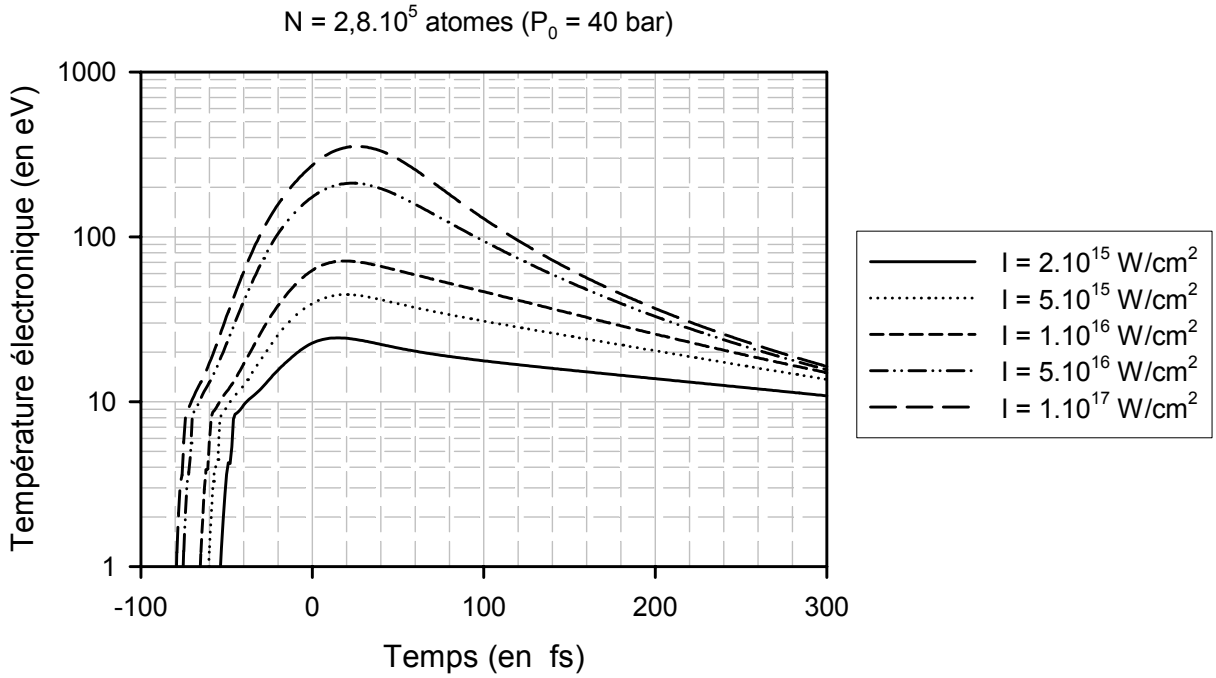


Figure IV-18 : Évolution de la température électronique au cours de l'interaction d'agrégats d'argon ($N = 2{,}8\times10^5$ atomes) avec une impulsion laser d'éclairement compris entre 2×10^{15} W/cm² et 10^{17} W/cm² ($\lambda = 800$ nm et $\Delta t = 60$ fs)

Ainsi, malgré le fait que le modèle nanoplasma décrit qualitativement l'évolution de l'énergie cinétique des ions (liée principalement à l'explosion de l'agrégat) avec l'éclairement laser comme nous l'avons vu en détail dans le §I-C-2-b, la dynamique d'ionisation et plus spécifiquement la dynamique d'ionisation en couche interne reste encore impossible à décrire à l'aide de ce type de code pour ces tailles d'agrégat ($> 10^4$ atomes) et cette durée d'impulsion ($50 - 60$ *fs*).

E] Effet de la taille des agrégats *via* la pression

Le modèle dynamique, traitant l'ionisation en couche interne suivant une approche collisionnelle, prédit une évolution du taux de photons X en fonction de la taille des agrégats, *via* la pression en amont de la buse condensation, approximativement en $P_0^{5/3}$. Les premiers travaux expérimentaux ont montré une telle évolution pour les agrégats d'argon et pour des grandes pressions (entre 15 *bars* et 45 *bars*) mais, pour les agrégats de krypton, une autre loi d'évolution a été observée en P_0^3 pour des pressions comprises entre typiquement 5 *bars* et 20 *bars*. Afin de tenter de rationaliser ces lois d'évolution disparates, nous avons étudié d'une manière plus systématique l'évolution du taux absolu de photons X en fonction de la pression, et cela pour plusieurs conditions expérimentales : nature du gaz (argon, xénon et krypton), avec la buse de condensation proche de la zone d'interaction (*i.e.* avec écorceur et grande densité atomique moyenne) et loin de la zone d'interaction (*i.e.* pas d'écorceur et faible densité atomique moyenne) et pour des éclairements laser dans le régime en $I^{3/2}$. Plus spécifiquement, la grande dynamique du système de détection X dans le taux de comptage nous a permis d'étudier le taux absolu de photons X issus de l'irradiation des agrégats sur une grande gamme de pression (entre quelques *bars* et plusieurs dizaines de *bars*) et cela quelque soit les conditions expérimentales. Parallèlement à ces études du taux absolu de photons X, nous avons également suivi la distribution en état de charge des ions émettant ce rayonnement X lors de ces différentes explorations.

E-1] Évolution du taux absolu de photons X avec la pression

L'évolution du taux absolu de photons X est présentée sur la *Figure IV-19* pour les agrégats d'argon et sur la *Figure IV-20* pour les agrégats de xénon ; les conditions expérimentales correspondantes sont récapitulées dans le *Tableau IV-11*. Ces deux séries de mesures ont été réalisées pour une distance entre la zone d'interaction et la buse de condensation de 13 *mm* et sans écorceur lors de la campagne d'expériences de 2002 (d = 1000 μm). Précisons que sur chacune de ces figures, il est présenté les mêmes mesures expérimentales mais soit avec une échelle semi – logarithmique (pour visualiser les mesures à faible taux de photons X), soit avec une échelle linéaire (pour visualiser les mesures à grand taux de photons X). Ici, on observe qu'il existe en réalité deux régimes différents pour lesquels le taux d'X ne suit pas la même évolution en fonction de la pression et cela aussi bien

avec les agrégats d'argon que ceux de xénon. Les meilleurs ajustements sont obtenus à partir des fonctions suivantes :

- à basse pression : $N_X \propto (P_0 - P_{\min})^{\alpha}$; ***[IV-E.1a]***
- à haute pression : $N_X \propto \left(P_0 - P_c\right)^{\beta}$. ***[IV-E.1b]***

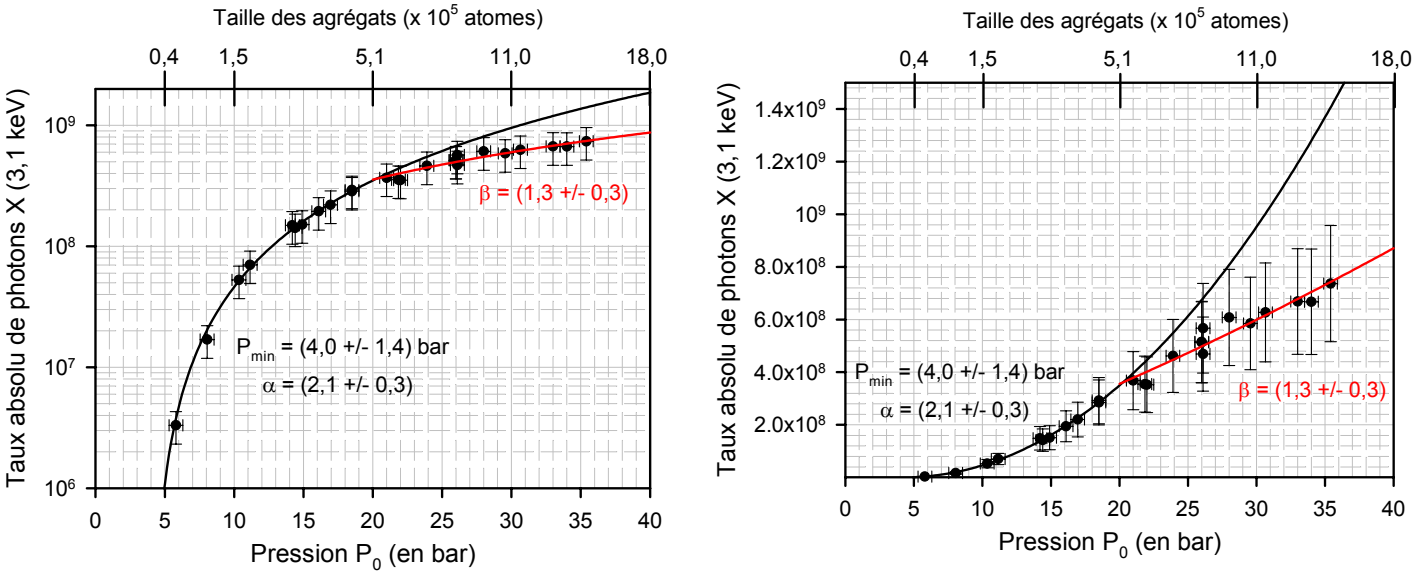


Figure IV-19 : ***Évolution du taux absolu de photons X_K de l'argon en fonction de la pression en amont de la buse condensation (pour les conditions expérimentales voir le Tableau IV-11).***

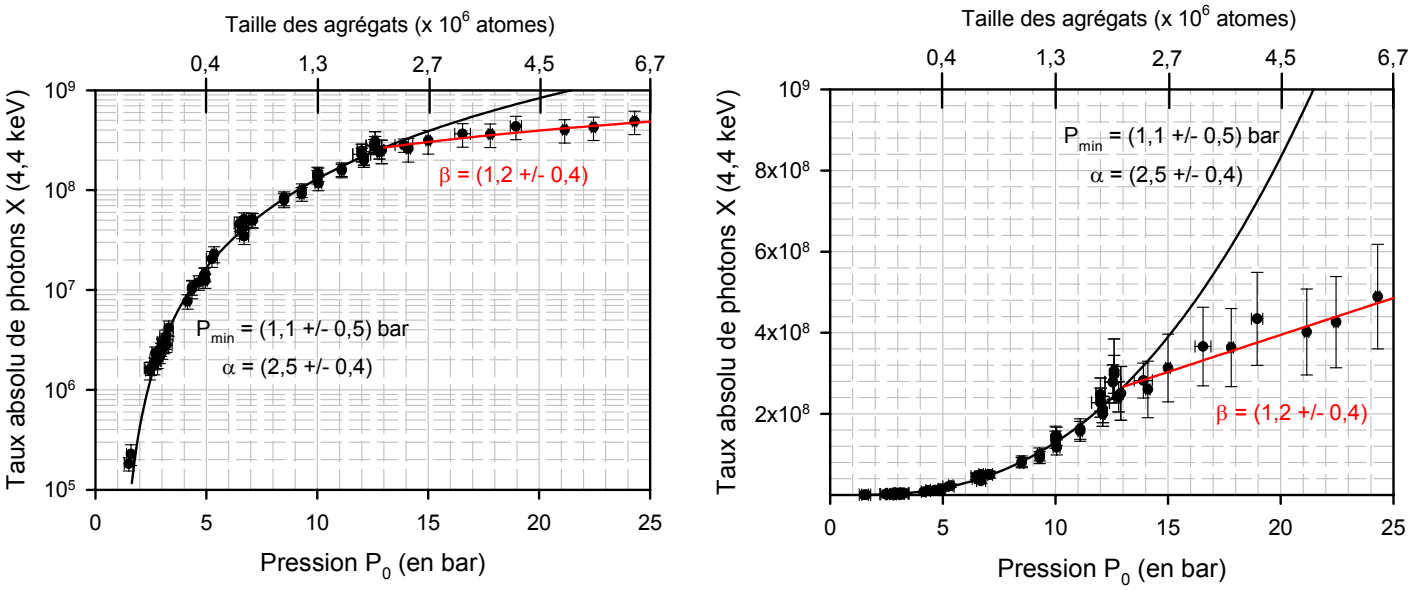


Figure IV-20 : ***Évolution du taux absolu de photons X_L du xénon en fonction de la pression en amont de la buse condensation (pour les conditions expérimentales voir le Tableau IV-11).***

	Énergie mesurée	Intensité laser	Durée d'impulsion effective
Argon	20 *mJ*	$3{,}4\times10^{16}$ *W/cm²*	70 *fs*
Xénon	30 *mJ*	$5{,}1\times10^{16}$ *W/cm²*	70 *fs*

Tableau IV-11 : Conditions expérimentales pour les explorations en fonction de la pression présentées sur la Figure IV-19 pour les agrégats d'argon et sur la Figure IV-20 pour les agrégats de xénon.

Les meilleurs coefficients d'ajustement des mesures expérimentales sont récapitulés dans le *Tableau IV-12* pour ces deux espèces atomiques ainsi que la pression critique (P_c) pour laquelle on observe le changement de régime dans la production de rayons X.

Agrégats	Basse Pression		P_c	Haute pression
	α	P_{min}		β
Argon	$2{,}1 \pm 0{,}3$	4 *bars* (N ~ $2{,}8\times10^4$ at.)	20 *bars* (N ~ $5{,}1\times10^5$ at.)	$1{,}3 \pm 0{,}3$
Xénon	$2{,}5 \pm 0{,}4$	1,1 *bars* (N ~ $2{,}4\times10^4$ at.)	13 *bars* (N ~ $2{,}1\times10^6$ at.)	$1{,}2 \pm 0{,}4$

Tableau IV-12 : Tableau récapitulatif des meilleurs coefficients d'ajustement pour l'évolution du taux d'X avec la pression en amont de la buse de condensation (agrégats d'argon et de xénon).

Pour les agrégats de krypton, nous observons le même type de comportement dans l'évolution du taux de photons X pour les basses pressions $\left(N_X \propto P_0^{2-3}\right)$ et les hautes pressions $\left(N_X \propto P_0^{5/3}\right)$ comme il est illustré sur la *Figure IV-21*. Cette étude a été réalisée pour une distance entre la zone d'interaction et la buse de condensation de 500 *mm* et les mêmes lois d'évolution se retrouvent quelque soit le diamètre de l'écorceur.

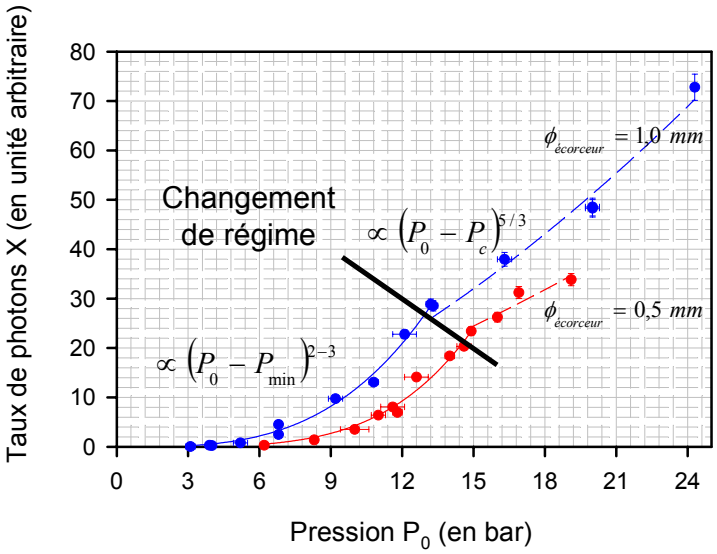


Figure IV-21 : Évolution du taux d'X (en unité arbitraire) en fonction de la pression en amont de la buse de condensation pour les agrégats de krypton; pour un écorceur de 1,0 mm P_{min} = 3 bars et P_c = 12 bars ; pour un écorceur de 0,5 mm P_{min} = 6 bars et P_c = 14 bars.

Ainsi, à faible pression, il y a donc une dépendance du taux de photons X qui suit une loi en P_0^2 ou P_0^3 tandis que l'on est assez proche d'une dépendance en $P_0^{5/3}$ pour des pressions plus importantes. Ces différentes lois d'évolution correspondent effectivement à celles obtenues lors des premières études mais nous mettons ici en évidence **la présence de 2 régimes d'évolution distincts qui dépendent de la gamme de pression étudiée et cela quelque soit la nature du gaz et la configuration expérimentale** (buse proche ou loin de la zone d'interaction, avec ou sans écorceur). Précisons enfin que ces deux lois d'évolution ont été systématiquement observées lors de toutes les explorations en fonction de la pression que nous avons réalisées et qui ne sont pas présentées ici par souci de synthèse.

A ce stade, on peut s'interroger sur la raison de cette rupture dans l'évolution du taux d'X avec la pression. En particulier, il est possible d'évoquer un dysfonctionnement dans le système de production d'agrégats : la taille des agrégats n'évoluerait alors plus uniformément avec la pression. La présence d'un dispositif de diffusion Rayleigh permettrait, dans un premier temps, de contrôler l'évolution de la taille moyenne des agrégats avec la pression en amont de la buse de condensation. Des études plus précises, comme par exemple celles du type de Buck et collaborateurs (*cf.* Chapitre II - §II-C-4-a), permettraient de contrôler exactement la distribution en taille des agrégats venant interagir avec l'impulsion laser.

D'autre part, les études qui ont été présentées dans le Chapitre II concernant l'estimation de la taille des agrégats ont montré que celle – ci n'évolue pas exactement suivant une loi en P_0^2 mais plutôt suivant une loi en $P_0^{1,8}$; ainsi le traitement collisionnel de la création de lacune en couche interne avec cette évolution plus correcte conduit à :

$$N_X \propto P_0^{1,6} \qquad \textbf{[IV-E.2]}$$

Cette dépendance est plus proche de nos mesures expérimentales pour les hautes pressions que la loi en $P_0^{5/3}$. Enfin, pour établir cette loi nous avons supposé que l'épaisseur effective de collision (x) évoluait comme le rayon de l'agrégat $(x \sim R_{agrégat})$; ceci n'est pas justifié pour les grandes tailles d'agrégats (*i.e.* grandes pressions) car alors l'amplitude maximale d'oscillation des électrons devient inférieure au rayon de l'agrégat à ces éclairements laser. Dans ce cas, le taux d'X évolue uniquement comme le nombre d'atomes émetteurs soit :

$$N_X \propto P_0 \qquad \textbf{[IV-E.3]}$$

Finalement, cette approche collisionnelle de la création de lacune en couche interne indique une évolution du taux d'X comme P_0 voir $P_0^{1,6}$ conforme à nos mesures expérimentales pour les hautes pressions. La dépendance du taux absolu d'X en P_0^2 ou en P_0^3 à basse pression reste difficilement compréhensible à partir de ces considérations. Enfin, quand on augmente la pression en amont de la buse de condensation on augmente d'une manière corrélée la taille des agrégats ainsi que la densité d'agrégats dans le volume focal effectif : il est donc nécessaire de tenir compte de l'évolution du nombre d'atomes émetteurs pour évaluer réellement la probabilité d'émission X. D'autre part, si la distribution en état de charge des ions émettant le rayonnement X change quand la taille des agrégats est modifiée, alors il faut tenir compte de l'évolution du rendement moyen de fluorescence avec la pression pour pouvoir discuter l'évolution de la probabilité d'ionisation en couche interne avec la taille des agrégats. Il s'agit de ces deux points que nous allons maintenant préciser dans les paragraphes suivants.

E-2] Évolution de la probabilité d'émission X avec la taille

Afin de s'affranchir des deux évolutions corrélées avec l'augmentation de la pression, il est possible de normaliser le taux d'X mesuré au nombre moyen d'atomes contenu dans le volume focal effectif, on obtient alors la probabilité d'émission X (ou un taux moyen d'X émis par atome), soit :

$$P_{\text{émission X}} = \frac{N_X}{n_{\text{atomes ds vol. foc. eff.}}} \qquad \textbf{[IV-E.4a]}$$

$$\text{et } n_{\text{atomes ds vol. foc. eff.}} = n_{\text{at.moy.}} \times V_{\text{foc.eff.}} \qquad \textbf{[IV-E.4b]}$$

avec $n_{\text{at.moy.}}$ la densité atomique moyenne (*cf.* formule [II-C.18b] du Chapitre II) au niveau de la zone d'interaction qui dépend linéairement de la pression P_0 et $V_{\text{foc.eff.}}$ le volume focal effectif. Précisons que ce traitement suppose que le volume focal effectif est constant avec la taille des agrégats, *i.e.* pas de différence dans l'éclairement seuil avec la pression ; nous verrons dans le §E-4 que l'éclairement seuil reste compris entre 1 et 2×10^{15} W/cm^2 pour cette gamme de taille. D'autre part, ce calcul suppose également que le taux de condensation est de 100 % et reste constant en fonction de la pression en amont de la buse de condensation ; des simulations, comme par exemple à l'aide du code hydrodynamique de Boldarev que nous

avons vu au Chapitre II (§II-C-3-b), permettraient de corriger ce calcul du nombre total d'atomes participant effectivement à l'émission X.

Il est tracé sur la *Figure IV-22* l'évolution de cette probabilité d'émission X en fonction de la taille moyenne des agrégats pour la courbe obtenue avec les agrégats d'argon et présentée ci – dessus (*cf. Figure IV-19*). Le volume focal effectif dans ces conditions est estimé, avec un éclairement seuil de 2×10^{15} W/cm^2 et pour un éclairement de $3{,}4\times10^{15}$ W/cm^2 à $5{,}5\times10^{-6}$ cm^3 à partir de la formule [IV-B.8] moyennée temporellement sur toute l'impulsion laser.

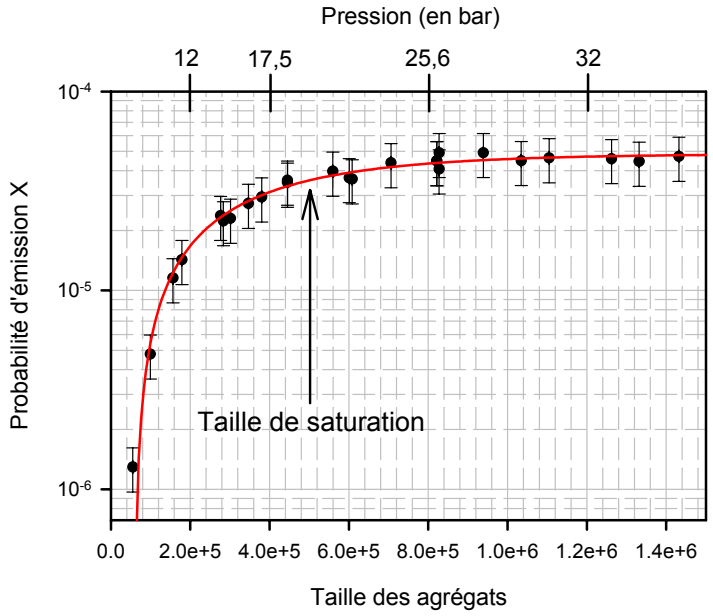


Figure IV-22 : Évolution de la probabilité d'émission X en fonction de la taille des agrégats d'argon (conditions expérimentales identiques à la Figure IV-19).

Après une brusque augmentation de la probabilité d'émission X jusqu'à une taille de l'ordre de 5×10^5 atomes, on observe une stagnation de cette probabilité pour des tailles d'agrégats plus importantes. Ce résultat peut s'interpréter comme une saturation de l'émission X quand on augmente la taille des agrégats au dessus d'une taille critique : l'efficacité de production d'X n'augmenterait donc pas au dessus d'une taille critique d'agrégat (~ 5×10^5 atomes par agrégat pour les conditions expérimentales présentées ici).

Pour les agrégats de xénon, nous observons exactement le même comportement que celui décrit précédemment pour les agrégats d'argon comme il est présenté sur la *Figure IV-23*. La taille correspondant à la saturation de la probabilité d'émission X est ici de l'ordre de 2×10^6 atomes.

Cette rupture de régime, analysée ici en fonction de la taille des agrégats, semble donc plutôt refléter un comportement de processus d'émission X qui, ramené à un atome, sature en fonction de la taille des agrégats. Cette saturation de la probabilité d'émission X confirme l'approche collisionnelle qui apparaît valide pour les grandes tailles d'agrégats (*i.e.* grandes

pressions) comme il a été vu précédemment (§IV-E-1) car alors le taux absolu de photons X est obtenu uniquement en multipliant la probabilité d'émission X par le nombre de partenaires émetteurs contenus dans le volume focal effectif sous les hypothèses qui ont été présentées au début de ce paragraphe (volume focal effectif et taux de condensation indépendant de la pression en amont de la buse de condensation).

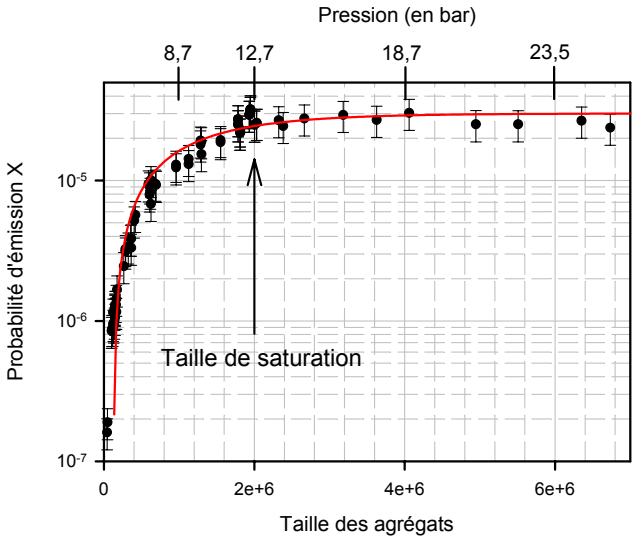


Figure IV-23 : Évolution de la probabilité d'émission X (en unité arbitraire) en fonction de la taille (en unité arbitraire) des agrégats de xénon (conditions expérimentales identiques à la Figure IV-20).

Cette évolution de la probabilité d'émission X avec la taille des agrégats laisse à penser que les énergies électroniques restent assez constantes au dessus d'une taille critique. Un tel comportement n'est clairement pas observé à partir du code nanoplasma, pour lequel au contraire, comme on peut le constater sur la *Figure IV-24*, les température électriques maximales chutent fortement de 2 *keV* pour N = 7000 à 30 000 atomes à 200 *eV* pour N > 60 000 atomes pour un éclairement de $3{,}4\times10^{16}$ W/cm^2 (λ = 800 *nm* et une durée d'impulsion de 70 *fs*). Ceci est relié à la présence d'une taille optimale pour le chauffage de l'agrégat qui est de l'ordre de quelques 10^3 atomes pour ces conditions et comme nous l'avons déjà explicité dans le Chapitre I (*cf.* §I-C-1-7).

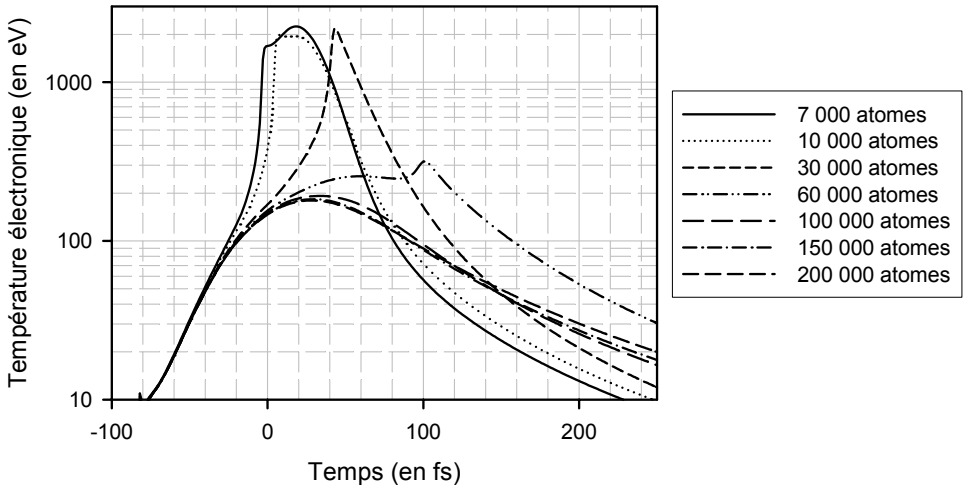


Figure IV-24 : Évolution de la température électronique calculée par le code nanoplasma de Toulouse incluant les collisions électrons – surface pour plusieurs tailles d'agrégats d'argon ($I = 3{,}4\times10^{16}$ W/cm^2, durée d'impulsion de 70 fs).

E-3] Évolution de l'état de charge moyen

L'évolution de la distribution en état de charge des ions émettant le rayonnement X avec la taille des agrégats est illustrée sur la *Figure IV-25* pour les agrégats d'argon et sur la *Figure IV-26* pour les agrégats de xénon. Les tailles correspondantes à ces différents spectres sont indiquées dans le *Tableau IV-13* pour l'argon[14] et dans le *Tableau IV-14* pour le xénon[15].

Pression P_0 (en *bar*)	Taille des agrégats d'argon
20	$8{,}1\times10^4$ atomes
31	$1{,}8\times10^5$ atomes
41	$3{,}0\times10^5$ atomes
53	$4{,}7\times10^5$ atomes

***Tableau IV-13 :** Taille des agrégats d'argon correspondant aux spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-25.*

Pression P_0 (en *bar*)	Taille des agrégats de xénon
3,1	$1{,}6\times10^5$ atomes
6,6	$6{,}1\times10^5$ atomes
10,7	$1{,}5\times10^6$ atomes

***Tableau IV-14 :** Taille des agrégats de xénon correspondant aux spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-26.*

- pour les agrégats d'argon, les spectres haute résolution enregistrés correspondent aux transitions $1s2pnl \rightarrow 1s^2nl$ issues d'ions ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+. On observe clairement une modification de la distribution en état de charge lorsque la taille des agrégats augmente : en particulier, la proportion de grands états de charge (Ar^{15+} et Ar^{16+}) augmente quand la taille des agrégats augmente. *In fine*, ceci se traduit par une augmentation de l'énergie moyenne des photons X.

- pour les agrégats de xénon, les deux groupes de raies observés sur ces spectres haute résolution, respectivement vers 4150 *eV* et vers 4450 *eV*, sont attribués majoritairement à la structure fine du niveau $2p^{-1}$: transitions $3d_{5/2} \rightarrow 2p_{3/2}$ et $3d_{3/2} \rightarrow 2p_{1/2}$. La distribution en état de charge des ions émettant le rayonnement X est comprise typiquement entre 24+ et 32+ ;

[14] Ces spectres ont été obtenus lors de la campagne d'expériences de 2001 soit avec écorceur et pour une distance entre la buse de condensation (d = 300 μm) et la zone d'interaction de 500 *mm*.
[15] Ces spectres ont été obtenus lors de la campagne d'expériences de 2002 soit avec écorceur et pour une distance entre la sortie de la buse de condensation (d = 1000 μm) et la zone d'interaction de 13 *mm*.

une identification plus précise des états de charge, comme pour les agrégats d'argon, est impossible du fait de la présence du recouvrement des transitions issues d'états de charge différents. Néanmoins, on observe que l'allure générale du spectre change fortement quand on modifie la taille des agrégats de xénon : en l'occurrence, le barycentre de chacune de ces deux distributions est déplacé vers les grandes énergies quand la taille des agrégats augmente. Ceci conduit alors à un accroissement de l'état de charge moyen des ions émettant le rayonnement X quand la taille des agrégats augmente, tout comme pour les agrégats d'argon.

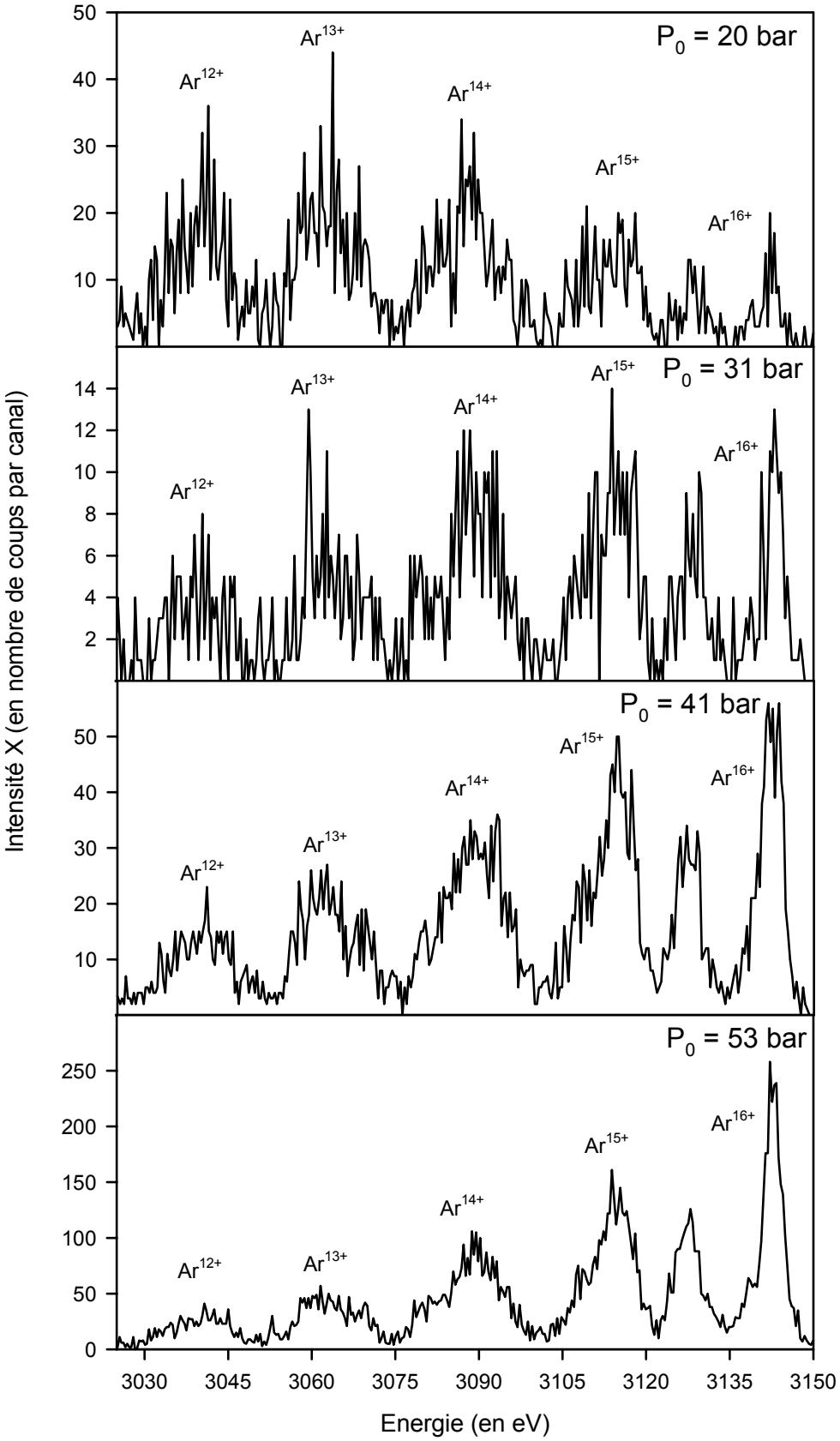


***Figure IV-25 :** Spectre haute résolution du rayonnement X issu d'agrégats d'argon soumis à une impulsion laser d'éclairement laser de l'ordre de 10^{17} W/cm^2 (E = 63 mJ et 2.$\tau_{eff.}$ = 65 fs) pour différentes pressions en amont de la buse de condensation entre 20 bars et 53 bars.*

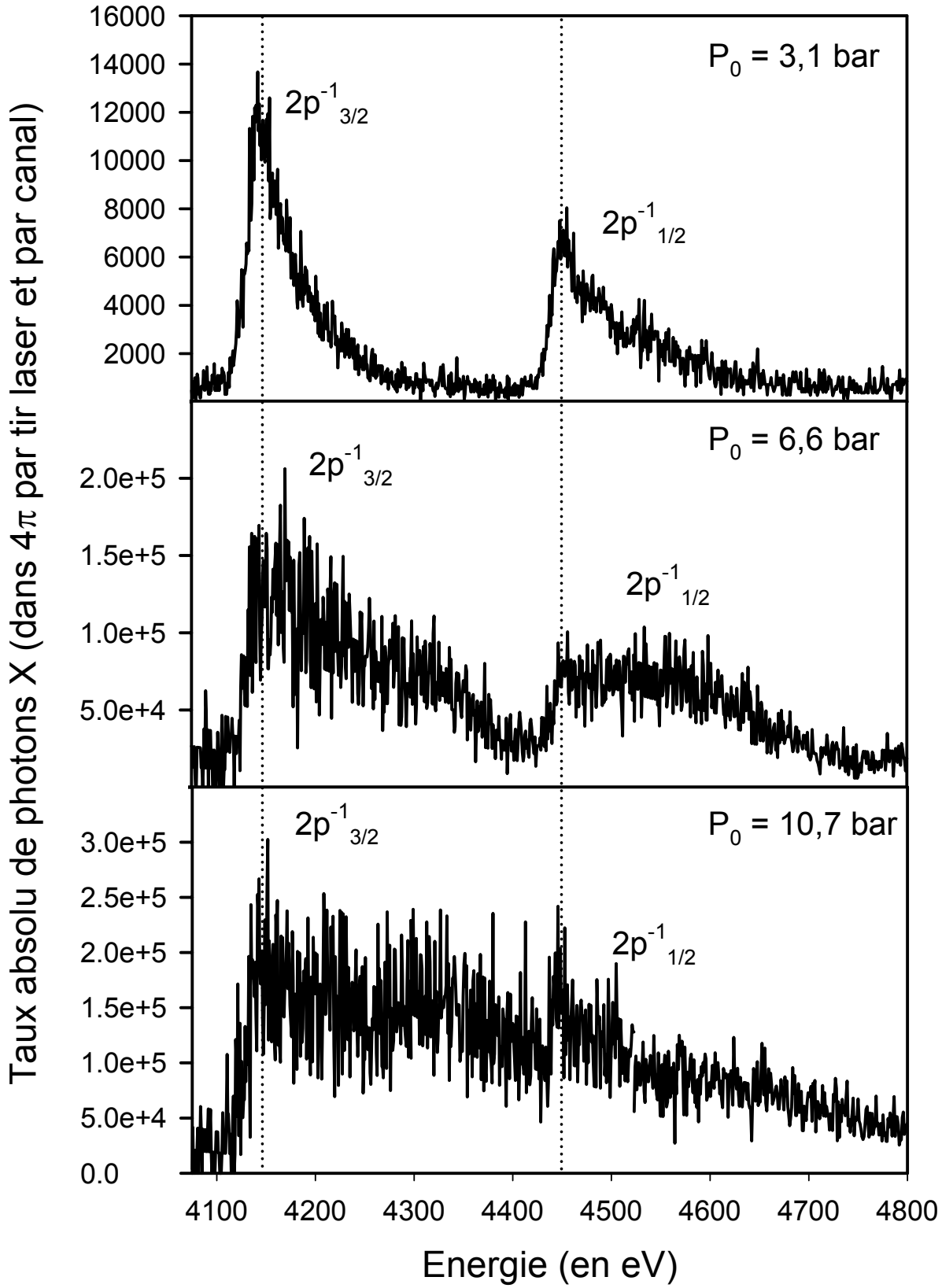


***Figure IV-26 :** Spectre haute résolution du rayonnement X issu d'agrégats de xénon soumis à une impulsion laser IR de 60 – 70 fs et un éclairement crête de l'ordre de (5-6)×10^{16} W/cm^2 (E = 30 -35 mJ) pour différentes pressions (3,1 bars – 6,6 bars et 10,7 bars).*

Plus précisément, il est présenté sur la *Figure IV-27* l'évolution de l'énergie moyenne des ions argon présentant une lacune en couche interne pour les mêmes conditions expérimentales que le cas qui a été détaillé sur la *Figure IV-19* pour l'évolution du taux absolu d'X et sur la *Figure IV-22* pour la probabilité d'émission X. Avant le régime de saturation de la probabilité d'émission X, l'état de charge moyen augmente fortement de l'ordre de 13,5+ (E ~ 3076 *eV*) à 14,5+ (E ~ 3100 *eV*). Puis dans le régime de saturation, l'état de charge augmente moins vite mais d'une manière significative jusqu'à 15+ (E ~ 3110 *eV*).

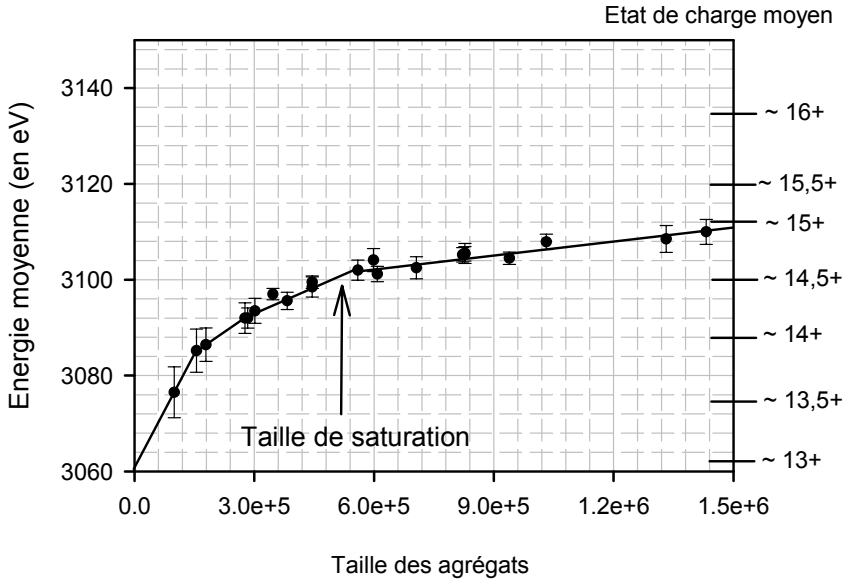


Figure IV-27 : Évolution de l'énergie moyenne des transitions 1s2pnl → 1s²nl lors de l'exploration en fonction de la taille des agrégats (conditions expérimentales identique à la Figure IV-19 et la Figure IV-22).

Le rendement moyen de fluorescence varie approximativement de 10 % pour l'Ar^{12+} à 100 % pour l'Ar^{16+}, soit au maximum d'un ordre de grandeur. Dans ces études, l'état de charge moyen changeant de 13,5+ à 15+, on aura donc, au plus, un facteur 2 à 3 d'évolution du rendement de fluorescence dans cette gamme de taille. En particulier, dans le régime de saturation que nous avons identifié précédemment, l'état de charge moyen évolue peu (de 14,5+ à 15+), ce qui se traduit finalement par une évolution du rendement moyen de fluorescence encore plus faible. Ainsi, les tendances décrites dans le §IV-E-2 pour la probabilité d'émission X doivent rester valides pour la probabilité d'ionisation en couche interne. En l'occurrence, la probabilité d'ionisation en couche interne doit également saturer au dessus d'une certaine taille que l'on peut estimer ici de l'ordre de 5×10^5 atomes.

E-4] Influence de la taille des agrégats sur le seuil de production de rayons X durs

La seule étude comparative que nous avons pu faire en ce qui concerne l'effet de la taille des agrégats sur la position du seuil en éclairement est présentée sur la *Figure IV-28* : il s'agit de mesures réalisées dans des conditions expérimentales identiques (zone d'interaction à une distance de 500 *mm* de la buse de condensation et avec un écorceur[16]). Ces mesures ont été obtenues avec des agrégats d'argon pour deux pressions en amont de la buse de condensation différentes :

- P_0 = 40 *bars* : les conditions expérimentales correspondant à ces mesures ont déjà été présentées dans le *Tableau IV-7* (il s'agit de la même courbe que celle de la *Figure IV-6*) ;
- P_0 = 16 *bars* : les conditions expérimentales de ces mesures sont indiquées dans le *Tableau IV-15*.

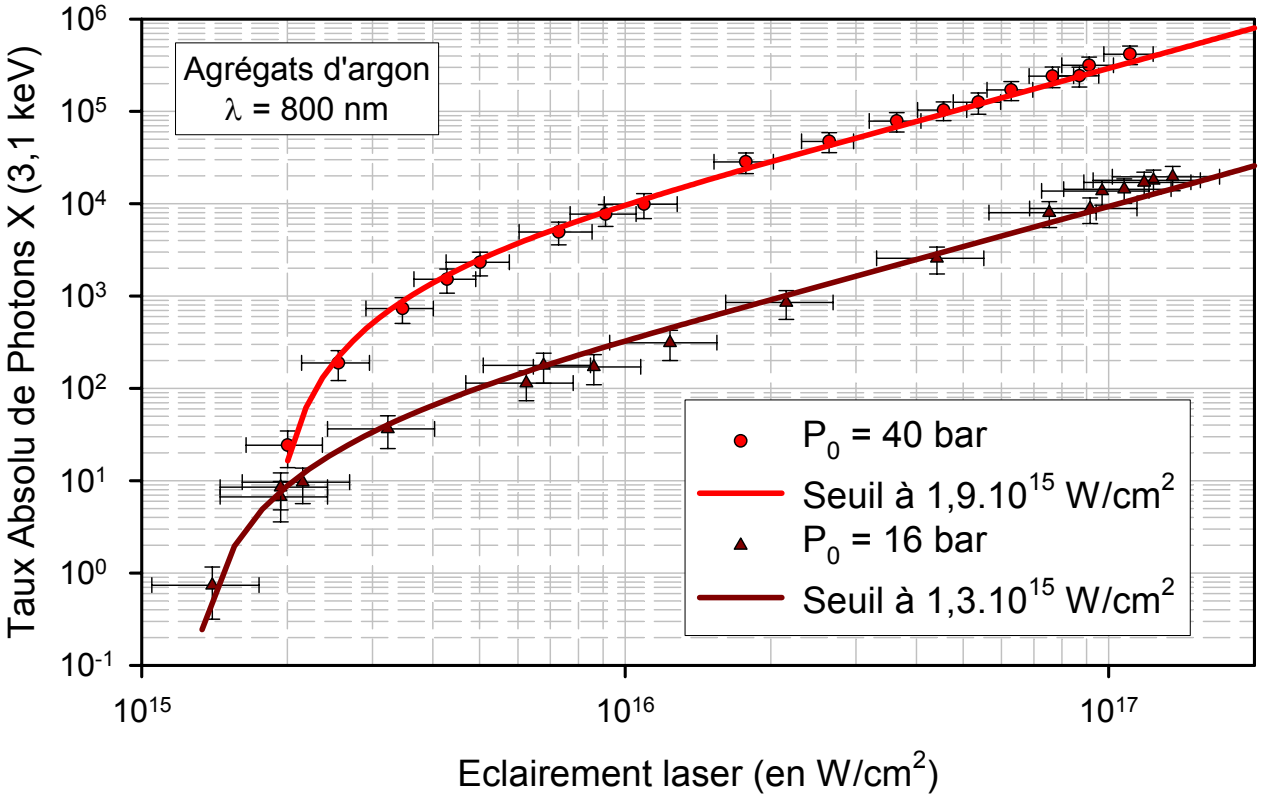


***Figure IV-28 :** Courbe en éclairement pour des agrégats d'argon à deux pressions différentes (λ = 800 nm et pour les conditions expérimentales voir le Tableau IV-7 pour P_0 = 40 bars et le Tableau IV-15 pour P_0 = 16 bars).*

[16] Ces mesures ont été réalisées lors de la campagne d'expérience de 2001 soit pour une distance entre la zone d'interaction et la buse de condensation de 500 *mm* (avec écorceur et pour d = 300 μm).

Pression	$P_0 = 16$ *bars*	Taille d'agrégats	N = $5{,}4\times10^4$ atomes
Durée mesurée	$\Delta t = 50$ *fs*	Durée effective	$2.\tau_{eff.} = 60$ *fs*
Longueur d'onde	$\lambda = 800$ *nm*	Densité atomique moyenne	$n_{at.moy.} \sim 6{,}7\times10^{14}$ *at / cm³*

Tableau IV-15 : Conditions expérimentales de la courbe en éclairement de la Figure IV-28 obtenue avec des agrégats d'argon.

Le taux absolu de photons X pour une pression de 40 *bars* est supérieur à celui obtenu pour 16 *bars* dans le régime en $I^{3/2}$ et, quel que soit l'éclairement, le comportement du taux absolu de photons de 3,1 *keV* est absolument identique pour ces 2 pressions. En particulier, le taux absolu d'X suit toujours l'évolution du volume focal effectif avec l'éclairement laser sur près de 5 ordres de grandeur dans le taux de comptage. Enfin, il n'est pas possible de pouvoir conclure quant à une modification du seuil en éclairement avec la taille des agrégats à partir de ces deux mesures. On peut seulement préciser que la taille des agrégats dans ces expériences est augmenté de plus d'un facteur 5 mais le seuil en éclairement semble assez identique lors de ces deux expériences. Des expériences plus systématiques doivent être entreprises afin de pouvoir dégager une tendance générale quant à l'évolution du seuil en éclairement de production de rayons X avec la taille des agrégats.

Pression P_0	Durée mesurée Δt	Durée effective $2.\tau_{eff.}$	Éclairement seuil expérimental	Énergie seuil mesurée	$2.Up$
16 *bars*	50 *fs*	60 *fs*	$1{,}3\times10^{15}$ *W/cm²*	~ 0,7 *mJ*	~ 155 *eV*
40 *bars*	56 *fs*	65 *fs*	$1{,}9\times10^{15}$ *W/cm²*	~ 1,0 *mJ*	~ 230 *eV*

Tableau IV-16 : Valeurs expérimentales de l'éclairement seuil et de l'énergie mesurée correspondante pour $P_0 = 16$ bars et $P_0 = 40$ bars d'argon – $\lambda = 800$ nm.

F] Effet de la durée d'impulsion

F-1] Introduction

D'une manière tout à fait générale, la dynamique de l'interaction est gouvernée par la compétition temporelle de plusieurs processus et 2 durées jouent un rôle particulier :

- la durée de l'impulsion qui influe directement sur le temps pendant lequel les processus d'ionisation et de chauffage vont pouvoir se produire ;
- le temps d'expansion de l'agrégat qui intervient par l'intermédiaire de sa vitesse d'expansion. Comme nous l'avons vu dans le cadre du modèle nanoplasma, celle – ci dépend des forces de pression régnant à l'intérieur de l'agrégat (pression coulombienne, hydrodynamique et éventuellement de polarisation). Cette expansion de l'agrégat conduit à une baisse de la densité électronique à l'intérieur de l'agrégat et donc à une baisse de la probabilité d'ionisation en couche interne.

Cette compétition temporelle agit directement sur l'émission de rayons X : on peut en effet imaginer, *a priori*, qu'une durée d'impulsion courte peut ne pas permettre aux mécanismes responsables de la création de lacunes en couche interne de s'établir. *A contrario* pour une durée d'impulsion longue, l'agrégat, se dilatant, va limiter la production de lacunes en couche interne, et donc l'émission X, car l'ionisation collisionnelle diminue fortement.

Afin de tenter de comprendre cette compétition temporelle, nous avons donc étudié l'émission X en fonction de la durée de l'impulsion laser de deux façons :

- **en gardant l'énergie par impulsion constante** : ceci conduit alors, en quelque sorte, à une dilution de l'énergie dans le temps quand on augmente la durée d'impulsion ; il en résulte une baisse de l'intensité laser ;
- **en gardant l'intensité au pic (ou maximale) constante** : ceci permet d'avoir systématiquement un champ électrique maximal constant en fonction de la durée d'impulsion. Par contre, l'énergie par impulsion doit augmenter corrélativement à la durée d'impulsion afin de garder l'éclairement laser constant.

F-2] Évolution de l'émission X avec la durée d'impulsion

L'étude de l'influence de la durée d'impulsion sur l'émission X a été étudiée lors des différentes campagnes d'expériences tant en ce qui concerne l'évolution **du taux absolu de photons X** émis lors de l'interaction que **la distribution en état de charge** des ions dont est

issu ce rayonnement X. Ces expériences ont été réalisées pour des agrégats d'argon (X_K à 3,1 *keV*) et pour des agrégats de xénon (X_L à 4,4 *keV*).

F-2-a) Agrégats d'argon

Nous avons suivi l'évolution de l'émission des X_K de l'argon en fonction de la durée d'impulsion pour une longueur d'onde de 800 *nm* (IR) et pour différentes pressions en amont de la buse de condensation soit pour des tailles d'agrégats différentes[17] (*cf. Tableau IV-17*). Pour cette série de mesures nous avons fait varier la taille des agrégats de l'ordre d'un facteur 4 pour les deux pressions extrêmes (20 *bars* et 40 *bars*).

Pression P_0 (en *bars*)	Taille estimée	Rayon (en *nm*)
20	$5{,}1\times10^5$	~ 17
30	$1{,}1\times10^6$	~ 21
40	$1{,}8\times10^6$	~ 25

***Tableau IV-17 :** Tailles des agrégats d'argon pour l'étude de l'émission X en fonction de la durée d'impulsion (taille estimée d'après la formule [II-C.21]).*

1°) Étude à énergie constante

1°-i) Présentation des résultats

La *Figure IV-29* présente l'évolution du taux absolu d'X_K émis lors de l'interaction en fonction de la durée d'impulsion (entre 50 *fs* et 870 *fs*) pour une énergie laser constante de 20 *mJ*. Dans ces conditions, quelque soit la taille des agrégats, on observe clairement deux régimes dans la production de photons X :

- **une augmentation** d'un facteur 2 à 3 du taux absolu d'X émis quand la durée d'impulsion augmente de 50 fs à 130 *fs* ;
- **puis une décroissance** entre 130 *fs* et plusieurs centaines de *fs*.

Ce comportement met en évidence une durée d'impulsion optimale dans la production d'X_K située vers 130 *fs*. Cette durée optimale est trouvée indépendante de la taille des agrégats dans la gamme de pression explorée ; ceci a été confirmé à l'aide d'un autre système de détection en suivant uniquement la $^1P_1$ de l'Ar^{16+} (spectromètre X du CELIA).

[17] Cette série de mesures a été réalisée lors de la campagne d'expériences de 2002 soit sans écorceur et pour une distance entre la zone d'interaction et la sortie de la buse de condensation de 13 *mm* (d = 1 000 μm).

La présence d'un optimum est également en accord avec les études menées récemment par l'équipe du CELIA sur leur dispositif expérimental mais ils ont observé une différence dans l'optimum avec la pression pour des tailles d'agrégats allant de $6{,}1\times10^5$ atomes à $3{,}9\times10^6$ atomes. Précisons que deux arguments démontrent que la taille des agrégats change effectivement lors de nos séries de mesures :

- le taux absolu de photons X augmente : pour une durée d'impulsion de 50 *fs*, le taux absolu de photons X passe de 8×10^7 $h\nu$ / tir laser pour $P_0 = 20$ *bars* à $2{,}5\times10^8$ $h\nu$ / tir laser pour $P_0 = 40$ *bars*, soit plus d'un facteur 3 sur le taux absolu ;

- la distribution en état de charge change : pour une durée d'impulsion de 50 *fs*, l'énergie moyenne des spectres haute résolution est de $(3097{,}2 \pm 1{,}2)$ *eV* pour $P_0 = 20$ *bars* et de $(3110{,}8 \pm 1{,}5)$ *eV* pour $P_0 = 40$ *bars*, soit une différence significative de 14 *eV* sur les spectres haute résolution.

D'après les résultats présentés sur l'émission X en fonction de la pression (§IV-E), ces évolutions corrélées du taux d'X et de la distribution en état de charge peuvent être attribuées sans ambiguïté à une modification de la taille des agrégats.

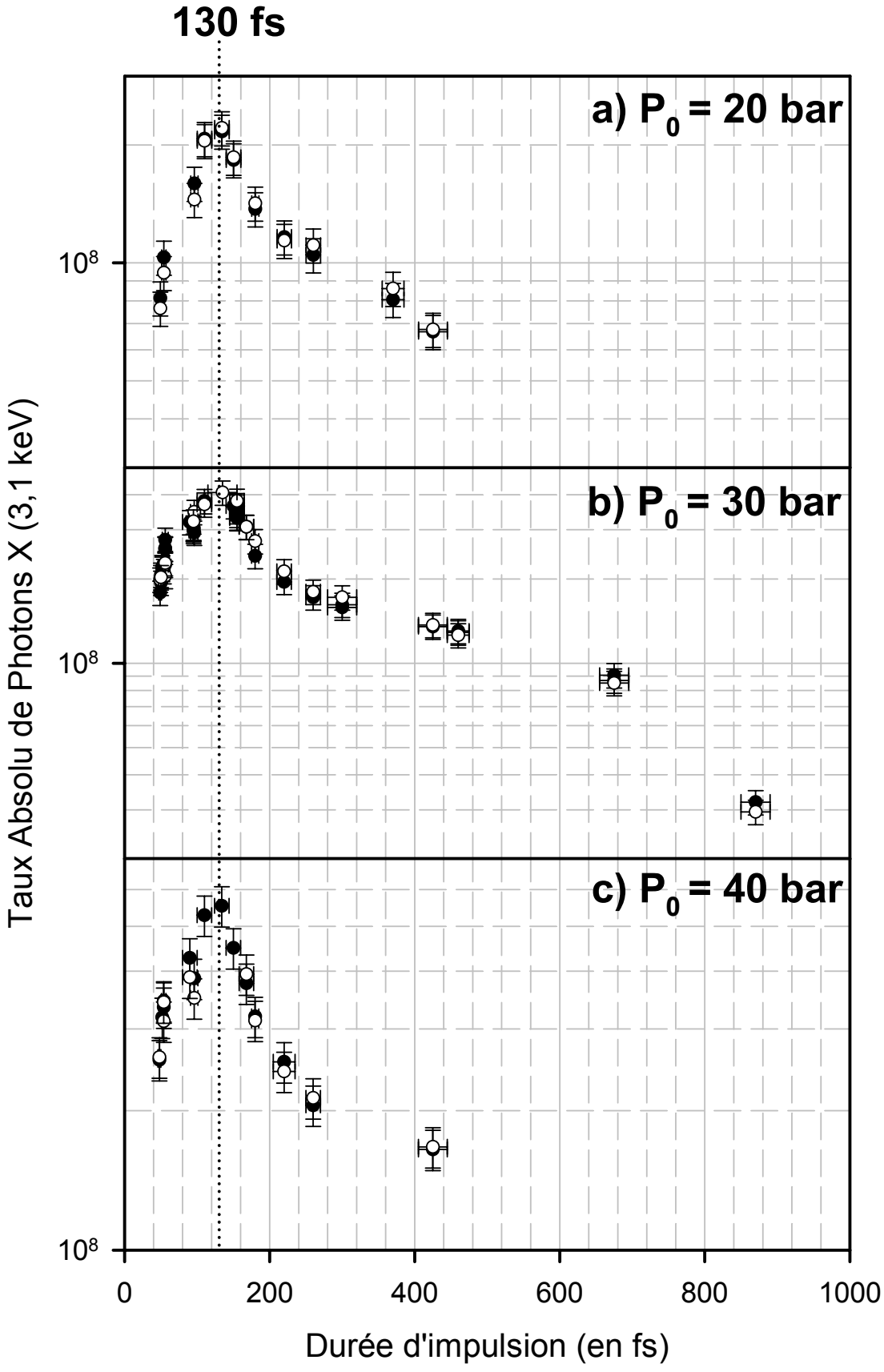


Figure IV-29 : ***Évolution du taux absolu d'X_K de l'argon avec la durée d'impulsion pour plusieurs tailles d'agrégat d'argon (E = 20 mJ et λ = 800 nm).***

Lors de ces expériences nous avons également suivi l'évolution de la distribution en état de charge des ions émettant le rayonnement X_K pour $P_0 = 30$ *bars*, $E = 20$ *mJ*, $\lambda = 800$ *nm* (*cf. Figure IV-29-b*) Cette étude s'est particulièrement intéressée à suivre **en parallèle** et pour des conditions expérimentales **identiques** les transitions $1s2pnl \rightarrow 1s^2nl$ pour les ions ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ ainsi que les transitions $1s3pnl \rightarrow 1s^2nl$ pour l'Ar^{16+} et l'Ar^{15+} comme nous l'illustrons sur la *Figure IV-33*.

Poses 1s2p :

En premier lieu, on observe très nettement sur la *Figure IV-33* une modification de la distribution en état de charge quand la durée d'impulsion augmente. Pour chiffrer plus précisément, la *Figure IV-30* présente l'évolution de l'énergie moyenne de la pose *1s2p* en fonction de la durée d'impulsion :

- pour une durée d'impulsion de 50 *fs* : l'énergie moyenne de cette pose est de (3097,7 ± 1,6) *eV* et correspond à un état de charge moyen de 14,5+.
- pour une durée d'impulsion de 155 *fs* : l'énergie moyenne de la même pose est de (3111,7 ± 1,2) *eV* et correspond à un état de charge moyen de 15+ ;
- Pour une durée d'impulsion de 675 *fs* : l'énergie moyenne est de (3092,2 ± 2,1) *eV* et correspond à un état de charge moyen de 14+ ;

Précisons que ces évolutions de l'état de charge moyen sont bien corrélées à la durée d'impulsion et non à l'éclairement laser car dans cette gamme d'éclairement explorée ($4{,}4\times10^{16}$ *W/cm²* à 50 *fs* et $1{,}4\times10^{16}$ *W/cm²* à 155 *fs* par exemple) il n'a pas été observé de variation de l'état de charge moyen quand la durée d'impulsion était maintenue constante (*cf.* §IV-D concernant l'effet de l'éclairement laser).

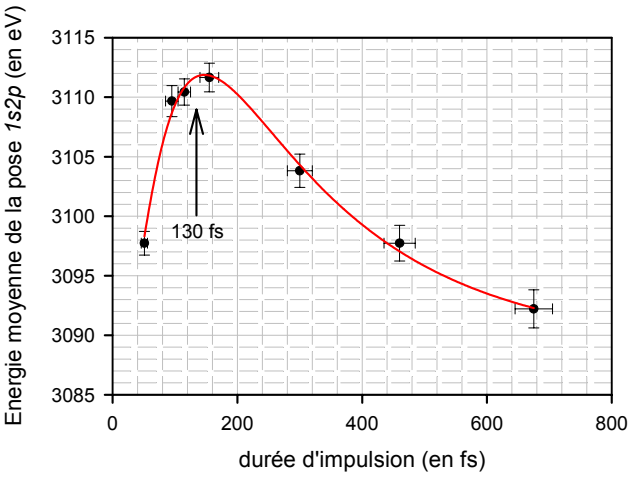


Figure IV-30 : Évolution de l'énergie moyenne des poses 1s2p de l'argon en fonction de la durée d'impulsion ($P_0 = 30$ bars, $\lambda = 800$ nm).

Ainsi, quand la durée d'impulsion est optimale pour le taux d'X (dans nos conditions expérimentales ~ 130 *fs*) on observe également un optimum dans l'état de charge moyen des

ions multichargés ayant une lacune en couche K. Ces résultats correspondent à une augmentation de l'épluchage en couche L des ions ayant une lacune en couche K pour cette durée d'impulsion optimale.

Poses 1s3p :

L'enregistrement **successif** des spectres *1s2p* et *1s3p* pour des conditions expérimentables **identiques** (même pression, même énergie, même durée d'impulsion) permet de comparer en absolu l'intensité de ces deux poses. En particulier, le taux absolu d'X déterminé à l'aide de la pose *1s3p* est présenté sur la *Figure IV-31* en fonction de la durée d'impulsion. Un optimum dans la production d'états excités du type *1s3pnl* est également présent pour une durée d'impulsion proche de 130 *fs*.

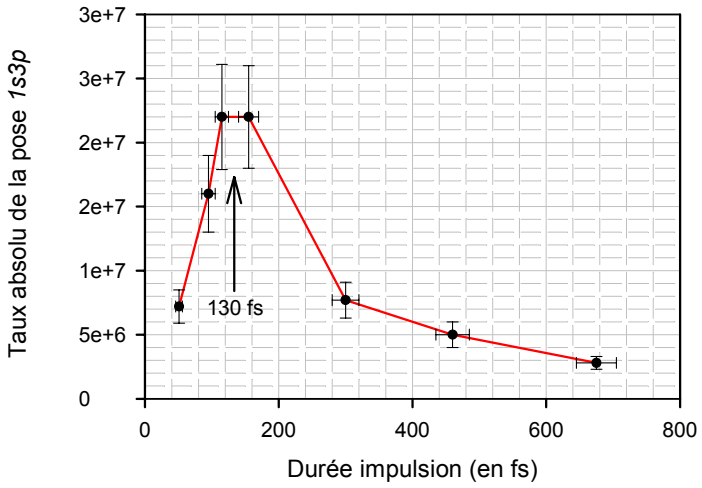


***Figure IV-31 :** Taux absolu de la pose 1s3p en fonction de la durée d'impulsion (E = 20 mJ, P_0 = 30 bars et λ = 800 nm).*

Enfin, il est présenté sur la *Figure IV-32* le rapport (*1s3p* / *1s2p*) des taux absolu de photons X obtenus pour l'Ar^{16+} ($^1P_1$) pour lequel les rendements de fluorescence sont de 100 % . Pour cette espèce, on observe également une augmentation de la proportion des ions ayant une lacune en couche K et ayant une configuration excitée (du type *1s3p*) à cette durée optimale.

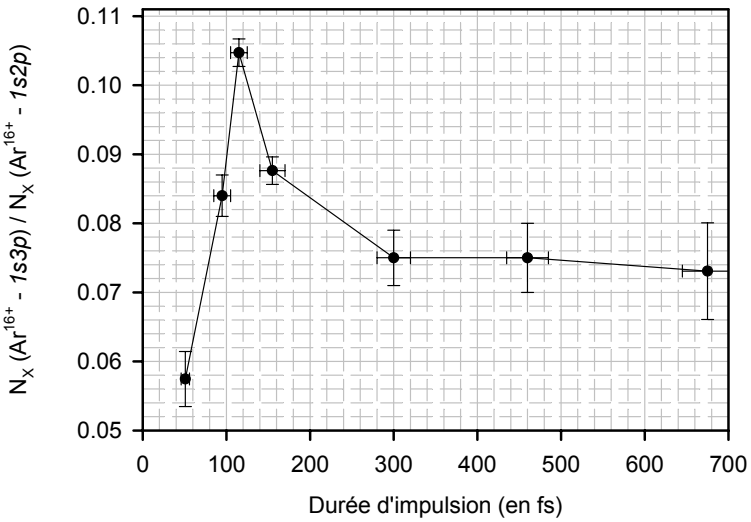


***Figure IV-32 :** Rapport du taux absolu 1s3p / 1s2p pour l'Ar^{16+} (E = 20 mJ, P_0 = 30 bars et λ = 800 nm).*

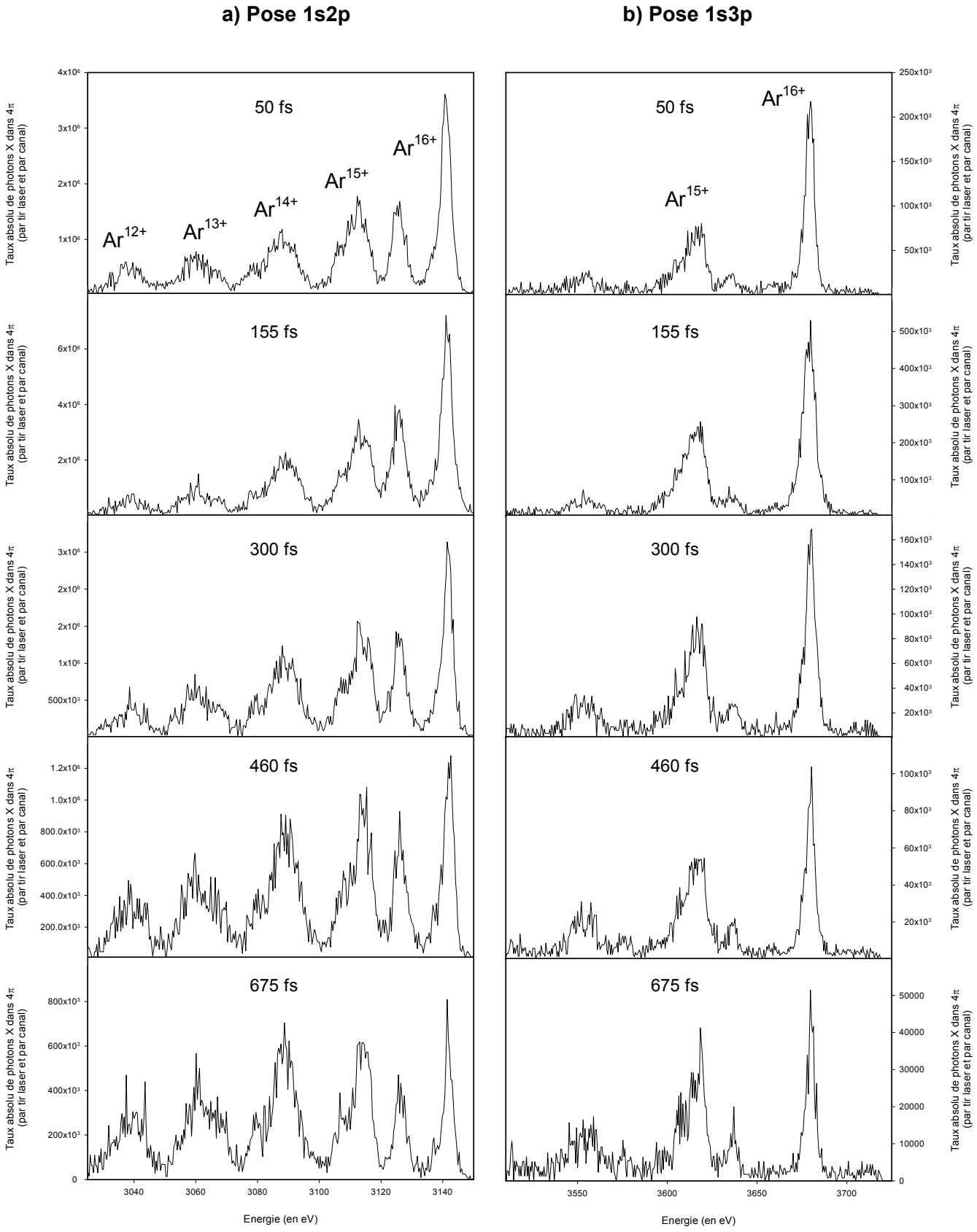


Figure IV-33 : ***Spectres X haute résolution (poses 1s2p et 1s3p) obtenus lors de l'irradiation d'agrégats d'argon en fonction de la durée d'impulsion (P_0 = 30 bars, E = 20 mJ et λ = 800 nm).***

En conclusion, nous observons, à une énergie constante de 20 *mJ*, une durée d'impulsion optimale de l'ordre de 130 *fs* corrélée à un maximum dans :

- la production de lacunes en couche K (taux d'X) sachant que le rendement de fluorescence des différents états de charge dominant l'émission X à proximité de cette durée d'impulsion varie de moins d'un facteur 2 ;
- l'épluchage en couche L de ces ions (état de charge) ;
- la production d'états excités du type *1s3pnl*.

L'ensemble de ces résultats semblerait donc montrer que les électrons acquièrent plus d'énergie pour une durée d'impulsion de 130 *fs* dans nos conditions expérimentales (E = 20 *mJ* et λ = 800 *nm*) indépendamment de la taille des agrégats (entre $5{,}1\times10^5$ atomes et $1{,}8\times10^6$ atomes).

1°-ii) Confrontation aux comportements issus du modèle nanoplasma

Dans le cadre du modèle nanoplasma, l'effet de la durée d'impulsion sur la dynamique de l'interaction est de modifier la position temporelle de la seconde résonance dans l'impulsion laser. Ainsi, ce modèle prévoit l'existence **d'une durée d'impulsion caractéristique** permettant d'optimiser la dynamique de l'interaction laser – agrégat. D'une manière simplifiée (illustrée *Figure IV-34*), avec une impulsion laser trop courte, l'impulsion laser interagit avec l'agrégat avant que la deuxième résonance ne se produise : ceci conduit alors à une faible absorption de l'énergie incidente du laser. Au contraire, quand la durée d'impulsion est plus grande, la deuxième résonance peut se produit au moment où l'intensité laser est maximale. Cette situation est associée à une absorption importante de l'énergie du laser par l'agrégat. Enfin, quand la durée d'impulsion est encore augmentée, la majorité de l'impulsion laser interagit alors avec un agrégat ayant une faible densité électronique et par suite l'absorption de l'énergie du laser devient plus faible. La variation de la durée d'impulsion revient ainsi à contrôler, en quelque sorte, le chauffage de l'agrégat par l'impulsion laser. Ce modèle met clairement en évidence la compétition temporelle entre l'explosion de l'agrégat et les mécanismes de chauffage des électrons *via* le déplacement temporel de la seconde résonance. Plusieurs expériences ont mis en évidence la présence de cette durée d'impulsion optimale sur :

- l'absorption de l'énergie du laser [Zweiback, Ditmire & Perry, 1999] ;
- la production d'électrons [Kumarappan, Krishnamurthy & Mathur, 2003] (*cf.* §I-C-2-a) ;

- l'émission d'X mous [Zweiback, 1999] (transitions de type $4\ell \rightarrow 3\ell'$ entre 180 Å et 300 Å pour des agrégats d'argon) ;
- la production de rayons X durs avec des agrégats d'argon [Caillaud, 2004].

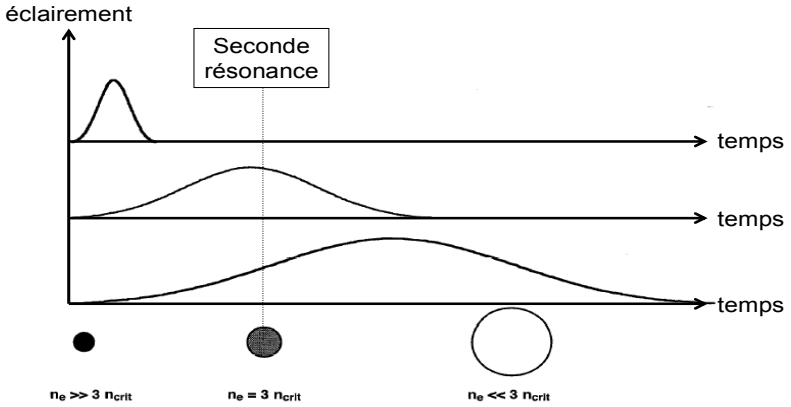


Figure IV-34 : Illustration de l'existence d'une durée d'impulsion optimale lors de l'interaction laser – agrégats dans le cadre du modèle nanoplasma.

D'autre part, et comme nous l'avons déjà vu dans le Chapitre I, la taille des agrégats influe également sur la position temporelle de la seconde résonance (*cf.* §I-C-1-d). Ainsi, en couplant ces deux effets (taille et durée d'impulsion), la durée d'impulsion optimale est modifiée lorsque la taille des agrégats varie dans le cadre de ce modèle. En l'occurrence, quand la taille des agrégats augmente, ce modèle prédit une augmentation de la durée d'impulsion optimale. Certaines expériences ont montré un tel comportement notamment en ce qui concerne l'absorption de l'énergie laser par un jet gazeux d'agrégats de gaz rare [Zweiback, 1999] ou bien très récemment sur l'émission de rayons X durs issus de l'irradiation d'agrégats d'argon [Caillaud, 2004]. Par contre, les travaux de [Parra et al., 2003] concernant l'évolution de l'ensemble des photons X ayant une énergie supérieure à 1,5 *keV* (Bremsstrahlung + X_K) issus de l'irradiation d'agrégats d'argon n'ont pas montré une réelle différence dans la durée d'impulsion optimale pour des tailles d'agrégat comprises entre 7×10^6 et 10^8 atomes. Nos résultats ne montrent également pas de modification de la durée d'impulsion optimale avec la taille des agrégats d'argon entre $5{,}1\times10^5$ et $1{,}8\times10^6$ atomes.

La *Figure IV-35* présente les prédictions du code nanoplasma incluant l'amortissement de Landau en ce qui concerne l'évolution de la température électronique en fonction de la durée d'impulsion pour plusieurs tailles d'agrégats et à une énergie par impulsion constante de 20 *mJ* (λ = 800 *nm*). Quelque soit la taille des agrégats, nous observons sur ces simulations une modification de la **température électronique maximale** quand on change la durée d'impulsion. Comme nous l'avons déjà vu pour une durée de 50 *fs*, la température électronique n'excède jamais la centaine d'*eV* ce qui ne peut induire la création de lacunes en couche K. Par contre, pour 200 *fs*, la température électronique atteint cette fois – ci plusieurs *keV* pour N =

$5{,}1\times10^5$ atomes. Ce comportement n'est pas en accord avec nos résultats expérimentaux car nous observons un taux d'X assez identique à 50 *fs* et à 200 *fs* laissant à supposer une température électronique moyenne proche pendant l'interaction pour ces 2 durées. D'autre part, dans ces simulations réalisées pour une taille unique d'agrégat, la durée optimale passe de 450 *fs* pour N = $5{,}1\times10^5$ atomes à environ 850 *fs* pour N = $1{,}8\times10^6$ atomes, ce que nous n'observons pas expérimentalement. Enfin, il est très surprenant d'avoir des températures électroniques largement plus grandes que le *keV* pour des durées d'impulsion supérieures à 1 *ps* alors que nos résultats expérimentaux montreraient un taux d'X pour ces durées d'impulsion inférieur à celui obtenu à 50 *fs*.

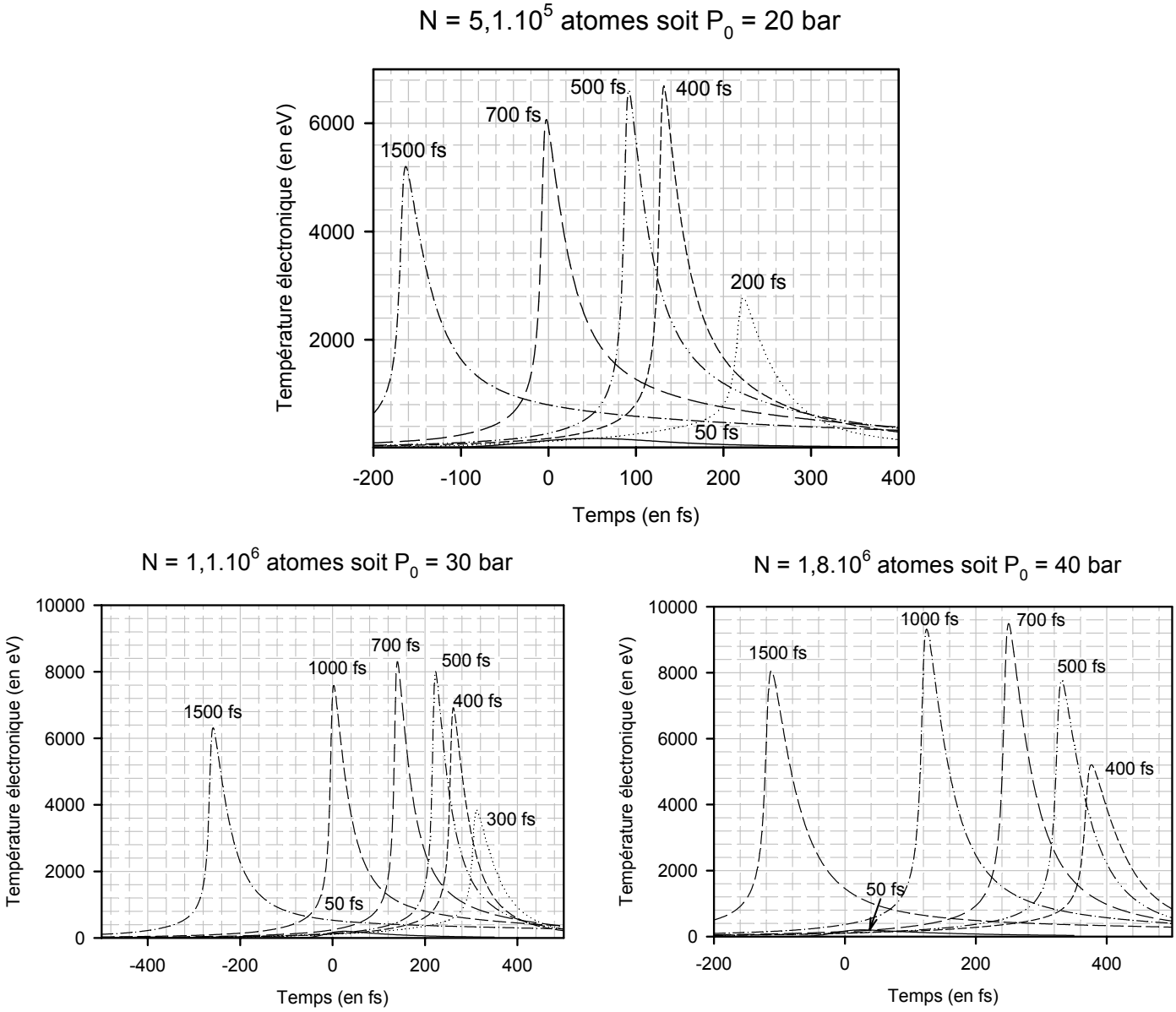


***Figure IV-35 :** Évolution de la température électronique à l'intérieur de l'agrégat en fonction de la durée d'impulsion pour plusieurs tailles d'agrégat d'argon dans nos conditions expérimentales (voir texte).*

2°) Étude à éclairement constant

2°-i) Évolution de l'émission X

En parallèle aux expériences présentées précédemment, nous avons étudié l'influence de la durée d'impulsion en gardant l'éclairement constant, c'est à dire en ayant un champ laser maximum identique quelque soit la durée d'impulsion. Cette évolution du taux d'X est présentée sur la *Figure IV-36* pour un éclairement constant de l'ordre de 8×10^{15} *W/cm²* et pour une taille d'agrégat de $1{,}1\times10^{6}$ atomes (P_0 = 30 *bars*, λ = 800 *nm*). Pour effectuer ces mesures, nous avons augmenté l'énergie par impulsion de 3,5 *mJ* pour une durée de 50 *fs* à 30 *mJ* pour une durée de 425 *fs*. Le taux de photons X augmente de plus d'un ordre de grandeur entre 50 *fs* et 140 *fs* puis reste constant entre 140 *fs* et 425 *fs* qui est la durée d'impulsion maximale pour laquelle nous avons réalisée ces expériences. Ceci traduit finalement une saturation de l'émission X pour une durée d'impulsion supérieure à 140 *fs*. Cette valeur, à partir de laquelle le taux d'X sature à éclairement constant, est en accord avec la durée d'impulsion optimale trouvée à énergie constante : 140 *fs* à comparer à 130 *fs*.

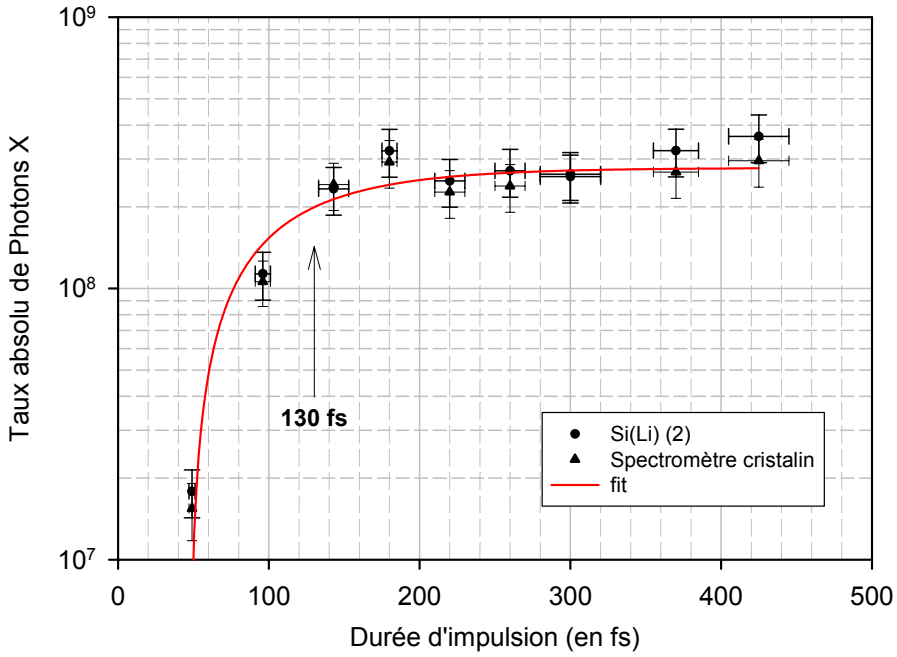


Figure IV-36 : Évolution du taux absolu de photons X avec la durée d'impulsion pour un éclairement laser constant de 8×10^{15} W/cm² (P_0 = 30 bars, λ = 800 nm).

L'énergie moyenne des photons X issus des poses *1s2p* est présentée sur la *Figure IV-37*. Tout comme lors de l'étude à énergie constante, l'énergie moyenne des photons X augmente pour une durée comprise entre 50 *fs* et 140 *fs* puis diminue pour des durées d'impulsion plus grandes. Ce résultat est associé à une diminution de l'état de charge moyen c'est à dire à une baisse de l'ionisation en couche L au moment où l'émission X sature.

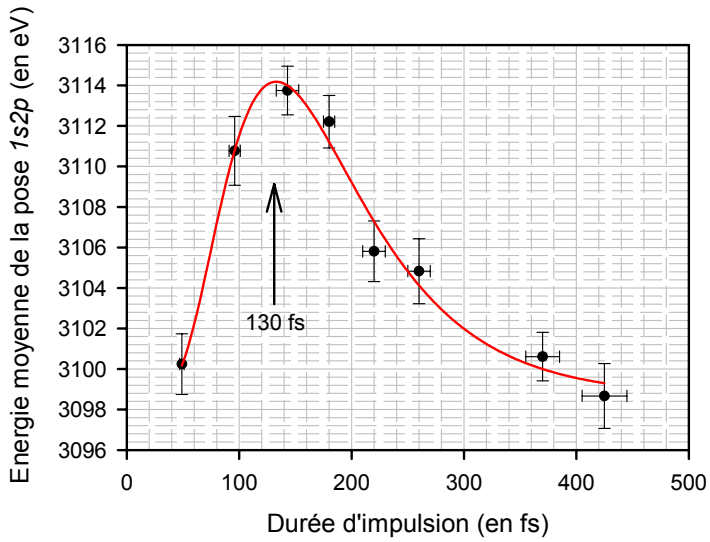


Figure IV-37 : Évolution de l'énergie moyenne des poses 1s2p lors des études en fonction de la durée d'impulsion à éclairement constant (P_0 = 30 bars, λ = 800 nm I ~ 8×10^{15} W/cm^2).

L'ensemble de ces résultats semblent confirmer la présence d'une durée optimale pour le chauffage des électrons et que nous trouvons de l'ordre de 130 – 140 *fs* pour des tailles d'agrégat comprises entre 5,1×10^5 atomes et 1,8×10^6 atomes, et ce à énergie ou éclairement constant.

2°-ii) Confrontation aux comportements du modèle nanoplasma

La *Figure IV-38* présente l'évolution de la température électronique obtenue à l'aide du code nanoplasma dans les conditions expérimentales correspondant à l'étude que nous venons de présenter (P_0 = 30 *bars* soit N = 1,1×10^6 atomes, I = 8×10^{15} *W/cm^2* et λ = 800 *nm*). Comme nous l'avons déjà vu sur la *Figure IV-35*, la température électronique pour une durée d'impulsion de 50 *fs* est beaucoup trop faible pour permettre aux électrons d'ioniser les ions en couche K. Par contre, pour des durées d'impulsion plus importantes (> 200 *fs*), les températures électroniques deviennent plus grandes et de l'ordre de plusieurs *keV*. On observe par ailleurs dans ces simulations à éclairement constant, une augmentation notable de la **température électronique maximale** pour une durée d'impulsion comprise entre 50 *fs* et 400 *fs*. D'autre part, on retrouve ici la même durée d'impulsion optimale que pour les simulations à énergie constante soit de l'ordre de 700 *fs*. Néanmoins, alors que les simulations réalisées à énergie constante (E = 20 *mJ*) et à éclairement constant (I = 8×10^{15} *W/cm^2*) pour P_0 = 30 *bars*, soit N ~ 1,1×10^6 atomes, sont assez semblables en ce qui concerne l'évolution de la température électronique avec la durée d'impulsion nous avons un comportement du taux d'X complètement différent pour ces deux études. Le code nanoplasma ne reproduit donc pas, même qualitativement, les évolutions observées du taux d'X avec la durée d'impulsion que ce soit à énergie constante ou à éclairement constant.

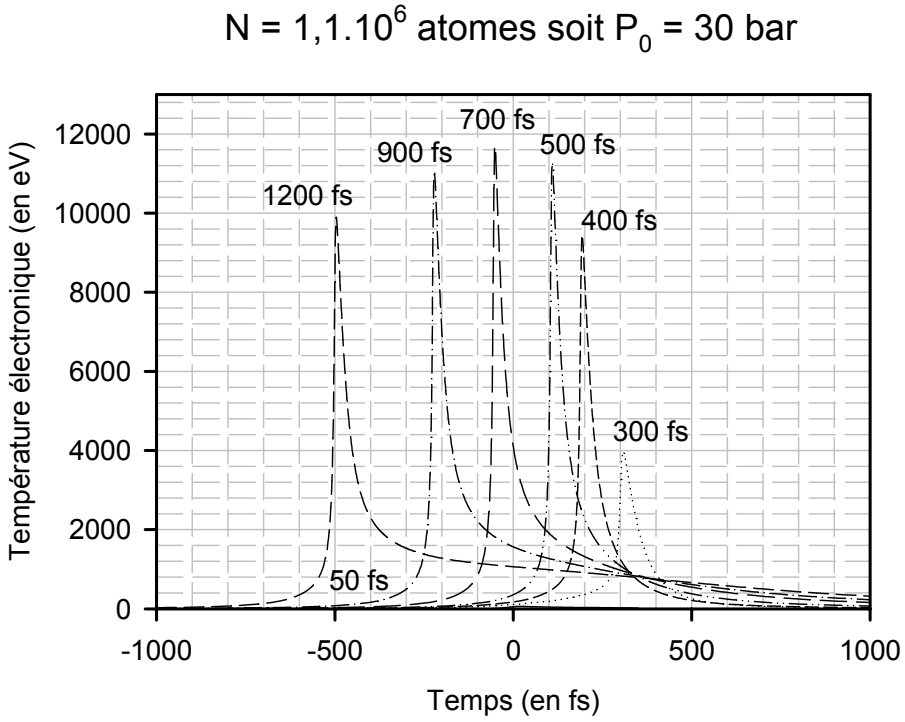


***Figure IV-38 :** Évolution de la température électrique en fonction de la durée d'impulsion dans nos conditions expérimentales ($I = 8\times10^{15}$ W/cm², $N = 1{,}1\times10^{6}$ atomes et $\lambda = 800$ nm)*

F-2-b) Agrégats de xénon

Pour les agrégats de xénon, l'évolution de l'émission X a été étudiée en fonction de la durée d'impulsion à une énergie laser constante de 35 *mJ* (λ = 800 *nm*) et pour deux pressions différentes[18] : 3,5 *bars* et 15 *bars* ; nous donnons les tailles des agrégats dans le *Tableau IV-18*.

Pression P_0 (en *bar*)	Taille estimée	Rayon (en *nm*)
3,5	$3{,}1\times10^{4}$	~ 8
15	$4{,}2\times10^{5}$	~ 19

***Tableau IV-18 :** Taille des agrégats de xénon pour l'étude de l'émission X en fonction de la durée d'impulsion.*

1°) Évolution du taux absolu de photons X

Le taux absolu de photons X suit globalement la même évolution que lors des études à énergie constante pour les agrégats d'argon, à savoir :

- une augmentation du taux d'X avant la durée optimale qui est ici de l'ordre de 200 *fs* à 300 *fs* ;

[18] Cette série de mesures a été obtenue lors de la campagne d'expériences de 2003 soit sans écorceur et pour une distance entre la zone d'interaction et la sortie de la buse de condensation de 13 *mm* (d = 300 μm).

- puis une baisse régulière de l'émission X pour des durées d'impulsion plus grandes.

Nous observons, avec les agrégats de xénon, une stagnation du taux d'X entre 50 *fs* et 100 *fs* puis une augmentation de plus d'un ordre de grandeur du taux d'X sur quelques dizaines de femtosecondes. Précisons que l'augmentation du taux d'X entre 50 *fs* et la durée optimale est beaucoup plus importante dans le cas du xénon que pour l'argon où nous avons observé uniquement un facteur 2 à 3 d'augmentation du taux d'X entre ces deux durées. D'autre part, et comme pour les agrégats d'argon, il n'est pas observé une modification significative de la durée d'impulsion optimale avec la taille des agrégats même si la dispersion des mesures expérimentales est ici plus importante.

2°) Évolution de la distribution en état de charge

Nous illustrons l'évolution des spectres haute résolution du xénon avec la durée d'impulsion pour une pression de 3,5 *bars* sur la *Figure IV-40*. Il est indiqué sur ces spectres les deux distributions associées aux transitions $3d_{3/2} \rightarrow 2p_{1/2}$ et $3d_{5/2} \rightarrow 2p_{3/2}$ qui ont été explicitées précédemment. Ces spectres sont plus difficiles à exploiter que ceux de l'argon mais si on s'intéresse aux spectres enregistrés entre 140 *fs* et 430 *fs*, on observe que celui obtenu à 220 *fs* présente des distributions $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$ plus larges que pour 140 *fs* et 430 *fs*. Ces deux composantes qui s'élargissent à proximité de la durée d'impulsion optimale sur l'émission X indiqueraient par conséquent une augmentation de l'état de charge moyen tout comme pour l'argon.

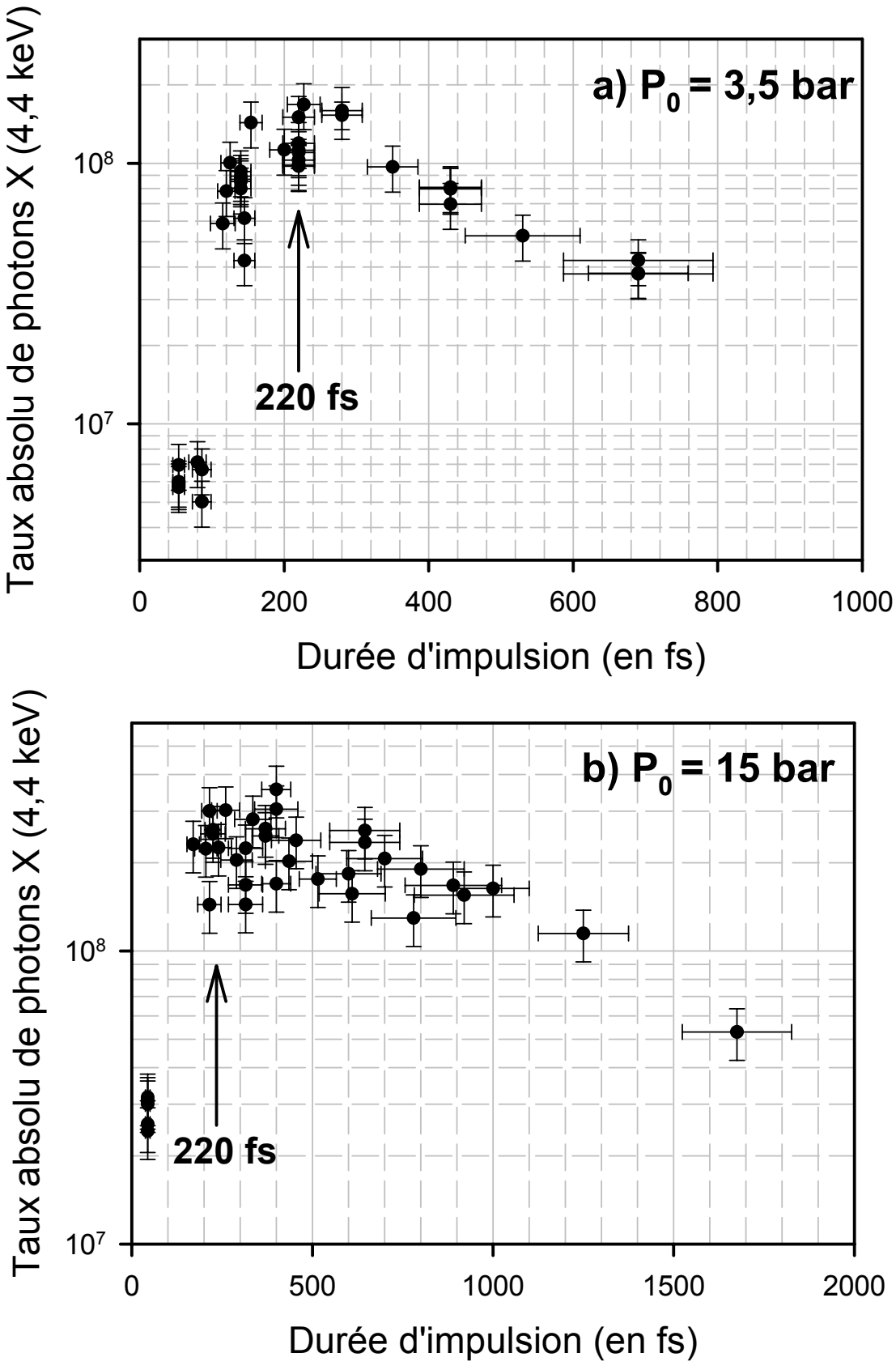


***Figure IV-39 :** Évolution du taux absolu d'X_L du xénon avec la durée d'impulsion pour plusieurs tailles d'agrégat de xénon (E = 35 mJ et λ = 800 nm).*

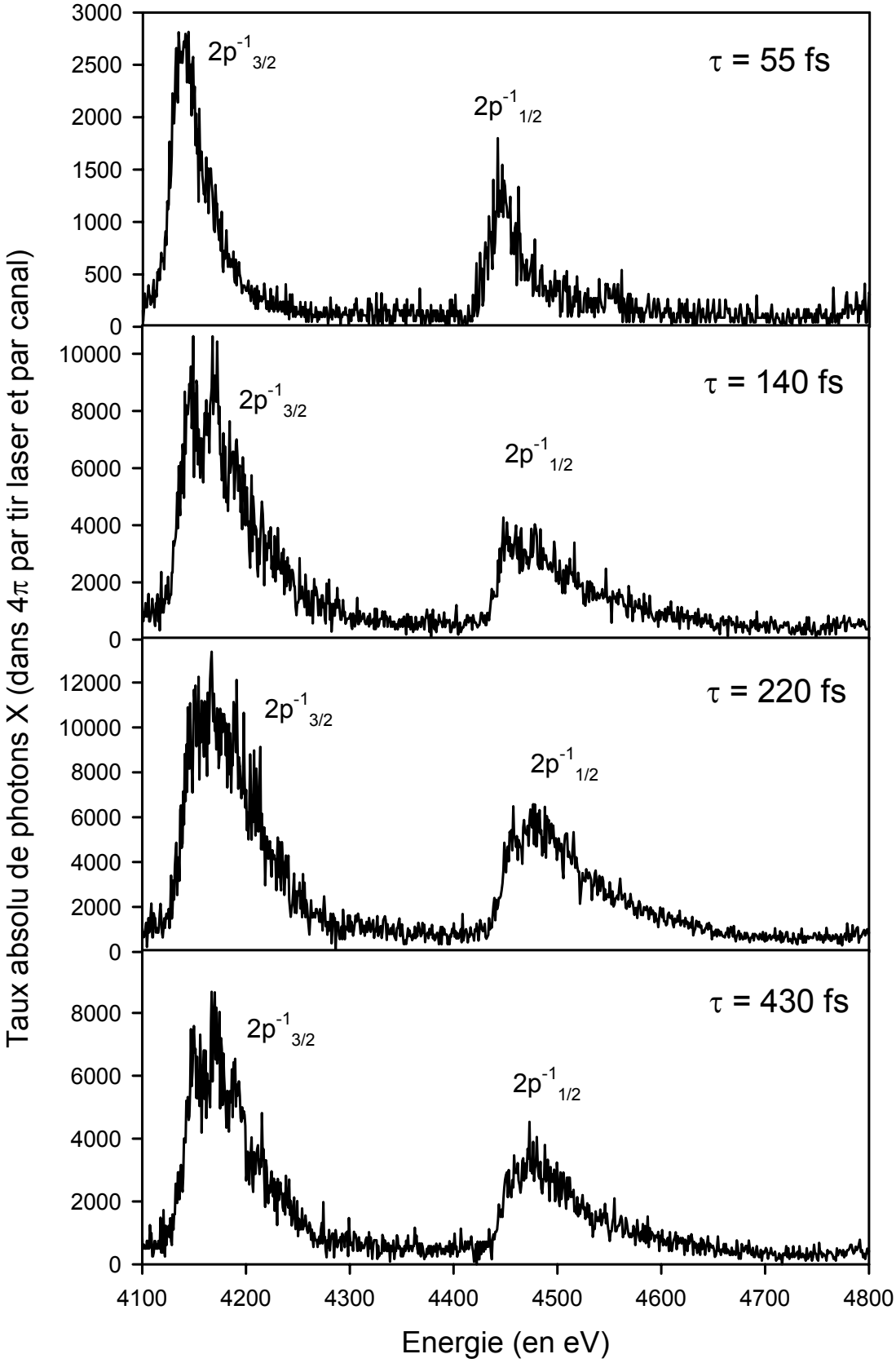


Figure IV-40 : ***Spectre X obtenu à l'aide du spectromètre cristallin lors de l'irradiation d'agrégats de xénon pour une pression de 3,5 bars en fonction de la durée d'impulsion, l'énergie par impulsion est constante (E = 35 mJ et λ = 800 nm).***

F-3] Influence de la durée d'impulsion sur le seuil de production de rayons X durs

Les études présentées précédemment en fonction de la durée d'impulsion ont finalement montré une évolution du taux d'X qui ne suit par simplement l'évolution de l'éclairement laser avec la durée d'impulsion ; il a notamment été montré la présence d'une durée optimale sur l'émission X qui peut caractériser un temps de chauffage optimum des électrons à l'intérieur de l'agrégat avant que celui – ci n'explose. Plus particulièrement, pour les agrégats d'argon et dans les études réalisées à énergie constante, il a été mesuré un taux absolu de photons X absolument identique pour une durée d'impulsion de 50 *fs* et de 200 *fs* (~ 2×10^8 hν pour P_0 = 30 *bars*) alors que l'éclairement laser correspondant est diminué d'un facteur 4 dans ces expériences (E = 20 *mJ*, λ = 800 *nm*). Plus spectaculaire, pour les agrégats de xénon, le taux absolu de photons X à 675 *fs* est encore près de 7 fois supérieur à celui mesuré à 50 *fs* alors que l'éclairement laser est réduit de plus d'un ordre de grandeur pour ces deux durées d'impulsion.

Nous avons donc étudié, pour plusieurs durées d'impulsion, l'évolution du taux absolu de photons X avec l'éclairement laser en faisant varier l'énergie par impulsion. Ces études[19] avaient deux objectifs :

- vérifier que le taux d'X suit toujours le volume focal effectif avec l'éclairement laser (*via* l'énergie par impulsion) **quelque soit la durée d'impulsion** ;
- déterminer le seuil en éclairement de production de photons X en fonction de la durée d'impulsion.

F-3-a) Présentation des résultats expérimentaux

Tout d'abord, pour les agrégats d'argon (X_K à 3,1 *keV*), les courbes en éclairement réalisées pour plusieurs durées d'impulsion (60 *fs*, 150 *fs* et 610 *fs*) sont présentées sur la *Figure IV-41*, en gardant la taille des agrégats (P_0 = 13 *bars* soit N = $3{,}7\times10^4$ atomes) constante ainsi que la longueur d'onde (λ = 800 *nm*). En premier lieu, quelque soit la durée d'impulsion, le taux absolu de photons X suit toujours, et sur une grande dynamique de comptage (près de 7 ordres de grandeur), le volume focal effectif mais avec un éclairement seuil d'apparition des X nettement différent selon la durée d'impulsion. Nous récapitulons dans le *Tableau IV-19*, les conditions expérimentales (durée d'impulsion mesurée et durée

[19] Toutes les courbes en éclairement présentées dans ce paragraphe ont été obtenues lors de la campagne d'expériences de 2003 soit sans écorceur et pour une distance entre la zone d'interaction et la sortie de la buse de condensation de 13 *mm* (d = 300 μm).

d'impulsion effective) ainsi que les seuils en éclairement (et en énergie) de production de rayonnement X déterminés expérimentalement. Nous observons ainsi une baisse régulière du seuil de production d'X quand la durée d'impulsion augmente : ce seuil en éclairement passe de $2{,}9\times10^{15}$ *W/cm²* pour une durée d'impulsion de 60 *fs* à $2{,}8\times10^{14}$ *W/cm²* pour une durée d'impulsion de 610 *fs*. Cet éclairement seuil est extrêmement proche de l'éclairement BSI (*cf.* Chapitre I - §B-1-a) pour la première ionisation des atomes d'argon qui se situe vers $2{,}5\times10^{14}$ *W/cm²*. La valeur maximale de l'énergie d'oscillation des électrons dans le champ laser ($2.U_p$) est ici, encore une fois, beaucoup trop faible pour pouvoir accélérer suffisamment les électrons et induire la création de lacunes en couche interne par des collisions électrons – ions. Nous pouvons également remarquer que l'énergie seuil mesurée expérimentalement pour la production de rayonnement X est, dans le cas présenté ici, assez constante quelque soit la durée d'impulsion (~ 1,5 *mJ* par impulsion).

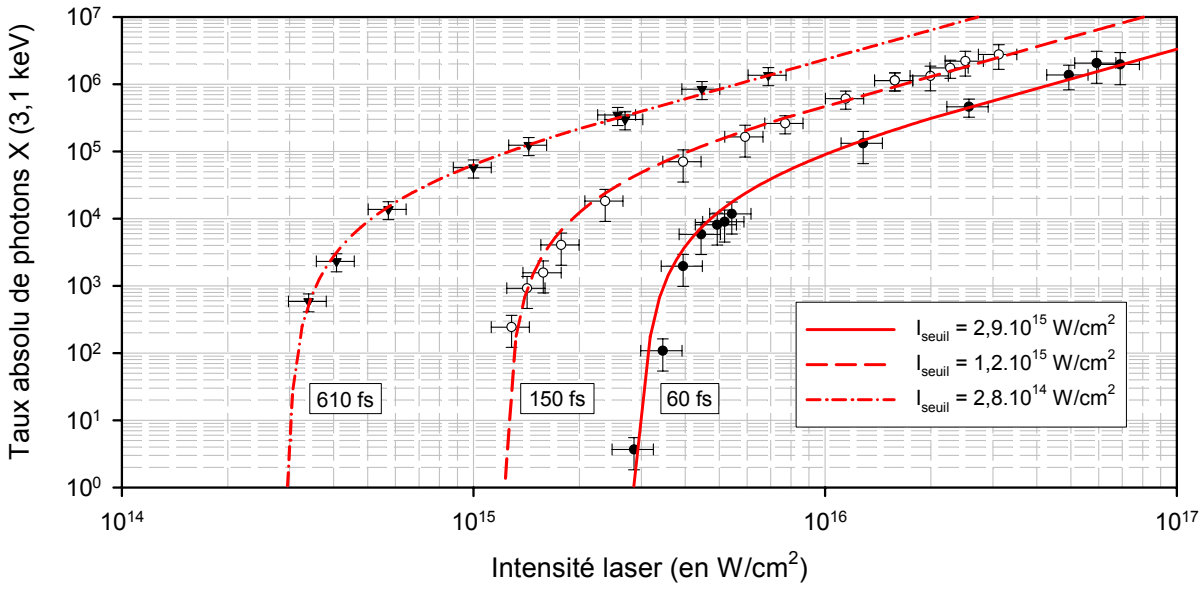


***Figure IV-41 :** Courbes en éclairement pour des agrégats d'argon en fonction de la durée d'impulsion (P_0 = 13 bars et λ = 800 nm).*

Durée mesurée Δt	Durée effective $2.\tau_{eff.}$	Éclairement seuil expérimental	Énergie seuil mesurée	$2.Up$
50 *fs*	60 *fs*	$2{,}9\times10^{15}$ *W/cm²*	~ 1,5 *mJ*	~ 345 *eV*
140 *fs*	150 *fs*	$1{,}2\times10^{15}$ *W/cm²*	~ 1,5 *mJ*	~ 145 *eV*
575 *fs*	610 *fs*	$2{,}8\times10^{14}$ *W/cm²*	~ 1,4 *mJ*	~ 35 *eV*

***Tableau IV-19 :** Valeurs expérimentales de l'éclairement seuil et de l'énergie seuil en fonction de la durée d'impulsion pour les agrégats d'argon de la Figure IV-41.*

Pour les agrégats de xénon (X_L à 4,4 *keV*), les courbes en éclairement pour deux durées d'impulsion différentes sont présentées sur la *Figure IV-42*. Elles ont été obtenues pour une pression de 9 *bars* de xénon (soit une taille de $1{,}7\times10^5$ atomes) et pour une longueur d'onde de 800 *nm*. Encore une fois, les données expérimentales sont très bien reproduites, sur plus de 5 ordres de grandeur, par l'évolution du volume focal effectif. Il est nécessaire pour cela d'adapter uniquement, pour chaque durée d'impulsion, l'intensité seuil d'apparition des X. Nous récapitulons dans le *Tableau IV-20*, les conditions expérimentales (durée d'impulsion mesurée et durée d'impulsion effective) ainsi que les seuils en éclairement (et en énergie) de production de rayonnement X déterminés expérimentalement. Nous observons, tout comme avec les agrégats d'argon, une baisse de l'éclairement laser seuil avec la durée d'impulsion : ce seuil en éclairement passe de $3{,}5\times10^{15}$ W/cm^2 pour une durée d'impulsion de 60 *fs* à $2{,}5\times10^{14}$ W/cm^2 pour une durée d'impulsion de 320 *fs*.

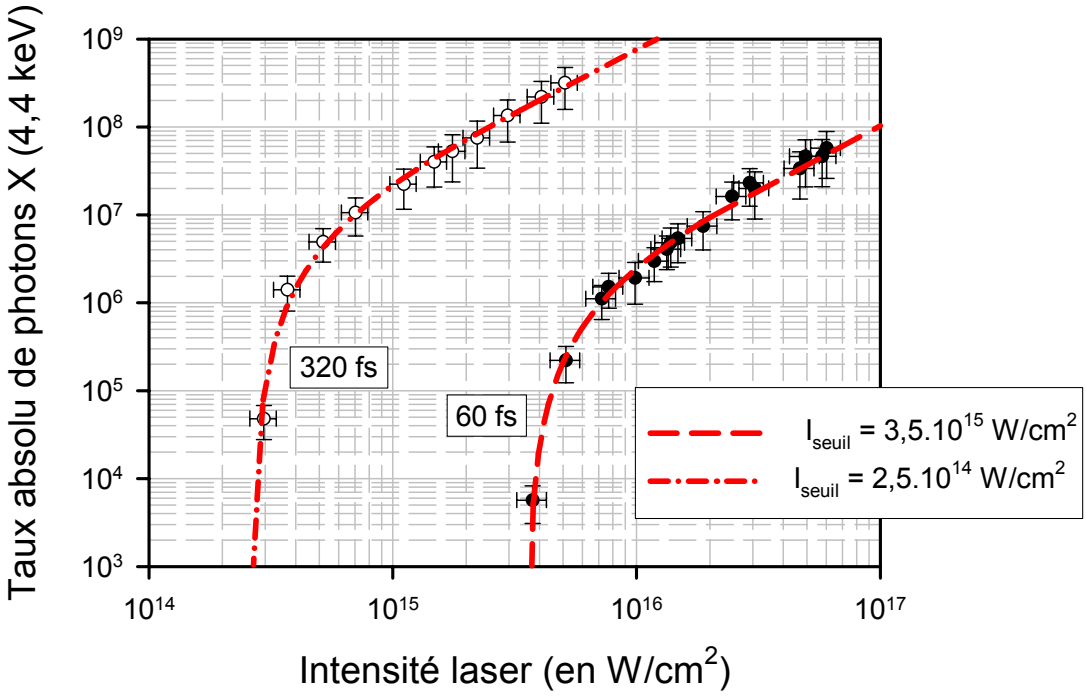


Figure IV-42 : Courbes en éclairement pour des agrégats de xénon en fonction de la durée d'impulsion (P_0 = 9 bars soit N = 1,7×10⁵ atomes et λ = 800 nm).

Durée mesurée Δt	Durée effective $2.\tau_{eff.}$	Éclairement seuil expérimental	Énergie seuil mesurée	$2.Up$
50 *fs*	60 *fs*	$3{,}5\times10^{15}$ W/cm^2	~ 1,8 *mJ*	~ 420 *eV*
300 *fs*	320 *fs*	$2{,}5\times10^{14}$ W/cm^2	~ 0,7 *mJ*	~ 30 *eV*

Tableau IV-20 : Valeurs expérimentales de l'éclairement et de l'énergie seuil en fonction de la durée d'impulsion pour les agrégats de xénon (P_0 = 9 bars soit N = 1,7×10⁵ atomes et λ = 800 nm).

Dans le cas du xénon, l'éclairement seuil de la production de Xe^{2+} est de $2{,}0\times10^{14}$ W/cm^2. Il semblerait finalement que la dynamique de production de rayons X puisse se déclencher dès la première ionisation des atomes de l'agrégat. Ce résultat est renforcé par le fait que pour une durée d'impulsion de plus de 2,3 *ps* (mais cette fois – ci pour une taille d'agrégat différente, $P_0 = 3{,}3$ *bars* soit $N = 2{,}8\times10^4$ atomes), nous trouvons encore une fois un seuil de production de rayonnement X à $2{,}2\times10^{14}$ W/cm^2 comme nous le présentons sur la *Figure IV-43*.

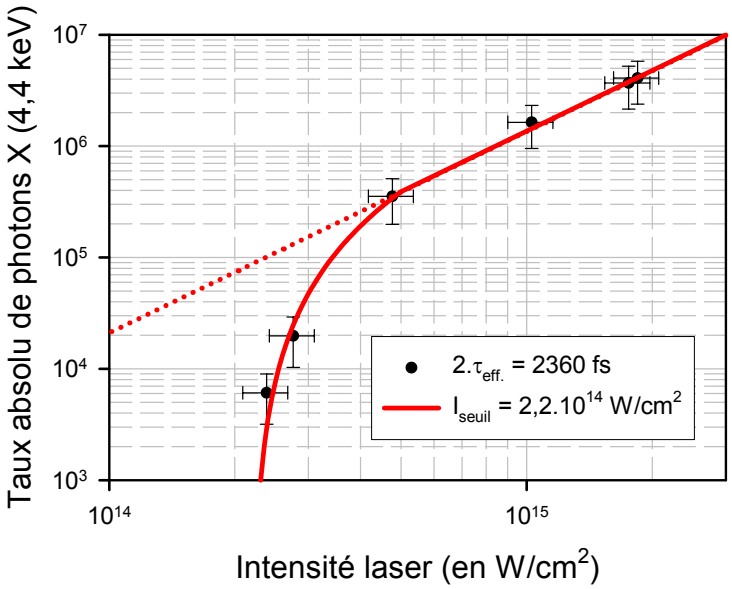


Figure IV-43 : Courbe en éclairement pour une durée d'impulsion effective de 2 360 fs – Agrégats de xénon – $P_0 = 3{,}3$ bars soit $N = 2{,}8\times10^4$ atomes et $\lambda = 800$ nm.

Durée mesurée Δt	Durée effective $2.\tau_{eff.}$	Éclairement seuil expérimental	Énergie seuil mesurée	$2.Up$
2220 *fs*	2360 *fs*	$2{,}2\times10^{14}$ W/cm^2	~ 4,4 *mJ*	~ 26 *eV*

Tableau IV-21 : Valeur expérimentale de l'éclairement et de l'énergie seuil pour $P_0 = 3{,}3$ bars de xénon ($N = 2{,}8\times10^4$ atomes) – $\lambda = 800$ nm.

F-3-b) Interprétation de l'optimum avec le volume focal effectif

Pour une durée d'impulsion donnée, tous les résultats expérimentaux que nous avons obtenus en fonction de l'éclairement laser sont très bien reproduits, et sur une large gamme de taux absolu, par l'évolution du volume focal effectif (*cf.* formule [IV-B.8]). Nous venons de voir dans ce paragraphe que l'éclairement seuil de production des photons X dépend de la durée d'impulsion comme nous le récapitulons sur la *Figure IV-44*, tant pour les agrégats d'argon que pour les agrégats de xénon. La fonction d'ajustement reliant l'éclairement seuil et la durée d'impulsion est prise de la forme :

$$I_{seuil}(\tau) = I_0 + A \cdot \exp(-B \times \tau) \qquad \textbf{[IV-F.1]}$$

avec I_0 l'éclairement seuil de saturation et A et B deux constantes empiriques.

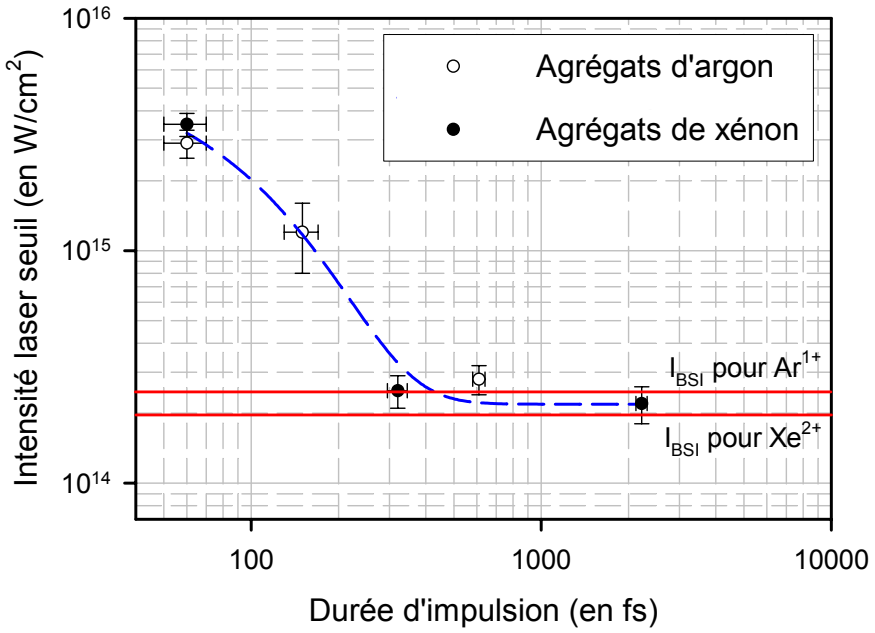


***Figure IV-44 :** Évolution de l'éclairement seuil pour la production de rayonnement X avec la durée d'impulsion pour les agrégats d'argon et de xénon.*

Nous avons donc examiné l'évolution du volume focal effectif quand on introduit un éclairement seuil qui dépend explicitement de la durée d'impulsion $I_{seuil}(\tau)$ suivant la formule [IV-F.1]. Dans ces conditions, le volume focal effectif se met sous la forme suivante :

$$V_{eff.foc.} \propto \left\{ \frac{4}{3} \cdot \left(\frac{I(\tau)}{I_{seuil}(\tau)} - 1 \right)^{1/2} + \frac{2}{9} \cdot \left(\frac{I(\tau)}{I_{seuil}(\tau)} - 1 \right)^{3/2} - \frac{4}{3} \cdot arctg\left(\frac{I(\tau)}{I_{seuil}(\tau)} - 1 \right)^{1/2} \right\} \qquad \textbf{[IV-F.2]}$$

L'évolution de ce volume focal donne alors le résultat suivant pour les études réalisées avec **les agrégats d'argon,** c'est à dire :

- **pour une énergie par impulsion constante** de 20 *mJ*, l'éclairement laser varie alors en fonction de la durée d'impulsion $I(\tau)$; ce cas est présenté sur la *Figure IV-45* et est à comparer directement avec la *Figure IV-29* ;
- **pour un éclairement constant** : $I(\tau) = 8 \times 10^{15}\ W / cm^2$; ce cas est présenté sur la *Figure IV-46* et doit être comparé avec la *Figure IV-36*.

Nous voyons sur ces figures que l'évolution du volume focal effectif en tenant compte de la modification de l'éclairement seuil avec la durée d'impulsion (formule [IV-F.2]) reproduit qualitativement très bien les évolutions du taux absolu d'X en fonction de la durée d'impulsion obtenues pour **les agrégats d'argon**, tant pour l'étude réalisée à énergie constante que celle à éclairement constant.

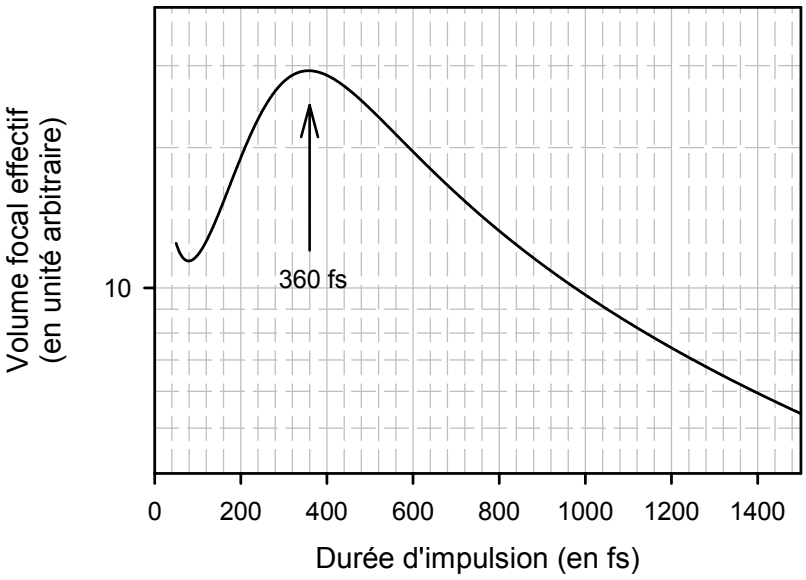


Figure IV-45 : Évolution du volume focal effectif pour une énergie constante de 20 mJ en tenant compte de l'évolution de l'éclairement seuil avec la durée d'impulsion.

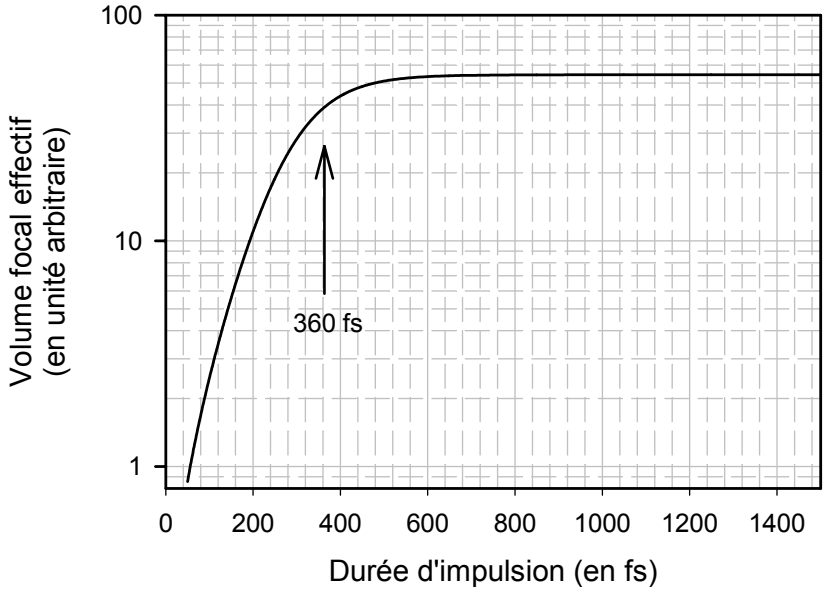


Figure IV-46 : Évolution du volume focal effectif pour un éclairement laser constant de 8×10^{15} W/cm^2 en tenant compte de l'évolution de l'éclairement seuil avec la durée d'impulsion

Plus particulièrement :

- **pour l'étude à énergie constante**, le volume focal effectif augmente d'un facteur 2 à 3 entre 50 *fs* et la durée optimale. Puis, le volume focal effectif décroît régulièrement avec la durée d'impulsion. Ce comportement est identique à celui que nous avons observé sur l'évolution du taux d'X (*cf. Figure IV-29*). La durée d'impulsion optimale est du même ordre de grandeur : nous trouvons une durée d'impulsion optimale de 360 *fs* pour le volume focal effectif alors que le taux d'X est optimal à 130 *fs* ; cette différence pourrait être liée à l'explosion de l'agrégat qui limiterait alors l'efficacité de production de lacune en couche interne.

- **pour l'étude à éclairement constant**, nous observons une forte augmentation (de plus d'un ordre de grandeur) du volume focal effectif entre 50 *fs* et la durée optimale déterminée précédemment (~ 360 *fs*). Puis, le volume focal effectif sature à cause de la saturation de l'éclairement seuil pour les grandes durées d'impulsion. Ce comportement est absolument identique avec celui que nous avons observé sur le taux d'X (augmentation de plus d'un ordre de grandeur entre 50 *fs* et la durée optimale puis saturation sur la *Figure IV-36*). Encore une fois, seule la durée d'impulsion de saturation (identique à la durée optimale) n'est pas bien reproduite lors de cette évolution.

Malgré une durée optimale pour le volume focal effectif différente de celle obtenue expérimentalement pour le taux absolu de photons X, **les évolutions qualitatives** de ces deux grandeurs apparaissent encore une fois corrélées lorsque l'on tient compte de la modification de l'éclairement seuil avec la durée d'impulsion. Des perfectionnements peuvent néanmoins être apportés. En particulier, il faudrait introduire la compétition temporelle entre les différents processus à partir d'un code dynamique (temps d'ionisation collisionnelle en couche interne). D'autre part, en ce qui concerne le xénon, nous avons vu que l'évolution du taux absolu d'X avec la durée d'impulsion a un comportement identique que celui obtenu avec les agrégats d'argon avec néanmoins une durée d'impulsion optimale différente et une augmentation plus brutale du taux d'X avant l'optimum. Les simulations réalisées indiquent que le volume focal effectif dépend fortement de l'évolution de l'éclairement seuil avec la durée d'impulsion et notamment du coefficient B dans la formule [IV-F.1]. Des études complémentaires et systématiques de la variation de l'éclairement seuil avec la durée d'impulsion devraient être menées lors des prochaines campagnes d'expériences pour ces deux types d'agrégats afin d'étudier plus précisément la corrélation entre ces 2 grandeurs (fonction $I_{seuil}(\tau)$).

G] Effet de la longueur d'onde

L'effet de la longueur sur la dynamique de l'interaction intervient principalement dans les mécanismes de chauffage des électrons. En particulier, toutes choses étant égales par ailleurs (même éclairement laser), l'énergie pondéromotrice des électrons est divisée d'un facteur 4 quand la longueur d'onde passe de 800 *nm* à 400 *nm*. D'autre part dans le cadre du modèle nanoplasma, le chauffage par Bremsstrahlung inverse est censé augmenter en présence d'une radiation de longueur d'onde plus petite en admettant une fréquence électronique de collision identique pour les deux longueurs d'onde (*cf.* *Figure I-13* : si λ est réduit d'un facteur 2 alors $A = {\nu_{électronique}}/{\omega}$ est diminué d'un facteur 2 sur cette figure). Enfin, comme nous l'avons vu dans le Chapitre I, l'effet de la longueur d'onde fut un argument important pour établir la validité du modèle faisant intervenir le mouvement collectif et cohérent des électrons expliquant la présence de lacunes en couche interne (*cf.* §I-D-2-b) : plus particulièrement, Kondo *et al.* ont montré une évolution de l'émission X avec la longueur d'onde suivant une loi en λ^{-6} ou λ^{-7} Nous avons donc étudié précisément l'émission X résultant de l'interaction laser – agrégats en fonction de la longueur d'onde en contrôlant au mieux les conditions expérimentales comme la taille des agrégats, l'éclairement laser et la durée d'impulsion. En particulier, nous allons présenter dans ce paragraphe uniquement des expériences ayant été réalisées lors d'une même campagne d'expériences.

G-1] Évolution de l'émission X avec la longueur d'onde

L'évolution de l'émission X (distribution en état de charge et taux absolu) a été étudiée pour deux longueurs d'onde différentes :

- λ = 800 *nm*, correspondant à la longueur d'onde fondamentale du faisceau laser issu du serveur LUCA ;
- λ = 400 *nm*, obtenue par doublage de fréquence à travers un cristal de KDP comme cela a été exposé dans le Chapitre II.

G-1-a) Agrégats d'argon

Les spectres haute résolution correspondant à la pose $1s2pnl \rightarrow 1s^2nl$ pour les ions argon ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ sont présentés sur la *Figure IV-47* pour plusieurs pressions en amont de la buse de condensation (*i.e.* plusieurs tailles d'agrégats) et pour les deux longueurs d'onde de 800 *nm* (IR) et de 400 *nm* (UV) ; les conditions

expérimentales lors de l'obtention de ces spectres sont récapitulées dans le *Tableau IV-22* pour la taille des agrégats[20] et dans le *Tableau IV-23* pour les impulsions laser (IR et UV). Précisons que les spectres obtenus en UV ont été réalisés avec le cristal de KDP de 2 *mm*, ce qui permet d'évaluer la durée d'impulsion en UV à 130 *fs* (*cf.* §II-B-4 du Chapitre II). Dans ces conditions, l'éclairement laser est identique pour les deux radiations. Afin d'effectuer une comparaison significative des distributions en état de charge entre IR et UV, tous les spectres présentés sur cette figure sont normalisés au même nombre total de coups.

Pression P_0	Taille estimée des agrégats
17 *bars*	$3{,}4\times10^5$ atomes
30 *bars*	$1{,}1\times10^6$ atomes
40 *bars*	$1{,}8\times10^6$ atomes

Tableau IV-22 : Taille des agrégats d'argon pour les spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-47.

	Durée d'impulsion Δt	Durée d'impulsion effective $2\,\tau_{eff.}$	Énergie mesurée	Éclairement laser[21]
IR (800 *nm*)	50 *fs*	60 *fs*	7,8 *mJ*	$1{,}5\times10^{16}$ *W/cm²*
UV (400 *nm*)	130 *fs*	160 *fs*	5 *mJ*	$1{,}5\times10^{16}$ *W/cm²*

Tableau IV-23 : Conditions expérimentales en IR et en UV pour les spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-47.

Quelque soit la taille des agrégats d'argon, les distributions en état de charge des ions émettant le rayonnement X sont identiques pour une impulsion laser IR et UV. Ceci est confirmé par l'énergie moyenne de ces différentes poses qui sont analogues pour les deux longueurs d'onde comme nous l'illustrons sur la *Figure IV-48*. Ainsi, pour les agrégats d'argon, nous observons le même comportement de l'épluchage en couche L des ions ayant une lacune en couche K avec la pression (*i.e.* avec la taille des agrégats) quelque soit la longueur d'onde.

[20] Les spectres présentés dans ce paragraphe ont été obtenus lors de la campagne d'expériences de 2002 soit sans écorceur et pour une distance entre la zone d'interaction et la buse de condensation de 13 *mm* (d = 1000 μm).
[21] Nous rappelons que l'éclairement laser calculé tient compte du facteur 0,45 entre l'énergie mesurée et l'énergie effective participant à l'éclairement crête (*cf.* §II-B-2-c). Nous avons pris ce même facteur pour l'IR et l'UV.

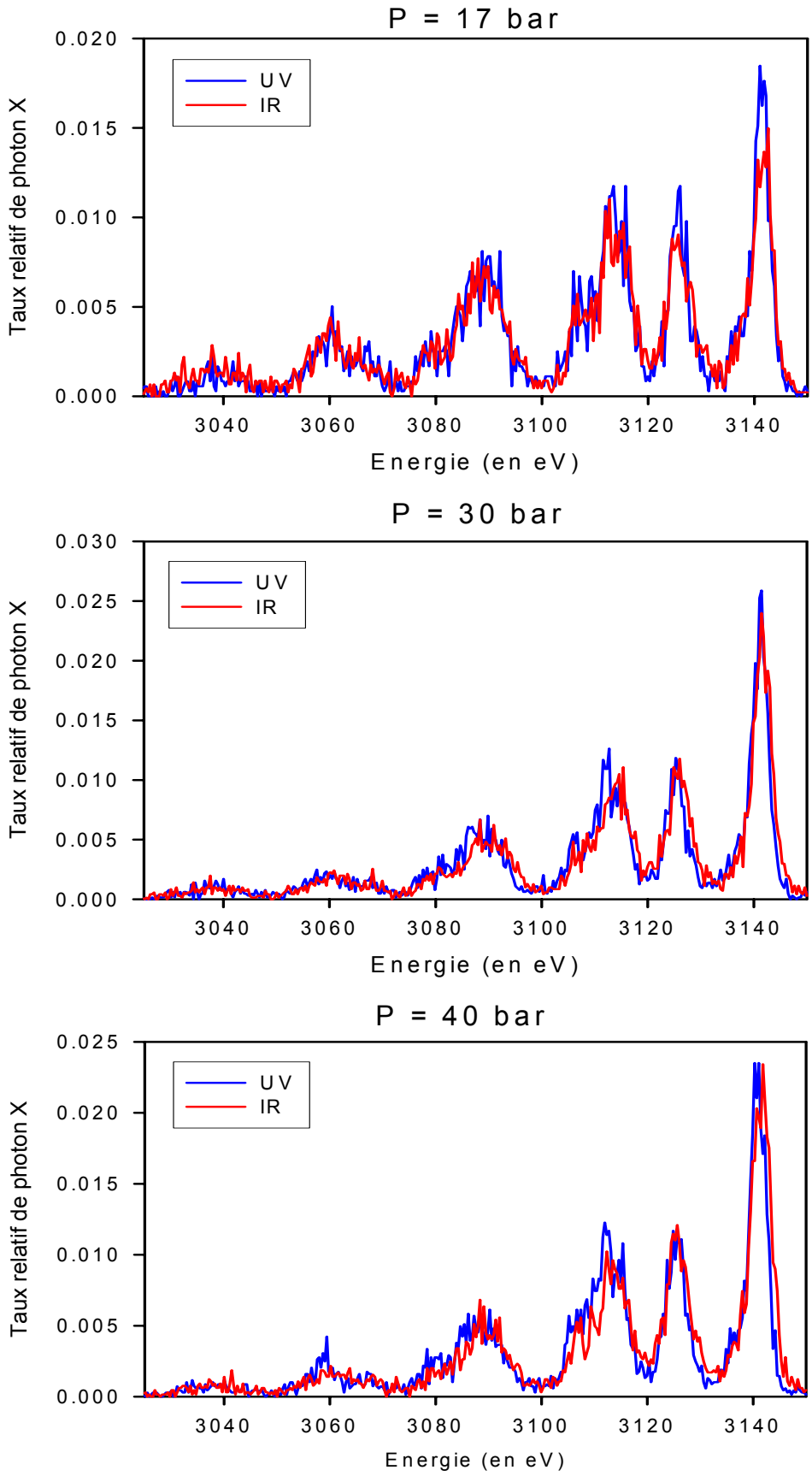


***Figure IV-47 :** Spectres haute résolution obtenus lors de l'irradiation d'agrégat d'argon en UV et en IR pour plusieurs pressions en amont de la buse de condensation (les conditions expérimentales sont données dans le Tableau IV-22 pour les tailles d'agrégats et le Tableau IV-23 pour les impulsions laser).*

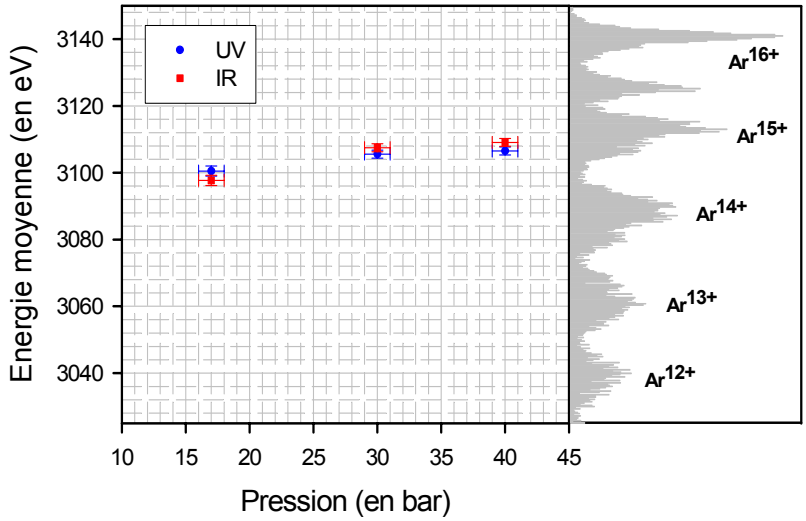


Figure IV-48 : Énergies moyennes des transitions 1s2pnl → 1s²nl pour les ions ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ des spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-47.

D'autre part, pour les conditions expérimentales précédentes (même éclairement laser de $1{,}5\times10^{16}$ *W/cm²* mais durée d'impulsion différente entre l'IR et l'UV), les rapports des taux absolus de photons X issus de l'irradiation d'agrégats d'argon avec une impulsion laser IR et UV sont présentés sur la *Figure IV-49*.

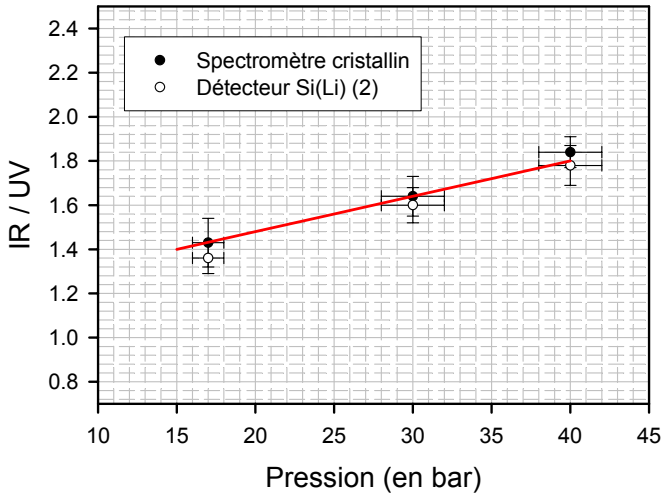


Figure IV-49 : Rapport du taux absolu de photons X IR / UV pour les spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-47.

Ainsi, pour un éclairement laser de $1{,}5\times10^{16}$ *W/cm²* :

$$(n_X^{[IR]})_{60\,fs}^{exp.} = \chi \times (n_X^{[UV]})_{160\,fs}^{exp.} \approx (1{,}4-1{,}8)\times(n_X^{[UV]})_{160\,fs}^{exp.} \qquad \textbf{[IV-G.1]}$$

Le facteur de proportionnalité (χ) entre le taux absolu de photons X obtenu en IR et en UV dépend légèrement de la taille des agrégats et est compris typiquement entre 1,4 pour une pression de 17 *bars* et 1,8 pour P_0 = 40 *bars*. Si on souhaite comparer le taux absolu de photons X pour une même durée d'impulsion et à un même éclairement laser il faut tenir compte de l'évolution du taux d'X entre 60 *fs* et 160 *fs* pour l'IR suivant la relation :

$$\frac{(n_X^{[IR]})_{160\,fs}^{exp.}}{(n_X^{[IR]})_{60\,fs}^{exp.}} = \xi \times \left(\frac{160}{60}\right)^{3/2} \qquad \textbf{[IV-G.2]}$$

avec ξ un facteur qui tient compte de l'évolution du taux absolu de photons X quand on modifie la durée d'impulsion en IR (*cf. Figure IV-29*) et le facteur $\left(\frac{160}{60}\right)^{3/2}$ qui permet de ramener le taux absolu de photons X au même éclairement laser. Le facteur ξ est présenté dans le *Tableau IV-24* à partir des valeurs obtenues expérimentalement sur la *Figure IV-29* du paragraphe précédent en fonction de la durée d'impulsion et pour les trois pressions.

Pression P_0	ξ	$\frac{(n_X^{[IR]})^{exp.}_{160\,fs}}{(n_X^{[IR]})^{exp.}_{60\,fs}} = \xi \times \left(\frac{160}{60}\right)^{3/2}$	$\frac{(n_X^{[IR]})^{exp.}_{60\,fs}}{(n_X^{[UV]})^{exp.}_{160\,fs}}$	$\frac{(n_X^{[IR]})^{exp.}_{160\,fs}}{(n_X^{[UV]})^{exp.}_{160\,fs}}$
17 – 20 *bars*	~ 2,0	~ 8,7	~ 1,4	~ 12
30 *bars*	~ 1,7	~ 7,4	~ 1,6	~ 12
40 *bars*	~ 1,4	~ 6,1	~ 1,8	~ 11

Tableau IV-24 : Coefficients correctifs pour le calcul du rapport du taux absolu entre l'IR et l'UV.

En conclusion, **pour une durée d'impulsion de 160 *fs* et un éclairement laser de $1{,}5\times10^{16}$ *W/cm²*** :

$$(n_X^{[IR]})^{exp.}_{160\,fs} \approx (11-12) \times (n_X^{[UV]})^{exp.}_{160\,fs} \qquad \textbf{[IV-G.3]}$$

Ce résultat est en complète contradiction avec la loi en λ^{-6} ou λ^{-7} établie par Kondo *et al.* que nous avons rappelée dans le Chapitre I et qui prédisait une augmentation de l'émission X de près de deux ordres de grandeur quand la longueur d'onde est divisée par deux. Nous observons au contraire, pour les agrégats d'argon, une augmentation de plus d'un ordre de grandeur de l'émission X en IR par rapport à l'UV quand on tient compte de l'évolution de l'émission X avec les différents paramètres expérimentaux comme l'éclairement laser et la durée d'impulsion.

G-1-b) Agrégats de xénon

Les études de Kondo *et al.* ayant été faites avec des agrégats de xénon, nous avons voulu effectuer ces mêmes mesures pour ce type d'agrégats. La *Figure IV-50* présente l'évolution de l'allure générale des spectres haute résolution obtenus lors de l'irradiation d'agrégats de xénon ayant une taille identique de l'ordre de $1{,}5\times10^6$ atomes pour les deux

longueurs d'onde ; les conditions expérimentales[22] correspondant à ces deux spectres haute résolution sont récapitulées dans le *Tableau IV-25*.

Pression	P_0 = 10,7 *bars*	⇔	Taille	N ~ 1,5×10^6 atomes
	Durée d'impulsion mesurée Δt	Durée effective $2\,\tau_{eff.}$	Énergie mesurée	Éclairement laser
IR	50 *fs*	60 *fs*	30 *mJ*	6×10^{16} *W/cm*^{2}
UV	130 *fs*	160 fs	5,25 *mJ*	1,6×10^{16} *W/cm*^{2}

Tableau IV-25 : Conditions expérimentales en IR et en UV pour les spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-50.

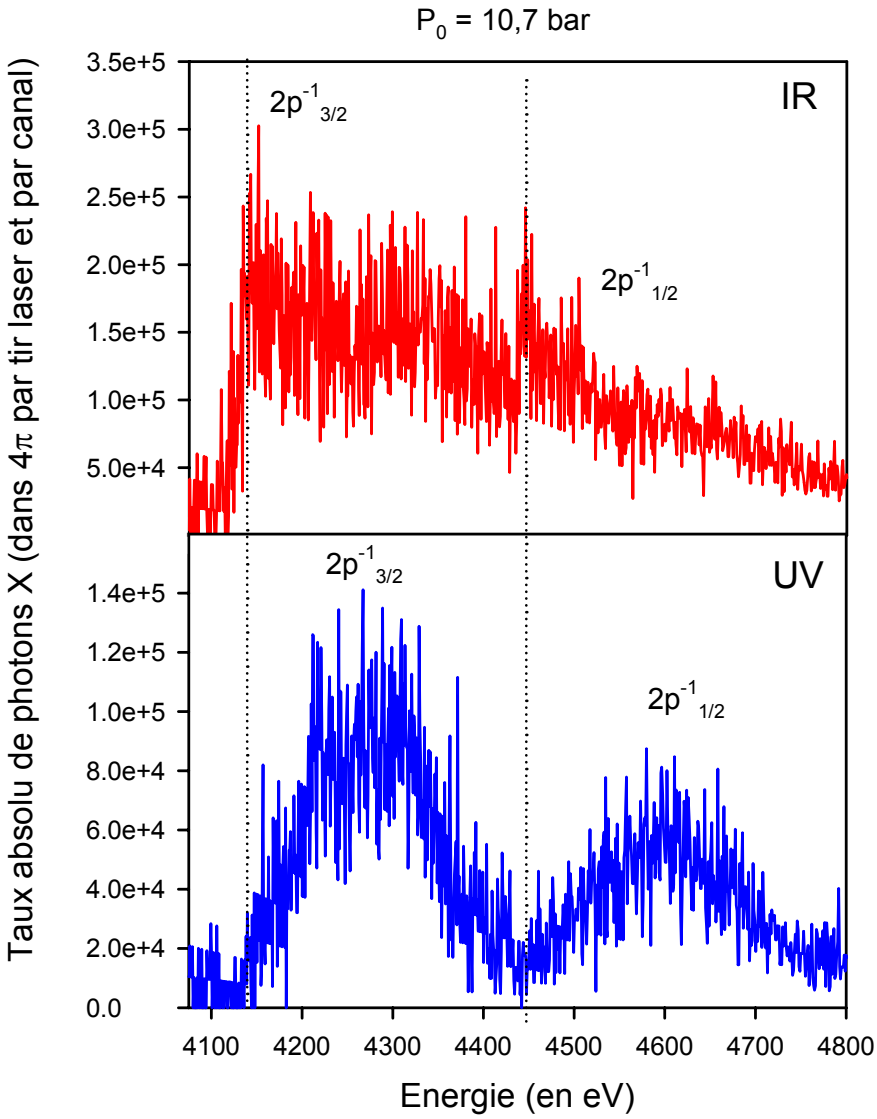


Figure IV-50 : Spectres haute résolution obtenus lors de l'irradiation d'agrégat de xénon en UV et en IR pour une pression en amont de la buse de condensation de 10,7 bars (les conditions expérimentales sont données dans le Tableau IV-25).

[22] Les spectres présentés dans ce paragraphe ont été obtenus lors de la campagne d'expériences de 2002 soit sans écorceur et pour une distance entre la zone d'interaction et la buse de condensation de 13 *mm* (d = 300 *µm*).

Pour commencer, avec les agrégats de xénon, nous observons une très nette modification de la distribution en état de charge des ions émettant le rayonnement X_L pour une radiation IR et pour une radiation UV contrairement à ce que nous avons observé dans le cas de l'argon pour le rayonnement X_K. Les deux groupes de raies qui sont caractéristiques, de par leur différence en énergie, de l'écart de structure fine $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$, sont observés pour les deux longueurs d'onde mais avec une répartition en états de charge très différente. En l'occurrence, il semblerait que la distribution en état de charge pour une impulsion UV soit plutôt Gaussienne alors la distribution en état de charge pour une impulsion laser IR ressemble plutôt à une statistique de type poissonnienne.

Ensuite, en ce qui concerne le taux absolu, les trois détecteurs (Si(Li) (1) et (2) + spectromètre cristallin) donnent le même résultat ce qui permet de déterminer que pour une pression de 10,7 *bars* :

$$(n_X^{[IR]})^{\exp.}_{60\,fs,\,I=6.10^{16}\,W/cm^2} = 2{,}6 \times (n_X^{[UV]})^{\exp.}_{160\,fs,\,I=1{,}6.10^{16}\,W/cm^2} \qquad \textbf{[IV-G.4]}$$

Si on tient compte de la différence d'éclairement laser entre l'expérience réalisée en UV ($I = 1{,}6\times10^{16}$ *W/cm²*) et celle réalisée en IR ($I = 6\times10^{16}$ *W/cm²*), on obtient :

$$(n_X^{[IR]})^{\exp.}_{60\,fs,\,I=6.10^{16}\,W/cm^2} = 2{,}6 \times \left(\frac{1{,}6\times10^{16}}{6\times10^{16}}\right)^{3/2} \times (n_X^{[UV]})^{\exp.}_{160\,fs,\,I=1{,}6.10^{16}\,W/cm^2} \qquad \textbf{[IV-G.5]}$$

soit pour un même éclairement laser de $1{,}6\times10^{16}$ *W/cm²* :

$$(n_X^{[IR]})^{\exp.}_{60\,fs} = 0{,}36 \times (n_X^{[UV]})^{\exp.}_{160\,fs} \qquad \textbf{[IV-G.6]}$$

En ramenant, le taux de photons en IR à une durée d'impulsion de 160 *fs* (tout en gardant l'éclairement constant) comme nous l'avons fait précédemment pour les agrégats d'argon :

$$\frac{(n_X^{[IR]})^{\exp.}_{160\,fs}}{(n_X^{[IR]})^{\exp.}_{60\,fs}} = \xi \times \left(\frac{160}{60}\right)^{3/2} \qquad \textbf{[IV-G.7]}$$

avec $\xi \sim 10$ d'après la *Figure IV-39-b* du paragraphe précédent sur la durée d'impulsion. Finalement, il ressort que les taux de photons X en IR et en UV pour une durée d'impulsion et un éclairement identique, respectivement de 160 *fs* et de $1{,}6\times10^{16}$ *W/cm²*, sont reliés par :

$$(n_X^{[IR]})^{\exp.}_{160\,fs} \approx 15 \times (n_X^{[UV]})^{\exp.}_{160\,fs} \qquad \textbf{[IV-G.8]}$$

Pour le cas des agrégats de xénon, nous trouvons aussi que l'émission X en IR est environ un ordre de grandeur supérieure à celle obtenue avec une radiation UV alors que cette fois pour les mêmes agrégats Kondo *et al.* ont trouvé une loi en λ^{-6} ou λ^{-7} [Kondo et al.,

1997]. D'après nos résultats, l'émission X est donc plus intense avec une radiation IR qu'avec une radiation UV, toute choses étant égales par ailleurs (même taille d'agrégats, même éclairement laser, même durée d'impulsion et même système de focalisation) et cela quelque soit le type d'agrégats (argon ou xénon).

G-2] Influence de la longueur d'onde sur le seuil de production de rayons X durs

La seule étude[23] comparative dans la recherche du seuil en éclairement que nous avons réalisée en fonction de la longueur d'onde est présentée sur la *Figure IV-51* pour des agrégats d'argon avec une pression en amont de la buse de condensation de 40 *bars*.

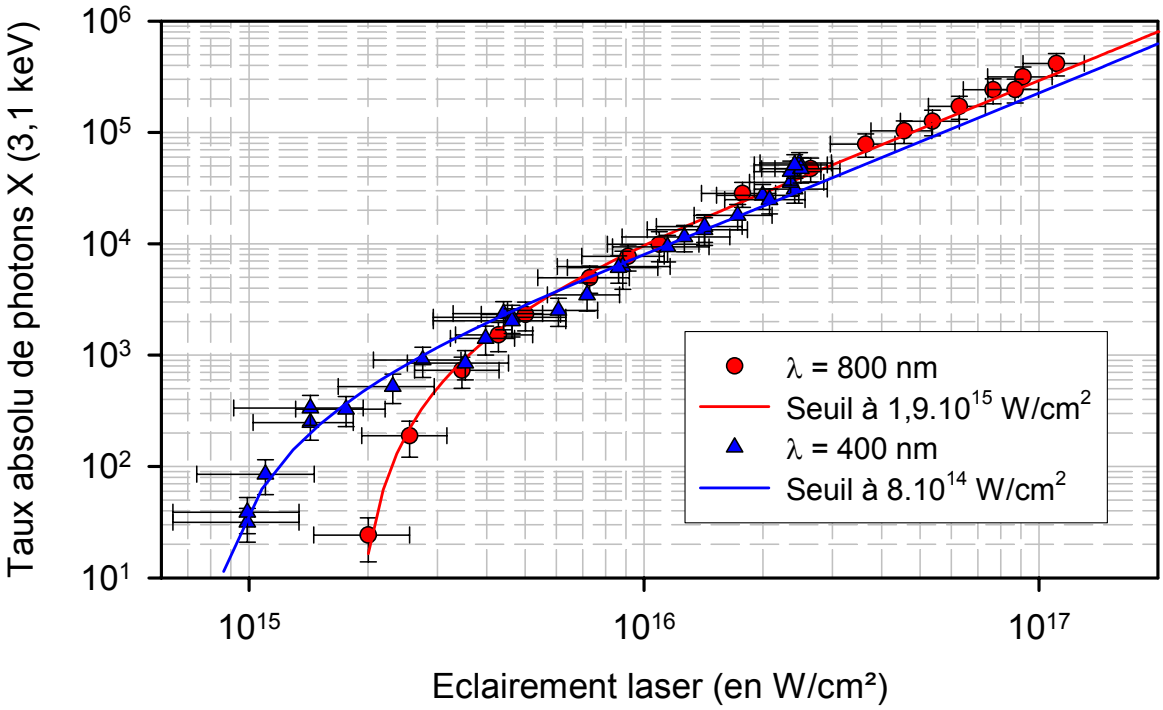


***Figure IV-51 :** Courbe en éclairement pour des agrégats d'argon à deux longueurs d'onde différentes (λ = 800 nm et λ = 400 nm) pour les conditions expérimentales voir le Tableau IV-26 pour l'UV et le Tableau IV-27 pour l'IR.*

Pression	$P_0 = 40$ *bars*	Taille d'agrégats	N = 2,8×10^5 atomes
Durée mesurée	$\Delta t = 180 - 215$ *fs*	Durée effective	$2.\tau_{eff.} = 215 - 260$ *fs*
Longueur d'onde	$\lambda = 400$ *nm*	Densité atomique moyenne	$n_{at.moy.} \sim 1{,}7\times10^{15}$ *at / cm*^{3}

***Tableau IV-26 :** Conditions expérimentales de la courbe en éclairement de la Figure IV-51 obtenues avec des agrégats d'argon pour une longueur d'onde 400 nm.*

[23] Ces deux séries de mesures ont été obtenues lors de la campagne d'expériences de 2001 soit avec écorceur et pour une distance entre la zone d'interaction et la buse de condensation de 500 *mm*.

Pression	$P_0 = 40$ *bars*	Taille d'agrégats	N = $2{,}8\times10^5$ atomes
Durée mesurée	$\Delta t = 56$ *fs*	Durée effective	$2.\tau_{eff.} = 65$ *fs*
Longueur d'onde	$\lambda = 800$ *nm*	Densité atomique moyenne	$n_{at.moy.} \sim 1{,}7\times10^{15}$ *at / cm³*

Tableau IV-27 : Conditions expérimentales de la courbe en éclairement de la Figure IV-51 obtenues avec des agrégats d'argon pour une longueur d'onde de 800 nm.

Les mesures expérimentales en fonction de l'éclairement laser pour une longueur d'onde de 400 *nm* ayant été obtenues avec le cristal de 3 *mm* nous avons donc ici été obligé de corriger la durée d'impulsion au niveau de la zone d'interaction de sa variation avec l'énergie par impulsion (*cf.* *Figure II-24* et la discussion concernant les impulsions laser UV dans le §II-B-4).

Le seuil en éclairement en UV (pour une durée d'impulsion de l'ordre de 240 *fs*) est plus faible que celui obtenu en IR mais pour une durée d'impulsion de 65 *fs*. Si on compare le seuil en éclairement pour une même durée d'impulsion, alors il s'agit de celui obtenu en IR qui est plus faible que celui obtenu en UV (*cf.* §F-3).

En ce qui concerne le taux absolu, et **pour un éclairement laser de 10^{16} *W/cm²***, nous avons la relation suivante :

$$(n_X^{[IR]})_{65\,fs}^{\exp.} \approx 1{,}3 \times (n_X^{[UV]})_{240\,fs}^{\exp.} \qquad \textbf{[IV-G.9]}$$

ici, on retrouve le même type de rapport que précédemment (1,4 – 1,8) comme nous l'avons vu dans le *Tableau IV-24*.

Longueur d'onde	Durée mesurée Δt	Durée effective $2.\tau_{eff.}$	Éclairement seuil expérimental	Énergie seuil mesurée	$2.Up$
800 *nm*	56 *fs*	65 *fs*	$1{,}9\times10^{15}$ *W/cm²*	~ 0,7 *mJ*	~ 230 *eV*
400 *nm*	180-215 *fs*	215-260 *fs*	$0{,}8\times10^{15}$ *W/cm²*	~ 1,0 *mJ*	~ 24 *eV*

Tableau IV-28 : Valeurs expérimentales de l'éclairement seuil et de l'énergie mesurée correspondante pour $\lambda = 800$ nm et $\lambda = 400$ nm d'argon – $P_0 = 40$ bars (Courbes de la Figure IV-51).

D'autre part, la distribution en état de charge des ions émettant ce rayonnement X reste constante dans le régime en $I^{3/2}$ en UV comme nous l'illustrons sur la *Figure IV-52*. L'état de charge moyen est de l'ordre de 14,5+ et ce comportement est identique à celui qui a été décrit dans le paragraphe IV-D pour l'IR (*cf.* *Figure IV-7*).

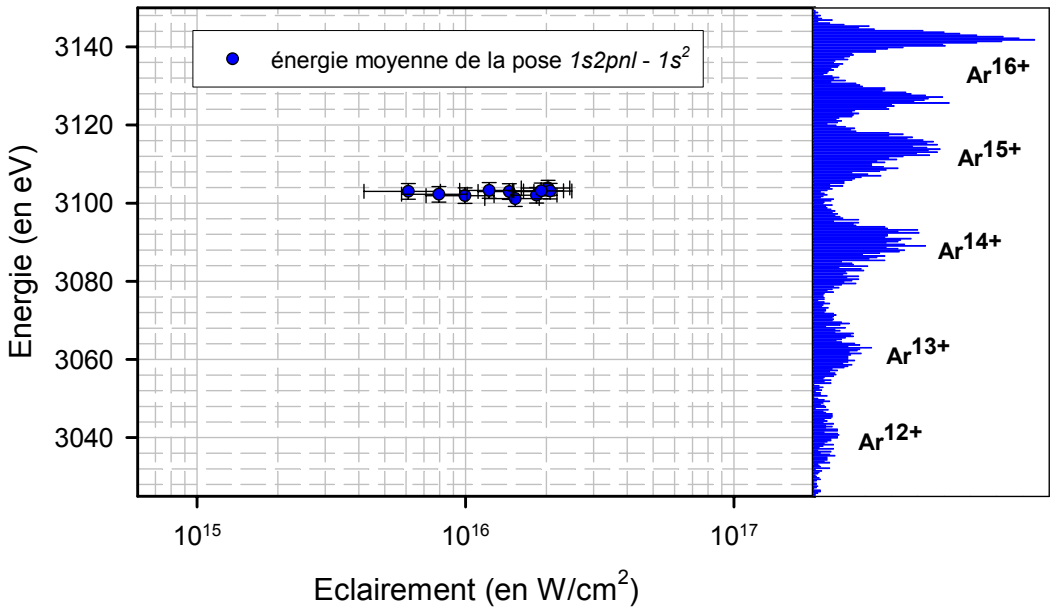


Figure IV-52 : Énergie moyenne des transitions 1s2pnl → 1s² pour les ions argon ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ et pour un éclairement laser de l'ordre de 10^{16} W/cm² en UV (les conditions expérimentales sont présentées dans le Tableau IV-26).

Calculons la probabilité d'émission X à 400 *nm* comme nous l'avons déjà fait 800 *nm* dans le paragraphe §IV-D-3-c. Pour ces conditions expérimentales, nous avons :

- un taux absolu de photons X : $N_X = 8 \times 10^3 \, h\nu$ pour un éclairement de 10^{16} *W/cm²* ;
- une densité atomique moyenne : $n_{at.moy.} = 1{,}7 \times 10^{15} \, at/cm^3$ (*cf.* Tableau IV-26);
- un volume focal effectif moyen[24] à un éclairement de 10^{16} *W/cm²* et pour un éclairement seuil de $0{,}8 \times 10^{15}$ *W/cm²* : $V_{foc.eff.}(I > I_{seuil}) \approx 5 \times 10^{-7} \, cm^3$. Notons que l'on a de l'ordre de 3×10^3 agrégats dans ce volume focal effectif (en supposant un taux de condensation de 100 %).

Ainsi : $N_{atomes \; ds \; vol.foc.eff.} \approx 8{,}5 \times 10^8$ atomes, ce qui donne alors une probabilité d'émission X pour une durée d'impulsion de 260 *fs* :

$$\left(P_{émission\ X}\right)^{UV}_{260\ fs} \approx \frac{8 \times 10^3}{8{,}5 \times 10^8} \approx 10^{-5} \qquad \textbf{[IV-G.10]}$$

En considérant un rendement moyen de fluorescence en couche K $\overline{\omega} = 0{,}35$ pour un état de charge moyen de 14,5+ en UV identique à celui observé en IR, la probabilité d'ionisation en couche interne vaut ainsi :

[24] Ce volume focal effectif est calculé à partir de la formule [IV-B.8] qui est moyennée sur toute la durée de l'impulsion laser en tenant compte de la longueur de Rayleigh et du beam – waist à 400 *nm* (*cf.* Tableau II-5).

$$\left(P_{ionisation}\right)_{260\ fs}^{UV} = \frac{10^{-5}}{0{,}35} \approx 3 \times 10^{-5} \qquad \textbf{[IV-G.11]}$$

Pour l'IR, nous avons calculé la probabilité d'ionisation pour une durée d'impulsion de 65 *fs* et un éclairement laser de 10^{16} *W/cm²* et si nous la ramenons à 260 *fs* de la même façon que précédemment, nous trouvons alors que :

$$\left(P_{ionisation}\right)_{260\ fs}^{IR} \approx 4 \times 10^{-5} \qquad \textbf{[IV-G.12]}$$

Finalement, la probabilité d'ionisation obtenue en UV est identique à celle calculée en IR. Il en ressort donc que l'efficacité de production de lacune en couche K pour l'argon est peu sensible à longueur d'onde (entre 400 *nm* et 800 *nm*) pour un éclairement identique de 10^{16} *W/cm²* et à une durée d'impulsion de 260 *fs*.

G-3] Discussions

L'énergie pondéromotrice d'un électron oscillant dans le champ laser (U_p) pour une longueur d'onde de 400 *nm* est 4 fois plus faible que pour une longueur d'onde de 800 *nm* pour un éclairement identique. De ce point de vue, la présence d'un éclairement seuil de production de rayonnement X plus faible en UV qu'en IR n'est pas compréhensible. En particulier, pour un éclairement laser de $0{,}8\times10^{15}$ *W/cm²*, l'énergie cinétique maximale ($2.U_p$) d'oscillation des électrons à 400 *nm* est de 24 *eV* !!

D'autre part, comme nous l'illustrons sur la *Figure IV-53*, les températures électroniques obtenues par le code nanoplasma sont plus importantes en UV qu'en IR, toutes choses étant égales par ailleurs : même durée d'impulsion de 180 *fs*, même éclairement laser de 10^{15} *W/cm²* et mêmes tailles d'agrégats comprises entre 10^5 et 10^6 atomes. En particulier, en UV les températures électroniques sont plus importantes que l'énergie pondéromotrice des électrons dans le champ laser. Ce comportement est le contraire de celui observé en IR et correspond à une augmentation du chauffage des électrons par Bremsstrahlung inverse quand la longueur d'onde diminue. Expérimentalement, nous avons obtenu des probabilités d'ionisation identiques pour les deux longueurs d'onde ce qui ne se comprend donc pas à partir des tendances obtenues à l'aide du code nanoplasma.

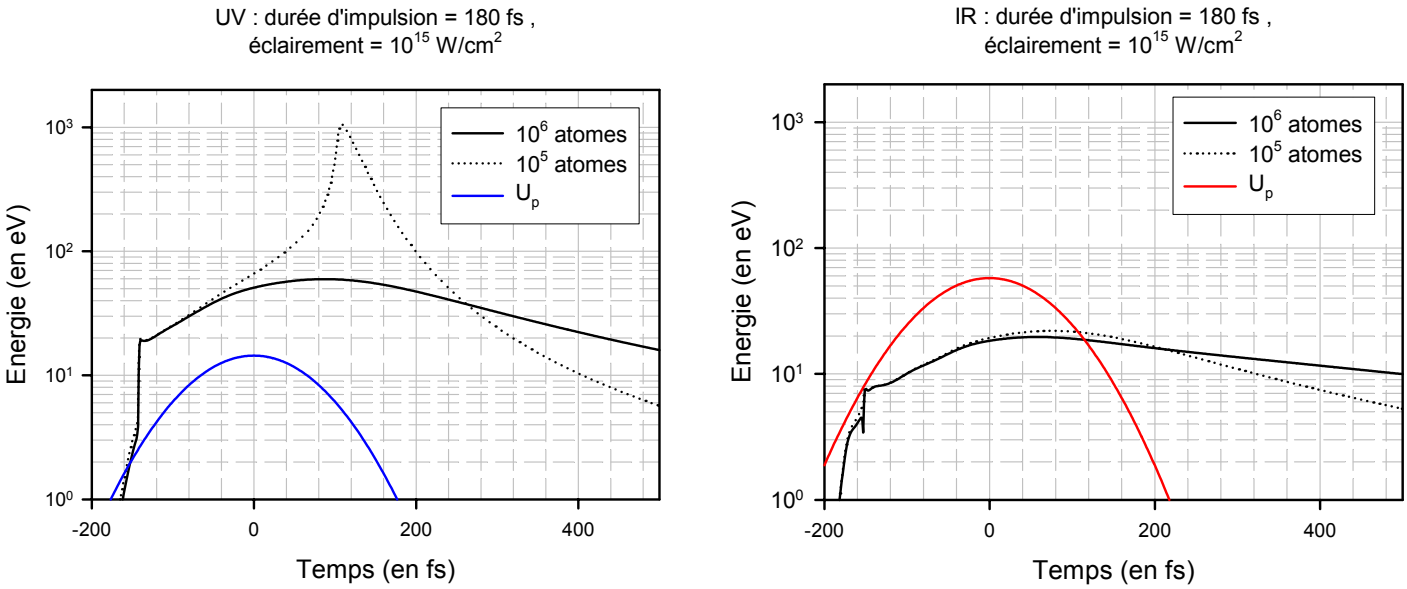


Figure IV-53 : Évolution de la température électronique pour les agrégats d'argon en UV et en IR et pour deux tailles d'agrégat ; l'éclairement laser est de 10^{15} W/cm² et la durée d'impulsion est de 180 fs.

Enfin, nos mesures expérimentales sont en désaccord avec le modèle CEM (mouvement collectif et cohérent des électrons – *cf.* §I-D-2b) qui prévoyait une forte variation de l'efficacité de production d'X avec la longueur d'onde ce qui démontre, encore une fois s'il en était encore besoin (*cf.* discussion du Chapitre I - §D-2), son incapacité à décrire l'interaction laser – agrégats. En effet, la probabilité d'ionisation en couche interne que nous avons calculée pour l'argon en UV et en IR est assez identique pour ces deux longueurs d'onde. Ainsi, le taux d'X d'un ordre de grandeur plus grand en IR par rapport à l'UV semble être uniquement dû à l'augmentation du volume focal effectif pour ces deux radiations sachant que l'on considère que l'influence de la distribution d'état de charge des ions émetteurs (différentes pour plusieurs durée d'impulsion) est peu importante.

Conclusion

et perspectives

"L'observation recueille les faits ;
la réflexion les combine ;
l'expérience vérifie le résultat de la combinaison"
Denis Diderot (1713 – 1784)
Philosophe

Nous avons réalisé au cours de ce travail de thèse des études dédiées aux taux absolus de l'émission X issue de l'interaction d'un laser de puissance avec des agrégats de gaz rare. En particulier, nous avons déterminé d'une manière systématique la sensibilité de cette émission de rayonnement X en fonction des différents paramètres expérimentaux influant sur la dynamique de l'interaction comme la polarisation, l'éclairement, la durée d'impulsion et la longueur d'onde pour le laser, la taille et la nature des agrégats. Dans des conditions optimales (E = 20 *mJ*, Δt = 130 *fs*, λ = 800 *nm* et P_0 = 40 *bars*), nous avons obtenu de l'ordre de 6×10^8 $h\nu$ X / tir laser dans 4π avec les agrégats d'argon (X_K à 3,1 *keV*) : le rendement énergétique total (énergie totale des X / énergie laser) est alors de quelques 10^{-5}.

La problématique générale de ces études revient à comprendre quels sont les différents mécanismes responsables de la création de lacune(s) en couche interne et de déterminer des éléments révélateurs de leur compétition temporelle. Le fait marquant de ce travail de thèse concerne l'évolution du taux de photons X avec l'éclairement laser parfaitement reproduit par l'évolution du volume focal effectif sur plusieurs ordres de grandeur et cela quelque soit les conditions expérimentales : durée d'impulsion, taille des agrégats, longueur d'onde, densité atomique moyenne, type d'agrégat (argon, krypton et xénon) ... Ce résultat montre que les mécanismes collisionnels électrons – ions (ionisation et / ou excitation) jouent un rôle majeur dans la production de rayonnement X *i.e.* dans la création de lacunes en couche interne : le taux d'X est alors directement proportionnel au nombre d'agrégats. Le simple effet du champ laser ne pouvant clairement pas expliquer la présence de telles lacunes pour des éclairements laser inférieurs à 10^{16} W/cm^2, la thématique de ces études revient alors à rechercher le (ou les) mécanismes(s) responsable(s) du gain d'énergie des électrons lors de l'interaction.

Plus particulièrement, nos résultats expérimentaux ont permis de mettre en évidence :

- une insensibilité de l'émission X à la polarisation du laser (linéaire *s* et *p* – circulaire). Ceci peut s'expliquer par une perte de l'axe de quantification liée à la polarisation du laser lors des nombreuses collisions électrons – ions ayant lieu à l'intérieur de l'agrégat pendant l'interaction. Le taux absolu de photons X est identique quelque soit l'orientation de la polarisation du laser (*s* et *p*) alors que nous avons observé une faible différence des taux absolus de photons X entre une polarisation linéaire et circulaire (au maximum de l'ordre de 20 %). Il existe néanmoins une forte différence dans la production des ions de faible état de charge et ayant une lacune en couche interne entre une polarisation linéaire et circulaire : l'Ar^{12+} est deux fois moins important en polarisation circulaire qu'en polarisation linéaire.

- un éclairement seuil de production de rayonnement X de l'ordre de quelques 10^{14} W/cm^2 pour une durée d'impulsion de 150 *fs* pour l'argon et de 300 *fs* pour le xénon. Ce seuil en éclairement varie fortement en fonction de la durée d'impulsion pour atteindre 10^{15} W/cm^2 à 50 – 60 *fs*. Un tel éclairement seuil a également été obtenu pour les agrégats de krypton (X_L à 1,7 *keV*) qui n'ont pas été présentés dans ce manuscrit. Cet éclairement seuil semble donc indépendant de l'espèce atomique étudiée et du type de lacune créée (lacune en couche K pour l'argon et L pour le xénon et le krypton).
- une taille critique d'agrégat au dessus de laquelle la probabilité d'émission X reste constante et cela également quelque soit l'espèce atomique étudiée. Ce résultat traduit une saturation de la probabilité d'ionisation en couche interne une fois cette taille critique dépassée, moyennant une faible évolution du rendement moyen de fluorescence dans cette gamme de taille.
- un optimum dans la production de rayon X en fonction de la durée d'impulsion. Il n'est donc pas nécessaire d'avoir des impulsions courtes (50 *fs*) pour maximiser le taux absolu de photons X mais il faut, au contraire, une impulsion de l'ordre de 130 *fs* pour l'argon et de l'ordre de 220 *fs* pour le xénon dans nos conditions expérimentales. Nous trouvons également un optimum avec la durée d'impulsion indépendant de la taille des agrégats ce qui est en désaccord avec les mesures réalisées par l'équipe du CELIA sur leur dispositif expérimental ; ces différences ne sont, à l'heure actuelle, pas encore élucidées.
- une faible dépendance de la probabilité d'ionisation en couche interne avec la longueur d'onde (entre 800 *nm* et 400 *nm*) lorsque l'on tient compte de la variation respective de tous les paramètres expérimentaux, ce qui est en complet désaccord avec des études précédentes [Kondo et al., 1997]. Ces résultats mettent en défaut l'un des seuls modèles développés dans le cadre de l'interaction laser – agrégats pour expliquer la création de lacunes en couche interne, qui fait intervenir le mouvement collectif et cohérent des électrons [Thompson et al., 1994] (cf. §I-D) et qui prédit une loi d'évolution en λ^{-6} ou λ^{-7}.
- une probabilité d'ionisation simple en couche interne pour l'argon $\left(P_{1s^{-1}}\right)$ que nous estimons comprise typiquement entre quelques 10^{-5} et quelques 10^{-6} à partir des mesures réalisées lors des différentes campagnes d'expériences et pour des tailles d'agrégats supérieures à quelques 10^5 atomes. Dans ces conditions, la probabilité de créer deux lacunes en couche interne $\left(P_{1s^{-2}} \sim P^2_{1s^{-1}}\right)$ est de l'ordre de 10^{-10} – 10^{-12}; ceci est cohérent avec le fait que nous n'avons pas observé la production d'Ar^{17+} qui possède, lui, deux lacunes en couche

K (transitions $2p \rightarrow 1s$ vers 3 300 *eV*). Plus précisément, pour $I \sim 10^{17}$ *W/cm²* et N ~ 4,2×10⁵ atomes, l'émission X associée aux transitons $2p \rightarrow 1s$ de l'Ar^{17+} est trouvée inférieure à 0,1 % du taux absolu de photons X détectés.

- la production d'états excités de type *1s3pnl* pour l'argon (Ar^{15+} et Ar^{16+}) soit par excitation soit par ionisation. L'émission X associée à ces espèces représente de l'ordre de 5 % du taux absolu d'X émis lors de l'interaction.

Il n'en reste pas moins que les données obtenues offrent, d'ores et déjà, la possibilité de faire toute une série d'analyses plus axée sur les aspects spectroscopiques comme :

- dans le cas de l'argon, la détermination précise du rendement de fluorescence moyen qui doit être calculé en pondérant de la contribution relative des différents états de charge et des transitions mises en jeu dans l'émission X observée. De plus, une analyse quantitative pourra également être réalisée sur l'étude de la largeur de la $^1P_1$ ainsi que du rapport $^1P_1$ / $^3P_1$ de l'Ar^{16+} en fonction des différents paramètres. Ces études apporteraient, par exemple, des informations sur l'évolution de la densité et de la température électroniques moyennes au moment de l'émission X.
- dans le cas des agrégats de xénon, l'identification des différents types de transitions et de la distribution en état de charge des ions émettant ce rayonnement X pourrait être facilitée par les études que l'équipe planifie de réaliser sur le plasma de la source d'ions multichargés (source ECR) du GPS.

La motivation première de ce travail était de confronter avec de nouvelles études expérimentales le modèle dynamique d'ionisation en couche interne (cf. §IV-B) développé par le groupe à la suite des premières explorations réalisées dans cette thématique (cf. §I-D). En particulier, nous avons voulu tester le scénario associé à ce modèle et quel était son domaine de validité. Ce modèle tient compte :

- de l'ionisation par effet de champ (OFI) ;
- de l'accélération des électrons dans le champ laser (oscillation) comme unique processus de gain d'énergie des électrons ;
- de l'ionisation en couche interne *via* les collisions électrons – ions.

La prise en compte, comme mécanisme de gain d'énergie, du seul effet d'oscillation des électrons dans le champ laser ne peut clairement pas expliquer un seuil d'apparition du rayonnement X de l'ordre de 10^{14} *W/cm²* à 300 *fs* ni même de l'ordre de 10^{15} *W/cm²* à 50 *fs*. En effet, à ces éclairements laser, l'énergie cinétique maximale d'oscillation des électrons, induite

par un champ électrique identique à celui du laser, n'est que de quelques dizaines d'*eV* à quelques centaines d'*eV*. D'autre part, les taux absolus calculés par ce modèle dans nos conditions différent notablement des mesures expérimentales (de l'ordre de 3 ordres de grandeurs). Ceci est dû en grande partie à un volume focal nominal, obtenu à l'aide de la lentille, très grand. Les taux absolus sont également calculés en supposant que tous les atomes sont en phase agrégée et on ne tient pas compte de la distribution en taille ce qui tendrait alors à diminuer les taux absolus calculés dans ce modèle. Néanmoins cette approche permet de reproduire les évolutions du taux de photons X avec certains paramètres comme l'éclairement laser (suivant le volume focal effectif quelque soit l'éclairement et plus généralement loi en $I^{3/2}$ à grand éclairement) et pour les grandes pressions *i.e.* grandes tailles d'agrégats, loi en P_0^{α} avec α compris entre 1 et 1,6.

Le comportement du modèle nanoplasma, qui est le modèle le plus connu et le plus utilisé pour expliquer les résultats obtenus en spectroscopie d'ions et d'électrons, a également été comparé aux évolutions du taux d'X. Ce modèle constitue en effet, à l'heure actuelle, l'approche théorique la plus complète pour décrire la dynamique de l'interaction laser – agrégats et prend en compte en même temps et sur un même niveau d'égalité les différents processus qui interviennent dans la dynamique temporelle de l'interaction comme (cf. §I-C-1):

- l'ionisation par effet de champ et collisionnelle ;
- le chauffage des électrons par oscillation dans un champ électrique écranté à l'intérieur de l'agrégat et par Bremsstrahlung inverse *via* la fréquence électronique de collision ;
- l'explosion de l'agrégats *via* les forces de pression coulombienne et hydrodynamique.

Malgré ses succès pour expliquer certains résultats en spectroscopie ionique (cf. §I-C-2), ce modèle ne peut prédire la création de lacunes en couche interne dans nos conditions expérimentales : N > 10^4 atomes, $I \sim 10^{15}$ *W/cm²*. En particulier, les températures électroniques extraites de ce modèle sont nettement plus faibles que l'énergie pondéromotrice des électrons dans le champ laser et seule la queue de la distribution électronique, prise suivant une distribution de Maxwell – Boltzmann, pourrait expliquer la présence d'électrons énergétiques au sein du nanoplasma. Néanmoins, la proportion d'électrons (< 10^{-10} % pour T_e = 100 *eV*) ayant une énergie cinétique supérieure à 3 *keV* ne peut clairement pas rendre compte des probabilités d'ionisation en couche interne obtenues expérimentalement. Ces faibles températures électroniques sont dues au fort écrantage du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat pendant la majeure partie de l'interaction. La seconde résonance, qui se produit

uniquement sur quelques cycles optiques, ne suffit pas à contrebalancer cet effet. De plus, nos observations expérimentales ne sont pas reflétées par les tendances extraites de ce modèle. En particulier, la température électronique maximale dans le modèle nanoplasma augmente jusqu'à une taille critique, tout comme la probabilité d'ionisation en couche interne expérimentale, mais pour des tailles d'agrégat plus grandes, la température électronique maximale décroît fortement, alors que la probabilité d'ionisation en couche interne expérimentale sature. D'autre part, si ce modèle prédit effectivement une durée d'impulsion optimale pour le chauffage de l'agrégat, nous n'avons pas observé de modification de cette durée optimale avec la taille des agrégats (dans la gamme de taille étudiée). Par ailleurs, alors que le Bremsstrahlung inverse introduit dans ce code *via* les collisions électroniques (électrons – ions + électrons – surface) chauffe d'autant plus les électrons que les longueurs d'onde sont petites, nous avons obtenu une probabilité d'ionisation en couche interne similaire pour 400 *nm* et 800 *nm*. Enfin, ce modèle ne prend en compte pour l'instant ni les effets de volume focal (répartition spatiale de l'éclairement laser) ni les effets de distribution en taille d'agrégats venant interagir avec l'impulsion laser. Rappelons en effet qu'il considère l'interaction d'un agrégat unique avec l'éclairement laser maximal correspondant à celui au point focal uniquement. Ceci pourrait alors modifier les tendances issues de ce modèle.

Nous avons vu au Chapitre I que d'autres simulations permettent de comprendre certains aspects de l'interaction laser – agrégats : il s'agit des simulations de dynamique moléculaire. Cependant, celles – ci restent limitées en taille d'agrégats ce qui ne permet pas encore, à l'heure actuelle, de prédire une énergie électronique de plusieurs *keV* lors de l'interaction dans nos conditions. Néanmoins, ces simulations montrent que le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat peut être, pendant toute l'interaction, plus important que celui du laser *via* un effet de polarisation dynamique de l'agrégat. Nous avons vu que l'effet de polarisation de l'agrégat sous l'influence du champ laser, non pris en compte dans le modèle nanoplasma, peut expliquer certains résultats en spectroscopie d'ions et d'électrons et notamment l'explosion anisotrope de l'agrégat (cf. §I-C-2, les travaux de Mathur [Kumarappan, Krishnamurthy & Mathur, 2002], Blenski [Ishikawa & Blenski, 2000] et les simulations issus du code PIC [Jungreuthmayer et al., 2004] qui ont été exposés dans le Chapitre I).

Dans la recherche d'un processus seuil de production d'électrons énergétiques à un éclairement très faible de 10^{14} W/cm^2, nous avons voulu étudier l'influence de cet effet de polarisation sur la dynamique d'ionisation des atomes et des ions pendant l'interaction. La

production d'espèces faiblement chargées à des éclairements modestes de quelques 10^{14} W/cm^2 modifie le champ électrique régnant à l'intérieur de l'agrégat : ce champ électrique induit contribue alors à augmenter très rapidement la dynamique d'ionisation. En l'occurrence, la production d'Ar^{1+} pour tous les atomes de l'agrégat et la séparation du nuage électronique de quelques unités atomiques[1] par rapport aux ions suffit à créer un champ électrique total à l'intérieur de l'agrégat qui permet l'ionisation des ions à un état de charge plus élevé. Par exemple, si on considère un agrégat d'argon contenant 10^5 atomes (rayon ~ 180 *u.a.*), la séparation de 15 *u.a.* des deux sphères chargées[2] (l'une de charge Q = $+10^5$ *u.a.* due aux ions et l'autre de charge Q= -10^5 *u.a.* due aux électrons) crée au centre de l'agrégat **un champ électrique total** de 0,25 *u.a.* (cf. *Figure 1*). Celui – ci est supérieur au champ électrique nécessaire pour la formation d'Ar^{2+} dans le cadre du modèle d'ionisation par suppression de la barrière coulombienne (~ 0,13 *u.a.*). Ce processus peut se répéter jusqu'à l'obtention d'Ar^{8+} comme nous l'illustrons sur la *Figure 1* et devrait se produire dans un temps extrêmement court (de l'ordre du temps de révolution de l'électron sur son orbite [Krainov & Smirnov, 2002]).

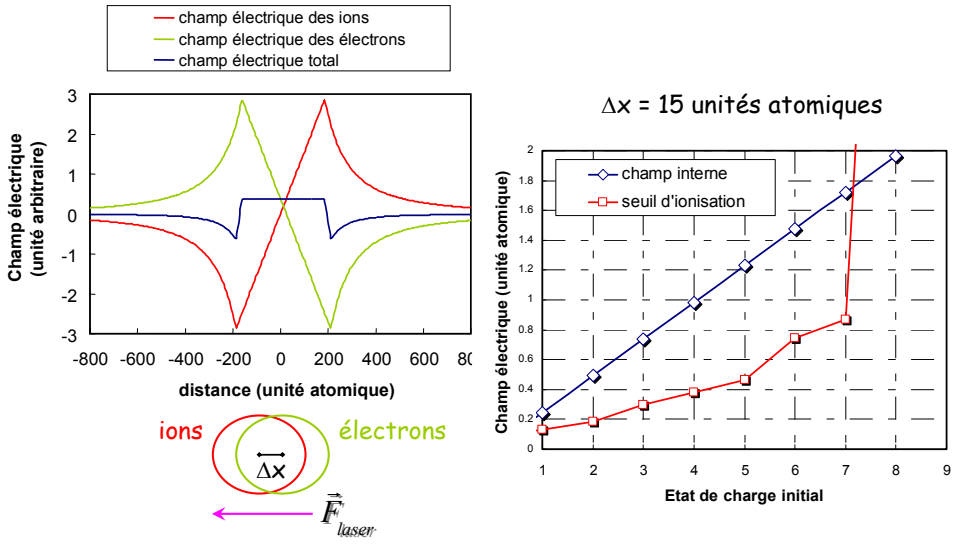


Figure 1 : Représentation schématique de la production d'Ar^{8+} par le champ électrique régnant à l'intérieur de l'agrégat.

En poursuivant cette analyse, on constate que les électrons périphériques possèdent une énergie potentielle pouvant dépasser la centaine d'unités atomiques quand le nuage électronique et les ions sont séparés d'une dizaine d'unités atomiques une fois la production

[1] La correspondance entre les unités atomiques et les unités habituellement utilisées dans ce manuscrit est donnée dans l'Annexe A.
[2] L'amplitude d'oscillation des électrons pour un éclairement de 8×10^{13} W/cm^2 est de 15 *u.a.* soit 3 *nm*.

d'Ar^{8+} obtenue. Par exemple, nous présentons sur la *Figure 2* l'énergie potentielle d'un électron en présence du champ laser en fonction de sa distance au centre de l'agrégat pour un déplacement de 15 *u.a.* des deux sphères de charge Q = ± 8×10^5 *u.a*. Si le champ laser attire les électrons de la périphérie de l'agrégat vers son centre alors ceux – ci vont pouvoir acquérir une énergie cinétique de quelques centaines d'unités atomiques, soit une énergie cinétique supérieure à 3 *keV*. Il deviendrait alors possible pour ces électrons de créer des lacunes en couche interne en venant collisionner avec un ion au centre de l'agrégat. Un traitement classique indique que 20 % des électrons peuvent traverser l'agrégat avec une énergie cinétique supérieure à 3 *keV* ce qui permet d'expliquer les probabilités d'ionisation que nous avons obtenues de l'ordre de 10^{-5}.

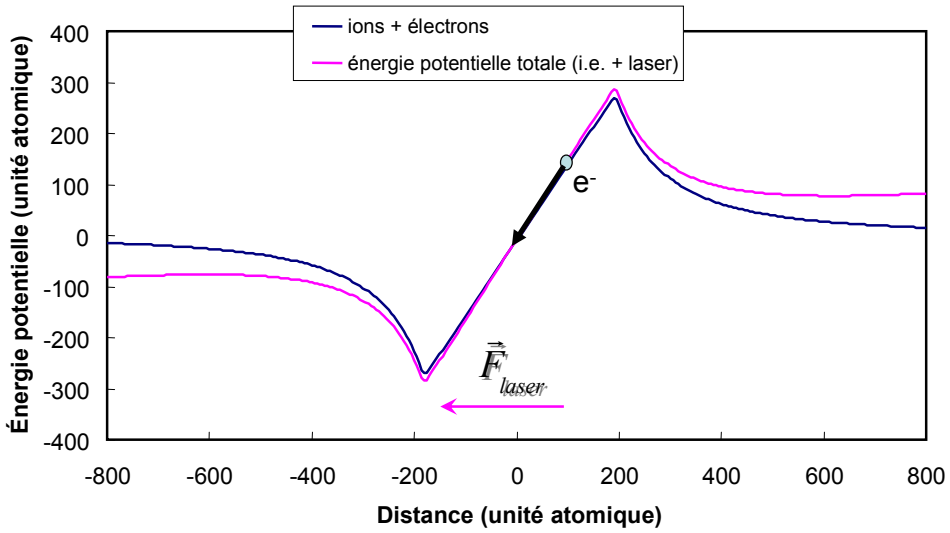


Figure 2 : Energie potentielle d'un électron en fonction de sa distance au centre de l'agrégat en présence d'un champ laser et obtenue pour un décalage de 15 u.a. entre deux sphères chargées (±8×10^5 u.a.).

Par ce mécanisme, la première ionisation des atomes de l'agrégat suffit à déclencher le processus d'ionisation en couche interne : ce comportement est similaire à ce que prédit le modèle d'ionisation par allumage *("Ignition Ionization Model")* de Rose – Petruck [Rose-Petruk et al., 1997] et permet de rendre compte d'un éclairement seuil de l'ordre de 10^{14} W/cm^2 observé pour des durées d'impulsion supérieures à 300 *fs*. Précisons que cet éclairement seuil limite (vers quelques 10^{14} W/cm^2) est cohérent avec les expériences de l'équipe du CELIA [Caillaud, 2004] réalisées en modifiant le contraste à 4 *ns*. Ils ont en effet observé une forte baisse de l'émission X dès que la pré – impulsion dépasse en éclairement quelques 10^{14} W/cm^2, éclairement pour lequel l'agrégat est alors ionisé et explose. Des simulations complètes doivent être menées afin d'évaluer l'importance de ce mécanisme sur la dynamique de l'agrégat : ceci pourrait alors permettre de savoir si cet effet peut reproduire la variation de l'éclairement seuil avec la durée d'impulsion. Dans ce but, ce mécanisme doit être intégré dans un modèle dynamique prenant en compte d'autres processus comme par exemple le temps réellement nécessaire pour atteindre un état de charge moyen par atome de 8+ ou la

dynamique d'explosion de l'agrégat. Enfin, l'analyse présentée ici prend en compte l'effet "macroscopique" de la séparation de deux sphères uniformément chargées (l'une positive due aux ions et l'autre négative due aux électrons) et non la somme des effets individuels entre les électrons et les ions (non uniformité des densités ioniques et électroniques, effet d'écrantage ...).

L'ensemble des résultats obtenus lors de ce travail de thèse ont aussi motivé des travaux théoriques en dehors de l'équipe comme, très récemment, ceux du groupe de Joachim Burgdörfer du TU Wien en Autriche [Deiss, Rohringer & Burgdörfer, 2005]. Le point de départ est bien sûr de trouver un mécanisme de chauffage des électrons à "très" basse intensité laser, soit autour de 10^{15} *W/cm²* à 60 *fs*, susceptible d'être suffisamment efficace pour produire des électrons dans la gamme de plusieurs *keV*. L'approche développée ici consiste à traiter explicitement le processus de diffusion élastique électron – ion qui permet en particulier aux électrons de basse énergie de se retrouver, ***par retournement***, avec un vecteur vitesse aligné avec le champ laser et de subir ainsi une accélération supplémentaire de façon similaire au mécanisme "Fermi Shuttle" introduit par E. Fermi [Fermi, 1949] pour expliquer l'origine des radiations cosmiques. Ce processus a également été mis en évidence plus récemment lors de collisions ions – atomes en milieu dense et même dilué [Burgdörfer, Wang & Ritchie, 1991] [Sulik et al., 2003] [Lanzano et al., 2001]. En effet, comme illustré *Figure 3*, les électrons de basse énergie (comme ceux produits par OFI et peu accélérés par le champ laser dans le cas d'un faible éclairement) ont une forte probabilité d'être rétro – diffusés et ainsi d'avoir un "retournement" de leur vecteur vitesse.

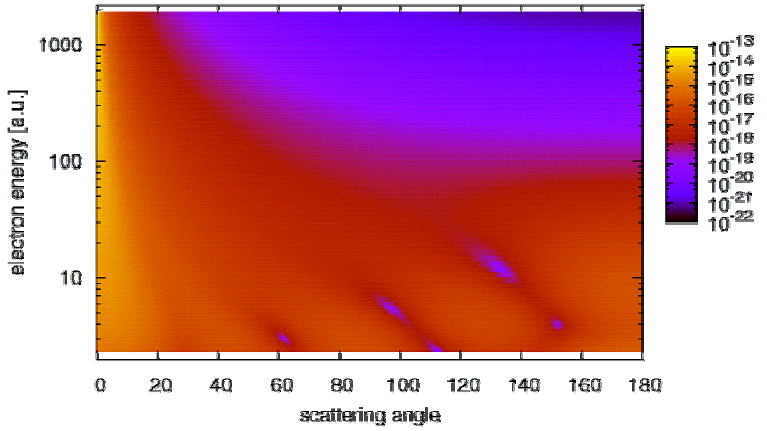


Figure 3 : Sections efficaces différentielles de diffusion élastique électrons – Ar^{2+} [Deiss et al., 2006].

Ainsi, dans cette approche, le traitement de la dynamique des électrons du système est effectué par simulation Monte-Carlo en incluant l'ionisation par effet de champ (OFI), l'accélération des électrons par le champ laser mais en prenant en compte les diffusions élastiques électron – ions et, au niveau de l'agrégat, en traitant de la perte d'électrons, de la

variation de sa charge (composante mono polaire du champ à l'intérieur de l'agrégat), de son explosion (explosion Coulombienne). Les calculs montrent que l'énergie cinétique des électrons est alors considérablement augmentée par ces processus de diffusion (*Figure 4*).

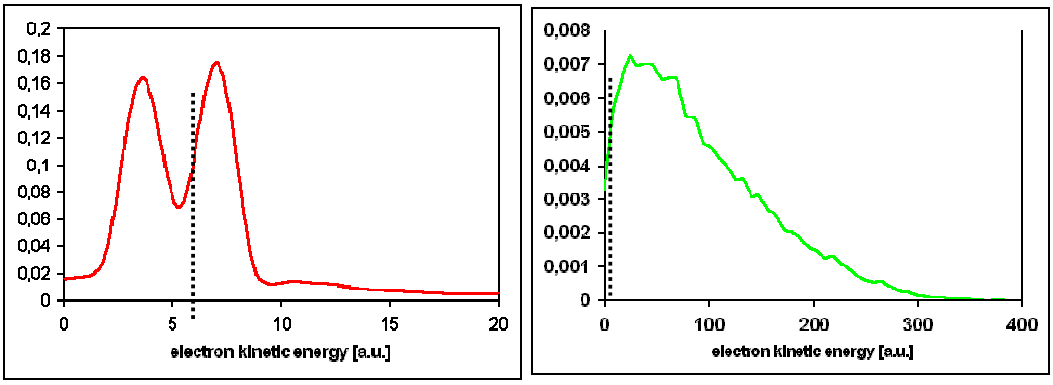


Figure 4 : Distribution énergétique des électrons 15 cycles optiques après la première ionisation ; à gauche : prédictions sans diffusions élastiques, à droite : avec diffusions élastiques.

Les premiers résultats obtenus sur la probabilité d'émission X en fonction de l'éclairement laser dans le cas d'agrégats d'argon, en IR, à une durée d'impulsion de 60 *fs* et pour une taille de $2{,}8\times10^5$ atomes, sont extrêmement encourageants comme le dévoile la comparaison expérience – théorie présentée *Figure 5*.

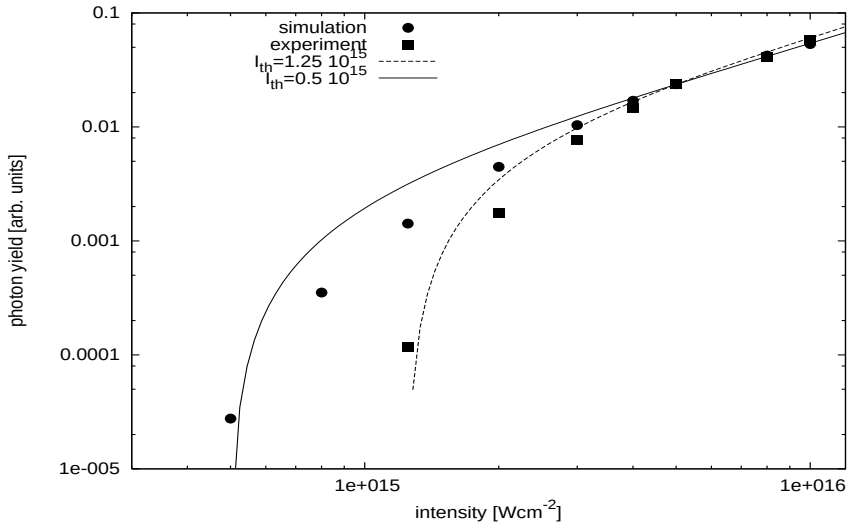


Figure 5 : Comparaison expérience – simulation Monte-Carlo incluant les diffusions élastiques électron – ions pour la variation du taux d'émission X en fonction de l'éclairement laser, en IR et pour des agrégats d'argon de $2{,}8\times10^5$ atomes.

En particulier, cette approche prévoit un seuil en éclairement très bas en accord avec l'expérience : $0{,}5\times10^{15}$ *W/cm²* contre $1{,}25\times10^{15}$ *W/cm²* observé expérimentalement. Par ailleurs, les résultats préliminaires sur la variation du taux d'émission X en fonction de la polarisation du laser, de la durée d'impulsion ou encore de la longueur d'onde sont très prometteurs. Un travail important au niveau théorique est actuellement en cours et un certain nombre d'améliorations sont déjà envisagées comme l'introduction de la composante

dipolaire du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat ou encore, la distribution en taille des agrégats, etc.…

Enfin, ce travail de thèse a, en parallèle, soulevé de nombreuses questions qui conduisent, bien évidemment, à de nouvelles investigations à programmer dans le futur. En premier lieu, nous avons vu que la présence d'un optimum dans l'émission X en fonction de la durée d'impulsion pouvait refléter un comportement identique à celui du volume focal effectif en tenant compte de l'évolution de l'éclairement seuil avec la durée d'impulsion. Il est néanmoins nécessaire de réaliser des études plus systématiques de l'évolution de l'éclairement seuil avec la durée d'impulsion afin d'effectuer une comparaison plus quantitative tant pour les agrégats d'argon que ceux de xénon de façon à déterminer avec précision la fonction $I_{seuil}(\tau)$. Des mesures de l'évolution de l'émission X avec la durée d'impulsion mais en UV cette fois – ci pourraient également être menées afin d'étudier si cet optimum est le même ou non ; il faudrait alors adapter l'épaisseur du cristal doubleur de fréquence voire changer d'installation laser pour réaliser ces expériences. Le modèle nanoplasma ne prédit pas véritablement une durée d'impulsion optimale en UV accessible pour nos conditions expérimentales comme nous l'illustrons sur la *Figure 6* pour des agrégats d'argon N ~ $1{,}7\times10^5$ atomes et E = 20 *mJ*.

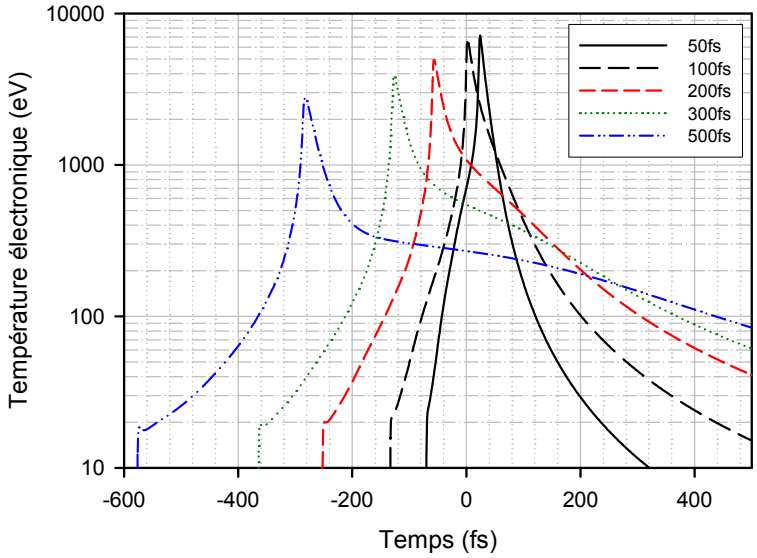


Figure 6 : Évolution de la température électronique en fonction de la durée d'impulsion pour λ = 400 nm, N = 1,7×10⁵ atomes et une énergie constante de 20 mJ – Agrégats d'argon.

D'autre part, nos résultats ont montré une insensibilité de l'optimum de l'émission X avec la durée d'impulsion dans la gamme de taille étudiée. Les tailles explorées lors de ces expériences sont en fait supérieures à la taille critique au dessus de laquelle la probabilité d'ionisation en couche interne sature. Des expériences pour des tailles plus petites devraient donc être réalisées afin de voir si le comportement reste le même ou si l'optimum de l'émission X avec la durée d'impulsion est alors modifiée. De la même façon, des recherches systématiques du seuil en éclairement devraient être menées sur une gamme plus large de

tailles afin d'étudier précisément la réponse de l'agrégat de quelques milliers d'atomes à plusieurs millions d'atomes ; études que nous n'avons pas pu mener ici. La recherche du seuil en éclairement pour une polarisation linéaire et circulaire pourrait également être entreprise, *i.e.* là où les processus d'allumage d'ionisation en couche interne seraient importants. En effet, dans l'hypothèse d'une polarisation dynamique de l'agrégat, le taux d'X, pour ces faibles éclairements, serait plus grand en polarisation linéaire qu'en polarisation circulaire tandis que le modèle tenant compte du processus "Fermi shuttle" donnerait un taux de photons X identique. Plus généralement, la recherche de l'éclairement seuil pourraient être menée avec des agrégats de krypton et néon et en étudiant l'émission d'X_K plus simple à interpréter que l'émission d'X_L. Les X_K du krypton viennent d'être, très récemment, observés lors de l'interaction d'agrégats de krypton (R ~ 18 *nm*) avec une impulsion laser d'éclairement modeste (de l'ordre de quelques 10^{16} W/cm^2) pour induire ce type de lacune : X_K identifié par [Issac et al., 2004] à 12,6 *keV*. Ceci constitue une réelle différence par rapport aux X_L du xénon et aux X_K de l'argon, respectivement à 4,4 *keV* et 3,1 *keV*, que nous avons particulièrement étudiés lors de ce travail. Dans ces deux derniers cas, il est en effet nécessaire d'avoir des énergies électroniques de l'ordre de 3 – 5 *keV* pour expliquer la création de lacunes en couche interne alors que pour les X_K du krypton, les électrons doivent avoir, cette fois – ci, une énergie encore supérieure de l'ordre d'un facteur 3 (10 – 15 *keV* !) pour induire la création de cette lacune par des collisions électrons – ions. D'autre part, des études spécifiques doivent être réalisées en faisant varier la densité atomique moyenne du jet d'agrégats (*i.e.* le nombre d'agrégats dans le volume focal effectif) car des comparaisons en absolu n'ont pu être menées de façon suffisamment fiable lors des différentes campagnes d'expériences présentées ici. Ces études permettraient, en particulier, d'estimer les éventuels effets inter – agrégats. Enfin, la mesure de la durée de l'émission X reste sujet encore à controverse et des mesures contradictoires existent dans la littérature : inférieur à 1 *ps* [Caillaud, 2004] et de l'ordre de 4 *ns* pour [Larsson & Sjörgen, 1999] avec des agrégats d'argon. Nos études ont plutôt tendance à montrer que l'émission X se produit avant l'explosion de l'agrégat soit pendant des durées comparables à l'impulsion laser. Cette mesure nécessite des investigations futures car elle est d'un grand intérêt en vue, ultérieurement, d'applications de cet intense rayonnement X obtenu à des intensités laser modérées (10^{14} – 10^{15} W/cm^2) et pour des durées d'impulsion facilement accessibles sur des dispositifs expérimentaux de taille modeste.

Annexe A] Relations utiles, unités et conversions

A-1] Relations utiles :

Expressions permettant de convertir un éclairement laser, I, en un champ électrique E :

$$E(V/cm) = 27{,}5 \times \sqrt{I(W/cm^2)} \text{ ou } E(u.a.) = 5{,}35 \cdot 10^{-9} \times \sqrt{I(W/cm^2)}$$

L'énergie pondéromotrice U_p d'un électron dans le champ laser E :

$$Up = \frac{e^2 \cdot E^2}{4 \cdot m\omega^2}$$

$$U_p(eV) = 9{,}33 \cdot 10^{-14} \times \lambda^2(\mu m) \times I(W/cm^2)$$

$$U_p(u.a.) = 3{,}43 \cdot 10^{-15} \times \lambda^2(\mu m) \times I(W/cm^2)$$

	$\lambda = 800\ nm$	$\lambda = 400\ nm$
$I = 10^{15}\ W/cm^2$	$U_p \approx 60\ eV$	$U_p \approx 15\ eV$
$I = 10^{16}\ W/cm^2$	$U_p \approx 600\ eV$	$U_p \approx 150\ eV$
$I = 10^{17}\ W/cm^2$	$U_p \approx 6\ keV$	$U_p \approx 1{,}5\ keV$

***Tableau A-1 :** Valeur de l'énergie pondéromotrice d'un électron libre en fonction de l'éclairement laser et pour deux longueurs d'onde (800 nm et 400 nm).*

L'amplitude maximale d'oscillation d'un électron libre dans un champ laser :

$$x_{Max} = \frac{e \cdot \lambda^2}{4\pi^2 \cdot mc^2} \cdot E$$

$$x_{Max}(nm) = 1{,}36 \cdot 10^{-7} \times \lambda^2(\mu m) \times \sqrt{I(W/cm^2)}$$

$$x_{Max}(u.a) = 2{,}59 \cdot 10^{-6} \times \lambda^2(\mu m) \times \sqrt{I(W/cm^2)}$$

	$\lambda = 800\ nm$	$\lambda = 400\ nm$
$I = 10^{15}\ W/cm^2$	$x_{Max} = 2{,}8\ nm$	$x_{Max} = 0{,}7\ nm$
$I = 10^{16}\ W/cm^2$	$x_{Max} = 8{,}7\ nm$	$x_{Max} = 2{,}2\ nm$
$I = 10^{17}\ W/cm^2$	$x_{Max} = 27{,}5\ nm$	$x_{Max} = 6{,}9\ nm$

***Tableau A-2 :** Valeur de l'amplitude maximale d'oscillation d'un électron libre en fonction de l'éclairement laser et pour deux longueurs d'onde (800 nm et 400 nm).*

A-2] Unités et conversion :

A-2-a) Unités atomiques

Grandeur	Relation	Valeur en unités SI
Masse[1]	m_e	$9{,}10953\times10^{-31}$ kg
Charge	e	$1{,}6029\times10^{-19}$ C
Longueur	$a_0 = \frac{\hbar^2}{m_e \cdot e^2}$	$5{,}29177\times10^{-11}$ m
Énergie	$Ry = \frac{\hbar^4}{m_e \cdot e^2}$	27,2116 eV
Temps	$t_0 = a_0 \times \hbar$	$2{,}41889\times10^{-17}$ s
Champ électrique	$E_0 = \frac{e^2}{2 \cdot a_0^2}$	$5{,}14224\times10^{11}$ V/m

***Tableau A-3 :** Conversion des unités atomiques en unités du système international.*

A-2-b) Conversions

	atmosphère	*Torr*	*Pascal*	*bar*	Densité (cm^{-3})
1 *atmosphère*	1	760	$1{,}013\times10^{5}$	1,013	$2{,}69\times10^{19}$
1 *Torr*	$1{,}32\times10^{-3}$	1	$1{,}33\times10^{2}$	$1{,}33\times10^{-3}$	$3{,}55\times10^{16}$
1 *Pascal*	$9{,}87\times10^{-6}$	$7{,}50\times10^{-3}$	1	10^{-5}	$2{,}65\times10^{14}$
1 *bar*	$9{,}87\times10^{-1}$	$7{,}50\times10^{2}$	10^{5}	1	$2{,}65\times10^{19}$
Densité (1 cm^{-3})	$3{,}72\times10^{-20}$	$2{,}82\times10^{-17}$	$3{,}77\times10^{-15}$	$3{,}77\times10^{-20}$	1

***Tableau A-4 :** Conversion des différentes unités de pression.*

Conversion d'une longueur d'onde (en Å) en une énergie (en eV) :

$$E(eV) = \frac{h \cdot c}{\lambda \cdot e} \qquad \text{Soit} \qquad E(eV) = \frac{12398{,}42}{\lambda(\dot{A})}$$

[1] A ne pas confondre avec l'unité de masse atomique (u.m.a.) qui vaut $1{,}66056\times10^{-27}$ kg.

Annexe B] Potentiel d'ionisation des atomes de gaz rare

Les potentiels d'ionisation (en eV) des atomes d'argon, de krypton et de xénon sont présentés dans le tableau ci –dessous [Cowan, 1981] pour différents états de charge.

Ar	Ar^{1+}	Ar^{2+}	Ar^{3+}	Ar^{4+}
15,76	27,63	40,74	59,81	75,02
Ar^{5+}	Ar^{6+}	Ar^{7+}	Ar^{8+}	Ar^{9+}
90,01	124,32	143,46	422,45	478,69
Ar^{10+}	Ar^{11+}	Ar^{12+}	Ar^{13+}	Ar^{14+}
538,96	618,26	686,11	755,15	854,78
Ar^{15+}	Ar^{16+}	Ar^{17+}		
918	4120,02	4426,20		
Kr	Kr^{1+}	Kr^{2+}	Kr^{3+}	Kr^{4+}
14,00	24,36	36,95	52,50	64,70
Kr^{5+}	Kr^{6+}	Kr^{7+}	Kr^{8+}	Kr^{9+}
78,50	111,0	125,94	230,9	268
Kr^{10+}	Kr^{11+}	Kr^{12+}	Kr^{13+}	Kr^{14+}
318	367	416	465	515
Kr^{15+}	Kr^{16+}	Kr^{17+}		
565	591	641		
Xe	Xe^{1+}	Xe^{2+}	Xe^{3+}	Xe^{4+}
12,13	21,21	32,10	46,70	59,70
Xe^{5+}	Xe^{6+}	Xe^{7+}	Xe^{8+}	Xe^{9+}
71,80	92,10	105,90	171	202
Xe^{10+}	Xe^{11+}	Xe^{12+}	Xe^{13+}	Xe^{14+}
233	263	294	325	358
Xe^{15+}	Xe^{16+}	Xe^{17+}	Xe^{18+}	Xe^{19+}
390	421	452	549	583
Xe^{20+}	Xe^{21+}	Xe^{22+}	Xe^{23+}	Xe^{24+}
618	631	701	737	819

Xe^{25+}	Xe^{26+}	Xe^{27+}	Xe^{28+}	Xe^{29+}
857	1495	1491	1587	1684
Xe^{30+}	Xe^{31+}	Xe^{32+}	Xe^{33+}	Xe^{34+}
1781	1877	1987	2085	2211
Xe^{35+}	Xe^{36+}	Xe^{37+}	Xe^{38+}	Xe^{39+}
2302	2554	2639	2728	2812
Xe^{40+}	Xe^{41+}	Xe^{42+}	Xe^{43+}	Xe^{44+}
2979	3071	3245	3334	7663
Xe^{45+}	Xe^{46+}	Xe^{47+}	Xe^{48+}	Xe^{49+}
7893	8143	8381	8987	9257
Xe^{50+}	Xe^{51+}	Xe^{52+}	Xe^{53+}	Xe^{54+}
9582	9813	40245	41211	

***Tableau B-1 :** Potentiel d'ionisation des atomes d'argon de krypton et de xénon en eV [Cowan, 1981].*

Annexe C] Mesures de la tâche focale

Les figures ci – dessous résument l'ensemble des mesures de la tâche focale qui ont été réalisées à deux énergies IR différentes : 5 *mJ* et 45 *mJ*. Pour chacune de ces énergies, il a été effectué deux types de mesures comme il a été explicité dans le chapitre II (§II-B-2-b): des mesures tir à tir (sur 50 images) et des mesures moyennées sur 120 tirs laser (sur 10 images). Ces images ont été analysées à l'aide deux logiciels (logiciel LBAPC de la société SPIRICON et logiciel LABVIEW du LUCA).

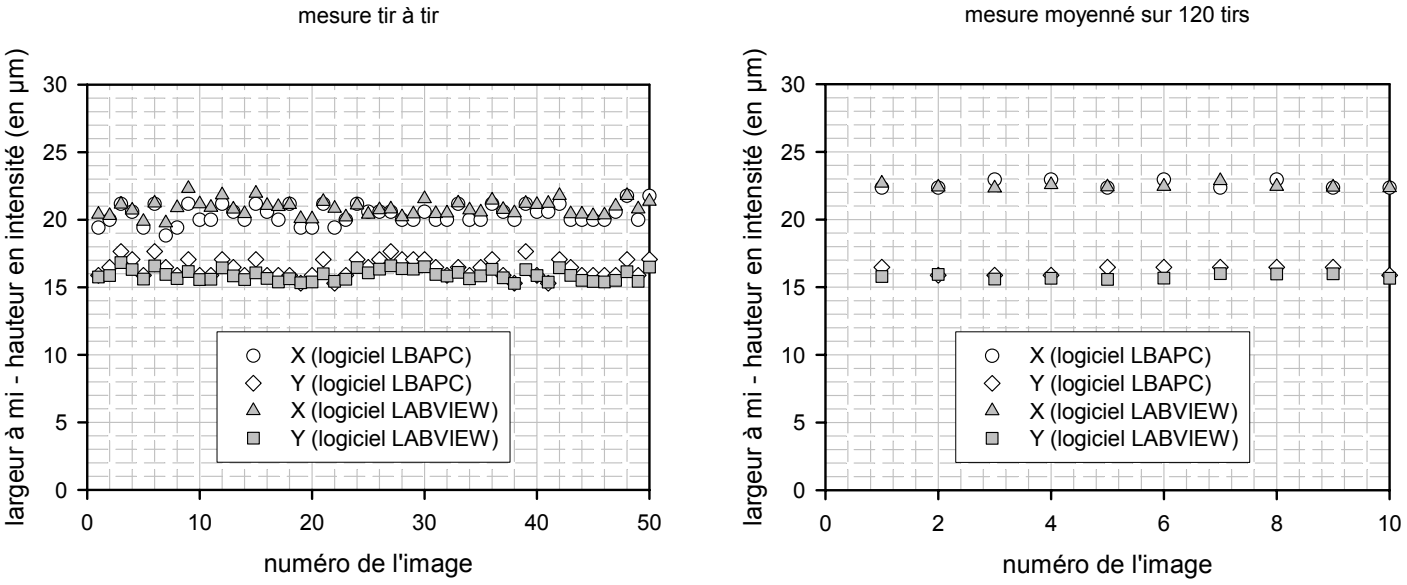


***Figure C-1 :* Largeur à mi – hauteur de la tâche focale pour une énergie IR de 45 mJ.**

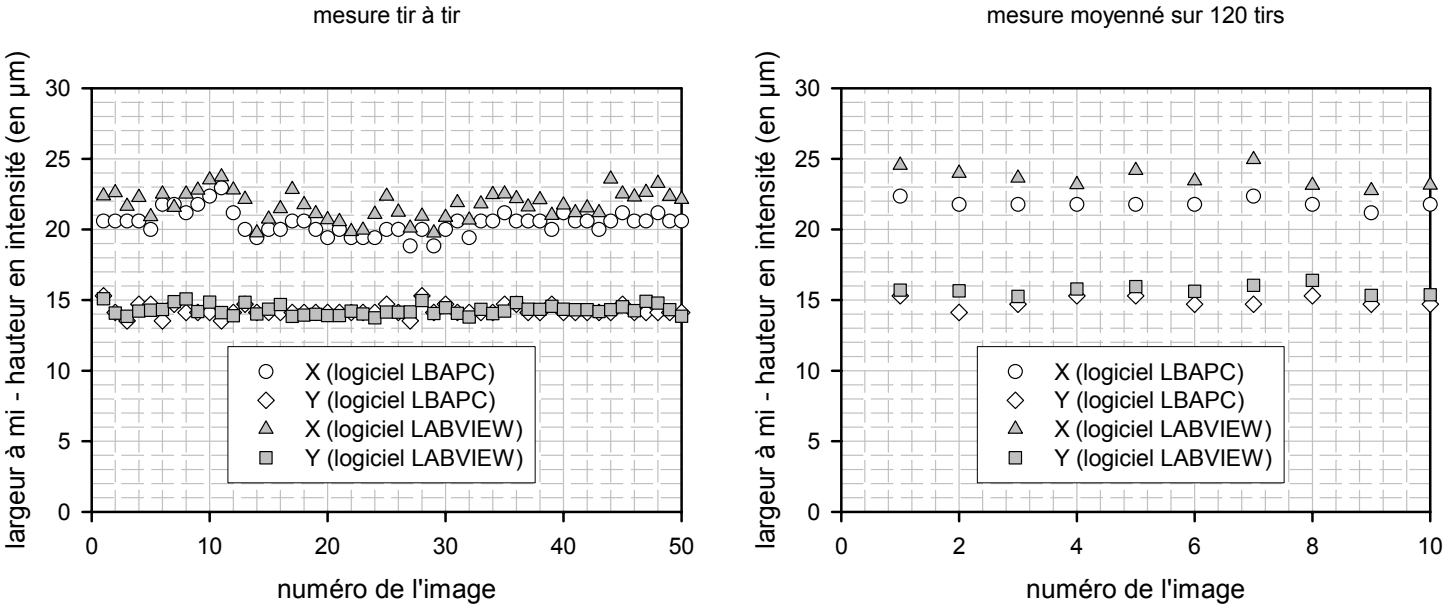


***Figure C-2 :* Largeur à mi – hauteur de la tâche focale pour une énergie IR de 5 mJ.**

Annexe C : Mesures de la tâche focale

Annexe D] Étalonnage

D-1] Coefficient d'étalonnage :

Les tableaux suivants récapitulent, pour mémoire, les coefficients des droites étalonnage obtenues lors des différentes campagnes d'expériences (2001 – 2002 – 2003 (1) et 2003 (2)). Nous rappelons la relation entre le n° de canal et l'énergie :

$$n°de\ canal = a \times Energie(keV) + b$$

Détecteur	Gain	b ("offset")	a ("pente")
Si(Li) (1)		43,50 ± 0,70	150,00 ± 1,00
Si(Li) (2)	× 20	20,05 ± 0,10	3,16 ± 0,01
	× 50	22,80 ± 0,80	7,68 ± 0,01
	× 100	23,20 ± 0,40	15,34 ± 0,01
	× 200	25,60 ± 0,35	31,75 ± 0,05
	× 500	31,00 ± 1,30	77,30 ± 0,30
	× 1 000	44,65 ± 5,30	152,60 ± 1,50

***Tableau D-1 :** Coefficients d'étalonnage lors de la campagne d'expériences de 2001.*

Détecteur	Gain	b ("offset")	a ("pente")
Si(Li) (1)		43,80 ± 1,20	160,00 ± 2,00
Si(Li) (2)	× 50	18,30 ± 1,50	2,04 ± 0,02
	× 100	20,45 ± 0,50	4,0 ± 0,01
	× 200	22,85 ± 1,40	8,11 ± 0,02
	× 500	21,20 ± 0,65	20,01 ± 0,02
	× 1 000	23,30 ± 1,60	39,90 ± 0,10

***Tableau D-2 :** Coefficients d'étalonnage lors de la campagne d'expériences de 2002.*

Détecteur	Gain	b ("offset")	a ("pente")
Si(Li) (1)		44,07 ± 6,02	160,00 ± 1,00
Si(Li) (2)	× 20	23,45 ± 0,67	0,74 ± 0,01
	× 50	22,80 ± 0,75	1,92 ± 0,01
	× 100	18,70 ± 1,65	3,78 ± 0,02
	× 200	16,40 ± 2,50	7,88 ± 0,06
	× 500	20,65 ± 0,40	18,70 ± 0,02
	× 1 000	24,00 ± 1,30	37,35 ± 0,10

Tableau D-3 : ***Coefficients d'étalonnage lors de la campagne d'expériences de 2003 (1).***

Détecteur	Gain	b ("offset")	a ("pente")
Si(Li) (1)		71,50 ± 8,40	154,80 ± 1,50
Si(Li) (2)	× 20	21,90 ± 1,46	0,74 ± 0,01
	× 50	16,65 ± 0,75	1,90 ± 0,01
	× 100	18,30 ± 0,30	3,75 ± 0,01
	× 200	18,90 ± 0,40	7,73 ± 0,01
	× 500	20,10 ± 0,20	18,86 ± 0,01
	× 1 000	21,31 ± 0,30	37,70 ± 0,01

Tableau D-4 : ***Coefficients d'étalonnage lors de la campagne d'expériences de 2003 (2).***

D-2] Energie des transitions :

Il est présenté dans les tableaux suivants les énergies des transitions ayant servies à l'étalonnage des détecteurs tant à partir des sources radioactives qu'à partir des cibles sous impact électronique.

Emetteur	Nature de la transition	Énergie[1] (en keV)
Source de ^{55}Fe	$K_\alpha(Mn)$	5,895
	$K_\beta(Mn)$	6,490
Source de ^{57}Co	$K_\alpha(Fe)$	6,400
	$K_\beta(Fe)$	7,058
	γ_1	14,413
	γ_2	122,06
Source de ^{109}Cd	$K_\alpha(Ag)$	22,11
	$X_L(Ag)$	~ 25
	γ_1	88,03

***Tableau D-5 :** Énergie des transitions utilisées pour l'étalonnage des détecteurs Si(Li), sources radioactives.*

Cible	Nature de la transition	Énergie[2] (en keV)
KAlCl	$K_\alpha(Cl)$	2,621
	$K_\beta(Cl)$	2,815
	$K_\alpha(K)$	3,312
	$K_\beta(K)$	3,590
Inox	$K_\alpha(Cr)$	5,412
	$K_\beta(Cr)$	5,947
	$K_\alpha(Fe)$	6,400
	$K_\beta(Fe)$	7,058
	$K_\alpha(Ni)$	7,472

***Tableau D-6 :** Énergie des transitions utilisées pour l'étalonnage des détecteurs Si(Li), cibles.*

[1] L'énergie des raies X ou γ des sources radioactives est accessible sur le site du laboratoire national Henri Becquerel du CEA : http://www.bnm.fr/bnm-lnhb/DDEP_WG/DDEPdata.htm

[2] Les énergies des transitions sont issues de DESLATTES, R. D., KESSLET, E. G., INDELICATO, P., DE BILLY, L., LINDROTH, E. & ANTON, J. (2003). X-ray transition energies : new approch to a comprehensive evaluation. *Rev. Mod. Phys.* **75,** 000035..

Annexe E] Transmission des détecteurs Si(Li)

Il est présenté dans les tableaux ci – dessous la transmission des deux détecteurs Si(Li) lors des campagnes d'expériences de 2002 et 2003 à l'énergie des X_K de l'argon (3,1 *keV*) et des X_L du xénon (4,4 *keV*).

Xénon	Diaphragme	Absorbant	Transmission
Si(Li) (2)	1,00 *mm*	Inox 18,10 μm	$3{,}7\times10^{-8}$
	2,10 *mm*	Inox 18,10 μm	$1{,}6\times10^{-7}$
	3,20 *mm*	Inox 18,10 μm	$3{,}8\times10^{-7}$
	8,05 *mm*	Inox 18,10 μm	$2{,}4\times10^{-6}$
Si(Li) (1)	0,55 *mm*	Inox 23,20 μm	$7{,}5\times10^{-9}$
	2,10 *mm*	Inox 23,20 μm	$1{,}1\times10^{-7}$
	1,05 *mm*	Inox 23,20 μm	$2{,}7\times10^{-8}$
Argon	Diaphragme	Absorbant	Transmission
Si(Li) (2)	1,00 *mm*	-	$5{,}7\times10^{-7}$
	3,20 *mm*	-	$5{,}8\times10^{-6}$
	8,05 *mm*	-	$3{,}7\times10^{-5}$
Si(Li) (1)	0,55 *mm*	-	$3{,}8\times10^{-7}$
	1,05 *mm*	-	$1{,}4\times10^{-6}$

***Tableau E-1 :* Transmission totale des détecteurs Si(Li) (1) et (2) pour les X émis par les agrégats d'argon et de xénon lors de la campagne d'expériences 2002.**

Xénon	Diaphragme	Absorbant	Transmission
Si(Li) (2)	1,00 *mm*	Alu 11,60 μm	$6{,}7\times10^{-8}$
	2,10 *mm*	Alu 11,60 μm	$2{,}9\times10^{-7}$
	3,20 *mm*	Alu 11,60 μm	$6{,}8\times10^{-7}$
	3,20 *mm*	Alu 20,35 μm	$6{,}7\times10^{-8}$
Si(Li) (1)	0,55 *mm*	Alu 11,60 μm	$3{,}7\times10^{-8}$
	1,05 *mm*	Alu 11,60 μm	$1{,}4\times10^{-7}$
	2,00 *mm*	Alu 11,60 μm	$4{,}9\times10^{-7}$
	2,00 *mm*	Alu 20,35 μm	$4{,}8\times10^{-8}$
Argon	Diaphragme	Absorbant	Transmission
Si(Li) (2)	0,55 *mm*	-	$1{,}8\times10^{-7}$
	1,05 *mm*	-	$6{,}7\times10^{-7}$
	2,10 *mm*	-	$2{,}7\times10^{-6}$
	3,20 *mm*	-	$6{,}2\times10^{-6}$
Si(Li) (1)	0,55 *mm*	-	$3{,}6\times10^{-7}$
	1,05 *mm*	-	$1{,}3\times10^{-6}$
	2,00 *mm*	-	$4{,}8\times10^{-6}$

***Tableau E-2 :** Transmission totale des détecteurs Si(Li) (1) et (2) pour les X émis par les agrégats d'argon et de xénon lors de la campagne d'expériences 2003.*

Annexe F] Intervalle de confiance sur l'estimation de l'énergie moyenne des spectres obtenus sur le spectromètre cristallin

Le problème que l'on se propose de traiter consiste en la détermination de l'intervalle de confiance, avec une certaine probabilité de risque (1-α) (typiquement 5 ou 10 %), dans lequel l'estimation de la valeur moyenne calculée $< x >$ correspond à la valeur moyenne exacte μ [Fourastié & Laslier, 1997].

Considérons une classe d'événement x_i (comme le numéro de canal pour un spectre) auquel est attribué un certain poids $f(x_i)$ (nombre de coups par canal pour un spectre). L'estimation de la valeur moyenne est donnée par l'estimateur suivant :

$$< x >= \frac{\sum_i x_i \cdot f(x_i)}{\sum_i f(x_i)} \qquad \textbf{[Annexe F.1]}$$

Il est possible de montrer que cet estimateur est sans biais, c'est à dire que son espérance tend vers μ, la valeur moyenne exacte, et que sa variance tend vers 0 lorsque la statistique est suffisamment grande. La "vraie" dispersion statistique des données est déterminée par la variance σ^2 mais celle – ci est inconnue dans la plupart des cas et il faut donc recourir à un estimateur s^2 non biaisé de cette variance ; il est donné, dans le cas présenté ici, par la formule :

$$s^2 = \frac{\sum_i (x_i - < x >)^2 \cdot f(x_i)}{\sum_i f(x_i) - 1} \qquad \textbf{[Annexe F.2]}$$

Posons t la variable aléatoire définie de la manière suivante :

$$t = \frac{< x > - \mu}{\sigma / \sqrt{N}} \cdot \left(\frac{\sigma}{s} \right) \qquad \textbf{[Annexe F.3]}$$

avec N le nombre total de coups sur un spectre donné par :

$$N = \sum_i f(x_i) \qquad \textbf{[Annexe F.4]}$$

En posant : $Z = \frac{< x > - \mu}{\sigma / \sqrt{N}}$ et $Y^2 = (N-1) \cdot \left(\frac{\sigma}{s} \right)^2$ alors t s'écrit :

$$t = \frac{Z}{\sqrt{(N-1)\cdot Y}} \qquad \textbf{[Annexe F.5]}$$

Dans ces définitions, Z est une variable aléatoire qui suit une loi Normale centrée réduite (loi de Gauss) et Y est une variable aléatoire qui suit une loi du χ^2 à *(N-1)* degrés de liberté. Par conséquent, il est établi que t suit une loi de Student à *(N-1)* degrés de liberté.

On souhaite donc déterminer T' tel que la probabilité que t soit supérieure à T' est de α %. On aura alors un intervalle de confiance à (1-α) % de risque donné par l'expression :

$$prob\left(-T' < t = \frac{< x > -\mu}{s/\sqrt{N}} < T'\right) = 1-\alpha \qquad \textbf{[Annexe F.6]}$$

L'intervalle de confiance sur la vraie moyenne est alors donné par :

$$prob\left(< x > -\frac{T'.\,s}{\sqrt{N}} \quad < \mu < \quad < x > +\frac{T'.\,s}{\sqrt{N}}\right) = 1-\alpha \qquad \textbf{[Annexe F.7]}$$

Cette équation définit alors un intervalle de confiance centré sur $< x >$ où doit se trouver la valeur exacte de la vraie moyenne μ avec seulement un risque de (1-α) % qu'elle soit en dehors. Dans la pratique, il est possible de remplacer la loi de Student par une loi de Gauss – Laplace lorsque la population de l'échantillon (N) est supérieure à 50. Il suffit alors de lire la valeur du paramètre T' dans une table de loi Normale comme nous le donnons dans le *Tableau F-1*.

Niveau de risque (1-α)	1 %	2 %	4 %	5 %	10 %	20 %	50 %
T'	2,58	2,33	2,05	1,96	1,64	1,28	0,67

Tableau F-1 : Estimation du paramètre T' pour la détermination de l'intervalle de confiance sur la valeur moyenne.

En résumé, les limites de confiance pour la moyenne sont données par :

$$\mu = < x > \pm T'\frac{s}{\sqrt{N}} \qquad \textbf{[Annexe F.8]}$$

Nous avons choisi un intervalle de confiance à 95 % (soit 5 % de risque) pour l'estimation de l'erreur sur l'énergie moyenne des spectres obtenus avec le spectromètre cristallin ($T' \approx 2$).

Bibliographie

CHAPITRE I

AMMOSOV, M. V., DELONE, N. B. & KRAINOV, V. P. (1986). Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternative electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP* **64,** 1191.

ANHOLT, R., STOLLER, C., MOLITORIS, J. D., SPOONER, D. W., MRENZONI, E., ANDRIAMONJE, S. A., MEYERHOF, W. E., BOWAN, H., XU, J. S., XU, Z. Z., RAMSUSSEN, J. O. & HOFFMANN, D. H. H. (1986). Atomic collisions with relativistic heavy ions. *Phys. Rev. A* **33,** 2270-2280.

AUGST, S., MEYERHOFER, D. D., STRICKLAND, D. & CHIN, S. L. (1991). Laser ionization of noble gases by coulomb barier suppression. *J. Opt. Soc. Am. B* **8,** 858-867.

BAR-SHALOM, A. & KLAPISCH, M. (1988). Electron collision excitations in complex spectra of ionized heavy atoms. *Phys. Rev. A* **38,** 1773-1784.

BAR-SHALOM, A., KLAPISCH, M. & OREG, J. (2001). HULLAC, an integrated computer package for atomic processes in plasmas. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer* **71,** 169-188.

BERNSHTAM, V. A., RALCHENKO, Y. V. & MARON, Y. (2000). Empirical formula for cross section of direct electron - impact ionization of ions. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **33,** 5025-5032.

BEYER, H. F. & SHELVELKO, V. P. (2003). *Introduction to physics of highly charged ions*. IOP.

BORISOV, A. B., MCPHERSON, A., BOYER, K. & RHODES, C. K. (1996). Intensity dependence of the multiphoton-induced Xe(L) spectrum produced by subpicosecond 248 nm excitation of Xe clusters. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **29,** L43-L50.

BOYER, K., THOMPSON, B. D., MCPHERSON, A. & RHODES, C. K. (1994). Evidence for coherent electron motions in multiphoton x-ray production from Kr and Xe clusters. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **27,** 4373-4389.

BROSSEL, J., CAGNAC, B. & KASTLER, A. (1953). Multiple - quanta magnetic resonance in a beam of optically oriented sodium atoms. *Compt. Rend. Acad. Sci* **237,** 984-986.

CAGNAC, B., GRYNBERG, G. & BIRABEN, F. (1973). Multiphoton absorption spectroscopy without Doppler broadening. *J. de Phys.* **34,** 845-858.

CLARK, M. W., SCHNEIDER, D. & MCDONALD, J. W. (1993). Xe L and Xe M x-ray emission following $Xe^{(44-48+)}$ ion impact on Cu surfaces. *Phys. Rev. A* **47,** 3983-3997.

COWAN, R. D. (1981). *The theory of atomic structure and spectra*. University of California, Berkeley.

DEWITT, D. R., SCHNEIDER, D., CHEN, M. H., CLARK, M. W., MCDONALD, J. W. & SCHNEIDER, M. B. (1992). Dielectronic recombinaison cross sections of neonlike xenon. *Phys. Rev. Lett.* **68,** 1694-1697.

DITMIRE, T., DONELLY, T., FALCONE, R. W. & PERRY, M. D. (1995). Strong x-ray emission from high-temperature plasmas produced by intense irradiation of clusters. *Phys. Rev. Lett.* **75,** 3122-3125.

DITMIRE, T., DONNELLY, T., RUBENCHIK, A. M., FALCONE, R. W. & PERRY, M. D. (1996). Interaction of intense laser pulses with atomic clusters. *Phys. Rev. A* **53,** 3379-3402.

DITMIRE, T., TISCH, J. W. G., SPRINGATE, E., MASON, M. B., HAY, N., SMITH, R. A., MARANGOS, J. & HUTCHINSON, M. H. R. (1997). High-energy ions produced in explosion of superheated atomic clusters. *Nature* **386,** 54-56.

DJAOUI, A. & OFFENBERGER, A. A. (1994). Heating of underdense plasmas by intense short - pulse - lasers. *Phys. Rev. E* **50,** 4961-4968.

DOBOSZ, S. (1998). Interaction d'agrégats de gaz rares avec un champ laser intense, Th7se de l'Université Paris XIII.

DOBOSZ, S., LEZIUS, M., SCHMIDT, M., MEYNADIER, P., PERDRIX, M., NORMAND, D., ROZET, J.-P. & VERNHET, D. (1997). Absolute keV photon yields from ultrashort laser-field-induced hot nanoplasmas. *Phys. Rev. A* **56,** R2526-R2529.

DONNELLY, T. D., DITMIRE, T., NEUMAN, K., PERRY, M. D. & FALCONE, R. W. (1996). High - order harmonic generation in atom clusters. *Phys. Rev. Lett.* **76,** 2472-2475.

DRUDE, P. (1900). Zur elektronentheorie der metalle. *Ann. der Physik* **3,** 566.

GÖPPERT-MAYER, M. (1931). Ober Elementarakte mit zwei quantensprungen. *Ann. Phys.* **9,** 273.

HAUGHT, A. F. & POLK, D. H. (1970). Formation and heating of laser irradiated solid particle plasmas. *Phys. Fluids* **13,** 2825-2841.

HEER, W. D. (1993). The physics of simple metal clusters: experimental aspects and simple models. *Rev. Mod. Phys.* **65,** 611-676.

HILL, W. T., CHENG, K. T., JOHNSON, W. R., LUCATORTO, T. B., MCILRATH, T. J. & SUGAR, J. (1983). Influence of increasing nuclear charge on the Rydberg spectra of Xe, Cs^{+} and Ba^{++} : correlation, term dependance, and autoionization. *Phys. Rev. Lett.* **49,** 1631-1635.

HIROKANE, M., SHIMIZU, S., HASHIDA, M., OKADDA, S., OKIHARA, S., SATO, F., IIDA, T. & SAKABE, S. (2004). Energy distributions of ions emitted from argon clusters coulomb - explosed by intense femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A* **69,** 063201.

HUMPERT, H. J., SCHWIER, H., HIPPLER, R. & LUTZ, H. O. (1985). Angular distribution of photoelectron from above - threshold ionization of Xe. *Phys. Rev. A* **32,** 3787.

ILKOV, F. A., DECKER, J. E. & CHIN, S. L. (1992). Ionization of atoms in the tunnelling regime with experimental evidence using Hg atoms. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **25,** 4005-4020.

ISHIKAWA, K. & BLENSKI, T. (2000). Explosion dynamics of rare gas clusters in an intense laser field. *Phys. Rev. A* **62,** 063204.

JACKSON, J. D. (2001). *Electrodynamique classique*. Dunod, Paris.

JOHNSON, T. W. & DAWSON, J. M. (1973). Correct values for high frequency power absorption by inverse bremsstrahlung in plasmas. *Phys. Fluids* **16,** 722.

JUNGREUTHMAYER, C., GEISSLER, M., ZANGHELLI, J. & BRABEC, T. (2004). Microscopic analysis of large cluster explosion in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.* **92,** 133401.

JUNKEL-VIVES, G. C., ABDALLAH JR, J., BLASCO, F., STENZ, C., SALIN, F., FAENOV, A. Y., MAGUNOV, A. I., PIKUZ, T. A., SKOBELEV, I. Y., AUGUSTE, T., D'OLIVEIRA, P., HULIN, S., MONOT, P. & DOBOSZ, S. (2001). High-resolution X-ray spectroscopy investigations of fs laser irradiated Ar clusters by varying cluster size and laser flux intensity. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer* **71,** 417-430.

KELDYSH, L. V. (1965). Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP* **20,** 1307-1314.

KELLY, R. L. (1982). Atomic and ionic spectrum lines below 2000 angstroms, hydrogen through argon. *Oak Ridge National Laboratory*.

KLAPISCH, M. (1971). A program for atomic wavefunction computations by the parametric potential method. *Comp. Phys. Comm.* **2,** 239-260.

KLAPISCH, M., SCHWOB, J. L., FRAENKEL, B. S. & OREG, J. (1977). The 1s-3p Kbeta like X-ray spectrum of highly ionized iron. *J. Opt. Soc. Am.* **67,** 148-155.

KONDO, K., BORISOV, A. B., JORDAN, C., MCPHERSON, A., SCHROEDER, W. A., BOYER, K. & RHODES, C. K. (1997). Wavelength dependence of multiphoton-induced Xe(M) and Xe(L) emissions from Xe clusters. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **30,** 2707-2716.

KRUER, W. L. (1988). *The physics of laser plasma interactions*. Addison - Welsley Publishing Company.

KUMARAPPAN, V., KRISHNAMURTHY, M. & MATHUR, D. (2001). Asymmetric high-energy ion emission from Argon clusters in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.* **87,** 085005.

KUMARAPPAN, V., KRISHNAMURTHY, M. & MATHUR, D. (2003). Asymmetric emission of high energy electrons in the two dimensional hydrodynamic expansion of large xenon clusters irradiated by intense laser fields. *Phys. Rev. A* **67,** 043204.

LANDAU, L. D. & LIFSHITZ, E. M. (1978). *Quantum Physics*, London.

LARSSON, J. & SJÖRGEN, A. (1999). Evaluation of laser-irradiated Ar clusters as a source for time-resoled x-ray studies. *Rev. Sci. Ins.* **70,** 2253-2256.

LAST, I. & JORTNER, J. (1998). Multielectron ionization of large rare gas clusters. *J. Phys. Chem.* **102,** 9655-9659.

LAST, I., SHEK, I. & JORTNER, J. (1997). Energetics and dynamics of coulomb explosion of highly charged clusters. *J. Chem. Phys.* **107,** 6685-6692.

LEZIUS, M., DOBOSZ, S., NORMAND, D. & SCHMIDT, M. (1998). Explosion dynamics of rare gas clusters in strong laser fields. *Phys. Rev. Lett.* **80,** 261-264.

L'HUILLIER, A. (1986). Ionisation multiphotonique et multiélectronique, Thèse de l'Université Pierre et Marie Curie.

L'HUILLIER, A., LOMPRE, L. A., MAINFRAY, G. & MANUS, C. (1983). Multicharged ions induced by multiphoton absorption in rare gases at 0.53 μm. *Phys. Rev. A* **27,** 2503-2512.

LOTZ, W. (1968). Electron impact ionization cross sections and ionization rate coefficients for atoms and ions from hydrogen to calcium. *Zeit. Phys.* **216,** 241-247.

LOTZ, W. (1970). Electron - Impact ionization cross - section for atoms up to Z = 108. *Zeit. Phys.* **232,** 101-107.

MAINFRAY, G. & MANUS, C. (1991). Multiphoton ionization of atoms. *Rep. Prog. Phys.* **54,** 1333-1372.

MCGUIRE, J. H. & STOLTERFORT, N. (1981). Screening and antiscreening by projectile electrons in high velocity atomic collisions. *Phys. Rev. A* **24,** 97-102.

MCPHERSON, A., GIBSON, G., JARA, H., JOHANN, U., LUCK, T. S., MCINTYRE, I. A., BOYER, K. & RHODES, C. K. (1987). Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J. Opt. Soc. Am. B* **4,** 595-601.

MCPHERSON, A., LUK, T. S., THOMPSON, B. D., BORISOV, A. B., SHIRYAEV, O. B., CHEN, X., BOYER, K. & RHODES, C. K. (1994a). Multiphoton induced x-ray emission from Kr clusters on M-shell (~100 A) and L-shell (~6 A) transitions. *Phys. Rev. Lett.* **72,** 1810-1813.

MCPHERSON, A., LUK, T. S., THOMPSON, B. D., BOYER, K. & RHODES, C. K. (1993). Multiphoton-induced X-ray emission and amplification from clusters. *Appl. Phys. B* **57,** 337-347.

MCPHERSON, A., THOMPSON, B. D., BORISOV, A. B., BOYER, K. & RHODES, C. K. (1994b). Multi-photon induced x-ray emission at 4-5 keV from Xe atoms with multiple core vacancies. *Nature* **370,** 631-634.

MEGI, F., BELKACEM, M., BOUCHENE, M. A., SURAUD, E. & ZWICKNAGEL, G. (2003). On the importance of damping phenomena in clusters irradiated by intense laser fields. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **36,** 273-282.

MONOT, P. (1993). Interaction laser - gaz en champ intense, Thèse de l'Université de Paris Sud (Paris XI).

MORI, M., SHIRAISHI, T., TAKAHASHI, E., SUZUKI, H., SHARMA, L. B., MIURA, E. & KONDO, K. (2001). Extreme ultraviolet emission from Xe clusters excited by high-intensity lasers. *J. Appl. Phys.* **90,** 3595-3601.

MÜLLER, A., HUBER, K., TINSCHERT, K., BECKER, R. & SALZBORN, E. (1985). An improved crossed - beams technique for the measurements of absolute cross sections for electron impact ionisation of ions and its application to Ar^+ ions. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **18,** 2993-3009.

MÜLLER, A., SALZBORN, E., FRODL, R., BECKER, R., KLEIN, H. & WINTER, H. (1980). Absolute ionisation cross sections for electrons incident on O^+, Ne^+, Xe^+ and Ar^{i+} (i=1,...,5) ions. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **13,** 1877-1899.

NISHIKAWA, K. & WAKATANI, M. (200). *Plasma Physics*. Springer, Heidelberg.

PARRA, E., ALEXEEV, I., FAN, J., KIM, K. Y., MCNAUGHT, S. J. & MILCHBERG, H. M. (2000). X-ray and extreme ultraviolet emission induced by variable pulse-width irradiation of Ar and Kr clusters and droplets. *Phys. Rev. E* **62,** R5931-R5934.

PERELOMOV, A. M., POPOV, V. S. & TERET'EV, M. V. (1965). Ionization of atoms in an alternative electric field. *Sov. Phys. JETP* **23,** 924.

PURNELL, J., SNYDER, E. M., WEI, S. & CASTLEMAN JR, A. W. (1994). Ultrafast laser - induced Coulomb explosion of clusters with high charges states. *Chem. Phys. Lett.* **229,** 333-339.

RACHAFI, S., BELIC, D. S., DUPONCHELLE, M., JURETA, J., ZAMBRA, M., HUI, Z. & DEFRANCE, P. (1991). Absolute cross section measurements for electron impact ionization of Ar^{7+}. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **24,** 1037-1047.

ROSE-PETRUK, C., SCHAFER, K. J., WILSON, K. R. & BARTY, C. P. J. (1997). Ultrafast electron dynamics and inner-shell ionization in laser driven clusters. *Phys. Rev. A* **55,** 1182-1190.

SCHNÜRER, M., TER-AVETISYAN, S., STIEL, H., VOGT, U., RADLOFF, W., KALASHNIKOV, M., SANDNER, W. & NICKLES, P. V. (2001). Influence of laser pulse width on absolute EUV-yield from Xe-clusters. *Eur. phys. J. D* **14,** 331-335.

SCHROEDER, W. A., NELSON, T. R., BORISOV, A. B., LONGWORTH, J. W., BOYER, K. & RHODES, C. K. (2001). An efficient, selective collisional ejection mechanism for inner-shell population inversion in laser-driven plasmas. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **34,** 297-319.

SHAO, Y. L., DITMIRE, T., TISCH, J. W. G., SPRINGATE, E., MARANGOS, J. P. & HUTCHINSON, M. H. R. (1996). Multi-keV electron generation in the interaction of intense laser pulses with Xe clusters. *Phys. Rev. Lett.* **77,** 3343-3346.

SILIN, V. P. (1965). Non linear high frequency plasma conductivity. *Sov. Phys. JETP* **20,** 1510-1516.

SMITH, R. A., TISCH, J. W. G., DITMIRE, T., SPRINGATE, E., HAY, N., MASON, M. B., GRUMBRELL, E. T., COMLEY, A. J., MOUNTFORD, L. C., MARANGOS, J. & HUTCHINSON, M. H. R. (1999). The genration of high energy ions by photo - induced dissociation of atomic clusters. *Physica Scripta* **T80,** 35-39.

SOBELMAN, I. I. (1972). *Introduction to the theory of atomic spectra*. Pergamon Press, Oxford.

SPRINGATE, E., ASEYEV, S. A., ZAMITH, S. & VRAKKING, M. J. J. (2003). Electron kinetic energy measurements from laser irradiation of clusters. *Phys. Rev. A* **68,** 053201.

SPRINGATE, E., HAY, N., TISCH, J. W. G., MASON, M. B., DITMIRE, T., HUTCHINSON, M. H. R. & MARANGOS, J. P. (2000). Explosion of atomic clusters irradiated by high-intensity laser pulses : Scaling of ion energies with cluster and laser parameters. *Phys. Rev. A* **61,** 063201.

TER-AVETISYAN, S., SCHNÜRER, M., STIEL, H., VOGT, U., RADLOFF, W., W. KARPOV, SANDNER, W. & NICKLES, P. V. (2001). Absolute extreme ultraviolet yield from femtosecond-laser-excited Xe clusters. *Phys. Rev. E* **64,** 036404.

THOMPSON, B. D., MCPHERSON, A., BOYER, K. & RHODES, C. K. (1994). Multi-electron ejection of inner-shell electrons through multiphoton excitation of clusters. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **27,** 4391-4400.

TISCH, J. W. G., DITMIRE, T., FRASER, D. J., HAY, N., MASON, M. B., SPRINGATE, E., MARANGOS, J. & HUTCHINSON, M. H. R. (1997). Investigation of high - harmonic generation from xenon atoms clusters. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **30,** L709-L714.

, J. W. G., HAY, N., MENDHAM, K. J., SPRINGATE, E., SYMES, D. R., COMLEY, A. J., MASON, M. B., GUMBRELL, E. T., DITMIRE, T., SMITH, R. A., MARANGOS, J. & HUTCHINSON, M. H. R. (2003). Interaction of intense laser pulses with atomic clusters : measurements of ion emission, simulations and applicationS. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research B* **205,** 310-323.

VERNHET, D., ADOUI, L., ROZET, J.-P., WOHRER, K., CHETIOUI, A., CASSIMI, A., GRANDIN, J.-P., RAMILLON, J. M., CORNILLE, M. & STEPHAN, C. (1997). Multielectron process in heavy ion - atom collisions at intermediate velaocity. *Phys. Rev. Lett.* **79,** 3625-3628.

VERNHET, D. (1990). Distribution et anisotropie de moments cinétiques de capture pour des collisions d'ions multichargés de basse énergie, Thèse de l'Univeristé Pierre et Marie Curie TISCH.

VIALLON, J. (2000). I] Etude de la ségrégation par mesure des potentiels d'ionisation dans les agrégats de barym et lithium oxygénés. II] Explosion d'agrégats métalliques en champ laser intense, Thèse de l'Université Claude Bernard.

WÜLKER, C., THEOBALD, W., OUW, D., SCHÄFER, F. P. & CHICHKOV, B. N. (1994). Short - pulse laser produced plasma from C_{60} molecules. *Optics Communications* **112,** 21-28.

YAMAKAWA, K., AKAHANE, Y., FUKUDA, Y., AOYAMA, M., INOUE, N., UEDA, H. & UTSUMI, T. (2004). Many - electron dynamics of a Xe atom in strong and super strong laser fields. *Phys. Rev. Lett.* **92,** 123001.

ZHANG, H., CHERKANI-HASSANI, S., BÉLENGER, C., DUPONCHELLE, M., KHOUILID, M., OUALIM, E. M. & DEFRANCE, P. (2002). Electron impact ionization of argon ions (q = 4 - 11). *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **35,** 3829-3845.

CHAPITRE II

ADOUI, L. (1994). Mécanismes d'excitation d'ions Ar^{16+} en collision avec des cibles gazeuses à vitesse intermédiaire, Thèse de l'Université Pierre et Maris Curie (Paris 6).

ANDERSON, J. B., ANDRES, R. P. & FENN, J. B. (1966). *Supersonic nozzle beams*. Interscience.

BARTELL, L. S. (1986). Diffraction studies of clusters generated in supersonic flow. *Chem. Rev.* **86,** 491.

BECKER, E. W. (1968). *Gas dynamics*. Academic Press, New-york.

BECKER, E. W. (1986). On the history of cluster beams. *Zeit. Phys. D : Atoms, Molecules and Clusters* **3,** 101.

BECKER, E. W., BIER, K. & HENKES, W. (1956). Strahlen aus kondensierten atomen und molekeln im hochvakum. *Zeit. Phys.* **146,** 333.

BELL, A. J., MESTDAGH, J. M., BERLANDE, J., BIQUARD, X., CUVELLIER, J., LALLEMENT, A., MEYNADIER, P., SUBLEMONTIER, O. & VISTICOT, J. P. (1993). Mean cluster size by Rayleigh scattering. *J. Phys. D : Applied Physics* **26,** 994.

BJÖRNEHOLM, O., FEDERMANN, F., FÖSSING, F., MÖLLER, T. & STAMPFLI, P. (1996). Core level binding energy shifs and polarization screening : a combined experimental and theorical study of argon clusters. *J. Chem. Phys.* **104**.

BLASCO, F., CAILLAUD, T., DORCHIES, F., STENZ, C., STENVEFELT, J., BOLDAREV, A. S. & GASILOV, V. A. (2003). Characterization of argon cluster jets for laser interaction studies. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research B* **205,** 324-328.

BOBBERT, C., SCHÜTTE, S., STEINBACH, C. & BUCK, U. (2002). Fragmentation and reliable size distributions of large ammonia and water clusters. *Eur. phys. J. D* **19,** 183.

BOLDAREV, A. S., GASILOV, V. A., BLASCO, F., STENZ, C., DORCHIES, F., SALIN, F., FAENOV, A. Y., PIKUZ, T. A., MAGUNOV, A. I. & SKOBELEV, I. Y. (2001). Modeling cluster jets as targets for high - power ultrashort laser pulses. *JETP Letters* **73,** 514.

BOR, Z. (1988). Distorsion of femtosecond laser pulses in lenses and len systems. *J. Mod. Opt.* **35,** 1907-1918.

BOR, Z. & HORVATH, Z. L. (1992). Distorsion of femtosecond pulses in lenses. Wave optical description. *Optics Communications* **94,** 249-258.

BRUHAT, G. (1965). *Cours général de physique : Optique*. Masson, Paris.

BUCK, U. & KROHNE, R. (1996). Cluster size determination from diffractive He atom scattering. *J. Chem. Phys.* **105,** 5408.

CAGNAC, B. & FAROUX, J. P. (2002). *Lasers : interaction lumière - atomes*. CNRS éditions / EDP Sciences, Paris.

CHABOT, M., NICOLEI, P., WÖHRER, K., ROZET, J.-P., TOUATI, A., CHETIOUI, A., VERNHET, D. & POLITIS, M.-F. (1991). X-ray reflectivities, at lox and high order of reflection, of flat highly oriented pyrolic graphite crystals. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research B* **61,** 377-384.

COLOMBEAU, B., FROEHLY, C. & VAMPOUILLE, M. (1980). Autocorrelation of laser pulses by optical processing of Fabry - Perot spectrograms. *Appl. Optics* **19,** 534-541.

COWAN, R. D. (1981). *The theory of atomic structure and spectra*. University of California, Berkeley.

DESPINEY, I. (1994). Mélange cohérent et mélange collisionnel des états de structure fine d'ions lourds rapides en milieux condensés, Thèse de l'Université Pierre et Marie Curie (Paris 6).

DORCHIES, F., BLASCO, F., CAILLAUD, T., STEVEFELT, J., STENZ, C., BOLDAREV, A. S. & GASILOV, V. A. (2003). Spatial distribution of cluster size and density in supersonic jets as targets for intense laser pulse. *Phys. Rev. A* **68,** 023201.

DRAKE, W. F. G. (1996). *Atomic, molecular & optical physics handbook*. AIP Press, Woodbury New-York.

FALTER, H., HAGENA, O. F., HENKES, W. & WEDEL, H. V. (1970). Einfluss der elektronenenergie auf das massen-spektrum von clustern in kondensierten molekular-strahlen. *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Physics* **4,** 145.

FARGES, J., DEFERAUDY, M. F., RAOULT, B. & TORCHET, G. (1981). Structure and temperature of rare gas clusters in a supersonic expansion. *Surface Science* **106,** 95.

FARGES, J., DEFERAUDY, M. F., RAOULT, B. & TORCHET, G. (1983). Noncrystalline structure of argon clusters. I. Polyicosahedral structure of Ar(n) clusters 20 < N < 50. *J. Chem. Phys.* **78,** 5067.

FARGES, J., DEFERAUDY, M. F., RAOULT, B. & TORCHET, G. (1986). Noncrystalline structure of argon clusters. II. Multilayer icosahedral structure of Ar(n) clusters 50<N<750. *J. Chem. Phys.* **84,** 3991.

FARGES, J., RAOULT, B. & TORCHET, G. (1973). Crystalline and noncrystalline effects in electron diffraction patterns from small clusters in an argon cluster beam. *J. Chem. Phys.* **59,** 3454.

GANTEFÖR, G., BRÖKER, G., HOLUP - KRAPPE, E. & DING, A. (1989). Phoionization thresholds of rare gaz clusters. *J. Chem. Phys.* **91,** 7972-7977.

GRAY, D. E. (1963). *American institute of physics handbook*. AIP, New-york, London, Toronton.

HABERLAND, H. (1994). *Clusters of atoms, molecules I : theory, experiment, and clusters of atoms*. Springer-Verlag, Berlin New-York.

HAGENA, O. F. (1969). Condensation in supersonic free jets. *Rarefield Gas Dynamics***,** 1465.

HAGENA, O. F. (1974). Scaling laws for condensation in nozzle flows. *The Physics of Fluids* **17,** 894.

HAGENA, O. F. (1981). Nucleation and growth of clusters in expanding nozzle flows. *Surface Science* **106,** 101.

HAGENA, O. F. (1987). Condensation in free jets : comparison of rare gases and metals. *Zeit. Phys. D : Atoms, Molecules and Clusters* **4,** 291.

HAGENA, O. F. (1992). Cluster ion sources. *Rev. Sci. Ins.* **63,** 2374.

HAGENA, O. F. & OBERT, W. (1972). Cluster formation in expanding supersonic jets : effect of pressure, temperature, nozzle size, and test gas. *J. Chem. Phys.* **56,** 1793.

IKESHOJI, T., TORCHET, G., DE FERAUDY, M. F. & KOGA, K. (2001). Icosahedron - fcc transition size by molecular dynamics simulation of Lennard - Jones clusters at a finite temperature. *Phys. Rev. E* **63,** 031101.

JORTNER, J. (1992). Cluster size effects. *Zeit. Phys. D : Atoms, Molecules and Clusters* **24,** 247-275.

KLEIN, M. L. & AZIZ, R. A. (1984). *Inert gases : potentials, dynamics, and energy transfer in doped crystals*. Springer Verlag, Berlin New-York.

LAMOUR, E. (1997). Production et transport des états excités du projectile en interaction ion - solide, Thèse de l'Université de Caen - Basse Normandie.

LIU, B. C., ZHU, P. P., LI, Z. H., NI, G. Q. & XU, Z. Z. (2002). Size estimation and time evolution of large size rare gas clusters by rayleigh scattering techniques. *Chin. Phys. Lett.* **19,** 659.

MIEHLE, W., KANDLER, O., LEISNER, T. & ECHT, O. (1989). Mass spectrometric evidence for icosahedral structure in large rare gas clusters : Ar, Kr, Xe. *J. Chem. Phys.* **91,** 5940.

MONOT, P. (1993). Interaction laser - gaz en champ intense, Thèse de l'Université de Paris Sud (Paris XI).

MOUROU, G. A., BARTY, C. P. J. & PERRY, M. D. (1998). Ultrahigh - intensity lasers : physics of the extreme on a tabletop. *Physics Today* **January 98,** 22-28.

OBERT, W. (1978). Properties of cluster beams formed with supersonic nozzles. *Rarefield Gas Dynamics***,** 1181.

PERRY, M. D. & MOUROU, G. A. (1994). Terawatt to petawatt subpicosecond lasers. *Science* **264,** 917-923.

PLANCHON, T. (2003). Modélisation des processus liés à l'amplification et à la propagation d'impulsions étirés dans des chaînes laser de très haute intesnité, Ecole Polytechnique.

RÜHL, E. (2003). Core level excitation, ionization, relaxation, and fragmentation of free clusters. *International Journal of Mass Spectrometry* **229,** 117-142.

RÜHL, E., HEINZEL, C., HITCHCOCK, A. P., SCHMELZ, H., REYNAUD, C., BAUMGÄRTEL, H., DRUDE, W. & FRAHM, R. (1993). K - shell spectroscopy of Ar clusters. *J. Chem. Phys.* **98,** 6820-6826.

RULLIÈRE, C. (1998). *Femtosecond laser pulses (Principles and experiments)*. Springate, Paris.

SAENGER, K. L. & FENN, J. B. (1983). On the time required to reach fully developed flow in pulsed supersonic free jets. *J. Chem. Phys.* **79,** 6043-6045.

SALIN, F., GEORGES, P., ROGER, G. & BRUN, A. (1987). Sigle shot measurement of a 52 fs pulse. *Appl. Optics* **26,** 4528-4531.

SCHABER, H. & MARTIN, T. P. (1985). Properties of a cluster source. *Surface Science* **156,** 64.

SCHÜTTE, S. & BUCK, U. (1999). Cluster sputtering : complete fragmentation of large ammonia clusters by photons and electrons. *Appl. Phys. A* **69,** S209.

SCHÜTTE, S. & BUCK, U. (2002). Strong fragmentation of large rare gas clusters by high energy electron impact. *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Physics* **220,** 183.

SCOLES, G. (1988). *Atomic and molecular beam methods*. Oxford University Press, Oxford New-york.

SMITH, R. A., DITMIRE, T. & TISCH, L. W. G. (1998). Characterization of a cryogenically cooled high-pressure gas jet for laser / cluster interaction experiments. *Rev. Sci. Ins.* **69,** 3798.

TCHAPLYGUINE, M., FEIFEL, R., MARINHO, R. R., GISSELBRECHT, M., SORENSEN, S. L., NAVES DE BRITO, A., MÄRTENSSON, N., SVENSSON, S. & BJÖRNEHOLM, O. (2003). Selective probing of the electronic structure of free clusters using resonant core - level spectroscopy. *Chem. Phys.* **289,** 3-13.

TCHAPLYGUINE, M., MARINHO, R. R., GISSELBRECHT, M., SCHULZ, J., MÄRTENSSON, N., SORENSEN, S. L., NAVES DE BRITO, A., FEIFEL, R., ÖHRWALL, G., LUNDWALL, M., SVENSSON, S. & BJÖRNEHOLM, O. (2004). The size of neutral free clusters as manifested in the relative bulk to surface intensity in core level photoelectron spectroscopy. *J. Chem. Phys.* **120,** 345.

VAN DE WAAL, B. W. (1993). Icosahedral, decahedral, fcc, and defect - fcc structural models for (Ar)n clusters, N > 500 : how plausible are they ? *J. Chem. Phys.* **98,** 4909-4919.

VAN DE WAAL, B. W., TORCHET, G. & DE FERAUDAY, M. F. (2000). Structure of large argon clusters $(Ar)_n$, $10^3 < n < 10^5$: experiments and simulations. *Chem. Phys. Lett.* **331,** 57-63.

WEGENER, P. P. (1974). *Molecular beams and low density gasdynamics*. Dekker, New-York.

WÖRMER, J., GUZIELSKI, V., STAPELFELDT, J. & MÖLLER, T. (1989). Fluorescence excitation spectroscopy of xenon clusters in the VUV. *Chem. Phys. Lett.* **159,** 321.

WÖRMER, J., GUZIELSKI, V., STAPELFELDT, J., ZIMMERER, G. & MÖLLER, T. (1990). Optical properties of argon clusters in the VUV. *Physica Scripta* **41,** 490.

CHAPITRE III

BANERJEE, S., KUMAR, G. R., SAHA, A. K. & TRIBEDI, L. C. (1998). Absolute keV X-ray yields from intense, ultrashort laser driven solid plasma. *Optics Communications* **158,** 72-76.

CHAPITRE IV

AMMOSOV, M. V., DELONE, N. B. & KRAINOV, V. P. (1986). Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternative electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP* **64,** 1191.

BANERJEE, S., RAVINDRA-KUMAR, G. & MATHUR, D. (1999). Multiple ionization of N2 in intense, linearly and circularly polarized light fields. *Phys. Rev. A* **60,** R25-R28.

BANERJEE, S., RAVINDRA-KUMAR, G. & TRIBEDI, L. C. (2000). X-ray emission from aluminium under intesne, ultrashort irradiation. *Eur. Phys. J. D* **11,** 295-300.

BUDIL, K. S., SALIERES, P., L'HUILLIER, A., DITMIRE, T. & PERRY, M. D. (1993). Influence of ellipticity on harmonic generation. *Phys. Rev. A* **48,** R3437-R3440.

CAILLAUD, T. (2004). Etude expérimentale de l'interaction laser - agrégats : Absorption, Chauffage, Emission X - vers la réponse de l'agrégat unique, Thèse de l'Université de Bordeaux I.

CORKUM, P. B. (1993). Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.* **71,** 1994-1997.

GEINDRE, J. P. & GAUTHIER, J.-C. (1997). Rayonnement X ultra - bref de plasmas prosuits par laser. *Les Images de la Physique***,** 128.

KONDO, K., BORISOV, A. B., JORDAN, C., MCPHERSON, A., SCHROEDER, W. A., BOYER, K. & RHODES, C. K. (1997). Wavelength dependence of multiphoton-induced Xe(M) and Xe(L) emissions from Xe clusters. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **30,** 2707-2716.

KUMARAPPAN, V., KRISHNAMURTHY, M. & MATHUR, D. (2003). Asymmetric emission of high energy electrons in the two dimensional hydrodynamic expansion of large xenon clusters irradiated by intense laser fields. *Phys. Rev. A* **67,** 043204.

KUMARAPPAN, V., KRISHNAMURTHY, M., MATHUR, D. & TRIBEDI, L. C. (2001). Effect of laser polarization on x-ray emission from Ar_n ($n = 200 - 10^4$) clusters in intense laser fields. *Phys. Rev. A* **63,** 023203.

MONOT, P. (1993). Interaction laser - gaz en champ intense, Université de Paris Sud (Paris XI).

PARRA, E., ALEXEEV, I., FAN, J., KIM, K. Y., MCNAUGHT, S. J. & MILCHBERG, H. M. (2003). Hydrodynamic time scales for intense laser - heated clusters. *J. Opt. Soc. Am B* **20,** 118-124.

PERT, G. J. (1999). Electron distributions generated by tunnelling ionization during gas breakdoxn by high intenisty laser radiation. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **32,** 27-52.

POSTHUMUS, J. (2001). *Molecules and clusters in intense laser fields*, Cambridge.

ROZET, J.-P., CORNILLE, M., DOBOSZ, S., DUBAU, J., GAUTHIER, J.-C., JACQUEMOT, S., LAMOUR, E., LEZIUS, M., NORMAND, D., SCHMIDT, M. & VERNHET, D. (2001). State selective measurements of HCI produced by strong ultrashort laser-clusters interaction. *Physica Scripta* **T92,** 113-118.

SILIN, V. P. (1965). Non linear high frequency plasma conductivity. *Sov. Phys. JETP* **20,** 1510-1516.

ZWEIBACK, J. (1999). Resonance effects in laser cluster interactions, Lawrence Livermore National Laboratory.

ZWEIBACK, J., DITMIRE, T. & PERRY, M. D. (1999). Femtosecond time-resolved studies of the dynamics of noble-gas cluster explosions. *Phys. Rev. A* **59,** R3166-R3169.

CONCLUSION

BURGDÖRFER, J., WANG, J. & RITCHIE, R. H. (1991). Estimates for cluster-impact fusion yields using the Fermi acceleration map. *Physica Scripta* **44,** 391-394.

CAILLAUD, T. (2004). Etude expérimentale de l'interaction laser - agrégats : Absorption, Chauffage, Emission X - vers la réponse de l'agrégat unique.

DEISS, C., ROHRINGER, N. & BURGDÖRFER, J. (2006). Cluster - laser interaction : fast production of hot electrons by short laser pulses. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research B* **to be published**.

FERMI, E. (1949). On the origin of cosmic radiation. *Phys. Rev.* **75,** 1169-1174.

ISHIKAWA, K. & BLENSKI, T. (2000). Explosion dynamics of rare gas clusters in an intense laser field. *Phys. Rev. A* **62,** 063204.

ISSAC, R. C., VIEUX, G., ERSFELD, B., BRUNETTI, E., JAMISON, S. P., GALLACHER, J., CLARK, D. & JAROSZYNSKI, D. Z. (2004). Ultra hard x rays from krypton clusters heated by intense laser fields. *Physics of Plasmas* **11,** 3491-3496.

JUNGREUTHMAYER, C., GEISSLER, M., ZANGHELLI, J. & BRABEC, T. (2004). Microscopic analysis of large cluster explosion in intense laser fields. *Phys. Rev. A* **92,** 133401.

KONDO, K., BORISOV, A. B., JORDAN, C., MCPHERSON, A., SCHROEDER, W. A., BOYER, K. & RHODES, C. K. (1997). Wavelength dependence of multiphoton-induced Xe(M) and Xe(L) emissions from Xe clusters. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **30,** 2707-2716.

KRAINOV, V. P. & SMIRNOV, M. B. (2002). Cluster beams in the super intense femtosecond laser pulse. *Physics Reports* **370,** 237-331.

KUMARAPPAN, V., KRISHNAMURTHY, M. & MATHUR, D. (2002). Two-dimensional effects in the hydrodynamic expansion of xenon clusters under intense laser irradiation. *Phys. Rev. A* **66,** 033203.

LANZANO, G., DE FILIPPO, E., AIELLO, S., MAHDOUB, D., ANZALONE, A., CAVALLERO, S., GERACI, E., GIUSTOLISI, F., ROTHARD, H., VOLANT, C., ARENA, N., GERACI, M., PAGANO, A. & POLITI, G. (2001). Absolute cross sections for fast electron ejection by swift highly charged ions and evidence for Fermi shuttle acceleration. *Physica Scripta* **T92,** 68-70.

LARSSON, J. & SJÖRGEN, A. (1999). Evaluation of laser-irradiated Ar clusters as a source for time-resoled x-ray studies. *Rev. Sci. Ins.* **70,** 2253-2256.

ROSE-PETRUK, C., SCHAFER, K. J., WILSON, K. R. & BARTY, C. P. J. (1997). Ultrafast electron dynamics and inner-shell ionization in laser driven clusters. *Phys. Rev. A* **55,** 1182-1190.

SULIK, B., STOLTERFOHT, N., HELLHAMMER, R., PESIC, Z., KONSCZ, C., TOKESTI, K. & BERENYI, D. (2003). Fermi shuttle acceleration of electrons in ion - matter interaction. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research B* **212,** 32-44.

THOMPSON, B. D., MCPHERSON, A., BOYER, K. & RHODES, C. K. (1994). Multi-electron ejection of inner-shell electrons through multiphoton excitation of clusters. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.* **27,** 4391-4400.

ANNEXES

COWAN, R. D. (1981). *The theory of atomic structure and spectra*. University of California, Berkeley.

DESLATTES, R. D., KESSLET, E. G., INDELICATO, P., DE BILLY, L., LINDROTH, E. & ANTON, J. (2003). X-ray transition energies : new approch to a comprehensive evaluation. *Rev. Mod. Phys*. **75,** 000035.

FOURASTIE, J. & LASLIER, J. F. (1997). *Probabilités et statistiques*. Dunod, Paris.

Liste des figures

CHAPITRE I

Figure I-1 : Comparaison des spectres X_M de Kr dans la région 72 – 112 Å issus de l'irradiation d'agrégats de krypton par une impulsion laser (λ = 248 nm ; τ = 300 fs) ayant une intensité crête de l'ordre de 10^{17} W/cm^2 pour différentes conditions de formation des agrégats : a) T = 293 K et P ≅ 8 bars b) T = 238 K et P ≅ 9 bars [McPherson et al., 1994a]..... 9

Figure I-2 : a) Spectre d'X_L dans la région 4 – 6 keV issu de l'irradiation d'agrégats de xénon (λ = 248 nm ; τ = 300 fs ; I ~ 8×10^{18} W/cm^2) [McPherson et al., 1994b] b) Spectres X obtenus en envoyant des ions multichargés de Xe sur une surface de Cu [Clark et al., 1993]. 9

Figure I-3 : Spectre de masse à temps de vol d'ions multichargés Ar^{q+} résultant de l'explosion d'agrégats de $HIAr_m$ soumis à un éclairement de 10^{15} W/cm^2 (λ = 624 nm et τ = 350 fs) [Purnell et al., 1994]...... 10

Figure I-4 : Comparaison des spectres XUV obtenus dans a) une vapeur de C_{60} et b) une vapeur "ordinaire" de carbone. Deux impulsions ont été envoyées avec un délai de 2 µs sur les cibles de carbone : une impulsion longue (τ = 25 ns) d'éclairement maximum a) I ~ 4×10^7 W/cm^2 et b) I ~ 4×10^8 W/cm^2, et une impulsion courte (τ = 0,7 ps) d'éclairement I ~ 6×10^{15} W/cm^2 [Wülker et al., 1994]. 11

Figure I-5 : Représentation schématique de l'ionisation par suppression de la barrière coulombienne en présence d'un champ électrique statique E. 14

Figure I-6 : Principe schématique de l'ionisation multiphotonique. 16

Figure I-7 : a) Évolution de l'énergie maximale de dérive des électrons avec l'éclairement laser pour l'argon b) Évolution de l'énergie pondéromotrice avec l'éclairement laser pour une longueur d'onde de 800 nm.... 19

Figure I-8 : Comparaison des sections efficaces d'ionisation par impact électronique calculées à l'aide de l'approximation de Lotz (courbes en trait plein) et obtenues expérimentalement (points) pour les premiers états de charge de l'argon (les valeurs expérimentales sont extraites de [Zhang et al., 2002], [Müller et al., 1980] [Müller et al., 1985] et [Rachafi et al., 1991]). 21

Figure I-9 : Comparaison des sections efficaces d'ionisation par impact électronique calculées à l'aide de formule [I-B.13] de l'approximation de Lotz (courbes en trait plein) et obtenues expérimentalement (points) pour les premiers états de charge de l'argon (les valeurs expérimentales sont extraites de [Zhang et al., 2002], [Müller et al., 1980] [Müller et al., 1985] et [Rachafi et al., 1991])...... 22

Figure I-10 : Dépendance du taux d'ionisation collisionnelle, pour une densité électronique donnée, avec la température électronique du nanoplasma pour quelques états de charge de l'argon calculée à partir de la relation [I-C.6]. 26

Figure I-11 : Évolution de la vitesse, de l'énergie cinétique des électrons dans un champ laser ainsi que de la section efficace d'ionisation par impact électronique en fonction de la phase du champ laser...... 27

Figure I-12 : Pour des ions argon, comparaison entre les taux d'ionisation collisionnelle par les électrons accélérés dans le champ laser en utilisant la formule analytique [I-C.11] ou la formule intégrale [I-C.9]...... 28

Figure I-13 : Évolution du taux de chauffage par BI (fonction F(X, A)) et du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat (fonction G(X, A)) en fonction des paramètres réduits X et A. 32

Figure I-14 : a) Évolution du champ électrique à l'intérieur et à l'extérieur de l'agrégat en prenant uniquement les collisions électrons – ions (a-1) et en incluant en plus les collisions électrons – surface (a-2). b) Évolution de la fréquence électronique de collision dans ces deux mêmes cas. (agrégat de xénon, N = 5 000 atomes, I = 10^{16} W/cm^2, λ = 780 nm et τ = 100 fs [Megi et al., 2003]). 36

Figure I-15 : Évolution temporelle du rayon de l'agrégat obtenue par le code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface (agrégats de xénon, N = 10 000 atomes, I = 10^{16} W/cm^2, τ = 100 fs et λ = 800 nm). Le rayon initial de l'agrégat (R_0) est de 5,28 nm. 38

Figure I-16 : Évolution temporelle de la pression coulombienne (P_c) et de la pression hydrodynamique (P_h) obtenue par le code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface pour plusieurs tailles d'agrégat de xénon (I = 5×10^{16} W/cm^2, λ = 800 nm et τ = 100 fs). 39

Figure I-17 : Évolution temporelle de la densité électronique n_e (normalisée à la densité critique n_c) obtenue par le code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface (agrégat de xénon, N = 10 000 atomes, I = 10^{16} W/cm^2, λ = 800 nm et τ = 100 fs). 40

Figure I-18 : a) Évolution temporelle du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat (courbe en tirets) et à l'extérieur de l'agrégat (courbe en traits pleins). Les points A et B indiquent le moment des résonances. b) Évolution temporelle du rayon de l'agrégat et de l'épaisseur de peau (courbe en traits pleins : formule [I-C.39], courbe en tirets : formule [I-C.38]) (pour les conditions de simulation voir le texte). 41

Figure I-19 : Dynamique temporelle des taux d'ionisation par effet tunnel (courbe noire en traits pleins) et collisionnelle (courbe verte en tirets : contribution thermique, courbe rouge en pointillés : contribution du laser) pour différents états de charge. Ces simulations ont été obtenues par le code nanoplasma de Toulouse (agrégats d'argon, N = 5 000 atomes, I = 10^{16} W/cm^2, τ = 100 fs et λ = 800 nm). 43
Figure I-20 : Dynamique temporelle des populations ioniques obtenue par le code nanoplasma de Toulouse (agrégat d'argon, N = 5 000 atomes, I = 10^{16} W/cm^2, τ = 100 fs, λ = 800 nm). 44
Figure I-21 : Évolution de la température électronique moyenne du nanoplasma pour plusieurs tailles d'agrégat de xénon à trois éclairements (10^{15}, 10^{16} et 10^{17} W/cm^2) calculée par le code nanoplasma de Toulouse incluant les collisions électrons – surface (τ = 100 fs et λ = 800 nm). 46
Figure I-22 : Évolutions temporelles a) du rayon de l'agrégat, b) de l'état de charge moyen, c) de la température électronique, d) du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat et e) de la densité électronique en fonction de la taille. Ces simulations ont été obtenues à l'aide du code nanoplasma de Toulouse (agrégat d'argon, I = 10^{16} W/cm^2, τ = 100 fs, λ = 800 nm). 49
Figure I-23 : Évolutions temporelles a) du rayon de l'agrégat, b) de l'état de charge moyen, c), de la température électronique, d) du champ électrique à l'intérieur de l'agrégat et e) de la densité électronique en fonction de l'éclairement. Ces simulation ont été obtenues à l'aide du code nanoplasma de Toulouse (agrégat d'argon, N = 10 000 atomes, τ = 100 fs et λ = 800 nm). 50
Figure I-24 : Distribution en énergie des électrons obtenue lors de l'irradiation d'agrégats de xénon (N ~ 2500 at./agrégat) par une impulsion laser d'intensité crête de 10^{16} W/cm^2 suivant la direction de polarisation du laser [Shao et al., 1996]. 51
Figure I-25 : a) Signal Rayleigh diffusé en fonction de la pression amont de Xe b) Taux d'électrons énergétiques en fonction de la pression amont pour un éclairement de 10^{16} W/cm^2 [Shao et al., 1996]. 52
Figure I-26 : Spectres expérimentaux d'électrons issus d'agrégats de xénon : a) Expérience de Springate et al. [Springate et al., 2003] et b) Expérience de Mathur et al. [Kumarappan, Krishnamurthy & Mathur, 2003] (les différentes conditions expérimentales sont indiquées sur la figure). 53
Figure I-27 : Simulations des spectres en énergie des électrons obtenues à l'aide du code nanoplasma de Toulouse dans les mêmes conditions expérimentales que la Figure I-24. Il est présenté le cas (a) avec des collisions électrons – ions et électrons – surface et (b) avec des collisions électrons – ions uniquement. 54
Figure I-28 : Spectre d'électrons simulé par le code nanoplasma de Ditmire dans des conditions expérimentales identiques à la Figure I-24 [Shao et al., 1996]. 55
Figure I-29 : Spectres en énergie des électrons obtenus par le code nanoplasma de Toulouse pour des agrégats de xénon. Les conditions de simulations sont identiques à celles de la Figure I-24 sauf pour a) la taille est divisée par 2 (N = 1 250 atomes) et b) l'intensité est augmentée d'un ordre de grandeur (I = 10^{17} W/cm^2). 55
Figure I-30 : Simulations des spectres en énergie des électrons obtenues par le code nanoplasma de Toulouse pour des agrégats de xénon dans des conditions expérimentales identiques aux Figures I-26 : a) N = 2,4×10^6 atomes et I = 5×10^{16} W/cm^2 et b) N = 2,5×10^4 atomes et I = 8×10^{15} W/cm^2 (λ = 780 nm). 56
Figure I-31 : Distribution angulaire a) des électrons les moins énergétiques (entre 0,3 keV et 1 keV) et b) des électrons les plus énergétiques (entre 2 et 3 keV). L'émission suivant la direction de polarisation du laser est définie par les angles 0° et 180° [Shao et al., 1996]. 57
Figure I-32 : Distribution angulaire du pic photonique (cercle) et du pic correspondant aux électrons (carré) [Springate et al., 2003]. 57
Figure I-33 : Taux d'électrons en fonction du potentiel retardeur de l'analyseur en énergie pour des agrégats de xénon contenant 1,5×10^5 atomes. L'intensité laser est de 8×10^{15} W/cm^2. Les mesures sont faites pour une direction parallèle et perpendiculaire au vecteur polarisation du laser (pour la direction perpendiculaire, le taux est ici multiplié par 2) [Kumarappan et al., 2003]. 58
Figure I-34 : Représentation schématique de la polarisation d'une sphère diélectrique sous l'action d'un champ électrique extérieur lui – même modifié par cette polarisation. 58
Figure I-35 : Simulation de l'évolution temporelle de la pression coulombienne (courbe en traits pleins), de la pression hydrodynamique (courbe en pointillés) et de la pression de polarisation (courbe en tirets) lors de l'irradiation d'agrégats de xénon soumis à une impulsion laser de 100 fs pour a) différentes tailles d'agrégat et b) différents éclairements. Simulations réalisées à l'aide du code nanoplasma de Toulouse. 60
Figure I-36 : Évolution du taux d'électrons en fonction de la durée d'impulsion pour des agrégats de xénon a) expérience de Springate [Springate et al., 2003] et b) expérience de Mathur [Kumarappan et al., 2003]. 60
Figure I-37 : Énergie maximale des ions issus de l'irradiation d'agrégats de xénon par une impulsion laser femtoseconde (λ = 780 nm, τ = 230 fs, I ~ 3×10^{15} W/cm^2); les points indiquent les valeurs expérimentales

tandis que la courbe en trait plein correspond aux prévisions du modèle nanoplasma de Ditmire [Springate et al., 2000]..... 63
Figure I-38 : Évolution de l'énergie cinétique moyenne des ions résultant de l'interaction d'agrégats de xénon avec une impulsion laser ($I = 3\times10^{15}$ W/cm^2, $\tau = 230$ fs, $\lambda = 780$ nm) en fonction du nombre d'atomes par agrégat. Cette simulation est issue du code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface. Les conditions de simulation sont identiques à celles de la Figure I-37...... 64
Figure I-39 : Énergie maximale des ions issus de l'irradiation d'agrégats de xénon et de krypton avec une impulsion laser en fonction de l'éclairement laser ($\lambda = 780$ nm, $\tau = 230$ fs); les points représentent les valeurs mesurées tandis que les courbes correspondent aux prévisions du modèle nanoplasma [Springate et al., 2000]..... 65
Figure I-40 : Évolution a) de l'énergie cinétique moyenne et b) de l'état de charge moyen des ions résultant de l'interaction d'agrégats de xénon avec une impulsion laser femtoseconde en fonction de l'éclairement laser. Ces simulations sont issues du code nanoplasma incluant les collisions électrons – surface. Les conditions de simulation sont identiques à celles de la Figure I-39...... 66
Figure I-41 : Énergie moyenne des ions émis lors de l'interaction d'agrégats de xénon contenant 5 300 atomes avec une impulsion laser de 170 fs d'éclairement maximum de $1{,}3\times10^{16}$ W/cm^2 et une longueur d'onde de 780 nm en fonction de l'angle entre l'axe de détection et la polarisation linéaire du laser [Springate et al., 2000]..... 67
Figure I-42 : Spectre en énergie des ions issus de l'explosion d'agrégats d'argon (contenant de l'ordre de 40 000 atomes soumis à une impulsion de quelques 10^{15} W/cm^2) pour une direction parallèle et perpendiculaire à l'axe de polarisation du laser [Kumarappan et al., 2001]..... 67
Figure I-43 : Distribution en état de charge des ions ayant une énergie supérieure à 170 keV et éjectés lors de l'interaction d'agrégat d'argon contenant 12 800 atomes avec une impulsion laser femtoseconde ($I \sim 2\times10^{16}$ W/cm^2 ; $\tau = 130$ fs, $\lambda = 780$ nm) [Hirokane et al., 2004]...... 68
Figure I-44 : Spectre en énergie des ions émis par un agrégat d'argon contenant 10 000 atomes après l'irradiation avec une impulsion laser de 100 fs et d'intensité de 8×10^{15} W/cm^2 (en IR) en fonction de la polarisation [Jungreuthmayer et al., 2004]..... 69
Figure I-45 : Distributions en état de charge pour des agrégats de xénon contenant de l'ordre de 2 500 atomes et soumis à un éclairement laser IR de 2×10^{16} W/cm^2 [Tisch et al., 2003]...... 70
Figure I-46 : Spectre bi – dimensionnel montrant un spectre typique de MD – TOF obtenu lors de l'irradiation d'agrégats d'argon contenant 200 000 atomes à un éclairement IR de 5×10^{17} W/cm^2 [Lezius et al., 1998]...... 71
Figure I-47 : Distribution d'énergie cinétique des ions Xe^{q+} (avec q compris entre 1 et 30) issus de l'irradiation d'agrégats de xénon contenant 2×10^6 atomes par une impulsion laser d'éclairement crête de 4×10^{17} W/cm^2 [Dobosz, 1998]...... 71
Figure I-48 : Relation entre l'énergie moyenne et l'état de charge moyen obtenue pour différentes intensités laser de $0{,}35\times10^{15}$ W/cm^2 à 13×10^{15} W/cm^2. Les valeurs de l'énergie moyenne pour les agrégats de xénon sont multipliées par un facteur 1,5 pour plus de visibilité sur la figure [Ishikawa & Blenski, 2000]..... 73
Figure I-49 : Dépendance de l'énergie moyenne en fonction de l'état de charge pour a) des agrégats d'Ar_{55} et d'Ar_{147} et b) des agrégats de Xe_{55} et de Xe_{147} soumis à une impulsion laser d'éclairement de $1{,}3\times10^{16}$ W/cm^2 [Ishikawa & Blenski, 2000]...... 73
Figure I-50 : État de charge maximal et nombre total de collisions électrons – ions en fonction de l'intensité laser pour des agrégats de néon contenant 25 atomes [Rose-Petruk et al., 1997]...... 78
Figure I-51 : Probabilité totale d'ionisation par impact électronique en couche K et L lors d'un calcul pour un agrégat de néon de 25 atomes à différentes intensités laser [Rose-Petruk et al., 1997]...... 78
Figure I-52 : Champ électrique à l'intérieur de l'agrégat et énergie cinétique moyenne des ions lors de l'interaction d'un agrégat d'argon contenant 25 atomes avec une impulsion laser d'éclairement de 5×10^{15} W/cm^2 ($\tau = 15$ fs et $\lambda = 800$ nm) [Rose-Petruk et al., 1997]...... 79
Figure I-53 : Spectre X d'émission d'ions Kr^{q+} possédant des lacunes en couche L obtenu lors de l'irradiation d'agrégats de krypton ($P_0 = 8$ bars, $T_0 = 243$ K) par une impulsion laser femtoseconde ($\lambda = 248$ nm , $I \sim 8\times10^{18}$ W/cm^2) [McPherson et al., 1994a]...... 80
Figure I-54 : Évolution du taux d'X avec l'éclairement laser lors de l'irradiation d'agrégats de krypton ($P_0 = 19{,}5$ bars) par une impulsion laser femtoseconde ($\lambda = 790$ nm et $\tau = 130$ fs) [Dobosz, 1998]...... 82
Figure I-55 : Évolution du taux d'X avec la taille des agrégats (via la pression P_0) lors de l'irradiation d'agrégats de krypton par une impulsion laser femtoseconde ($I = 4\times10^{17}$ W/cm^2, $\lambda = 790$ nm et $\tau = 130$ fs) $P_c \sim 3$ bars [Dobosz et al., 1997]...... 82
Figure I-56 : Configurations expérimentales utilisées afin d'étudier la polarisation du rayonnement X émis...... 83
Figure I-57 : Évolution du rapport entre le nombre de photons détectés sur le détecteur 1 sur le nombre de photons détectés sur le détecteur 2 pour plusieurs tailles d'agrégats de krypton ($I = 2\times10^{17}$ W/cm^2, $\lambda = 800$ nm , $\tau = 130$ fs) [Dobosz, 1998]...... 84

Figure I-58 : Polarisations s et p pour a) une incidence normale et b) une incidence oblique du faisceau laser sur une surface. 84
Figure I-59 : Spectre d'X_L dans la région 4 – 6 keV issu de l'irradiation d'agrégats de xénon (λ = 248 nm ; τ = 300 fs ; $I \sim 8\times10^{18}$ W/cm^2) [McPherson et al., 1994b] 86
Figure I-60 : Spectre d'X_L dans la région 2,4 – 3,3 Å (soit 3,8 – 5,2 keV) obtenu lors de l'irradiation d'agrégats de xénon pour deux longueurs d'onde différentes λ = 248 nm et λ = 800 nm [Kondo et al., 1997]. 88
Figure I-61 : Spectre d'X_L dans la région 2,4 – 3,3 Å (soit 3,8 – 5,2 keV) pour λ = 248 nm et pour deux intensités différentes : $I_A \sim 8\times10^{18}$ W/cm^2 et $I_B \sim 4\times10^{18}$ W/cm^2 [Borisov et al., 1996]. 91
Figure I-62 : Spectres X issus de l'irradiation d'agrégats d'argon (P_0 = 18 bars, $I = 5\times10^{17}$ W/cm^2, τ = 130 fs , λ = 790 nm). La figure de gauche présente le spectre X enregistré par un détecteur Si(Li) tandis que la figure de droite présente un zoom du pic à 3,1 keV enregistré par un spectromètre cristallin (cf. Chapitre II) [Dobosz, 1998]. 93
Figure I-63 : Évolution du taux d'X (figure du haut) et de l'énergie moyenne des X émis (figure du bas) en fonction de l'éclairement (via l'énergie par impulsion) lors de l'irradiation d'agrégats d'argon (P_0 = 25 bars, τ = 70 fs, λ = 790 nm) [Dobosz, 1998]. 94
Figure I-64 : Évolution du taux d'X (figure du haut) et de l'énergie moyenne des X émis (figure du bas) en fonction de la taille des agrégats (via la pression en amont de la buse de condensation) lors de l'irradiation d'agrégats d'argon ($I = 10^{18}$ W/cm^2, τ = 70 fs, λ = 790 nm). P_{min} = 9 bars. 95
Figure I-65 : Spectres d'émission X de haute résolution obtenus en irradiant des agrégats d'argon contenant $1{,}6\times10^6$ atomes avec une impulsion laser d'éclairement crête de 2×10^{17} W/cm^2, τ = 130 fs et λ = 790 nm, pour une polarisation linéaire horizontale (a) et verticale (b). 95
Figure I-66 : Modélisation donnant le meilleur ajustement entre l'expérience et le code COLRAD ($n_e = 10^{21}$ cm^{-3} et T_e = 750 eV). L'encart donne les populations relatives des ions ayant initialement une lacune en couche K. 99
Figure I-67 : COLRAD avec T_e = 950 eV et $n_e = 10^{21}$ cm^{-3}. 100
Figure I-68 : COLRAD avec T_e = 750 eV et $n_e = 10^{22}$ cm^{-3}. 100
Figure I-69 : Comparaison du spectre X haute résolution expérimental avec COLRAD avec les processus collisionnels (courbe en traits pleins) et sans collision (courbe en pointillés) - l'encart donne la distribution initiale en état de charge). 101
Figure I-70 : Simulations CLUSTER pour une intensité laser de 5×10^{17} W/cm^2 et une température électronique de a) 1 500 eV et b) 750 eV. 102
Figure I-71 : Populations ioniques relative ; comparaison entre les résultats de COLRAD et ceux de HULLAC. 102

CHAPITRE II

Figure II-1 : Schéma général du dispositif expérimental. 108
Figure II-2 : Schéma de fonctionnement du serveur LUCA. 111
Figure II-3 : Schéma de principe de l'étireur (a) et du compresseur (b) à réseaux. 112
Figure II-4 : Schéma de principe de l'autocorrélateur à échantillonnage en temps réel. 115
Figure II-5 : Principe de l'autocorrélation intensimétrique. 116
Figure II-6 : Trace d'autocorrélation obtenue sur le laser LUCA (voie femto 2). 117
Figure II-7 : Illustration du décalage entre le front d'onde et le front d'énergie d'une impulsion par le retard à la propagation dans une lentille convergente. 118
Figure II-8 : Visualisation de la différence entre durée locale et durée globale. 119
Figure II-9 : Répartition spatiale en énergie du faisceau LUCA avant la lentille de focalisation. 120
Figure II-10 : Exemple de simulation des profils temporels avant et après la lentille de focalisation. 120
Figures II-11 : Estimation de la durée d'impulsion après la lentille (a) ainsi que de la correction (en %) qui en résulte (b) en fonction de la durée d'impulsion initiale pour une longueur d'onde de 800 nm. 121
Figures II-12 : Estimation de la durée d'impulsion après la lentille (a) ainsi que de la correction (en %) qui en résulte (b) en fonction de la durée d'impulsion initiale pour une longueur d'onde de 400 nm. 121
Figure II-13 : Estimation de la correction relative sur la durée d'impulsion après le hublot en fonction de la durée d'impulsion initiale pour une longueur d'onde a) de 800 nm et b) de 400 nm. 122
Figure II-14 : Schéma de principe de la mesure de la tâche focale. 123
Figure II-15 : Exemple d'une image de la tâche focale obtenue à l'aide du programme LABVIEW. 124
Figure II-16 : Principe de la méthode permettant de déterminer le facteur correctif κ sur l'énergie mesurée. Les cercles blancs représentent a) $r = 10\sigma$ et b) $r = 1\sigma$. 126
Figure II-17 : Facteur correctif κ pour les différentes images à deux énergies mesurées (45 mJ et 5 mJ). 126

Figure II-18 : Schéma de principe du corrélateur d'ordre 3 de grande dynamique du DRECAM. 127
Figure II-19 : Trace de corrélation obtenue sur la voie femto 2 du LUCA par séquoia début 2002. 128
Figure II-20 : Trace de corrélation obtenue sur la voie femto 2 du LUCA par le cross corrélateur du DRECAM début 2002. 129
Figure II-21 : Trace de corrélation obtenue sur la voie femto 2 du LUCA par le cross – corrélateur du LOA. 129
Figure II-22 : Simulations du profil temporel de l'impulsion UV après la traversée du cristal de KPD pour des épaisseurs de 2 mm et de 3 mm (données obtenues par le code SNLO avec E_{IR} = 50 mJ). 131
Figure II-23 : Simulations du profil temporel de l'impulsion UV après la traversée du cristal de KPD pour des épaisseurs de 2 mm et de 3 mm (données obtenues par le code SNLO avec E_{IR} = 5 mJ). 132
Figure II-24 : Évolution de la durée d'impulsion UV en fonction de l'énergie contenue dans l'impulsion UV pour le cristal de 3 mm (données obtenues par le code SNLO pour τ_{IR} = 55 fs). 132
Figure II-25 : Schéma de principe du polariseur de Glan. 133
Figure II-26 : Évolution du signal transmis par le polariseur de Glan pour les deux polarisations (linéaire / circulaire) en fonction de son angle d'orientation θ. 134
Figure II-27 : Potentiel de Lennard – Jones utilisé pour modéliser l'interaction de deux atomes de gaz rare. 137
Figure II-28 : Arrangements cristallins observés pour les agrégats de gaz rare. Les structures de symétrie d'ordre 5 (icosaédrique et décaédrique) dominent pour les petits agrégats contenant moins de 800 atomes tandis que l'arrangement cubique face centrée (cuboctaédrique) domine pour les agrégats plus gros. 138
Figure II-29 : a) Comparaison des spectres d'ions obtenus à proximité du seuil K (1s) de l'argon pour un atome, un agrégat de 400 atomes et un solide en fonction de l'énergie du photon incident [Rühl et al., 1993] b) Spectres XPS d'agrégats d'argon obtenus pour trois tailles différentes et pour une énergie de photon de 310 eV [Tchaplyguine et al., 2004]. 140
Figure II-30 : Représentation schématique du dispositif expérimental produisant un jet d'agrégats. 141
Figure II-31 : Représentation schématique de la buse de type conique utilisée sur notre dispositif expérimental de production d'agrégats. 142
Figure II-32 : Diagramme d'état (log P, log T). La courbe de pression de vapeur saturante (P_V) sépare la phase gazeuse d'une phase condensée (solide ou liquide). 143
Figure II-33 : Évolution du nombre de Mach en fonction de la distance réduite à la buse (z/d) pour un gaz rare et un jet de symétrie axiale (courbe réalisée d'après les données issues de [Scoles, 1988] et [Haberland, 1994]). 145
Figure II-34 : Évolution des variables d'état (T, P et ρ) en fonction de la distance réduite à la buse (z/d) dans le cas d'un régime supersonique (courbes réalisées en utilisant la Figure II-33 pour l'évolution du nombre de Mach avec la distance réduite). 145
Figure II-35 : Évolution du paramètre réduit d'Hagena en fonction de la pression amont dans nos conditions expérimentales pour les trois espèces atomiques utilisées (argon, krypton et xénon) et pour les deux diamètres d'entrée de la buse de production d'agrégats a) d = 300 µm et b) d = 1000 µm. 150
Figure II-36. Représentation graphique de l'estimation de la taille des agrégats d'après les différentes lois prédictives. 151
Figure II-37 : Profil de densité atomique moyenne de la buse conique de Bordeaux pour une pression de 40 bars et à une distance de 1,5 mm sous la sortie de la buse. La courbe en traits pleins est issue du code hydrodynamique de Boldarev (calcul 2D) et la ligne en pointillés représente l'estimation par la formule d'Hagena [Dorchies et al., 2003]. 153
Figure II-38 : Courbe en trait plein : profil de densité atomique moyenne calculé à l'aide du code hydrodynamique de Boldarev pour une pression de 20 bars d'argon et à 13 mm de la sortie de la buse pour notre buse conique de production d'agrégats ; courbe en traits pointillés : prédictions d'Hagena. 154
Figure II-39 : Spectres de masse obtenus pour des agrégats de xénon et de krypton dopés au sodium et photoionisés par un laser excimer. Les tailles moyennes indiquées sont déterminées à l'aide d'une distribution log – normale [Schütte & Buck, 2002]. 156
Figure II-40 : Récapitulatif des différentes lois prédictives estimant la taille moyenne des agrégats (Hagena 92, Buck 96 et Wörmer 90) et mesures de Buck 2002 et de Bordeaux en fonction du paramètre réduit d'Hagena. 157
Figure II-41 : Représentation schématique de l'implantation des différents détecteurs sur le dispositif expérimental. 161
Figure II-42 : Efficacité du détecteur Si(Li) (1) en fonction de l'énergie du rayonnement X incident détecté. .. 164
Figure II-43 : Efficacité du détecteur Si(Li) (2) en fonction de l'énergie du rayonnement X incident détecté. .. 164
Figure II-44 : Schéma d'un détecteur cylindrique en face d'une source ponctuelle définissant l'angle solide. .. 165

Figure II-45 : Droites d'étalonnage pour le détecteur Si(Li) (2) à deux gains différents (×500 et ×50). 167
Figure II-46 : Efficacité des détecteurs à localisation pour un mélange de $Xe(CH)_4$. 171
Figure II-47 : Schéma de principe du cristal plan en mode réflexion. 173
Figure II-48 : Schéma de principe du cristal mosaïque. 173
Figure II-49 : Ajustement de la réflectivité intégrée du cristal mosaïque (courbe) sur les mesures expérimentales (points). 174
Figure II-50 : Réponse du détecteur en efficacité en fonction du déplacement de la raie K_α du K à 3,3 keV sur le détecteur à localisation. 176
Figure II-51 : Droites d'étalonnage en énergie à 3,3 keV (K_α du K) et 6,4 keV (K_α du Fe). 177
Figure II-52 : Angles limites observés par un spectromètre à cristal plan dans le cas où la plage en énergie est limitée par le cristal. 178
Figure II-53 : Courbe de réflectivité du cristal mosaïque à 3,3 keV. 179
Figure II-54 : Angles limites observés par un spectromètre à cristal plan dans le cas où la plage en énergie est limitée par le détecteur. 179
Figure II-55 : Schéma complet de l'électronique associée aux trois détecteurs. 183
Figure II-56 : Schéma de principe de l'optimisation du recouvrement spatial entre l'impulsion laser et le jet d'agrégats pulsé. 185
Figure II-57 : Schéma de principe de la distribution en taille d'agrégats dans le pulse d'agrégat en fonction du délai vanne – laser. 186
Figure II-58 : Évolution de la production d'ions multichargés et du taux d'X en fonction du délai vanne – laser pour des agrégats de krypton (thèse de S. Dobosz). 187
Figure II-59 : Évolution du taux d'X en fonction du délai entre l'ouverture de la vanne à action rapide et l'arrivée de l'impulsion laser pour des agrégats de xénon. 187
Figure II-60 : Évolution du taux d'X en fonction du délai entre l'ouverture de la vanne à action rapide et l'arrivée de l'impulsion laser pour des agrégats de xénon et avec un piston usé. 188
Figure II-61 : Étude XY du jet pour des agrégats d'argon (E = 50 mJ, IR, τ = 50 fs). Conditions de faible densité atomique moyenne (buse loin de la zone d'interaction) et avec écorceur. 189
Figure II-62 : Étude XY du jet pour des agrégats de xénon ($E_{mesurée}$ = 20 mJ, IR, τ = 55 fs). Conditions de grande densité atomique moyenne (buse proche de la zone d'interaction) et sans écorceur. 189
Figure II-63 : Étude en y de la lentille pour deux pressions différentes d'argon en amont de la buse de condensation (P_1 = 38,5 bars et P_2 = 18,5 bars) - (E = 20 mJ, IR, τ = 55 fs). Conditions de grande densité atomique moyenne (buse proche de la zone d'interaction) et sans écorceur. 190

CHAPITRE III

Figure III-1 : Spectres X bruts des détecteurs Si(Li) pour les agrégats d'argon, de krypton et de xénon. 194
Figure III-2 : Illustration du phénomène d'empilement sur les détecteurs Si(Li) ; passage du régime monophotonique au régime multiphotonique en augmentant le flux de photons X arrivant sur les détecteurs (agrégats d'argon). 196
Figure III-3 : Informations apportées par les deux détecteurs Si(Li). 198
Figure III-4 : Spectre "multiphotonique" sur le détecteur Si(Li) (1) – Agrégats d'argon (P_0 = 40 bars, E = 25 mJ, τ = 60 fs, λ = 800 nm, $N_{tirs\ laser}$ = 20 000). 199
Figure III-5 : Spectre "multiphotonique" sur le détecteur Si(Li) (1) – Agrégats d'argon (P_0 = 57 bars, E = 72 mJ, τ = 60 fs, λ = 800 nm, $N_{tirs\ laser}$ = 55 500). 200
Figure III-6 : Comparaison du nombre de coups dans chacun des pics multiphotoniques obtenu expérimentalement (histogramme) et théoriquement (loi de Poisson – points) pour le spectre de la Figure III-5 201
Figure III-7 : Spectre expérimental multiphotonique obtenu avec des agrégats d'argon et correspondant à la détection, en moyenne, de 18 photons et fit gaussien avec une valeur moyenne de 18. 202
Figure III-8 : Spectre monophotonique obtenu avec des agrégats d'argon : la partie notée A sur cette figure correspond à un fond de Bremsstrahlung (partie hachurée) et le pic indiqué par B correspond aux X_K émis par les ions multichargés. 203
Figure III-9 : Spectre monophonique expérimental utilisé pour la modélisation du pic 1 photon. 204
Figure III-10 : Spectre multiphotonique expérimental de la Figure III-7 et simulation de l'empilement à l'aide du spectre monophotonique présenté sur la Figure III-9. 204
Figure III-11 : Spectre expérimental obtenu par Tribedi et al. à l'aide d'un détecteur Si(Li) et comparaison avec les différentes lois statistiques [Banerjee et al., 1998]. 205

Figure III-12 : Probabilités associées à la détection des photons X en utilisant une loi de probabilité de type Poisson ou de type Bose – Einstein pour un nombre moyen de photons X détectés de 1 (figure de gauche) et de 10 (figure de droite). 206
Figure III-13 : Spectres expérimentaux obtenus avec le détecteur Si(Li) (2) en augmentant l'énergie par impulsion (P_0 = 40 bars ; τ = 55 fs ; λ = 800 nm). 207
Figure III-14 : Méthode d'extraction de la proportion de signal physique sur le détecteur Si(Li) (2) : a) ensemble du pic 1 photon contribuant à l'empilement et simulation du fond – b) pic à 3,1 keV simulé par une gaussienne après soustraction du fond (P_0 = 40 bars ; τ = 55 fs ; λ = 800 nm et E = 15 mJ). 208
Figure III-15 : Évolution de la proportion de 3,1 keV en fonction de l'énergie par impulsion lors de l'irradiation d'agrégats d'argon par le laser femtoseconde (τ = 55 fs, λ = 800 nm, P_0 = 40 bars). 209
Figure III-16 : Spectre "monophotonique" obtenu avec un détecteur Si(Li) lors de l'irradiation d'agrégats d'argon sans aucun filtre devant le détecteur (P_0 = 13 bars, E = 6 mJ, τ = 50 fs, λ = 800 nm). 210
Figure III-17 : Spectre monophotonique obtenu avec un détecteur Si(Li) lors de l'irradiation d'agrégats d'argon avec du mylar aluminisé devant le détecteur (P_0 = 13 bars, E = 5 mJ, τ = 50 fs, λ = 800 nm). 210
Figure III-18 : Spectre "brut" monophotonique sur le détecteur Si(Li) (1) avec un filtre d'inox de 23,20 µm – agrégats de xénon (P_0 = 10,7 bars – E = 5 mJ – λ = 400 nm). 211
Figure III-19 : Transmission (en %) théorique et convoluée de la réponse du détecteur (gaussienne) pour le filtre d'inox de 23,20 µm. 211
Figure III-20 : Spectre monophotonique sur le détecteur Si(Li) (1) corrigé de la transmission du filtre d'inox de 23,20 µm (2 feuilles de 11,60 µm). Agrégats de xénon (P_0 = 10,7 bars – E = 5 mJ – λ = 400 nm). 212
Figure III-21 : Spectre multiphotonique du détecteur Si(Li) (2) obtenu dans les mêmes conditions que la Figure III-18 – agrégats de xénon (P_0 = 10,7 bars – E = 5 mJ – λ = 400 nm). 212
Figure III-22 : Incertitude relative sur le taux moyen de photons X détectés $f\left(\overline{Bar_{Nhv}}\right)$ en fonction du barycentre de l'empilement sur le détecteur Si(Li) (2). 216
Figure III-23 : Incertitude relative sur le taux moyen de photons X détectés $f\left(\overline{Bar_{Nhv}}\right)$ en fonction du barycentre de l'empilement sur le détecteur Si(Li) (1). 216
Figure III-24 : Exemple de spectre brut haute résolution obtenu lors de l'irradiation d'agrégats d'argon : transitions 1s2pnl $\rightarrow$ 1s^{2}nl de l'Ar^{12+} à l'Ar^{16+} ($N_{tirs\ laser}$ = 20 000). 217
Figure III-25 : Exemple de spectre brut haute résolution obtenu lors de l'irradiation d'agrégats de xénon. Les trois poses nécessaires pour constituer l'ensemble du spectre sont indiquées et correspondent à trois angles de Bragg différents (cf. Chapitre II) - ($N_{tirs\ laser}$ ~ 3×12 000). 218
Figure III-26 : Spectres de LOC et de LOCT (i.e. avec fenêtre temporelle) issus de l'irradiation d'agrégats d'argon. 219
Figure III-27 : Spectre d'anode correspondant au spectre de LOC présenté sur la Figure III-26. 219
Figure III-28 : Spectres de LOCT et LOCF (i.e. avec, en plus de la fenêtre temporelle, une fenêtre énergétique) pour un spectre X issus d'agrégats d'argon (le spectre d'anode correspondant est celui de la Figure III-27). 220
Figure III-29 : Zoom de la courbe de réflectivité pour a) les poses argon et b) les poses xénon. 221
Figure III-30 : Zoom de la courbe d'efficacité du détecteur à localisation pour a) les poses argon et b) les poses xénon. 222
Figure III-31 : Zoom de la transmission du filtre d'inox de 11,60 µm placé devant le spectromètre cristallin pour les poses argon : la courbe en traits pleins correspond à la transmission pour une épaisseur de 11,60 µm d'inox et les courbes en traits pointillés correspondent aux transmissions à 11,60 ± 0,44 µm. 222
Figure III-32 : Zoom de la transmission du filtre d'inox de 15,95 µm placé devant le spectromètre cristallin pour les poses xénon : la courbe en traits pleins correspond à la transmission pour une épaisseur de 15,95 µm d'inox et les courbes en traits pointillés correspondent aux transmissions à 15,95 ± 0,63 µm. 223
Figure III-33 : Spectre "brut" et spectre "corrigé" issus de l'irradiation d'agrégats d'argon. 225
Figure III-34 : Spectre "brut" et spectre "corrigé" issus de l'irradiation d'agrégats de xénon (ces deux spectres sont normalisés à la même intégrale totale pour plus de visibilité). 226
Figure III-35 : Spectre X en absolu issu de l'irradiation d'agrégats d'argon. 227
Figure III-36 : Spectre X en absolu issu de l'irradiation d'agrégats de xénon. 227
Figure III-37 : Comparaison des taux absolus de photons X calculés à l'aide des trois détecteurs (Si(Li) (1) + Si(Li) (2) + spectromètre cristallin) – Agrégats d'argon, P_0 = 40 bars, τ = 55 fs et λ = 800 nm. 230

CHAPITRE IV

Figure IV-1 : Scénario du modèle dynamique d'ionisation en couche interne appliquée à l'argon. 236
Figure IV-2 : Répartition de l'éclairement laser à proximité du point focal ($z = 0$ et $\rho = 0$). 239
Figure IV-3 : Distribution en énergie des électrons calculée en utilisant le modèle d'ionisation par effet tunnel pour un ion hydrogénoïde avec un potentiel d'ionisation de 12,1 eV. La courbe en traits pleins est obtenue pour une polarisation linéaire ($I = 10^{14}$ W/cm^2) et la courbe entraits pointillés est obtenue pour une polarisation circulaire ($I = 2\times10^{14}$ W/cm^2) pour $\lambda = 10$ µm et $\tau = 2,5$ ps [Corkum, 1993] 246
Figure IV-4 : Taux absolu (en nombre de photons X dans 4π et par tir laser) des différents états de charge pour les expériences réalisées en polarisation linéaire et circulaire dans le cas des agrégats d'argon. 249
Figure IV-5 : Énergie moyenne des spectres haute résolution dont la distribution en état de charge est présentée sur la Figure IV-4. 250
Figure IV-6 : Évolution du taux absolu de photons X de 3,1 keV avec l'éclairement laser (via l'énergie par impulsion) pour des agrégats d'argon (les conditions expérimentales sont présentées dans le Tableau IV-7). 255
Figure IV-7 : Énergie moyenne des transitions $1s2pnl \rightarrow 1s^2$ pour les ions argon ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ et pour un éclairement laser supérieur à quelques 10^{16} W/cm^2 (les conditions expérimentales sont présentées dans le Tableau IV-7). 255
Figure IV-8 : Énergie moyenne des transitions $1s2pnl \rightarrow 1s^2$ pour les ions argon ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ pour un éclairement laser supérieur à 10^{15} W/cm^2. 256
Figure IV-9 : Spectres haute résolution (transitions $1s2pnl \rightarrow 1s^2nl$) pour des ions ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ pour deux éclairements laser (les autres conditions expérimentales sont identiques à celles de la Figure IV-8). 257
Figure IV-10 : Évolution du taux absolu de photons X de 4,4 keV avec l'éclairement laser (via l'énergie par impulsion) pour des agrégats de xénon (les conditions expérimentales sont présentées dans le Tableau IV-9). 258
Figure IV-11 : Évolution transverse et longitudinale du volume focal effectif pour plusieurs éclairements laser. 259
Figure IV-12 : Volume focal effectif dans nos conditions expérimentales ($z_R = 0,95$ mm et $w_0 = 15,55$ µm) pour deux éclairements laser. 260
Figure IV-13 : Représentation schématique du volume focal effectif limité sur une longueur ℓ. 260
Figure IV-14 : Évolution du volume focal effectif avec la largeur du faisceau laser au foyer (w_0) pour un éclairement seuil de 2×10^{15} W/cm^2 et $2.\tau_{eff.} = 50$ fs. Ces courbes ont été tracées pour plusieurs énergies par impulsion entre 10 mJ et 100 mJ. 262
Figure IV-15 : Évolution du focal effectif en fonction de la largeur du faisceau laser au foyer (w_0) pour un éclairement seuil de 2×10^{15} W/cm^2 et de 10^{16} W/cm^2 ($E = 50$ mJ et $2.\tau_{eff.} = 50$ fs). 262
Figure IV-16 : Évolution de la probabilité d'ionisation avec l'éclairement laser en fonction du paramètre α (voir texte). 265
Figure IV-17 : Évolution du taux d'X suivant différentes lois d'évolution de la probabilité d'ionisation avec l'éclairement laser (voir texte) en comparaison avec les mesures expérimentales déjà présentées pour les agrégats d'argon (Figure IV-6). 267
Figure IV-18 : Évolution de la température électronique au cours de l'interaction d'agrégats d'argon ($N = 2,8\times10^5$ atomes) avec une impulsion laser d'éclairement compris entre 2×10^{15} W/cm^2 et 10^{17} W/cm^2 ($\lambda = 800$ nm et $\Delta t = 60$ fs) 269
Figure IV-19 : Évolution du taux absolu de photons X_K de l'argon en fonction de la pression en amont de la buse condensation (pour les conditions expérimentales voir le Tableau IV-11). 271
Figure IV-20 : Évolution du taux absolu de photons X_L du xénon en fonction de la pression en amont de la buse condensation (pour les conditions expérimentales voir le Tableau IV-11). 271
Figure IV-21 : Évolution du taux d'X (en unité arbitraire) en fonction de la pression en amont de la buse de condensation pour les agrégats de krypton; pour un écorceur de 1,0 mm $P_{min} = 3$ bars et $P_c = 12$ bars ; pour un écorceur de 0,5 mm $P_{min} = 6$ bars et $P_c = 14$ bars. 272
Figure IV-22 : Évolution de la probabilité d'émission X en fonction de la taille des agrégats d'argon (conditions expérimentales identiques à la Figure IV-19). 275
Figure IV-23 : Évolution de la probabilité d'émission X (en unité arbitraire) en fonction de la taille (en unité arbitraire) des agrégats de xénon (conditions expérimentales identiques à la Figure IV-20). 276
Figure IV-24 : Évolution de la température électronique calculée par le code nanoplasma de Toulouse incluant les collisions électrons – surface pour plusieurs tailles d'agrégats d'argon ($I = 3,4\times10^{16}$ W/cm^2, durée d'impulsion de 70 fs). 276

Figure IV-25 : Spectre haute résolution du rayonnement X issu d'agrégats d'argon soumis à une impulsion laser d'éclairement laser de l'ordre de 10^{17} W/cm² (E = 63 mJ et 2.$\tau_{eff.}$ = 65 fs) pour différentes pressions en amont de la buse de condensation entre 20 bars et 53 bars. 279
Figure IV-26 : Spectre haute résolution du rayonnement X issu d'agrégats de xénon soumis à une impulsion laser IR de 60 – 70 fs et un éclairement crête de l'ordre de (5-6)×10^{16} W/cm² (E = 30 -35 mJ) pour différentes pressions (3,1 bars – 6,6 bars et 10,7 bars). 280
Figure IV-27 : Évolution de l'énergie moyenne des transitions 1s2pnl → $1s^2$nl lors de l'exploration en fonction de la taille des agrégats (conditions expérimentales identique à la Figure IV-19 et la Figure IV-22). 281
Figure IV-28 : Courbe en éclairement pour des agrégats d'argon à deux pressions différentes (λ = 800 nm et pour les conditions expérimentales voir le Tableau IV-7 pour P_0 = 40 bars et le Tableau IV-15 pour P_0 = 16 bars). 282
Figure IV-29 : Évolution du taux absolu d'X_K de l'argon avec la durée d'impulsion pour plusieurs tailles d'agrégat d'argon (E = 20 mJ et λ = 800 nm). 287
Figure IV-30 : Évolution de l'énergie moyenne des poses 1s2p de l'argon en fonction de la durée d'impulsion (P_0 = 30 bars, λ = 800 nm). 288
Figure IV-31 : Taux absolu de la pose 1s3p en fonction de la durée d'impulsion (E = 20 mJ, P_0 = 30 bars et λ = 800 nm). 289
Figure IV-32 : Rapport du taux absolu 1s3p / 1s2p pour l'Ar^{16+} (E = 20 mJ, P_0 = 30 bars et λ = 800 nm). ... 289
Figure IV-33 : Spectres X haute résolution (poses 1s2p et 1s3p) obtenus lors de l'irradiation d'agrégats d'argon en fonction de la durée d'impulsion (P_0 = 30 bars, E = 20 mJ et λ = 800 nm). 290
Figure IV-34 : Illustration de l'existence d'une durée d'impulsion optimale lors de l'interaction laser – agrégats dans le cadre du modèle nanoplasma. 292
Figure IV-35 : Évolution de la température électronique à l'intérieur de l'agrégat en fonction de la durée d'impulsion pour plusieurs tailles d'agrégat d'argon dans nos conditions expérimentales (voir texte). ... 293
Figure IV-36 : Évolution du taux absolu de photons X avec la durée d'impulsion pour un éclairement laser constant de 8×10^{15} W/cm² (P_0 = 30 bars, λ = 800 nm). 294
Figure IV-37 : Évolution de l'énergie moyenne des poses 1s2p lors des études en fonction de la durée d'impulsion à éclairement constant (P_0 = 30 bars, λ = 800 nm I ~ 8×10^{15} W/cm²). 295
Figure IV-38 : Évolution de la température électrique en fonction de la durée d'impulsion dans nos conditions expérimentales (I = 8×10^{15} W/cm², N = 1,1×10^6 atomes et λ = 800 nm) 296
Figure IV-39 : Évolution du taux absolu d'X_L du xénon avec la durée d'impulsion pour plusieurs tailles d'agrégat de xénon (E = 35 mJ et λ = 800 nm). 298
Figure IV-40 : Spectre X obtenu à l'aide du spectromètre cristallin lors de l'irradiation d'agrégats de xénon pour une pression de 3,5 bars en fonction de la durée d'impulsion, l'énergie par impulsion est constante (E = 35 mJ et λ = 800 nm). 299
Figure IV-41 : Courbes en éclairement pour des agrégats d'argon en fonction de la durée d'impulsion (P_0 = 13 bars et λ = 800 nm). 301
Figure IV-42 : Courbes en éclairement pour des agrégats de xénon en fonction de la durée d'impulsion (P_0 = 9 bars soit N = 1,7×10^5 atomes et λ = 800 nm). 302
Figure IV-43 : Courbe en éclairement pour une durée d'impulsion effective de 2 360 fs – Agrégats de xénon – P_0 = 3,3 bars soit N = 2,8×10^4 atomes et λ = 800 nm. 303
Figure IV-44 : Évolution de l'éclairement seuil pour la production de rayonnement X avec la durée d'impulsion pour les agrégats d'argon et de xénon. 304
Figure IV-45 : Évolution du volume focal effectif pour une énergie constante de 20 mJ en tenant compte de l'évolution de l'éclairement seuil avec la durée d'impulsion. 305
Figure IV-46 : Évolution du volume focal effectif pour un éclairement laser constant de 8×10^{15} W/cm² en tenant compte de l'évolution de l'éclairement seuil avec la durée d'impulsion 305
Figure IV-47 : Spectres haute résolution obtenus lors de l'irradiation d'agrégat d'argon en UV et en IR pour plusieurs pressions en amont de la buse de condensation (les conditions expérimentales sont données dans le Tableau IV-22 pour les tailles d'agrégats et le Tableau IV-23 pour les impulsions laser). 309
Figure IV-48 : Énergies moyennes des transitions 1s2pnl → $1s^2$nl pour les ions ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ des spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-47. 310
Figure IV-49 : Rapport du taux absolu de photons X IR / UV pour les spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-47. 310
Figure IV-50 : Spectres haute résolution obtenus lors de l'irradiation d'agrégat de xénon en UV et en IR pour une pression en amont de la buse de condensation de 10,7 bars (les conditions expérimentales sont données dans le Tableau IV-25). 312

Figure IV-51 : Courbe en éclairement pour des agrégats d'argon à deux longueurs d'onde différentes (λ = 800 nm et λ = 400 nm) pour les conditions expérimentales voir le Tableau IV-26 pour l'UV et le Tableau IV-27 pour l'IR. 314
Figure IV-52 : Énergie moyenne des transitions 1s2pnl $\rightarrow$ 1s^2 pour les ions argon ayant un état de charge compris entre 12+ et 16+ et pour un éclairement laser de l'ordre de 10^{16} W/cm^2 en UV (les conditions expérimentales sont présentées dans le Tableau IV-26). 316
Figure IV-53 : Évolution de la température électronique pour les agrégats d'argon en UV et en IR et pour deux tailles d'agrégat ; l'éclairement laser est de 10^{15} W/cm^2 et la durée d'impulsion est de 180 fs. 318

CONCLUSION & PERSPECTIVES

Figure 1 : Représentation schématique de la production d'Ar^{8+} par le champ électrique régnant à l'intérieur de l'agrégat. 325
Figure 2 : Energie potentielle d'un électron en fonction de sa distance au centre de l'agrégat en présence d'un champ laser et obtenue pour un décalage de 15 u.a. entre deux sphères chargées ($\pm 8\times10^5$ u.a.). 326
Figure 3 : Sections efficaces différentielles de diffusion élastique électrons – Ar^{2+} [Deiss et al., 2006]. 327
Figure 4 : Distribution énergétique des électrons 15 cycles optiques après la première ionisation ; à gauche : prédictions sans diffusions élastiques, à droite : avec diffusions élastiques. 328
Figure 5 : Comparaison expérience – simulation Monte-Carlo incluant les diffusions élastiques électron – ions pour la variation du taux d'émission X en fonction de l'éclairement laser, en IR et pour des agrégats d'argon de $2,8\times10^5$ atomes. 328
Figure 6 : Évolution de la température électronique en fonction de la durée d'impulsion pour λ = 400 nm, N = $1,7\times10^5$ atomes et une énergie constante de 20 mJ – Agrégats d'argon. 329

Liste des tableaux

CHAPITRE I

Tableau I-1 : Estimation des éclairements BSI ainsi que de la valeur du paramètre de Keldysh γ à cet éclairement laser pour une longueur d'onde de 800 nm et de 400 nm (les valeurs du potentiel d'ionisation sont issues de [Cowan, 1981] – cf. Annexe B). 15
Tableau I-2 : Valeurs du potentiel d'ionisation effectif et de la constante de Lotz modifiée reproduisant au mieux les résultats expérimentaux concernant la section efficace de simple ionisation pour l'argon [Müller et al., 1980]. 22
Tableau I-3 : Conditions expérimentales des spectres de la Figure I-60. 87

CHAPITRE II

Tableau II-1 : Largeur à mi – hauteur de la tâche focale selon les axes X et Y. 124
Tableau II-2 : Diamètre à mi – hauteur de la tâche focale à 800 nm. 124
Tableau II-3 : Caractéristiques nominales de la lentille, du hublot et du faisceau laser. 135
Tableau II-4 : Tableaux récapitulatif pour λ = 800 nm. 135
Tableau II-5 : Tableaux récapitulatif pour λ = 400 nm. 135
Tableau II-6 : Caractéristiques du potentiel de Lennard – Jones utilisé pour modéliser l'interaction entre deux atomes de gaz rare (données d'après [Gray, 1963] [Klein & Aziz, 1984]). 137
Tableau II-7 : Constantes liées à la structure cristalline de type cubique face centrée dans le cas des agrégats de gaz rare. Le paramètre de maille a est définie comme étant l'arête du cube élémentaire de la maille cristalline, la distance entre deux plus proche voisins, dans le cas d'un réseau cfc, est egale a/2 et le nombre d'atomes par maille est de 4 [Gray, 1963] 138
Tableau II-8 : Tableau récapitulatif des énergies de liaison concernant les niveaux 1s, $2p_{1/2}$ et $2p_{3/2}$ de l'argon (a : [Cowan, 1981], b : [Tchaplyguine et al., 2004], c : [Björneholm et al., 1996] et d : [Rühl et al., 1993]). 140
Tableau II-9 : Caractéristiques de la buse conique utilisée pour la production d'agrégats. 142
Tableau II-10 : Valeurs caractéristiques intervenant dans le paramètre d'échelle d'Hagena [Hagena, 1987]; les valeurs entre parenthèses sont calculées à partir des valeurs thermodynamiques tabulées. 149
Tableau II-11 : Valeurs numériques de la constante K_{ch} pour l'expression [II-C.15] (les valeurs entre parenthèses sont calculées à partir des valeurs thermodynamiques tabulées, les autres sont issues de [Wörmer et al., 1989]). 149
Tableau II-12 : Estimations de la densité atomique moyenne sur notre dispositif expérimental. 153
Tableaux II-13 : Estimations des différents paramètres concernant les agrégats d'argon, de krypton et de xénon pour toutes les campagnes d'expériences (2001 – 2002 et 2003). 160
Tableau II-14 : Efficacité des détecteurs Si(Li) pour chacune des transitions X observées lors de l'interaction des agrégats avec le laser femtoseconde. 163
Tableau II-15 : Angles solides des détecteurs Si(Li) lors des différentes campagnes d'expériences. 165
Tableau II-16 : Diamètres des diaphragmes utilisés devant les détecteurs Si(Li). 166
Tableau II-17: Résolution des détecteurs Si(Li). 166
Tableau II-18: Épaisseur des absorbants utilisés devant les détecteurs. 168
Tableau II-19 : Transmission théorique (en %) des différents filtres utilisés devant les détecteurs Si(Li). 169
Tableau II-20 : Transmission totale des détecteurs Si(Li) (1) et (2) pour les X émis par les agrégats d'argon et de xénon lors de la campagne d'expériences 2001. 169
Tableau II-21 : Énergies moyennes des différentes poses et angles de Bragg correspondant. 172
Tableau II-22 : Transmission nominale pour les différentes poses du spectromètre cristallin. 175
Tableau II-23 : Valeurs de θ_{min} et de θ_{max} pour les différentes poses. 178
Tableau II-24 : Valeurs de la dispersion et de la plage en énergie pour chacune des poses. 180
Tableau II-25 : Récapitulatif des données pour le spectromètre cristallin. 181
Tableau II-26 : Récapitulatif des caractéristiques intrinsèques pour les différentes poses utilisées du spectromètre cristallin (cristal et détecteur). 182
Tableau II-27 : Valeurs des résolutions pour les différentes poses. 182

CHAPITRE III

Tableau III-1 : Énergie moyenne et type de transitions observées lors de l'irradiation d'agrégats de gaz rare. 194
Tableau III-2 : Comparatif des nombres moyens de photons X détectés sur le détecteur Si(Li) (1) obtenus par les deux méthodes expliquées dans le texte et correspondants au spectre de la Figure III-4. 199
Tableau III-3 : Nombre moyen de photons X détectés sur le détecteur Si(Li) (1) par la méthode B correspondant au spectre de la Figure III-5. 200
Tableau III-4 : Incertitudes relatives sur la transmission théorique des absorbants. 213
Tableau III-5 : Exemple de calcul du coefficient de multiplicité β sur l'anode (Figure III-27) du spectre LOCF de la Figure III-28. 224
Tableau III-6 : Comparaison de l'énergie moyenne de la pose 1s2p obtenue lors de l'irradiation d'agrégats d'argon avec le spectre "brut" et le spectre "corrigé" de la Figure III-33. 224
Tableau III-7 : Comparaison de l'énergie moyenne du spectre "brut" et du spectre "corrigé" de la Figure III-34 obtenus lors de l'irradiation d'agrégats de xénon. 225
Tableau III-8 : Exemple d'incertitudes sur l'énergie moyenne des spectres X issus des agrégats d'argon (Figure III-35) et de xénon (Figure III-36). 228

CHAPITRE IV

Tableau IV-1 : Valeurs des éclairements laser pour la production d'ions argon multichargés par abaissement de la barrière coulombienne. 242
Tableau IV-2 : Valeurs des éclairements laser seuil pour la production d'ions argon multichargés par des collisions électrons – ions. 242
Tableau IV-3 : Conditions expérimentales pour l'exemple de la dynamique d'ionisation en couche interne présenté sur la Figure IV-1. 244
Tableau IV-4 : Comparaison des taux absolu de photons X calculés dans le cadre du modèle dynamique d'ionisation en couche interne et obtenus expérimentalement pour les agrégats d'argon, de krypton et de xénon (conditions expérimentales dans le Tableau IV-3). 244
Tableau IV-5 : Conditions expérimentales pour les expériences dédiées à l'étude de l'influence de la polarisation sur l'émission X (λ = 800 nm et Δt = 60 fs). 247
Tableau IV-6 : Comparaison des vitesses quadratiques moyennes pour une polarisation linéaire et une polarisation circulaire en fonction de la densité atomique moyenne. 251
Tableau IV-7 : Conditions expérimentales de la courbe en éclairement de la Figure IV-6 obtenue avec des agrégats d'argon. 254
Tableau IV-8 : Valeurs expérimentales de l'éclairement seuil et de l'énergie laser mesurée correspondante pour P_0 = 40 bars d'argon ($N = 2{,}8\times10^5$ atomes) – λ = 800 nm. 255
Tableau IV-9 : Conditions expérimentales de la courbe en éclairement de la Figure IV-10 obtenue avec des agrégats de xénon. 258
Tableau IV-10 : Valeurs expérimentales de l'éclairement seuil et de l'énergie laser mesurée correspondante pour P_0 = 8,6 bars de xénon ($N = 1{,}6\times10^5$ atomes) – λ = 800 nm. 259
Tableau IV-11 : Conditions expérimentales pour les explorations en fonction de la pression présentées sur la Figure IV-19 pour les agrégats d'argon et sur la Figure IV-20 pour les agrégats de xénon. 272
Tableau IV-12 : Tableau récapitulatif des meilleurs coefficients d'ajustement pour l'évolution du taux d'X avec la pression en amont de la buse de condensation (agrégats d'argon et de xénon). 272
Tableau IV-13 : Taille des agrégats d'argon correspondant aux spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-25. 277
Tableau IV-14 : Taille des agrégats de xénon correspondant aux spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-26. 277
Tableau IV-15 : Conditions expérimentales de la courbe en éclairement de la Figure IV-28 obtenue avec des agrégats d'argon. 283
Tableau IV-16 : Valeurs expérimentales de l'éclairement seuil et de l'énergie mesurée correspondante pour P_0 = 16 bars et P_0 = 40 bars d'argon – λ = 800 nm. 283
Tableau IV-17 : Tailles des agrégats d'argon pour l'étude de l'émission X en fonction de la durée d'impulsion (taille estimée d'après la formule [II-C.21]). 285
Tableau IV-18 : Taille des agrégats de xénon pour l'étude de l'émission X en fonction de la durée d'impulsion. 296

Tableau IV-19 : Valeurs expérimentales de l'éclairement seuil et de l'énergie seuil en fonction de la durée d'impulsion pour les agrégats d'argon de la Figure IV-41. 301
Tableau IV-20 : Valeurs expérimentales de l'éclairement et de l'énergie seuil en fonction de la durée d'impulsion pour les agrégats de xénon (P_0 = 9 bars soit $N = 1{,}7\times10^5$ atomes et λ = 800 nm). 302
Tableau IV-21 : Valeur expérimentale de l'éclairement et de l'énergie seuil pour P_0 = 3,3 bars de xénon ($N = 2{,}8\times10^4$ atomes) – λ = 800 nm. 303
Tableau IV-22 : Taille des agrégats d'argon pour les spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-47. 308
Tableau IV-23 : Conditions expérimentales en IR et en UV pour les spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-47. 308
Tableau IV-24 : Coefficients correctifs pour le calcul du rapport du taux absolu entre l'IR et l'UV. 311
Tableau IV-25 : Conditions expérimentales en IR et en UV pour les spectres haute résolution présentés sur la Figure IV-50. 312
Tableau IV-26 : Conditions expérimentales de la courbe en éclairement de la Figure IV-51 obtenues avec des agrégats d'argon pour une longueur d'onde 400 nm. 314
Tableau IV-27 : Conditions expérimentales de la courbe en éclairement de la Figure IV-51 obtenues avec des agrégats d'argon pour une longueur d'onde de 800 nm. 315
Tableau IV-28 : Valeurs expérimentales de l'éclairement seuil et de l'énergie mesurée correspondante pour λ = 800 nm et λ = 400 nm d'argon – P_0 = 40 bars (Courbes de la Figure IV-51). 315