



Post compression d'impulsions intenses ultra-brèves et mise en forme spatiale pour la génération d'impulsions attosecondes intenses

Antoine Dubrouil

► To cite this version:

Antoine Dubrouil. Post compression d'impulsions intenses ultra-brèves et mise en forme spatiale pour la génération d'impulsions attosecondes intenses. Physique des Hautes Energies - Expérience [hep-ex]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2011. Français. NNT : . tel-00669335

HAL Id: tel-00669335

<https://theses.hal.science/tel-00669335>

Submitted on 13 Feb 2012

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.

Post compression d'impulsions intenses ultra-brèves et mise en forme spatiale pour la génération d'impulsions attosecondes intenses

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 28 octobre 2011

pour l'obtention du

Doctorat de l'université de Bordeaux

spécialité Laser, Matière et Nanoscience

par

Antoine Dubrouil

Composition du jury

<i>Président :</i>	M. Philippe Tamarat	Professeur des universités, Université Bordeaux 1
<i>Rapporteurs :</i>	M. Fabien Quéré M. Stéphane Sebban	Chercheur, CEA Saclay Chargé de recherche, CNRS
<i>Examineurs :</i>	Mme Anne L'Huillier M. Pascal Salières Mme Sophie Kazamias	Professeur des universités, Université de Lund Chercheur, CEA Saclay Maître de conférence, Université Paris Sud
<i>Directeur de thèse :</i>	M. Éric Constant	Directeur de recherche, CNRS

Mis en page avec la classe thloria.

Remerciements

Me voila enfin à écrire cette page de remerciements ! C'est que le manuscrit touche à sa fin... Tant de choses à dire et si peu : Merci ! Merci tout le monde !!

Bon d'accord, je vais essayer d'être un peu plus précis. Après tout c'est la règle lorsqu'on écrit un manuscrit de thèse : Précision, Précision, Précision,... n'est ce pas Eric ?

Le problème c'est que je ne sais pas par qui commencer. Bon ! Ne soyez pas jaloux, je commence par mes collègues de boulot, parce qu'ils sont juste à côté de moi, et parce que je crois que ce sont les seuls à pouvoir comprendre ce qu'est la rédaction d'une thèse. Merci à vous tous pour ces merveilleuses soirées de manip ! Comme en colonie de vacances, sauf que nous l'été on fait de la physique !! Trop cool ! Merci aux guys d'aurore 1 pour leur sympathie et leur sollicitude. Merci à Charles de nous montrer qu'il y a toujours un expérimentateur plus malheureux que nous... Allez courage ça va marcher ce VMI ! Merci à Hartmut de parler français comme une vache espagnole... c'est vraiment trop drôle ! Surtout quand tu réponds au téléphone ! En même temps c'est normal, il n'y a que des espagnols dans ta colloc ! Et merci pour les soirées chez toi toujours très animées... Merci à Ondrej pour son humour, hum...comment dire...Tchèque ! Pour sa bonne humeur (sauf quand il travaille trop longtemps avec Eric), et de nous faire croire chaque jour qu'on est en colonie de vacances... Merci à Amélie de nous supporter, et de nous emmener manger au CNRS. Je sais c'est pas facile d'être la seule fille... mais bon c'est quand même mieux que d'être dans le groupe golf... Merci à Yann pour ses explications avisées sur la physique attoseconde, et pour la manip sur le RABBITT. Merci à Baptiste pour toutes ses supers astuces informatiques, et pour avoir lu quelques chapitres de ma thèse. Au fait, ça y est les gars je suis un linux addict ! Merci à Fabrice pour son humour décapant, pour les discussions sur la théorie, et les discussions plus ésotériques ! Et merci à Julien d'avoir partagé le bureau avec moi pendant deux ans, et merci de m'avoir initié au merveilleux logiciel qu'est LaTeX (même si c'est parfois un peu chiant ! mais quand même, c'est mieux que Word !). Merci à Laurent pour les superbes pièces qu'il m'a faites, pour les manips et pour les motos ! Merci à Dominique pour le travail sur la post compression en première année, pour toutes ses supers explications sur la physique du laser, et pour avoir toujours été très amical.

Je remercie bien sur mon directeur de thèse Eric Constant, et mon co-directeur de thèse Eric Mével. Merci d'avoir fait de moi un bon scientifique... enfin j'espère ! Ca n'a pas toujours été facile... mais bon une thèse c'est pas fait pour se reposer sur ses lauriers... Merci au directeur du laboratoire, Philippe Balcou de m'avoir accueilli au CELIA. Merci à tous les gens sympa du labo, et il y en a plein...

Voilà ! maintenant c'est au tour de la famille et des amis ! Je remercie mes parents de m'avoir permis de faire des études... Je remercie mon frère pour sa fidélité et son soutien, surtout lors de la saison 2009 de la Michelin Power Cup ! Merci à tout le SAM Racing Team ! Merci à tous ceux qui nous ont supportés. Merci Stéphane d'avoir été là quand tout allait mal et pour notre amitié qui dure maintenant depuis... oh, je ne compte plus... 15 ans... Merci Audrey pour ton amitié, et pour toutes les supers discussions sur le monde et les femmes... et merci pour les photos du SAM Racing Team ! Merci à Sébastien d'avoir toujours été un ami fidèle. Merci à Louise de m'avoir fait vivre une expérience inoubli-

able ! No comment ! Merci à Maria d'avoir relu la totalité de la thèse en un temps record (avec les annexes en plus !) pour qu'il n'y est plus une seule faute d'orthographe dans la toute dernière version. Merci à tous mes amis pour votre amitié et pour tous ces moments d'exception. Merci Pascal, merci Julien, merci Xav, on est vraiment content que tu sois toujours parmi nous, merci Zan, merci Ben.

Et merci à la vie d'être aussi belle, et pour m'avoir donné tant de bonheur et tant d'amis, pour le travail que je fais, et pour toutes les aventures qu'il me reste encore à vivre...

"Tout le mal scientifique ou toutes les causes d'erreurs dans la méthode ne viennent pas de l'emploi des observations empiriques ou scientifiques de tel ou tel procédé, mais de leur usage intempestif. Tout est bon en sa place ; c'est donc à mettre chaque chose en son lieu et place que consiste le grand art et la science elle-même."

Claude Bernard, Principe de médecine expérimentale, 1878, p. 3.

Table des matières

Introduction	1
Chapitre 1 Motivations et contexte expérimental	7
1.1 Introduction sur la génération d’harmoniques d’ordre élevé	7
1.2 État de l’art	11
1.2.1 La génération d’harmoniques à haute énergie	11
1.2.2 La génération d’impulsions attosecondes isolées	12
1.3 Caractéristiques du système laser utilisé	13
Chapitre 2 Éléments de théorie sur la génération d’harmoniques dans les gaz	17
2.1 Description semi-classique : le modèle à trois étapes	17
2.1.1 Ionisation tunnel	18
2.1.2 Accélération dans le champ laser	20
2.1.3 Recombinaison radiative	21
2.1.4 Les deux types de trajectoires du modèle semi-classique	22
2.2 Modélisation quantique de la génération d’harmoniques d’ordre élevé	23
2.2.1 Description du modèle de Lewenstein	24
2.2.2 Équations du point selle	25
2.2.3 Comparaison avec le modèle semi-classique	26
2.3 Réponse macroscopique et paramètres d’optimisation	27
2.3.1 Génération dans un milieu dilué	28
2.3.2 Effet de la dispersion du milieu	30
2.3.3 Influence de l’absorption	31
Chapitre 3 Développement et caractérisation d’une source harmonique haute énergie	33

3.1	Conception de la source harmonique	34
3.2	Diagnostics pour la caractérisation des harmoniques	36
3.2.1	Spectromètre à réseau	37
3.2.2	Spectromètre de masse à temps de vol	39
3.2.3	Photodiode XUV	44
3.2.4	Comparaison entre le TOF et la photodiode	46
3.3	Présentation d'ensemble de l'architecture du système	47
3.4	Optimisation et caractérisation de la source harmonique	50
3.4.1	Influence des différents paramètres d'optimisation	50
3.4.2	Récapitulatif des caractéristiques de la source XUV	68
3.5	Conclusions et perspectives	68

Chapitre 4 Mise en forme spatiale de faisceaux laser femtosecondes pour la génération d'harmoniques 71

4.1	Interêts d'un faisceau <i>flat top</i> pour la génération d'harmonique	72
4.2	Mise en forme du faisceau infrarouge	73
4.2.1	Le principe : interférences à deux faisceaux	73
4.2.2	Solution technique pour les impulsions intenses	75
4.2.3	Théorie et simulations	76
4.2.4	Profils expérimentaux de faisceaux femtosecondes	94
4.3	Génération d'harmoniques avec le faisceau mis en forme	106
4.3.1	Campagne de juillet 2010 :	107
4.3.2	Campagne d'Octobre 2010	117
4.4	Conclusion sur la mise en forme spatiale	124

Chapitre 5 Post compression d'impulsions femtosecondes intenses par ionisation d'un gaz rare 127

5.1	Notre approche : l'élargissement spectral par ionisation et propagation guidée	128
5.1.1	Couplage d'impulsions intenses dans des fibres creuses	128
5.1.2	Théorie de l'élargissement spectral par ionisation	132
5.2	Étude expérimentale phase 1 : recompression à l'air	135
5.2.1	Dispositif expérimental	135
5.2.2	Influence de la pression et de l'intensité	137
5.2.3	Les impulsions obtenues	145
5.2.4	Synthèse phase 1	151

5.3	Étude expérimentale phase 2 : recompression de toute l'énergie	152
5.3.1	Dispositif expérimental	152
5.3.2	Résultats obtenus	155
5.4	Génération d'harmoniques avec les impulsions post comprimées	157
5.4.1	Spectres harmoniques obtenus	157
5.4.2	Analyse par transformée de Fourier	168
5.5	Conclusion sur la post compression par ionisation	172
Chapitre 6 Caractérisation temporelle des impulsions attosecondes		177
6.1	Dispositif expérimental : Interferomètre IR-XUV	177
6.2	Méthode RABBITT	179
6.2.1	Principe	179
6.2.2	Mesures expérimentales	183
6.3	Application : caractérisation d'optiques XUV	187
6.4	Conclusion	192
Conclusion		195
Bibliographie		201
Annexe A Caractérisation d'impulsions laser ultra-brèves		211
A.1	Éléments de théorie sur les impulsions laser ultra-brèves	211
A.2	Dispositifs de caractérisation d'impulsions laser ultra-brèves	214
A.2.1	Autocorrelateur mono-coup	214
A.2.2	Frequency-Resolved Optical Gating : FROG	216
Annexe B Calcul du nombre de photons		219
B.1	Estimation nombre d'ions	219
B.2	Calcul du nombre de photons	220
B.3	Cross-calibration avec la photodiode XUV	223
Annexe C Formulaire du chapitre 2		225
C.1	modèle semi-classique	225
C.2	Modélisation quantique de la génération d'harmoniques d'ordre élevé . . .	227
C.3	Réponse macroscopique du milieu	229
Annexe D Formulaire du chapitre 3		233

Annexe E Formulaire du chapitre 4	235
Annexe F Formulaire du chapitre 5	237
F.1 Couplage d'impulsions intenses dans des capillaires creux	237
F.2 Élargissement spectrale	239
Annexe G Liste de publications	241

Introduction

Il y a 400 000 ans, à l'aube de l'humanité, la maîtrise du feu apparût. Elle différencie les Hominidés des autres espèces, apportant chaleur et lumière aux sociétés primitives. Elle permit par la suite l'apparition de la métallurgie, et tient toujours une place omniprésente dans la technologie moderne. Si les façons de le produire ont bien changé (combustion contrôlée des moteurs thermiques ou fission des atomes pour produire l'électricité), c'est bien cette même idée de "feu" primordial qui reste sous-jacente derrière ces technologies.

Le feu fut la première source de rayonnements infrarouges et visibles d'origine humaine. Mais l'Homme a de nos jours su passer l'étape du feu pour produire directement des rayonnements électromagnétiques, et ceci dans toutes les gammes de longueur d'onde. Et récemment, ces sources électromagnétiques ont pu se voir attribuer des propriétés de directivités et de cohérences associées à une grande pureté spectrale et de fortes intensités. Ces propriétés ont pu apparaître grâce à l'exploitation de l'amplification par émission stimulée. En effet, en 1953 à Colombia University, un groupe de physiciens (C. H. Townes, J. P. Gordon, and H. J. Zeiger) construisit et démontra le fonctionnement du premier maser ("microwave amplification by stimulated emission of radiations"). Puis en 1960, la première émission laser est obtenue par le physicien américain Theodore Maiman. Le laser fut donc précédé de sept années par son homologue de plus longue longueur d'onde qui remporta alors tous les honneurs. Comme en témoigne la célèbre tournure "A solution waiting for a problem", le potentiel du laser fut à l'époque mal compris et sous-estimé. En effet, force est de constater que 50 ans plus tard, les lasers sont omniprésents dans la vie quotidienne. Ils ont révolutionné le monde moderne dans tous les domaines : sciences, technologie, médecine... Des laboratoires de recherches (physique, astrophysique, chimie, biologie,...) jusqu'aux réseaux de télécommunication, en passant par l'industrie, les cliniques médicales ou même les supermarchés, les lasers sont partout, dans chaque chaîne de production, chaque foyer... Si le terme maser est méconnu du public, l'élégant acronyme associé à "light amplification by stimulated emission of radiations" est devenu un mot à part entière ; un mot synonyme de haute technologie ; un mot associé à la qualité et à la précision ; un mot futuriste, qui déchaîne les passions des amateurs de science fiction.

Pourquoi tant d'engouement autour des lasers ? Pourquoi le laser est la solution à de si nombreux problèmes ?

Si l'on se place du point de vue du physicien, la lumière est la "matière" la plus subtile connue. En effet, la dualité onde corpuscule, permet de décrire la lumière comme des particules de masse nulle, les photons. Cette dualité est en elle même fascinante, et intrigante ! La vitesse de la lumière dans le vide est une constante universelle et une barrière infranchissable pour toutes les particules. Si à chaque application correspond une explication physique, lorsqu'on se place d'un point de vue plus philosophique, de nombreuses questions restent sans réponse. La fascination pour la lumière remonte à la nuit des temps. Depuis toujours les hommes ont vénéré le soleil et la lune. Dans de nombreuses cultures, le lever du jour et la tombée de la nuit sont des moments sacrés, et la lumière du soleil rythme nos saisons. Chaque religion fait référence à la lumière divine... La lumière est le principal vecteur de la perception du monde. C'est par elle que nous contemplons la nature, l'art, la beauté sous toutes ses formes. Nous pouvons seulement intuitivement qu'un contrôle accru de cette quintessence de la matière ouvre des possibilités incommensurables sur le monde matériel.

Par contrôle accru, on entend toutes les caractéristiques des lasers modernes, mais je voudrai m'attarder en particulier sur les durées d'impulsions auxquelles les lasers pulsés donnent accès. Sachant que le terme femtoseconde signifie que la durée de ces impulsions au regard d'une seconde est aussi courte qu'une seconde par rapport à l'âge de l'univers ; on en revient encore une fois à la fascination ! Les lasers femtosecondes sont de nos jours des systèmes couramment utilisés dans les laboratoires de recherches de tous les domaines (physique, chimie, biologie, géologie, médicale, etc...). Il en existe même des versions commerciales, *table-top*, et certains chercheurs, de domaines divers et variés, les utilisent sans même avoir de connaissances en physique des lasers.

Pour se focaliser maintenant sur l'importance des lasers pour la recherche en physique fondamentale, et en particulier la génération d'harmoniques d'ordre élevé, je vais aborder le thème passionnant de la résolution temporelle. La physique se doit d'étudier la matière et ses propriétés fondamentales. Et cette étude doit forcément passer par l'observation et la compréhension de la matière en mouvement. Les échelles de temps de ces dynamiques s'étendent de l'infiniment grand à l'infiniment petit. L'étude des corps célestes, c'est-à-dire de l'infiniment grand, nécessite de long temps d'observation alors que l'étude des atomes ou des molécules, va nécessiter des temps d'observation d'une rapidité qui dépasse l'entendement. La compréhension de la physique dans ce domaine a donc été limitée par la capacité des détecteurs, et en particulier du tout premier détecteur utilisé par le physicien, l'œil humain. En effet, l'œil humain est capable de voir vingt images par seconde c'est-

à-dire que la résolution temporelle de notre œil est de l'ordre de 50 ms. Si l'astronomie a fait d'immenses découvertes dès l'antiquité, c'est seulement à la fin du dix-neuvième siècle, qu'on a su répondre à la grande question : "Le cheval a-t-il les quatre fers en l'air lorsqu'il galope?" En effet, les sabots du cheval au galop parcourent 60 cm en 50 ms. C'est-à-dire qu'à l'œil nu, nous ne sommes pas capable de distinguer le mouvements de ses sabots. Il a donc fallu, pour répondre à cette question, développer des diagnostics. Edward Muybridge a mis au point des appareils photos ultra-rapides (pour l'époque) basés sur des obturateurs mécaniques. Pour que la photo soit nette, il faut que les sabots soient presque immobiles pendant la durée de l'exposition, typiquement de l'ordre de la milliseconde. Ainsi l'obturateur mécanique a donné accès à des résolutions temporelles millisecondes ; les flashes de lumières à la microseconde ; l'électronique à la nanoseconde ou même picoseconde ; et les lasers impulsionnels à la femtoseconde ou même l'attoseconde via la génération d'harmoniques. Ce sont typiquement les échelles de temps du mouvement des atomes dans les molécules (femto) ou des électrons autour des atomes (atto). Les impulsions attosecondes par génération d'harmoniques d'ordre élevé constituent donc un outil précieux pour étudier les dynamiques ultra rapides des systèmes atomiques et moléculaires ; elles donnent accès aux meilleures résolutions temporelles connues à ce jour. Une autre caractéristique qui contribue à faire des lasers un outil formidable : il s'agit du meilleur vecteur d'énergie connu. En effet, les faisceaux lasers peuvent transporter des énergies considérables comme en témoignent des installations telles que le laser mégajoule capable de recréer les conditions de température et de pression à l'intérieur du soleil. Néanmoins, si les impulsions attosecondes détiennent le record en terme de durée, l'énergie qu'elles transportent est relativement faible (en général $\ll 1\mu\text{J}$). L'efficacité de conversion entre l'impulsion génératrice et les harmoniques est très basse ($\sim 10^{-5}$). Augmenter l'énergie de ces impulsions attosecondes permettrait d'envisager de nouvelles applications : accéder à la physique non linéaire dans l'XUV.

Le travail que j'ai effectué pendant ma thèse consiste à réduire la durée de ces impulsions XUV, et à augmenter leur énergie. De plus, les impulsions attosecondes sont, dans des conditions standards, émises sous la forme de trains d'impulsions. Nous explorons ici des techniques qui peuvent permettre de produire une seule impulsion attoseconde avec une énergie suffisante pour induire des phénomènes non-linéaires. Mais ce thème de recherche ayant débuté au CELIA avec ma thèse, nous avons avant tout dû construire cette source harmonique haute énergie.

Le manuscrit se déroulera de la façon suivante : le premier chapitre a un but introductif ; il présente les généralités sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé, les thèmes de recherche étudiés ici ainsi que le matériel expérimental à disposition. Le deuxième

chapitre introduit les modèles théoriques sur la génération d'harmoniques utiles à la compréhension de nos travaux. Le troisième chapitre décrit le développement de la source harmonique haute énergie et des diagnostics associés. Le quatrième chapitre présente la technique de mise en forme spatiale de faisceaux femtosecondes intenses que nous avons développée, ainsi que les résultats obtenus en générant les harmoniques avec le faisceau mis en forme. Le cinquième chapitre retrace le développement d'une technique originale de post compression d'impulsions intenses ultra-brèves par ionisation d'un gaz rare, et présente la génération d'harmoniques avec les impulsions post comprimées. Le sixième chapitre traite de la méthode RABBITT, et présente les mesures effectuées.

Chapitre 1

Motivations et contexte expérimental

1.1 Introduction sur la génération d’harmoniques d’ordre élevé

La génération d’harmoniques d’ordre élevé a été observée pour la première fois en 1977, au moyen d’un laser CO_2 pulsé interagissant avec une cible solide ([Burnett 77]). Ils ont pu observer des harmoniques jusqu’à l’ordre onze ; ce qui correspond à une longueur d’onde de 950 nm pour une longueur d’onde fondamentale de 10.6 μm . Il a fallu ensuite attendre 10 ans pour observer les premières harmoniques d’ordre élevé générées dans du gaz. C’est donc en 1987 que A. McPherson parvient à produire un rayonnement XUV par génération d’harmoniques d’ordre élevé dans du gaz, et le même processus est observé simultanément de l’autre côté de l’Atlantique par M. Ferray ([McPherson 87],[Ferray 88]). Ces harmoniques sont obtenues en focalisant un laser pulsé intense dans des gaz rares. A. McPherson utilise un laser KrF avec une longueur d’onde fondamentale de 248 nm, des durées d’impulsions de l’ordre de 350 fs et une énergie de 20 mJ. Il observe des harmoniques jusqu’à l’ordre 17 (14.6 nm) dans le néon. M. Ferray utilise un laser Nd :YAG pulsé délivrant des impulsions de 30 picosecondes avec une longueur d’onde centrée à 1064 nm. Il observe alors des harmoniques jusqu’à l’ordre 33 (32.2 nm) dans l’argon. Anne L’Huillier, co-acteur de cette expérience, a tellement été fascinée par ce phénomène de génération d’harmoniques d’ordre élevé et ses potentialités qu’elle décida d’y consacrer ses recherches, et continue toujours cette thématique 24 ans après. Un aspect surprenant et prometteur de ces expériences est que les spectres observés présentent une large gamme spectrale où l’intensité des harmoniques est presque constante (le plateau). L’allure typique d’un spectre d’harmonique se présente de la manière suivante (figure 1.1) : il s’agit d’un peigne de fréquence, où les composantes spectrales sont des multiples (en général

impairs) de la fréquence fondamentale de l'impulsion génératrice. Le spectre présente une décroissance rapide sur les ordres les plus bas, puis un plateau où l'efficacité de génération est quasiment constante, et la coupure (ou *cut-off*) où l'intensité des harmoniques d'ordre les plus élevés décroissent rapidement. La position de ce *cut-off* peut atteindre plusieurs centaines d'eV ([L'Huillier 93, Macklin 93, Chang 97]), voire quelques keV ([Seres 05]).

La génération d'harmoniques d'ordre élevé dans des gaz présente des propriétés qui en font un outil d'intérêt majeur pour la recherche :

- Les harmoniques sont émises de façon cohérente spatialement et temporellement.
- Leur rayonnement s'étend de l'ultra-violet jusqu'aux rayons x mous (domaine XUV).
- Elles sont émises en général sous la forme de trains d'impulsions attosecondes ($1 \text{ as} \sim 10^{-18} \text{ s}$).
- Ces trains d'impulsions sont synchronisés avec l'impulsion génératrice.
- Elles sont copropageantes avec l'impulsion génératrice.
- La divergence du faisceau XUV est en général plus faible que celle du faisceau générateur.
- La durée du train est inférieure à la durée de l'impulsion génératrice donnant ainsi accès à des résolutions temporelles très élevées.
- Dans certaines conditions, une seule impulsion attoseconde peut être émise. La durée de ces impulsions attosecondes isolées (en anglais : *Isolated Attosecond Pulses* ou IAP) peut être sub-100 as ([Goulielmakis 08]).

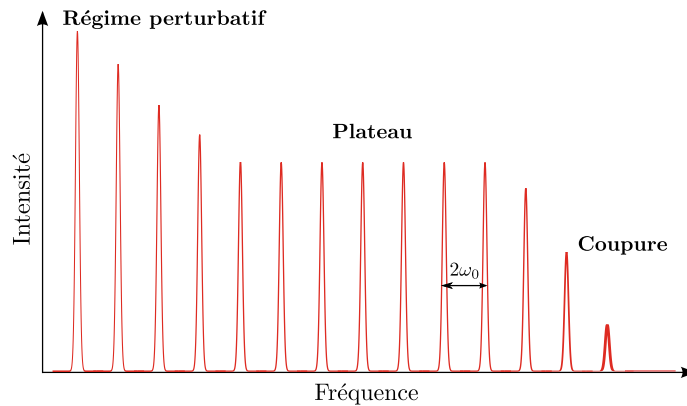


FIGURE 1.1 – Allure caractéristique d'un spectre d'harmoniques d'ordre élevé : présence d'harmoniques impaires séparées de $2\omega_0$, décroissance rapide de leur amplitude sur les premières harmoniques, suivi du plateau où l'efficacité reste constante. Cette efficacité s'effondre au niveau de la fréquence de coupure.

Ces sources XUV ultra-brèves ont donc motivé de nombreux travaux expérimentaux et théoriques. Au cours de ces 20 dernières années, elles ont permis d'étudier les dynamiques

ultra-rapides à l'échelle atomique et moléculaire, la physique du solide, etc.... Ces sont de plus des sources *table-top* accordables en longueur d'onde dans le domaine XUV. Le coût de ces sources et leur encombrement est incomparable avec les synchrotrons dont le rayonnement est issu de l'accélération de particules. Elles se sont donc largement répandues, et de nombreux laboratoires dans le monde entier possèdent des sources de ce type, faisant ainsi de cette thématique un domaine très actif de la recherche scientifique. Néanmoins, ces sources présentent quand même des inconvénients ; en l'occurrence l'efficacité de conversion entre l'impulsion génératrice et l'impulsion XUV est faible ($\sim 10^{-5}$ dans l'argon). L'énergie des impulsions attosecondes est alors relativement faible (de l'ordre du nJ), ce qui peut être un facteur limitant pour certaines applications. C'est pourquoi l'optimisation de ces impulsions attosecondes est un axe de recherche important, et le travail présenté ici s'inclut dans cette thématique. Un autre axe de recherche important abordé dans cette thèse est la génération d'impulsions attosecondes isolées à haut flux. En général, les impulsions utilisées pour la génération d'harmoniques sont de l'ordre de quelques millijoules. La génération d'IAP dans ces conditions a été démontrée, mais lorsque l'on utilise des impulsions très énergétiques pour la génération, les techniques de confinement temporel menant à la production d'IAP vont poser problème. Nous explorerons ici les possibilités de confinement temporel avec des impulsions génératrices haute énergie qui donneront lieu à des IAP intenses.

Ce travail de thèse comprend donc la construction de la source harmonique haute énergie, ainsi que le développement des diagnostics associés (chapitre 3). Le qualificatif “haute énergie” s'applique non seulement aux impulsions attosecondes que l'on va générer, mais également aux impulsions génératrices utilisées. En effet, nous investiguons ici l'étude de la génération d'harmonique en utilisant des impulsions dont l'énergie peut s'élever jusqu'à une centaine de millijoules. Même si la génération d'harmonique est soumise à un phénomène de saturation, on s'attend bien sûr à obtenir des flux de photons importants dans l'XUV en injectant de telles énergies dans la génération, mais au-delà de l'énergie des harmoniques, nous verrons que la génération dans ces conditions peut ouvrir des perspectives intéressantes et donner lieu à des phénomènes spatio-temporels inhabituels. Les harmoniques peuvent se séparer spectralement et spatialement ; l'évolution rapide de la densité électronique lors de l'interaction du front montant de l'impulsion avec le milieu générateur peut permettre de confiner l'émission XUV par accord de phase transitoire ([Constant 99, Mével 00, Strelkov 08]). Ce processus est également appelé “porte d'ionisation”, ou *Ionization gating* en anglais ([Pfeifer 07, Jullien 08]). Dans ce cas, seule l'énergie contenue dans une fraction du front montant va contribuer à la génération, et l'efficacité de conversion globale s'en trouve amoindrie. Plutôt que de chercher à optimiser le signal

harmonique pour une énergie donnée et de travailler à augmenter l'efficacité de conversion, dans notre approche, on s'autorise à utiliser toute l'énergie nécessaire pour obtenir les caractéristiques souhaitées pour les impulsions, ou trains d'impulsions attosecondes ; c'est-à-dire courtes et intenses.

Pour ce faire, nous avons développé une technique de mise en forme spatiale adaptée aux impulsions intenses ultra-brèves (chapitre 4). Elle ouvre des perspectives d'optimisation pour la génération d'harmoniques, et permet également de confiner l'émission XUV. Utilisée avec des impulsions de 10 fs, elle permet la génération d'impulsions attosecondes isolées dans des conditions robustes par rapport aux variations de la phase absolue.

Cependant, il faut disposer d'une source d'impulsions térawatts de 10 fs pour pouvoir générer des IAP intenses. Ces sources sont assez rares, et sont en général obtenues grâce à l'amplification paramétrique optique à dérive de fréquence. Nous avons choisi ici une approche différente, puisque nous sommes partis de notre chaîne laser titane-saphir, et que nous avons développé une technique de post compression pour les impulsions haute énergie (chapitre 5) basée sur l'élargissement spectral par ionisation d'un gaz rare. Cette technique permet d'obtenir des impulsions de l'ordre de 10 fs - 10 mJ. La post compression est ici la clef pour obtenir des IAP intenses. En effet, plus les impulsions génératrices sont courtes, plus l'émission harmonique l'est également. En appliquant une technique de confinement temporel lors de la génération avec ces impulsions courtes, il est possible de générer des IAP. Le processus de confinement peut être induit par *Ionization gating* ou en couplant la technique avec la mise en forme spatiale.

La source harmonique, après avoir été optimisée et fiabilisée dans des conditions standard (en utilisant directement l'impulsion en sortie de chaîne), a pu être utilisée pour des expériences d'applications comme la caractérisation d'un miroir multi-couche XUV (80 - 93 eV) (chapitre 6). Cette caractérisation a été effectuée grâce à des mesures RABBITT ; le dispositif a également permis de caractériser les impulsions attosecondes obtenues avec les impulsions en sortie de chaîne laser et avec le faisceau mis en forme.

Nous allons maintenant nous intéresser aux travaux qui ont déjà été réalisés sur la génération d'harmoniques à haute énergie, et sur la production d'impulsions attosecondes isolées afin de nous situer dans le contexte scientifique actuel. Ensuite nous présenterons le système laser utilisé.

1.2 État de l'art

1.2.1 La génération d'harmoniques à haute énergie

Nous avons vu que les impulsions attosecondes produites via la génération d'harmoniques donnent accès à des résolutions temporelles très élevées, ce qui en font des outils idéaux pour l'étude de phénomènes ultra-rapides. Ces études sont basées sur le principe des expériences pompe-sonde qui nécessitent la présence d'une impulsion XUV et de l'impulsion génératrice (généralement infrarouge). Cependant, l'impulsion génératrice a une durée plus longue et son intensité est suffisamment importante pour perturber le système étudié. Il serait donc intéressant pour avoir une meilleure résolution temporelle et faciliter l'interprétation des résultats d'utiliser une impulsion XUV pour la pompe et pour la sonde. Il faut pour cela être capable d'induire des transitions à deux photons XUV-XUV. La section efficace d'absorption à deux photons étant très faible (de l'ordre de 10^{-52} cm⁴.s pour He, [Sato 11]), il faut augmenter le nombre de photons XUV pour rendre ce processus possible ; c'est à dire augmenter l'énergie des impulsions attosecondes.

Cet axe de recherche a déjà été exploré en France et au Japon. E. Takahashi obtient des énergies d'impulsion de l'ordre du microjoule dans l'argon (pour un domaine spectral s'étendant de 25 à 35 nm) et même d'une dizaine de microjoules dans le xénon (de 42 à 73 nm) ([Takahashi 02b],[Takahashi 02a],[Takahashi 04]). Pour obtenir ces résultats, il utilise de longues distances de focalisation ($f = 5$ m) et de longs milieux d'interaction (10 cm pour l'argon, 14 cm pour le xénon) avec des impulsions génératrices de 16 mJ. J.F Hergott, au CEA Saclay, obtient simultanément des résultats comparables : 2 μ J dans le Xenon en utilisant une focale de 5 mètres et des impulsions de 25 mJ ([Hergott 02]). Les résultats étonnants de E. Takahashi sont ensuite interprétés par V. Tosa ([Tosa 03]). Cette augmentation conséquente de l'efficacité de conversion est due à un autoguidage du faisceau dans le milieu générateur. Le début du milieu générateur est placé loin avant le foyer (14 cm) et dans ce plan le faisceau présente un profil flat top qui ensuite se conserve grâce à l'interaction avec le milieu gazeux. Une analyse théorique exhaustive de ces résultats est également présentée dans [Takahashi 03b] et [Takahashi 04], ainsi que la procédure d'optimisation. Contre toute attente, des harmoniques à haute énergie ont également été générées dans de l'hélium ([Kim 08]). I. J. Kim obtient 0.6 μ J pour l'harmonique 38 (21.6 nm) avec une efficacité de conversion de 2×10^{-4} . Pour obtenir ces résultats, ils utilisent un champ générateur à deux couleurs (800+400 nm) et un long jet de gaz (6 mm) avec une focale de 60 cm et une énergie de 2.8 mJ. Ces résultats sont surprenants surtout avec une énergie aussi faible pour la génération, néanmoins ils n'ont jamais été reproduits.

Il est aussi possible d’obtenir des énergies importantes dans le domaine spectral XUV en utilisant un champ fondamental de longueur d’onde plus courte ([Yoshitomi 02]). D. Yoshitomi utilise un laser KrF (248 nm) pour générer des longueurs d’onde s’étendant de 42 à 73 nm avec des énergies supérieures au microjoule. Il sélectionne ensuite la cinquième harmonique (49.7 nm) pour la focaliser, et obtient une intensité de 0.5 TW/cm². Une telle intensité ouvre des perspectives intéressantes pour la physique non linéaire dans l’XUV.

Dans cette thèse, nous poursuivons le but de produire des impulsions attosecondes intenses. Pour ce faire, nous travaillerons sur l’aspect temporel et sur l’optimisation du nombre de photons, pour produire des impulsions à la fois courtes et énergétiques. Lorsque la durée de l’émission est suffisamment réduite, une seule impulsion attoseconde est produite. Le prochain paragraphe donne une vision globale des travaux qui ont été accomplis dans cette voie.

1.2.2 La génération d’impulsions attosecondes isolées

Dix ans après la première preuve expérimentale de faisabilité de la génération d’impulsions attosecondes isolées (IAP), cet axe de recherche s’est largement développé. Cette expérience a été réalisée par Hentschel *et al.* ([Hentschel 01]) et les impulsions attosecondes produites ont une durée de 650 as. Kienberger *et al.* [Kienberger 04] ont ensuite démontré la génération d’impulsions attosecondes isolées d’une durée de 250 as grâce à des impulsions génératrices de 5 fs avec la CEP (*carrier envelope phase*) stabilisée. En général, les impulsions attosecondes isolées sont produites via trois techniques différentes, mais elles nécessitent toutes d’utiliser des impulsions fondamentales extrêmement courtes (sub-5 fs).

La première approche dans l’ordre chronologique, s’appuie donc sur l’utilisation d’impulsions génératrices de quelques cycles optiques avec phase stabilisée et sur la sélection spectrale des harmoniques provenant du cut-off ([Hentschel 01, Kienberger 04]). Avec cette technique, Goulielmakis *et al.* ([Goulielmakis 08]) ont généré des IAP de 80 as à une énergie de photon de 80 eV. L’énergie de l’impulsion est en revanche relativement faible (0.5 pJ).

Une seconde approche basée sur le confinement de l’émission XUV par porte de polarisation ([Tcherbakoff 03, Sola 06]) a permis de générer des IAP de 130 as à une énergie de photon de 36 eV ([Sansone 06]).

La troisième méthode repose sur le phénomène de confinement temporel par accord de phase transitoire ([Constant 99, Mével 00]) qui est dû à l’influence de l’ionisation du milieu générateur. Cette approche appelée aussi “porte d’ionisation” (*ionization gating*),

et son potentiel pour la production d'IAP a été étudiée théoriquement par Pfeifer *et al.* ([Pfeifer 07]). Dans ce cas la stabilisation de la CEP n'est pas requise. La démonstration expérimentale a été réalisée par Abel *et al.* deux ans plus tard ([Abel 09]). Ils génèrent avec cette technique, des impulsions de 430 as à des énergies de photon de 90 eV. Une approche théorique proposée par V. Strelkov *et al.* ([Strelkov 08, Strelkov 09]) combine le confinement temporel dû à l'accord de phase transitoire avec la mise en forme spatiale du faisceau générateur. Cela permettrait de générer des IAP avec des impulsions de 10 fs et sans la stabilisation de la phase absolue.

Toutes ces approches peuvent être couplées avec les techniques de génération à deux couleurs (en général 800 nm + 400 nm). Dans ce cas, la symétrie du champ générateur est brisée et une seule impulsion attoseconde est émise par cycle optique. La contrainte sur la durée de l'impulsion génératrice est alors divisée par deux ([Gilbertson 10, Fang 11]).

Récemment, Ferrari *et al.* ([Ferrari 10]) ont démontré la production d'IAP de 160 as à une énergie de photon de 30 eV et une énergie d'impulsion de deux nanojoules. Notre approche s'appuiera sur la théorie de V. Strelkov qui est bien adaptée aux impulsions intenses ultra-brèves. Menés à leurs termes, ces travaux devraient permettre d'augmenter l'énergie des impulsions attosecondes de deux ordres de grandeur par rapport à ces récents résultats.

1.3 Caractéristiques du système laser utilisé

Nous utilisons pour nos recherches la chaîne laser Eclipse du CELIA. Il s'agit d'un système Titane Saphir à amplification par dérive de fréquence délivrant des impulsions de 40 fs centrées à 810 nm pour une énergie après recompression de 150 mJ à une cadence de 10 Hz.

La figure 1.2 expose le schéma de principe de ce système laser. Il est constitué d'un oscillateur femtoseconde, d'un étireur d'Öffner et de trois étages d'amplifications :

- L'oscillateur, manufacturé par femtolaser, est pompé par un laser Nd :YAG doublé (VERDI) d'une puissance de 5 W. Il délivre des impulsions de 20 fs pour une puissance moyenne de 500 mW à une cadence de 80MHz. Les impulsions ont alors une énergie de l'ordre de quelques nanojoules.
- A la sortie de l'oscillateur, les impulsions sont redirigées vers l'étireur d'Öffner qui allonge leur durée jusqu'à 280 ps.
- Grâce à une cellule de Pockels, une impulsion sur 800 000 est injectée dans la cavité régénérative pour être amplifiée. La cadence est alors réduite à 100 Hz. Lorsque les impulsions atteignent une énergie de 1 mJ, elles sont libérées grâce aux cellules de

Pockels. Elles ont alors une durée de 170 ps.

- Elles sont ensuite injectées dans l'amplificateur 100 Hz. Il s'agit d'un amplificateur à quatre passages qui augmente l'énergie des impulsions d'un facteur 10. A la sortie les impulsions ont une énergie de 10 mJ.
- L'amplificateur régénératif et l'amplificateur 100 Hz sont tous deux pompés par le même laser. Il s'agit d'un Nd :YAG doublé d'une puissance moyenne de 5 W (laser Spectrogon).
- Une cellule de Pockels réduit ensuite la cadence à 10 Hz pour injecter les impulsions dans le dernière étage d'amplification. Il s'agit d'un amplificateur à quatre passages pompé par un laser Nd :YAG doublé de 10 W (laser Continuum). A sa sortie, les impulsions ont alors une énergie de 300 mJ.
- Les impulsions sont alors distribuées vers les salles expérimentales via les lignes de transport de faisceaux.
- Après les lignes de transport, les impulsions ont déjà perdu une partie de leur énergie (principalement à cause de la traversée de cube polariseur). Il reste alors 250 mJ à distribuer dans les salles. Chaque salle est équipée de son propre compresseur. En moyenne, le rendement énergétique d'un compresseur est d'environ 60%, ce qui fournit une énergie maximale disponible après recompression de 150 mJ pour une durée de 40 fs.

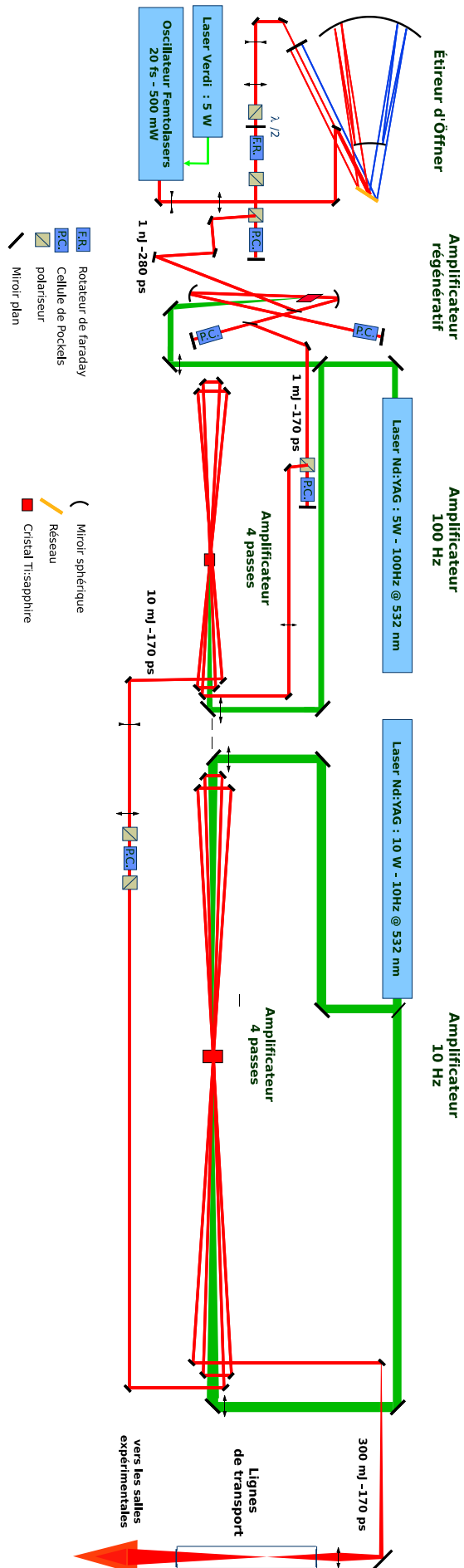


FIGURE 1.2 – Schéma de principe du laser Eclipse

Chapitre 2

Éléments de théorie sur la génération d'harmoniques dans les gaz

La compréhension de la génération d'harmonique requiert en premier lieu d'étudier la réponse de l'atome unique. L'impulsion laser focalisée est représentée par un champ électrique oscillant $\mathbf{E}$. Son interaction avec un atome peut être décrite de manière quantique, mais aussi plus simplement de manière semi-classique. Ensuite, il faut considérer un grand nombre d'atomes et additionner les rayonnements de manière cohérente. Dès lors, vont rentrer en compte les paramètres macroscopiques tels que la dispersion et l'absorption.

2.1 Description semi-classique : le modèle à trois étapes

Le modèle semi-classique ([Corkum 93], [Schafer 93]) permet d'expliquer la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans le régime de champ fort. La description semi-classique explique ce phénomène de façon simplifiée tout en obtenant un bon accord quantitatif avec les expériences et des modèles complètement quantiques.

Dans le modèle semi-classique, la génération d'harmoniques d'ordre élevé est décomposée en trois étapes (voir Figure 2.1) :

1. ionisation de l'atome soumis au champ laser intense
2. accélération de l'électron dans le champ laser oscillant
3. recombinaison électron-ion et émission d'un photon XUV

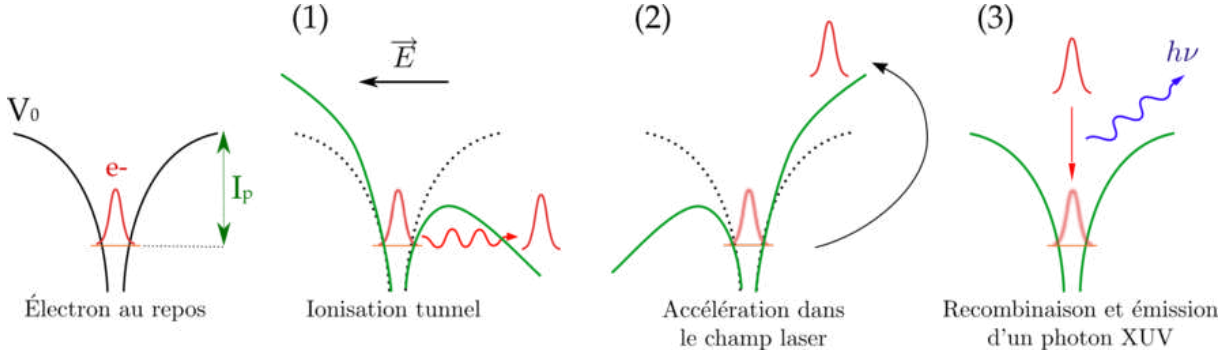


FIGURE 2.1 – Le modèle à trois étapes : au départ l'atome est dans l'état fondamental, il est représenté par un électron piégé dans un puits de potentiel coulombien V_0 . (1) Sous l'effet du champ, le potentiel est abaissé, l'ionisation tunnel peut avoir lieu. (2) Le champ change de sens et ramène l'électron vers l'ion parent. (3) Recombinaison électron-ion et émission d'un photon XUV.

2.1.1 Ionisation tunnel

Si on considère un atome dans l'état fondamental et qu'on s'intéresse à un seul de ces électrons (approximation du *single active electron*) de valence,¹ ce dernier est piégé dans un puits de potentiel coulombien V_0 et cet état est caractérisé par un potentiel d'ionisation I_p . Lorsque l'atome est soumis à un champ électrique intense $\mathbf{E} = E\mathbf{u}_x$ (impulsion laser focalisée polarisée linéairement selon x ²), le potentiel s'écrit (en unité atomique) :

$$V(x) = V_0 + Ex = -\frac{1}{|x|} + Ex \quad (2.1)$$

Un champ suffisamment fort va permettre d'abaisser la barrière de potentiel et autoriser l'électron à passer au travers par effet tunnel, i.e. ionisation par effet tunnel (voir Figure 2.2). C'est ici que l'aspect quantique est pris en compte dans ce modèle.

À partir d'une certaine intensité, ce champ va pouvoir totalement supprimer la barrière de potentiel. On introduit le concept d'éclairement de suppression de barrière ([Augst 89]), pour quantifier ce phénomène. L'éclairement I_{SB} correspond à l'intensité nécessaire pour abaisser le sommet (point x_0 où le potentiel passe par un maximum) de la barrière au niveau de l'état fondamental :

$$V'(x_0) = 0 \implies x_0 = \frac{1}{\sqrt{E}} \quad (2.2)$$

$$V(x_0) = -2\sqrt{E} = V_B \quad (2.3)$$

1. Les électrons de valence sont les plus faiblement liés.

2. Pour simplifier les calculs, et parce que la génération d'harmoniques n'est généralement efficace qu'en polarisation linéaire, nous considérons systématiquement l'impulsion laser polarisée selon l'axe x .

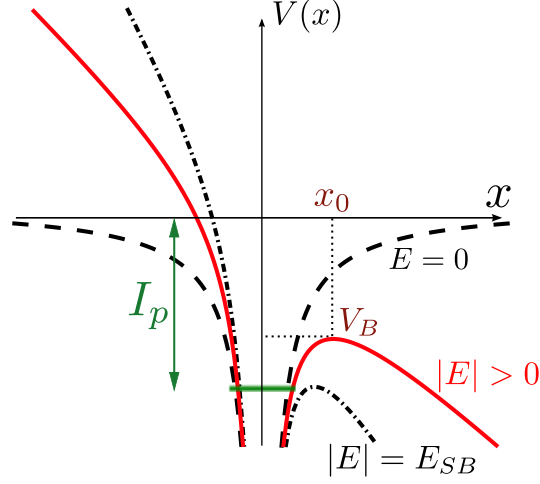


FIGURE 2.2 – Potentiel Coulombien représentant un atome simplifié, sans champ (tiret), puis soumis à un champ électrique qui abaisse la barrière de potentiel (trait plein rouge) ou la supprime ($|E| = E_{SB}$, trait mixte)

La barrière de potentiel est supprimée lorsque :

$$V_B = -I_p \implies E_{SB} = \frac{I_p^2}{4} \quad (2.4)$$

$$I_{SB} = \frac{c}{8\pi} E_{SB}^2 \implies I_{SB} [\text{W}/\text{cm}^2] = 4 \cdot 10^9 \times I_p^4 [\text{eV}] \quad (2.5)$$

où I_p est le potentiel d'ionisation de l'atome considéré.

La barrière de potentiel doit de plus être abaissée suffisamment longtemps pour que l'électron puisse s'échapper par effet tunnel. Le paramètre de Keldysh γ ([Keldysh 65]) prend en compte le rapport entre le temps que mettrait l'électron à traverser la barrière de potentiel, noté τ , et la période optique du laser, $T_0 = 2\pi/\omega_0$. La largeur de la barrière de potentiel est approximativement I_p/E et la vitesse moyenne « classique » de l'électron lors de la traversée $\sqrt{2I_p}$ (l'énergie cinétique de l'électron est supposée égale à I_p). γ s'écrit alors :

$$\tau = \frac{4\pi I_p}{E\sqrt{2I_p}} \implies \gamma = \frac{\tau}{T_0} = 4\pi \frac{\omega_0}{2\pi} \frac{I_p}{E\sqrt{2I_p}} = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (2.6)$$

U_p est le potentiel pondéromoteur³ :

$$U_p = \frac{E^2}{4\omega_0^2} \quad \text{en unités atomiques} \quad \left(U_p = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega_0^2} \quad \text{en unité S.I.} \right) \quad (2.7)$$

$$U_p[\text{eV}] = 9.33 \times I [10^{14} \text{ W/cm}^2] \times \lambda^2 [\mu\text{m}^2] \quad (2.8)$$

m_e est la masse de l'électron, e la charge élémentaire.

- Pour $\gamma \ll 1$, faible fréquence d'oscillation du potentiel et champ électrique fort, c'est le régime d'ionisation tunnel qui prédomine : la barrière de potentiel est abaissée de manière significative et pendant un temps assez long pour que la probabilité de passage de l'électron au travers de la barrière soit grande.
- Pour $\gamma > 1$, c'est le régime d'ionisation multi-photonique qui domine.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé a généralement lieu dans le régime d'ionisation tunnel ou intermédiaire, $\gamma \sim 1$ (pour $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$, $I_{\text{generation}} \approx 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et $\gamma \lesssim 1$).

2.1.2 Accélération dans le champ laser

Une fois libéré, l'électron est accéléré par le champ laser oscillant. On étudie alors la trajectoire de l'électron de manière classique en négligeant le potentiel d'attraction de l'ion parent par rapport au potentiel accélérateur du champ laser. On considère un champ électrique polarisé linéairement selon l'axe x : $\mathbf{E}(t) = E_0 \cos \omega_0 t \mathbf{u}_x$. L'équation du mouvement s'écrit :

$$m_e \ddot{x} = -e \cdot E_0 \cos \omega_0 t \quad (2.9)$$

On intègre cette équation en faisant un changement de variable $\varphi = \omega_0 t$. Soit φ_i la phase à laquelle l'électron est libéré (phase de l'ionisation). On prend comme condition initiale $x(\varphi_i) = 0$ (ionisation de l'électron à partir du noyau) et $\dot{x}(\varphi_i) = 0$ (vitesse initiale nulle à l'ionisation) :

$$\dot{x}(\varphi) = \frac{\alpha}{\omega} [\sin(\varphi) - \sin(\varphi_i)] \quad (2.10)$$

$$x(\varphi) = \frac{\alpha}{\omega^2} [\cos(\varphi_i) - \cos(\varphi) + (\varphi_i - \varphi) \sin(\varphi_i)] \quad (2.11)$$

3. Ce potentiel correspond à l'énergie cinétique moyenne acquise par un électron initialement au repos qui oscille sous l'action du champ électromagnétique d'amplitude E et de pulsation ω_0 .

avec $\alpha = -eE_0/m_e$.

La figure 2.3 montre quelques trajectoires électroniques pour des phases d'ionisation φ_i comprises entre 0 et $\frac{\pi}{2}$. Pour toutes ces phases, l'électron suit une trajectoire fermée et repasse par $x = 0$, c'est à dire par la position de son ion parent. Pour des phases d'ionisation comprises entre $\frac{\pi}{2}$ et π , la norme du champ croît, les électrons sont accélérés sans repasser par la position $x = 0$ et ne participent donc pas à la génération d'harmoniques (trajectoires non représentées). Le processus se répète dans l'autre sens pour les phases comprises entre π et 2π : entre π et $\frac{3\pi}{2}$, les trajectoires électroniques repassent par $x = 0$; pour φ_i entre $\frac{3\pi}{2}$ et 2π , les électrons ne contribuent pas à la génération d'harmoniques.

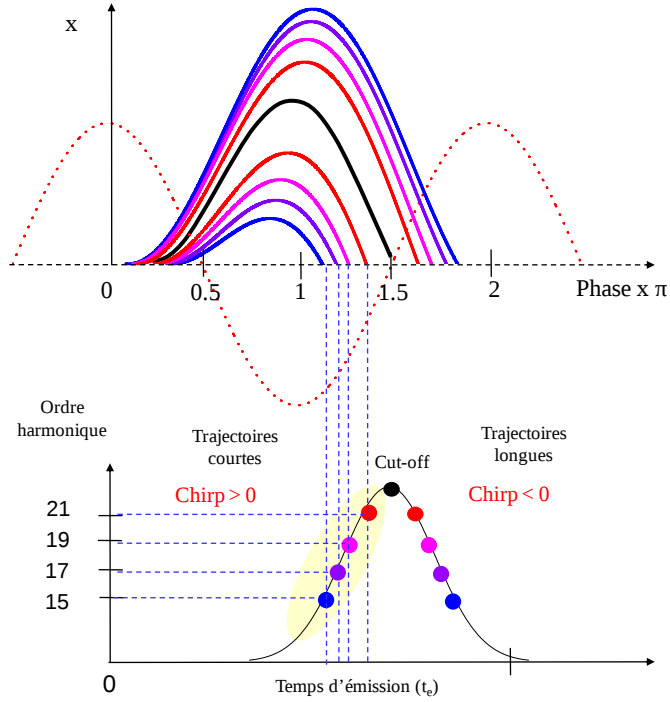


FIGURE 2.3 – Trajectoires électroniques pour un éclairement $I = 1 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$ à 800 nm. La couleur des trajectoires représente l'ordre harmonique, lui-même dépendant de l'énergie cinétique acquise par l'électron au moment de la recombinaison sur l'ion parent. Le champ électrique est représenté en rouge pointillé.

2.1.3 Recombinaison radiative

Lorsque les bonnes conditions sont réunies pour la génération d'harmoniques, les trajectoires électroniques reviennent à leur point d'origine et une recombinaison électron-ion peut se produire. Un photon est alors émis et l'atome est à nouveau dans l'état fonda-

mental. Le photon émis à une énergie E_ν tel que :

$$E_\nu = h\nu = I_p + E_k \quad (2.12)$$

où E_k est l'énergie cinétique accumulée lors de la propagation dans le continuum.

Le calcul classique donne une énergie cinétique maximale de $3,17 U_p$, soit une énergie de photon $E_{max} = h\nu_{max}$ à la coupure telle que :

$$E_{max} = I_p + 3,17 U_p \quad (2.13)$$

Cette loi permet d'estimer l'éclairement de génération à partir de l'énergie de photon correspondant à la coupure.

Le processus complet (ionisation tunnel, propagation dans le continuum et recombinaison radiative) se répète tous les demi-cycles optiques (périodicité de $T_0/2$). Le signal émis est donc discret (train d'impulsions) dans le domaine temporel, la transformée de Fourier donne alors également un signal discret dans le domaine spectral avec une périodicité fréquentielle de $2\omega_0$. Le spectre de raies obtenu contient uniquement les harmoniques impaires de la fréquence fondamentale ($\omega_0 + n 2\omega_0$).

2.1.4 Les deux types de trajectoires du modèle semi-classique

La figure 2.3, montre huit cas de recombinaisons radiatives correspondants aux harmoniques H15 - H17 - H19 - H21. On remarque que pour une même énergie cinétique (même ordre harmonique) à la recombinaison, deux trajectoires sont possibles :

- une **trajectoire courte** : l'électron évolue dans le champ pendant un temps court.
- une **trajectoire longue** : l'électron évolue dans le champ pendant un temps plus long.

L'étape de propagation de l'électron dans le champ laser va être très différente pour ces deux classes de trajectoires :

- On remarque que pour les trajectoires courtes l'ionisation a lieu pendant la phase décroissante du champ ($\frac{\pi}{10} < \varphi_i < \frac{\pi}{2}$), ainsi les électrons suivant ce type de trajectoires sont accélérés pendant toute la phase de retour vers l'ion parent. Donc l'énergie cinétique accumulée au cours de la propagation est d'autant plus grande (l'ordre harmonique est d'autant plus élevé) que le temps d'excursion est long pour ce type de trajectoires. De plus, l'instant d'émission est d'autant plus grand que l'ordre harmonique est élevé, induisant ainsi une dérive de fréquence (ou *chirp*) positive pour les harmoniques issues des trajectoires courtes.

- Pour les trajectoires longues, l'ionisation a lieu un peu plus tôt, à des instants proches du maximum du champ ($0 < \varphi_i < \frac{\pi}{10}$); c'est pourquoi les électrons sont amenés plus loin du noyau. Ils ont ensuite une plus grande distance à parcourir pour revenir, le temps d'excursion est alors suffisamment long pour que le champ électrique change de sens (en $\varphi = 1.5\pi$) avant la recombinaison. Les électrons sont donc décélérés dans la dernière phase de retour, ce qui explique que la recombinaison puisse produire des harmoniques du même ordre (même énergie cinétique) que les trajectoires courtes. Mais dans ce cas, plus la trajectoire est longue, plus la phase de décélération est longue et plus l'ordre harmonique diminue. Ainsi, plus le temps d'excursion est long (et donc l'instant d'émission retardé) plus l'ordre harmonique est faible. Les harmoniques issues des trajectoires longues présentent donc une dérive de fréquence négative.

On remarque également que les deux familles de trajectoires convergent lorsqu'on se rapproche de la coupure. Ainsi sur la figure 2.3, l'harmonique la plus élevée émise est issue d'une seule trajectoire électronique (représentée en noire) avec un instant de recombinaison correspondant au changement de signe du champ électrique ($\varphi = 1.5\pi$).

A la lumière de cette analyse, on déduit que dans le modèle semi-classique, pour un champ laser donné, l'ordre harmonique ne dépend que de la phase de l'ionisation φ_i .

La modélisation semi-classique de la génération d'harmonique permet de comprendre les mécanismes, d'identifier les paramètres importants et de quantifier les ordres de grandeurs intervenant dans le processus. Malgré la nature quantique des phénomènes intervenant à ces échelles, il permet d'avoir un bon accord quantitatif avec les expériences.

Il existe aussi des modélisations purement quantiques du processus de génération. Elles sont plus complètes et plus précises mais plus lourdes à utiliser.

2.2 Modélisation quantique de la génération d'harmoniques d'ordre élevé

Pour décrire la génération d'harmonique de façon complètement quantique, il faut résoudre l'équation de Schrödinger dépendante du temps (*Time Dependent Schrödinger Equation*, TDSE) :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi = \hat{H} \Psi \quad (2.14)$$

Pour un atome soumis à un champ laser $E(t)$, polarisé linéairement selon l'axe x , l'opérateur Hamiltonien s'écrit $\hat{H} = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V(\mathbf{r}) + x E(t)$ où $V(\mathbf{r})$ est le potentiel atomique.

L'équation de Schrödinger n'admet de solution analytique que dans le cas du problème à deux corps. Donc, la description de la génération d'harmoniques dans des gaz rares (ou dans les molécules), nécessite des calculs numériques complexes.

Le modèle de Lewenstein ([Lewenstein 94]) offre une alternative au calcul TDSE, et permet moyennant quelques approximations de simplifier les calculs et l'interprétation tout en prenant en compte des effets quantiques.

2.2.1 Description du modèle de Lewenstein

La théorie quantique de la génération d'harmoniques d'ordre élevé, développée par Lewenstein, prend en compte les effets de diffusion du paquet d'ondes électroniques lors de la propagation dans le champ laser et les effets quantiques associés à l'ionisation tunnel, néanmoins, elle requiert les approximations suivantes :

1. *Single Active Electron* (S.A.E) ou électron actif unique : l'atome est décrit en prenant en compte un seul électron. Les effets d'interaction multi-électronique sont négligés.
2. *Strong Field Approximation* (S.F.A ou approximation du champ fort [Keldysh 65])
 - le seul état électronique lié pris en compte est l'état fondamental
 - la déplétion de l'état fondamental est négligée
 - l'influence du potentiel coulombien sur l'électron éjecté est négligée ($U_p \gg I_p$)

Le moment dipolaire $\mathbf{x}(t) = \langle \psi(t) | \hat{\mathbf{x}} | \psi(t) \rangle$ est la somme sur l'ensemble des contributions des paquets d'ondes électroniques. Dans le cadre de ces approximations, il s'écrit :

$$\mathbf{x}(t) = -i \int_{-\infty}^t dt_i \int d^3\mathbf{p} \underbrace{(\mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_i)})^*}_{\text{recombinaison}} \cdot \underbrace{e^{iS(\mathbf{p},t,t_i)}}_{\text{propagation}} \cdot \underbrace{\mathbf{E}(t_i)\mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_i)}}_{\text{ionisation}} \quad (2.15)$$

avec $\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$ ($\mathbf{A}$ potentiel vecteur), t_i l'instant d'ionisation, $\mathbf{d}$ l'élément de transition dipolaire électrique entre le niveau fondamental et un état du continuum, et $\mathbf{p}$ le moment canonique.

Il est possible d'interpréter cette intégrale en se basant sur le modèle à trois étapes :

- Le facteur $\mathbf{E}(t_i)\mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_i)}$ représente la probabilité d'ionisation (transition de l'état fondamental $|\psi_0\rangle$ vers un état du continuum de moment canonique $\mathbf{p}(t_i)$).
- Le terme $S(\mathbf{p},t,t_i)$ est une intégrale d'action qui représente la phase accumulée par l'électron lors de la propagation dans le champ laser.
- Après avoir été accéléré, l'électron se recombine à l'instant t_r avec une impulsion $(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t))$. La recombinaison est représentée par le facteur $(\mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)})^*$.

Les expressions des différents facteurs de cette intégrale sont données dans l'annexe A.

Le spectre harmonique s'obtient en effectuant la transformée de Fourier du moment dipolaire (pour l'harmonique q) :

$$\mathbf{x}(\omega_q) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt_r \mathbf{x}(t_r) e^{i\omega_q t_r} = \int_{-\infty}^{+\infty} dt_r \int_{-\infty}^{t_r} dt_i \int d^3\mathbf{p} \mathbf{B}(t_r, t_i, \mathbf{p}) \cdot e^{i\varphi(t_r, t_i, \mathbf{p})} \quad (2.16)$$

avec $\mathbf{B}$ l'amplitude de l'intégrande dans (2.15) et φ définie par :

$$\varphi(t_r, t_i, \mathbf{p}) = \omega_q t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left[\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t'))^2}{2} + I_p \right] dt' \quad (2.17)$$

2.2.2 Équations du point selle

$\mathbf{x}(\omega_q)$ s'écrit donc sous la forme d'intégrales multiples. On peut interpréter son expression dans le cadre de la théorie des intégrales de chemin de Feynman⁴ ([Salières 01]). Cette équation montre que la contribution d'une harmonique q donnée provient de la somme cohérente d'une infinité de chemins quantiques caractérisés par leurs moments canoniques, leur temps d'ionisation et de recombinaison.

Le calcul direct est possible, mais néanmoins fastidieux et requiert des temps de calcul relativement longs. On peut appliquer la méthode du point selle⁵ pour simplifier les calculs : les chemins pour lesquels la phase de l'intégrande varie rapidement vont avoir un rôle négligeable car les différentes contributions s'annulent dans la somme. Les chemins quantiques qui vont contribuer de manière significative sont ceux pour lesquels la phase est stationnaire : $\delta(S(\mathbf{p}, t_r, t_i) + \omega_q t_r) = 0$. Ce principe de phase stationnaire permet de simplifier les calculs en éliminant les contributions non-stationnaires de la sommation sur $\mathbf{p}$. La différentiation complète de la phase $\varphi(t_r, t_i, \mathbf{p})$ par rapport à chacune de ses

4. Richard Phillips Feynman (11 mai 1918 - 15 Février, 1988) était un physicien américain connu pour son travail dans la formulation des intégrales de chemin de la mécanique quantique, la théorie de l'électrodynamique quantique et la physique de la superfluidité de l'hélium liquide, ainsi que dans la physique des particules. Pour ses contributions au développement de l'électrodynamique quantique, Feynman, conjointement avec Julian Schwinger et de Sin-Itiro Tomonaga, a reçu le Prix Nobel de Physique en 1965.

5. En mathématiques, un point-selle (en anglais *saddle point*) d'une fonction f définie sur un produit cartésien $X \times Y$ de deux ensembles X et Y est un point $(x_0, y_0) \in X \times Y$ tel que :

$y \mapsto f(x_0, y)$ atteint un maximum en y_0 sur Y
 $x \mapsto f(x, y_0)$ atteint un minimum en x_0 sur X

Le terme point-selle fait référence à la forme de selle de cheval que prend le graphe de la fonction lorsque X et Y sont des intervalles de $\mathbb{R}$. La méthode du point selle (*saddle-point method* en anglais, ou encore *stationary phase method* ou *method of steepest descent*) est une extension de la méthode de Laplace ([Laplace 74]) pour l'approximation d'une intégrale de la forme : $\int_C f(z) e^{\lambda g(z)} dz$.

variables permet d'écrire :

$$t_i \Rightarrow \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_i))^2}{2} + I_p = 0 \quad (2.18)$$

$$\mathbf{p} \Rightarrow \int_{t_i}^{t_r} dt (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)) = 0 \quad (2.19)$$

$$t_r \Rightarrow \frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_r))^2}{2} + I_p = \omega_q \quad (2.20)$$

Ces trois équations, nommées “équations du point selle”, peuvent être reliées aux différentes étapes du modèle semi classique :

- L'équation 2.18 stipule qu'à l'instant d'ionisation, la somme de l'énergie cinétique de l'électron et du potentiel d'ionisation doit être nulle : $E_c(t_i) + I_p = 0$. L'énergie cinétique correspondante est alors négative, ce qui n'est pas possible classiquement. Néanmoins cette équation peut être résolue dans l'ensemble complexe $\mathbb{C}$. Ainsi, t_i est une grandeur complexe dont la partie imaginaire est reliée au temps tunnel (durée du trajet de l'électron au travers de la barrière) et la partie réelle à l'instant d'ionisation.
- L'équation 2.19 s'interprète au travers de la propagation dans le continuum. Elle stipule que la trajectoire de l'électron est fermée, l'électron revient à son point de départ, l'ion parent.
- L'équation 2.20 concerne la recombinaison radiative. Elle découle du principe de conservation de l'énergie : l'énergie du photon émis est égale à la somme du potentiel d'ionisation et de l'énergie cinétique acquise lors de la propagation dans le continuum.

2.2.3 Comparaison avec le modèle semi-classique

A l'instar du modèle semi-classique, cette modélisation quantique permet de calculer, moyennant des calculs plus complexes, les instants d'ionisation et de recombinaison en fonction de l'ordre harmonique et de l'intensité laser. La figure 2.4 compare les résultats obtenus avec chacun des modèles. On retrouve les notions de trajectoires courtes et longues introduites par le modèle classique et l'accord entre les deux approches est très bon. Le modèle de Lewenstein apporte toutefois une correction quantique à la loi de coupure :

$$(h\nu)_{max} = F(I_p/U_p) \cdot I_p + 3,17 U_p \quad (2.21)$$

avec F un facteur variant entre 1.32 et 1.2 pour I_p/U_p entre 0 et 4. Le terme correctif induit alors une énergie pour la coupure plus élevée pour le calcul quantique que pour le calcul classique.

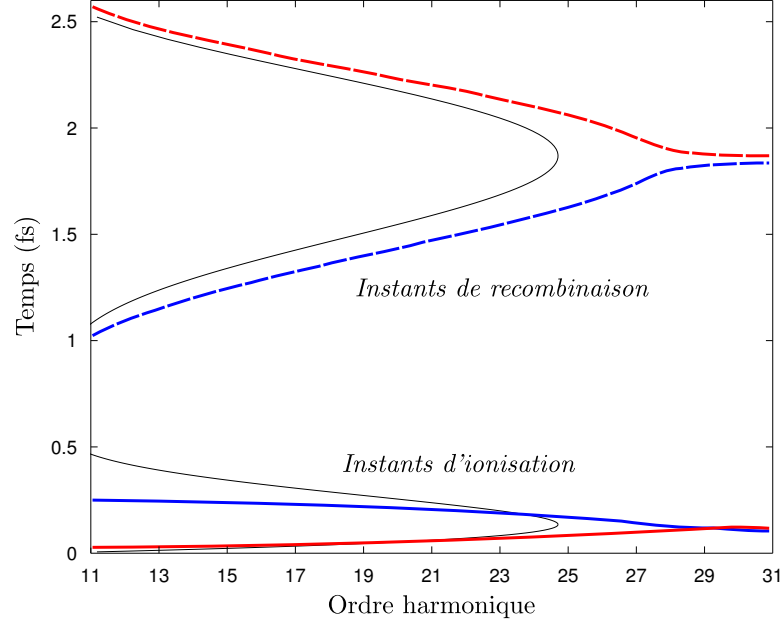


FIGURE 2.4 – Partie réelle des instants d'ionisation (trait plein) et de recombinaison (trait discontinu), pour une génération dans l'argon avec un éclairage de $1.2 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, obtenus par résolution des équations du point selle (extraits de [Mairesse 05b]). On retrouve la présence de deux familles de trajectoires : trajectoires courtes en bleu, trajectoires longues en rouge. La courbe fine noire représente le résultat des calculs classiques.

2.3 Réponse macroscopique et paramètres d'optimisation

Après avoir présenté la théorie de la génération d'harmonique à l'échelle de l'atome unique, il convient maintenant d'étendre l'étude au domaine macroscopique en considérant un ensemble d'émetteurs. Pour cette étude, nous considérons dans un premier temps l'ensemble des émetteurs comme un milieu dilué afin de négliger les effets de la dispersion et de l'absorption. L'émission harmonique est alors vue simplement comme la somme cohérente du rayonnement produit par chaque émetteur. Dans un deuxième temps nous prendrons en compte les effets de la dispersion et de l'absorption.

2.3.1 Génération dans un milieu dilué

Dans cette partie, nous négligerons donc la dispersion, c'est-à-dire que l'indice optique du milieu est considéré indépendant de la longueur d'onde (même indice pour l'harmonique q et le fondamental : $n_q = n_0 = 1$). De même, le phénomène de réabsorption des photons XUV par le milieu de génération n'est pas pris en compte.

Dans ces conditions, le champ macroscopique E_q peut s'écrire comme la somme cohérente des rayonnements produits par chaque émetteur du milieu $A_q e^{(i\varphi_{at,q})}$:

$$E_q = \int_{\Sigma} A_q(r, z) e^{(i\varphi_{at,q}(r,z))} e^{(-i(\mathbf{k}_q - q\mathbf{k}_0)\mathbf{r})} d\Sigma \quad (2.22)$$

exprimé dans un repère de coordonnées cylindriques, avec $\mathbf{k}_q$ le vecteur d'onde du champ harmonique d'ordre q , $\mathbf{k}_0$ celui du champ fondamental et $\varphi_{at,q}$ la phase atomique du rayonnement harmonique. On se place de plus dans des conditions idéales : c'est-à-dire que le faisceau laser est considéré comme un faisceau gaussien parfait, présentant ainsi une symétrie de révolution autour de l'axe z de propagation.

Pour obtenir une conversion optimale de l'énergie entre le champ fondamental et le champ harmonique il faut satisfaire à la condition d'accord de phase ([Balcou 97]) :

$$\varphi_{at,q}(r, z) = (\mathbf{k}_q - q\mathbf{k}_0) z = cte, \quad \forall z, r \quad (2.23)$$

$$\Rightarrow \quad \mathbf{k}_q = q\mathbf{k}_0 + \mathbf{K} \quad (2.24)$$

avec $\mathbf{K}(r, z) = \nabla\varphi_{at,q} = -\alpha_{at,q}^{[k]} \nabla I(r, z)$. Il s'agit d'un vecteur d'onde effectif associé à la variation de la phase atomique en fonction de l'éclairement au niveau de la zone d'interaction. La condition d'accord de phase stipule que tous les émetteurs du milieu générateur doivent être en phase pour que les rayonnements sortant interfèrent constructivement (phase de l'intégrande constante).

Le vecteur d'onde du champ fondamental $\mathbf{k}_0$ contient deux termes : un terme associé à la propagation dans le milieu et un terme d'avance de phase associé à la focalisation du faisceau. Ce dernier est un terme de phase géométrique qui traduit la courbure du front d'onde liée à la focalisation. Dans le cas d'un faisceau gaussien, cette phase est appelée phase de Gouy ([Born 59]) et s'écrit :

$$\varphi_{Gouy}(r, z) = \arg \left[\frac{1}{b + 2iz} \exp \left(-\frac{k_0^0 r^2}{b + 2iz} \right) \right] \quad (2.25)$$

où b est le paramètre confocal donné par $b = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda_0}$ (w_0 étant le rayon de ceinture ou *waist*)

du faisceau), et $k_0^i = \frac{n_0 \omega_0}{c}$. Le vecteur d'onde $\mathbf{k}_0$ peut ainsi s'écrire :

$$\mathbf{k}_0(r, z) = \mathbf{k}_0^i + \mathbf{k}_{geo}(r, z) = \frac{n_0 \omega}{c} \mathbf{u}_z + \nabla \varphi_{Gouy}(r, z) \quad (2.26)$$

$\mathbf{u}_z$ étant le vecteur unitaire de l'axe z , orienté dans le sens de propagation.

La figure 2.5 présente deux cas où l'accord de phase est réalisé : accord de phase sur l'axe de propagation du laser (a) et accord de phase hors axe (b). On remarque qu'en raison du terme $\mathbf{k}_{geo}$, la norme de $q\mathbf{k}_1 = q\mathbf{k}_1^0 + q\mathbf{k}_{geo}$ est légèrement inférieure à celle de $\mathbf{k}_q \approx qk_1^0$. Il s'agit ici d'une représentation schématique simplifiée. Dans des conditions expérimentales, l'accord de phase va être affecté par de possibles aberrations lors de la focalisation, les défauts du profil spatial, la phase intrinsèque du faisceau, etc... Néanmoins, cette description permet de comprendre les mécanismes régissant l'accord de phase.

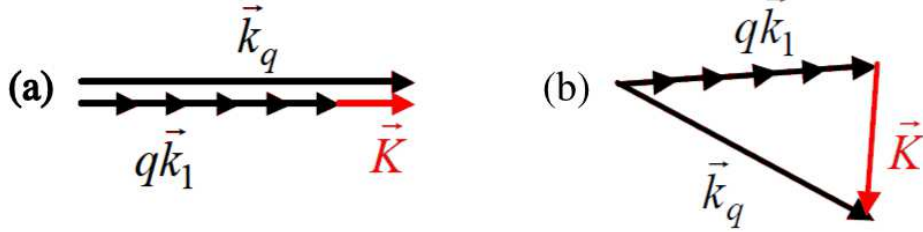


FIGURE 2.5 – Diagrammes d'accord de phase : (a) Sur l'axe ($r = 0$), (b) Hors axe ($r > 0$)

Pour un nombre d'émetteurs donné, le signal maximum pour une harmonique q est obtenu lorsque la condition d'accord de phase est satisfaite pour tous les émetteurs. Cependant, l'émission harmonique peut avoir lieu même si cette condition n'est pas complètement satisfaite. Si une partie non négligeable de ces émetteurs est proche de la condition d'accord de phase, on pourra observer un rayonnement harmonique. Pour quantifier le degré de réalisation de la condition d'accord de phase, on introduit le concept de désaccord de phase :

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_q - q\mathbf{k}_0 - \mathbf{K} \quad (2.27)$$

On tend donc vers des conditions optimales lorsque $\Delta \mathbf{k}$ tend vers 0.

Lorsque la condition d'accord de phase est satisfaite dans tout le milieu générateur, plus celui-ci est long et plus le champ harmonique sera intense. Cependant, la longueur du milieu sur laquelle l'accord de phase est réalisable est limitée : on définit la longueur de cohérence comme la distance entre deux atomes émettant des rayonnements harmoniques en opposition de phase. Cette longueur s'exprime en fonction du désaccord de phase :

$$L_{coh} = \left| \frac{\pi}{\Delta \mathbf{k}} \right| \quad (2.28)$$

Si l'on augmente la longueur du milieu en la gardant inférieure à L_{coh} , on augmente l'amplitude du champ harmonique macroscopique. Si la longueur du milieu dépasse L_{coh} , on pourra trouver des couples d'atomes émettant en opposition de phase (dans une direction donnée) et le signal total diminuera. Ceci se traduit par une condition sur la longueur du milieu L_{med} :

$$\Delta \mathbf{k} L_{med} \leq \pi \quad (2.29)$$

2.3.2 Effet de la dispersion du milieu

Expérimentalement, pour obtenir une émission harmonique intense, il est nécessaire d'avoir une densité d'atomes importante. Plus le nombre d'émetteurs qui contribuent de façon cohérente et constructive est grand, plus le signal détecté est intense. Dans ces conditions, il faut prendre en compte la dispersion du milieu. Elle intervient alors dans l'accord de phase au travers de la dispersion atomique et de la dispersion électronique.

Pour quantifier la dispersion atomique, il faut prendre en compte la dépendance de l'indice optique en fonction de la longueur d'onde ($n_0 \neq n_q$). Ceci introduit un désaccord de phase $\Delta \mathbf{k}_q^{at}$:

$$\Delta \mathbf{k}_q^{at} = \mathbf{k}_q^{at} - q \mathbf{k}_0^{at} = \frac{q \omega_0 \rho}{2c} (\kappa_q^{at} - \kappa_0^{at}) \mathbf{u}_z \quad (2.30)$$

avec κ_0^{at} la polarisabilité statique du milieu et ρ la densité (en atomes/cm³).

La dispersion électronique est due à la densité d'électrons libres produite par l'ionisation du milieu par le champ laser. Si la vitesse de phase des harmoniques d'ordre élevé est peu influencée par la propagation dans le milieu ionisé, celle de l'infrarouge est très dépendante de la densité électronique du milieu. La dispersion électronique est un facteur prépondérant sur l'accord de phase. Le désaccord de phase introduit par la densité électronique est donné par :

$$\Delta \mathbf{k}_q^{elec} = \mathbf{k}_q^{elec} - q \mathbf{k}_0^{elec} = \frac{\omega_p^2}{2cq\omega} (q^2 - 1) \mathbf{u}_z \quad (2.31)$$

où la fréquence plasma ω_p est définie par :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 \rho_e}{m_e \varepsilon_0}} \quad (2.32)$$

avec ρ_e la densité d'électrons libres, m_e et e la masse et charge de l'électron et ε_0 la permittivité du vide. Le vecteur $\Delta \mathbf{k}_q^{elec}$ est orienté dans le sens de propagation du laser.

Ces termes de désaccord de phase évoluent au cours du temps : au fur et à mesure de

la propagation de l'impulsion de génération, la densité d'électrons libres va augmenter, et celle d'atomes neutres diminuer. En particulier, la dispersion du milieu peut compenser le désaccord de phase de façon transitoire au cours de la propagation de l'impulsion de génération ([Constant 99, Mével 00, Kazamias 03, Strelkov 08]).

2.3.3 Influence de l'absorption

Dans un milieu de génération dense, il faut également prendre en compte l'absorption du milieu : si cette absorption est trop importante, le rayonnement émis au début du milieu de génération va être réabsorbé par ce même milieu. On définit la longueur d'absorption L_{abs} comme la longueur au bout de laquelle le rayonnement est atténué d'un facteur $1/e$:

$$L_{abs}(\lambda) = \frac{1}{\rho\sigma_{abs}(\lambda)} \quad (2.33)$$

avec σ_{abs} la section efficace d'absorption, qui décroît en général avec l'ordre harmonique.

Pour des densités du milieu générateur importantes, l'absorption devient le facteur limitant dans l'efficacité de génération (définie pour une harmonique comme le rapport entre l'énergie de cette harmonique et l'énergie de l'impulsion fondamentale) et la longueur utile du milieu s'en trouve réduite. Un bon compromis sur la densité du milieu générateur est obtenu lorsque le nombre d'émetteurs est suffisant pour obtenir un rayonnement intense, mais pas trop grand pour que l'absorption ne soit pas un facteur limitant.

En résumé de ces différentes études sur l'efficacité de génération, il est donc nécessaire de trouver un compromis sur les valeurs de densité du milieu, d'éclairement et sur l'accord de phase pour optimiser l'émission harmonique. [Constant 99, Mével 00] ont montré que 50% de la valeur de l'optimum de conversion est atteint pour un milieu de génération dont la longueur L et la densité vérifient :

$$\begin{cases} L > 3L_{abs} \\ L_{coh} > 5L_{abs} \end{cases} \quad (2.34)$$

La théorie présentée ici permet de comprendre la génération d'harmoniques et d'appréhender les paramètres importants pour l'optimisation. Nous allons maintenant aborder les choses d'un point de vue expérimental avec le chapitre 3 qui présente la source harmonique haute énergie et les résultats obtenus.

Chapitre 3

Développement et caractérisation d'une source harmonique haute énergie

Comme nous l'avons exposé dans le premier chapitre, les sources XUV ultra-brèves présentent de nombreux avantages qui ont fait d'elles un outil incontournable pour l'étude des phénomènes ultra-rapides, et en particulier des dynamiques moléculaires, atomiques et électroniques. Ces sources XUV ultra-brèves issues de la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz, ont donc été largement étudiées et utilisées au cours des vingt dernières années. La génération d'harmoniques est donc à l'heure actuelle bien connue de manière théorique et l'optimisation de ces sources bien maîtrisée. Cependant l'énergie disponible pour ces impulsions attosecondes étant relativement faible (de l'ordre du nanojoule) dans des conditions standards, cela peut être un facteur limitant pour certaines applications. Élargir le champ d'application de ces sources XUV ultra-brèves est d'un intérêt certain pour la recherche scientifique. Des travaux visant à augmenter l'énergie de ces impulsions attosecondes ont été menés durant les dix dernières années ([[Takahashi 02a](#), [Takahashi 02b](#), [Hergott 02](#)]. Si l'énergie de ces impulsions atteint quelques centaines de nanojoules, voir quelques microjoules, on peut induire des transitions à deux photons XUV-XUV et ainsi accéder à la physique non-linéaire dans le domaine XUV. Cela permet alors d'envisager des applications telles que des expériences pompe-sonde avec deux impulsions attosecondes, ou encore la caractérisation directe des impulsions attosecondes par autocorrélation.

De belles expériences ont déjà été réalisées dans ce domaine. Y. Kobayashi *et al.* réalisent en 1998 une autocorrélation XUV-XUV en ionisant de l'hélium, avec les harmoniques 5, 7 et 9 d'un laser Ti : saphir elles mêmes générées dans le xénon ([[Kobayashi 98](#)]). D. Descamps *et al.* ([[Descamps 01](#)]), également avec un laser Ti : saphir, induisent des transitions à deux photons XUV dans le xénon et le krypton, ainsi que des résonances

à trois photons dans l'argon avec la cinquième harmonique (également 160 nm). Celle-ci est également générée dans le xénon. N. A. Papadogiannis *et al.* ([Papadogiannis 03]) utilisent les harmoniques 7, 9, 11 et 13 générées dans le xénon pour ioniser des atomes d'hélium avec deux photons XUV et réalisent l'autocorrélation d'un train d'impulsions attosecondes. T. Sekikawa *et al.* ([Sekikawa 04]) génèrent dans l'argon, l'harmonique 9 d'une impulsion sub-10 fs à 400 nm et réalisent une autocorrélation d'impulsion attoseconde isolée (IAP) dans l'hélium. La durée de cette IAP est de 950 as. Y. Nabekawa *et al.* ([Nabekawa 05]) détiennent le record de l'autocorrélation XUV avec l'harmonique d'ordre le plus élevé. Ils observent des transitions à deux photons dans l'hélium avec l'harmonique 27 du Ti : saphir (42 eV). Les harmoniques sont générées dans l'argon et la durée du train d'impulsions est de 8 fs. Ils réitèrent l'année suivante avec les harmoniques 11,13 et 15 ([Nabekawa 06]). Cette fois-ci les harmoniques sont générées dans une cellule de xénon avec des impulsions à 800 nm, et la durée des impulsions est de 450 as. E. P. Benis *et al.* ([Benis 06]) réalisent presque simultanément une expérience similaire (même harmonique) à la différence qu'ils utilisent de l'argon et du krypton pour la détection. Et je terminerai cette rapide présentation de l'état de l'art de la physique non-linéaire dans l'XUV en citant une fois de plus T. Sekikawa ([Sekikawa 08]) qui réalise des transitions vers l'état excité de $\text{He}^+ 2p^2\ ^1S$ en combinant l'harmonique 19 et l'harmonique 21.

C'est donc cet axe de recherche que nous voulons développer au CELIA. Et pour générer des impulsions XUV intenses, nous disposons de la chaîne laser Ti :saphire haute énergie Eclipse.

3.1 Conception de la source harmonique haute énergie

La chaîne Eclipse peut délivrer des impulsions de 150 mJ pour une durée de 40 fs à une cadence de 10 Hz. L'énergie disponible est donc bien supérieure à celle des impulsions qui sont habituellement utilisées pour la génération d'harmoniques.

Conceptuellement, il n'y a pas de limite d'énergie pour la génération d'harmoniques mais plutôt une limite d'intensité (l'intensité de saturation) à partir de laquelle l'efficacité de génération s'effondre. Si le volume du milieu générateur est augmenté de manière adaptée à l'augmentation d'énergie, on peut maintenir une intensité optimale pour la génération d'harmoniques. Ceci peut se faire en augmentant la distance de focalisation (la surface focale augmente quadratiquement avec la longueur focale).

Pour utiliser 150 mJ (avec des impulsions de 40 fs) et maintenir une intensité de quelques 10^{14} W/cm^2 , il faudrait un rayon de ceinture (ou *waist* en anglais) de 800 μm , soit une focale de 30 m (pour un faisceau gaussien de largeur $W_{1/e^2} = 10 \text{ mm}$). De telles

distances focales poseraient des problèmes d'encombrement (notre salle fait 7 m de long). Nous avons donc choisi d'utiliser une focale de deux mètres, ce qui limitera l'énergie des impulsions génératrices avec des faisceaux gaussiens. Un dispositif de mise en forme spatiale sera ensuite développé pour pouvoir injecter plus d'énergie dans la génération (voir chapitre 4). Le surplus d'énergie disponible pourra également être utilisé en amont de la source harmonique pour travailler sur l'impulsion fondamentale : technique de post compression par ionisation (voir chapitre 5).

Avant d'implémenter ces approches prometteuses, il faut déjà construire la source harmonique et la caractériser dans des conditions standard. Les impulsions fondamentales de 40 fs seront utilisées pour développer cette source et toute l'énergie disponible ne sera pas utilisée dès le départ. Néanmoins, les intensités crête auxquelles nous prévoyons de travailler vont imposer quelques contraintes : les impulsions doivent être recomprimées sous vide et transportées sous vide une fois recomprimées ; la traversée de milieux denses (lentilles, lames d'onde, séparatrices, etc...) est proscrite car les effets non-linéaires altéreraient les caractéristiques du faisceau ($B \approx 5$ pour 1 mm de silice et $W_{1/e^2} = 10$ mm, $\tau = 40$ fs et $E = 150$ mJ, cf annexe D).

Le fait de travailler entièrement sous vide va complexifier le dispositif expérimental : il faudra imager les repères d'alignement au travers de hublots au moyen de miroirs de renvoi et de caméras et certains miroirs doivent être motorisés pour permettre l'alignement sous vide.

La figure 3.1 présente le schéma de principe de la source harmonique. Le miroir réglable sous vide de la *turning box 1* permet de s'aligner sur l'iris, lui même motorisé pour permettre d'optimiser les harmoniques en tronquant le faisceau. Ceci a pour effet à la fois d'augmenter la taille de la tache focale et de diminuer l'énergie transmise par l'iris. L'iris permet donc de trouver de bonnes conditions pour l'intensité dans le milieu générateur. Il offre également un contrôle sur l'accord de phase [Kazamias 03]. Le miroir de la *turning box 2* sert à s'aligner au mieux sur le miroir de focalisation 1 (sphérique avec $R = 4$ m) afin de limiter les aberrations géométriques. Un repère sur le miroir 2, ainsi qu'un iris à l'entrée du spectromètre XUV permettent de définir l'axe pour la génération d'harmoniques.

Pour le milieu de génération, on peut utiliser un jet de gaz pulsé ou une cellule. On dispose de trois axes de réglages (d'une course de 20 mm) pour placer au mieux le milieu de génération sur le trajet du faisceau.

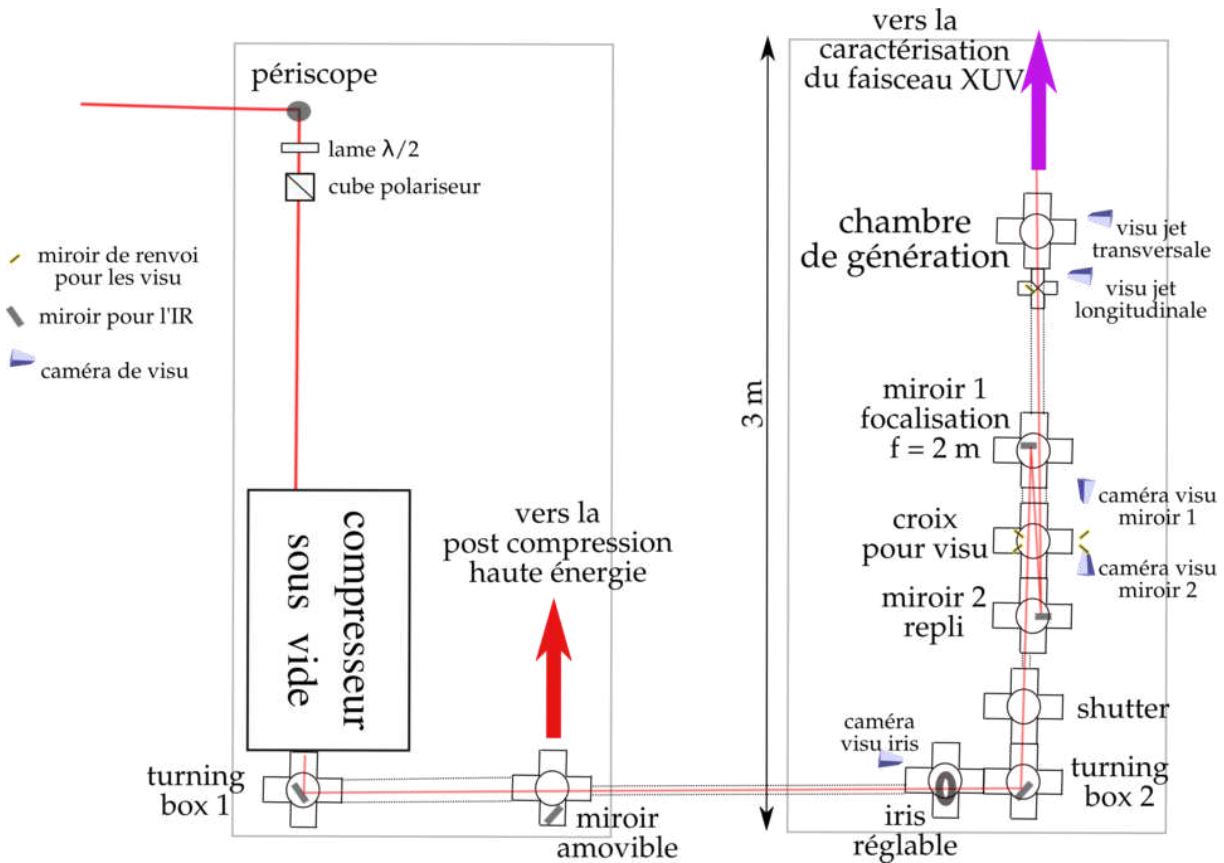


FIGURE 3.1 – Schéma de principe de la source harmonique haute énergie.

Maintenant que nous avons présenté la source de rayonnement XUV, nous allons nous intéresser à la caractérisation des harmoniques en présentant les diagnostics que nous avons développés.

3.2 Diagnostics pour la caractérisation des harmoniques

Pour bien caractériser des impulsions électromagnétiques, il faut mesurer :

- leurs spectres, si possible avec une résolution spatiale
- l'énergie qu'elles contiennent, ou le nombre de photons
- leurs durées (ou la phase spectrale cf. annexe A)
- le profil spatial du faisceau (et la phase spatiale)

Nous nous intéresserons ici aux spectres, au profil spatial et au nombre de photons, au travers de trois diagnostics : spectromètre à réseau, spectromètre à temps de vol et photodiode XUV. L'aspect temporel sera abordé dans le cinquième chapitre.

3.2.1 Spectromètre à réseau

Le spectromètre à réseaux est présenté sur la figure 3.2. Il est composé d'une fente d'entrée de $500\ \mu\text{m}$ (et d'une hauteur de 20 mm), d'un miroir en or qui renvoie le faisceau sur un réseau XUV. Ce dernier diffracte les différentes longueurs d'onde sur des galettes de micro-canaux (*Micro Channel Plate* en anglais, MCP) de 40 mm de diamètre utile. La fente (située à 180 cm de la source) et le miroir en or sont montés sur une platine de translation qui se déplace perpendiculairement au faisceau. Ainsi, on peut laisser passer le faisceau XUV pour d'autres diagnostics ou pour des applications. Le réseau utilisé est un "Hitachi flat field concave grating" (réf : 01-0660 *3). Il s'agit d'un réseau à pas variable de 1200 traits par millimètre, de dimensions $40 \times 70\ \text{mm}$ et de rayon de courbure 13450 mm. Il est situé à 56 cm de la fente et à 56 cm des MCP. Nous l'utilisons avec un angle d'incidence de 87° . Dans ces conditions, il permet d'imager la fente sur les MCP pour la dimension spectrale et il laisse diverger le faisceau dans la dimension spatiale. L'image dans la dimension spatiale correspond aux profils des harmoniques après 3 mètres (distance entre la source et les MCP) de propagation libre. L'ensemble MCP-caméra est également placé sur une platine de translation pour pouvoir détecter les harmoniques dans différentes fenêtres spectrales.

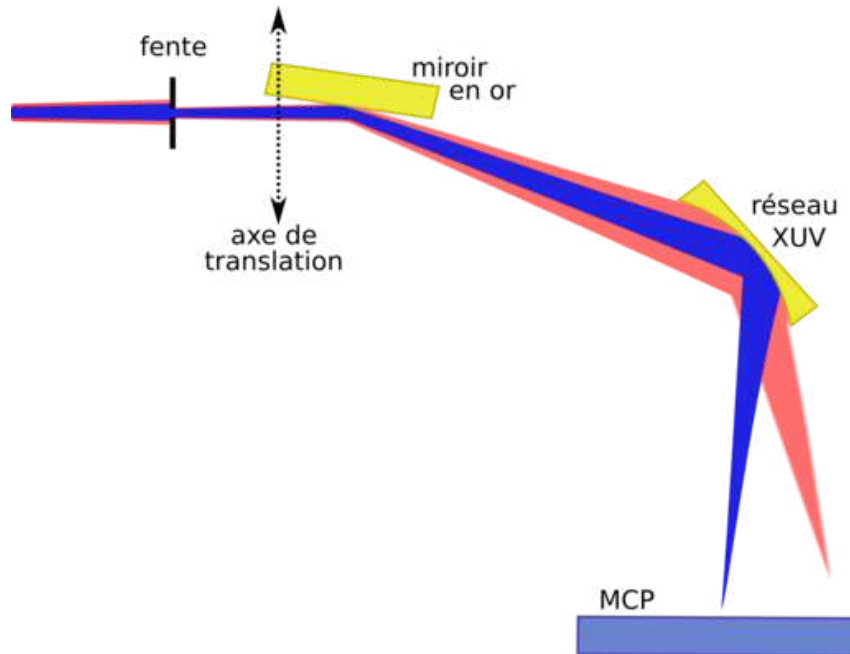


FIGURE 3.2 – Schéma de principe du spectromètre à réseau pour les caractérisations spatiale et spectrale des harmoniques. Le miroir et la fente sont montés sur une platine de translation pour pouvoir libérer le faisceau.

Les MCP sont ensuite imagées sur une caméra CCD 12-bits. Nous pouvons avec ce dispositif obtenir des spectres harmoniques résolus spatialement. La figure 3.3 montre un spectre harmonique détecté avec ce spectromètre. Les harmoniques sont générées dans l'argon avec un diamètre d'iris de 10 mm et 18 mJ sur cible. Le milieu gazeux est créé par un jet de gaz pulsé. On observe les harmoniques 21, 23, 25, 27 et 29. L'axe horizontal correspond à la dimension spectrale et l'axe vertical à la dimension spatiale. De telles images permettent donc d'avoir des informations spectrales résolues spatialement et également des informations spatiales. En effet, la coupe verticale d'une harmonique donne son profil spatial ou plutôt le profil du faisceau XUV transmis au travers de la fente pour la gamme spectrale considérée. Dans la plupart des cas on pourra supposer que le faisceau a une symétrie cylindrique. Une coupe horizontale à une coordonnée r donnée donne le spectre émis dans une direction faisant un angle donné avec l'axe de propagation.

Ce diagnostic est donc très utile pour caractériser les harmoniques. Il donne de plus l'intensité de chaque harmonique sur une échelle d'unité arbitraire. On peut donc optimiser la génération dans la gamme spectrale qui nous intéresse, puis déplacer l'ensemble miroir-fente pour laisser passer le faisceau pour des applications ou pour le caractériser plus quantitativement.

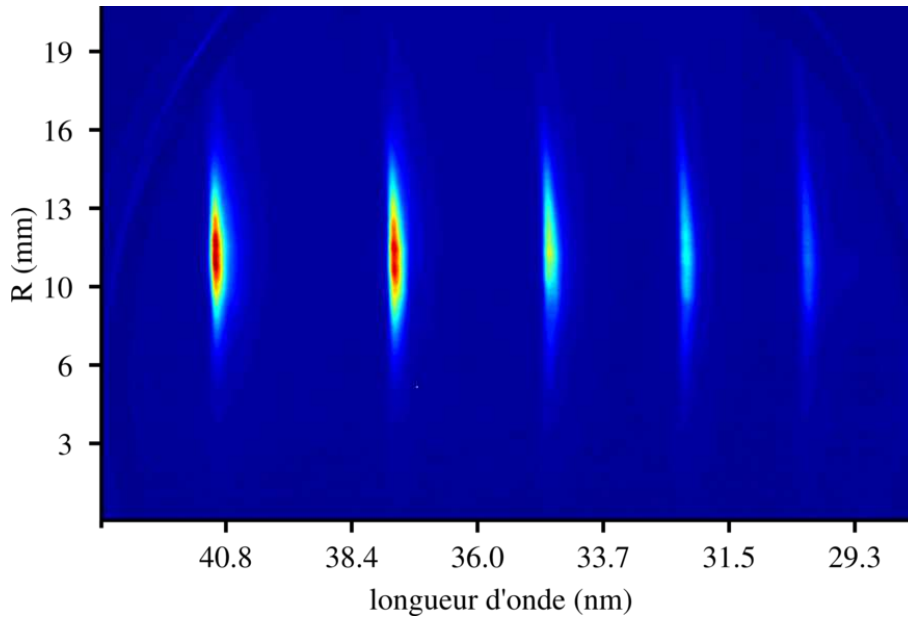


FIGURE 3.3 – Spectre résolu spatialement obtenu avec le spectromètre à réseau. Les harmoniques (H21 à H29) sont générées dans l'argon avec un diamètre d'iris de 10 mm et 18 mJ sur cible. L'axe horizontal correspond à la dimension spectrale, et l'axe vertical à la dimension spatiale.

3.2.2 Spectromètre de masse à temps de vol

3.2.2.1 Description du spectromètre

Dans le cadre de la physique attoseconde, les spectromètres de masse à temps de vol sont utilisés pour détecter des électrons ou des ions. La méthode “temps de vol” consiste à mesurer le temps mis par la particule en question pour parcourir une distance donnée après une phase d’accélération. Cela renseigne sur l’énergie initiale dans le cas des électrons ou sur la nature de l’ion via le rapport masse/charge. Nous avons développé ce diagnostic pour plusieurs raisons :

- pour estimer le nombre de photon via le nombre d’ions détectés,
- pour détecter des spectres de photo-électrons qui sont une signature du spectre harmonique,
- pour détecter les ions résultant transitions à deux photons.

La figure 3.4 présente le schéma du spectromètre. La chambre est constituée d’une région accélératrice *I* (entre les électrodes (1) et (2)) et d’une région de vol libre *II* (entre (2) et (3)). Ces deux régions sont de même longueur ($L = L_1 = L_2 = 20$ cm) afin de satisfaire la condition de “*spatial focusing*” (quel que soit l’endroit dans la zone d’interaction où les ions ou électrons sont créés, ils arriveront sur le détecteur au même instant). Les électrodes (1) et (3) sont des disques de diamètre 12 cm et d’épaisseur 1 mm. Le bâti (0), d’un diamètre intérieur de 15 cm, est séparé en deux au niveau de l’électrode (2) pour permettre un pompage différentiel des deux zones. Le gaz est injecté au centre de la région I par une aiguille. Il existe deux répliques pour l’électrode (2) : une qui possède une ouverture circulaire en son centre de 1 mm de diamètre pour ne sélectionner que les ions ou électrons qui ont un vecteur vitesse dans l’axe du TOF et une qui possède une ouverture rectangulaire (fente) de 1 mm dans le sens horizontal (axe du faisceau) et de 10 mm dans le sens vertical. Cette dernière est moins sélective et permet d’avoir plus de signal. L’électrode (3) est munie en son centre d’un détecteur à galettes de micro-canaux (MCP) de 2 cm de diamètre, précédé d’une grille afin de maintenir un potentiel nul. Les MCP sont reliées à un oscilloscope numérique qui permet d’accumuler des spectres sur un grand nombre de tirs et de compter le nombre d’événements par tir. Pour détecter des ions, on applique un potentiel positif sur l’électrode (1) ; les électrodes (2), (3) et le bâti sont à la masse ; les MCP sont polarisées avec un potentiel de $-2kV$. Pour détecter des électrons, l’électrode (1) est à un potentiel négatif, les électrodes (2), (3) et le bâti sont à la masse et les MCP polarisées avec un potentiel de $+2kV$.

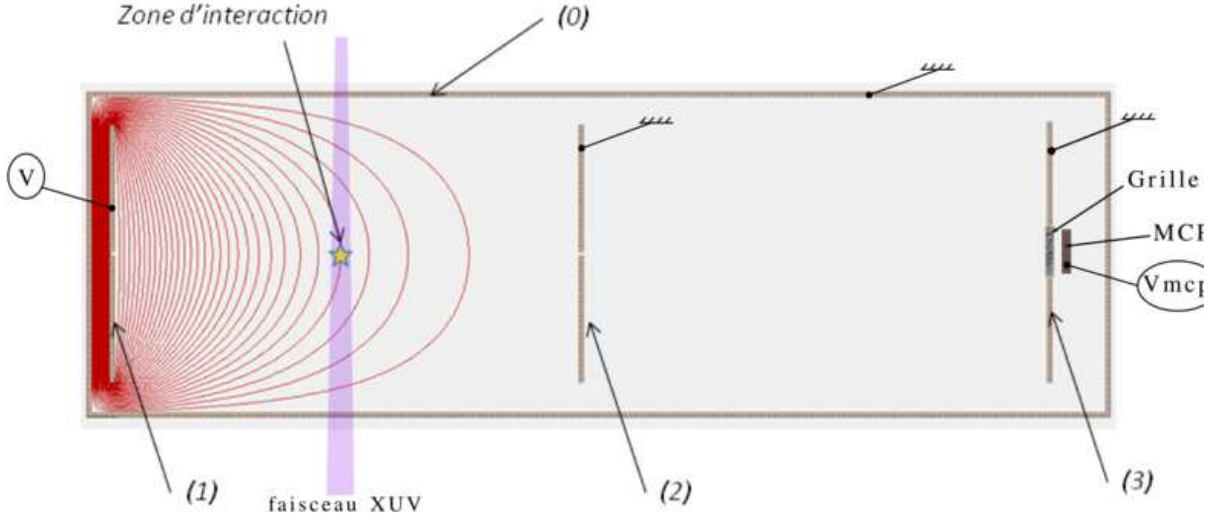


FIGURE 3.4 – Schéma de principe du spectromètre à temps de vol et simulation des lignes de champs électrostatique sous SIMION pour la détection d'ions. Les électrodes sont espacées de 20 cm et ont un diamètre de 12 cm. Le diamètre intérieur du bâti (0) est de 15 cm. Les potentiels appliqués sont : $V = +1000 \text{ V}$ pour électrode (1); 0 V pour les électrodes (2), (3) et le bâti (0); $V_{mcp} = -2000 \text{ V}$. La valeur du potentiel dans la zone d'interaction est alors de 122 V.

Lorsque le TOF est utilisé avec la fente, cela permet en principe de détecter l'intégralité des ions formés par l'interaction avec le milieu gazeux d'un faisceau XUV de diamètre inférieur à 10 mm. C'est effectivement le cas si les lignes de champ sont rectilignes entre les électrodes (1) et (2). Ceci est vrai lorsque l'on considère que les disques sont de diamètres infinis; ou dans une première approximation, que la distance entre le bâti (qui est à la masse) et les électrodes est très grande devant la distance entre les électrodes. Et dans ce cas, le temps de vol pour des ions est donné par la formule :

$$\tau_{vol} = 2L\sqrt{\frac{m}{qV}} \quad (3.1)$$

avec L la longueur d'une région, m la masse de l'ion, et $q = Ze$ sa charge. On considère ici que les ions provenant de l'ionisation d'atome ont une vitesse initiale nulle.

Cependant, dans notre cas, nous avons pu nous rendre compte que le bâti se trouve suffisamment proche des électrodes pour influencer les lignes de champs. Celles-ci sont représentées sur la figure 3.4. Elles ont été déterminées grâce à des simulations effectuées avec SIMION. On constate alors que les lignes de champ forment une lentille électrostatique divergente. La formule 3.1 n'est alors plus valable car le potentiel au centre de la zone d'interaction n'est plus $\frac{V}{2}$. À partir d'un potentiel V appliqué sur l'électrode, on peut déterminer un potentiel effectif $\frac{V_{eff}}{2}$ au centre de la zone d'interaction avec SIMION.

Dans ce cas on peut appliquer la formule suivante :

$$\tau_{vol} = 2L \sqrt{\frac{m}{qV_{eff}}} \quad (3.2)$$

avec $V_{eff} = 0.245 \times V$

On a pu vérifier cette valeur expérimentalement en mesurant le temps de vol d'ions Ar^+ et établir le tableau suivant :

Potentiel	1000 V	245 V	1000 V
Ion	théorique	théorique	expérimental
Ar^+	8.15	16.46	16.46
Ar^{2+}	5.76	11.64	11.60
H_2O^+	5.47	11.04	11.00
O^+	5.15	10.41	10.35
O^{2+}	3.64	7.36	7.35

TABLE 3.1 – Temps de vol théorique en μs établi avec la formule 3.1 pour un potentiel de 1000 V (première colonne), pour un potentiel de 245 V (deuxième colonne). La troisième colonne montre les temps de vol en μs , obtenus expérimentalement avec un potentiel appliqué de 1000 V (soit un potentiel effectif de 245 V).

La figure 3.5 montre un spectre d'ions obtenu dans l'argon avec les impulsions fondamentales.

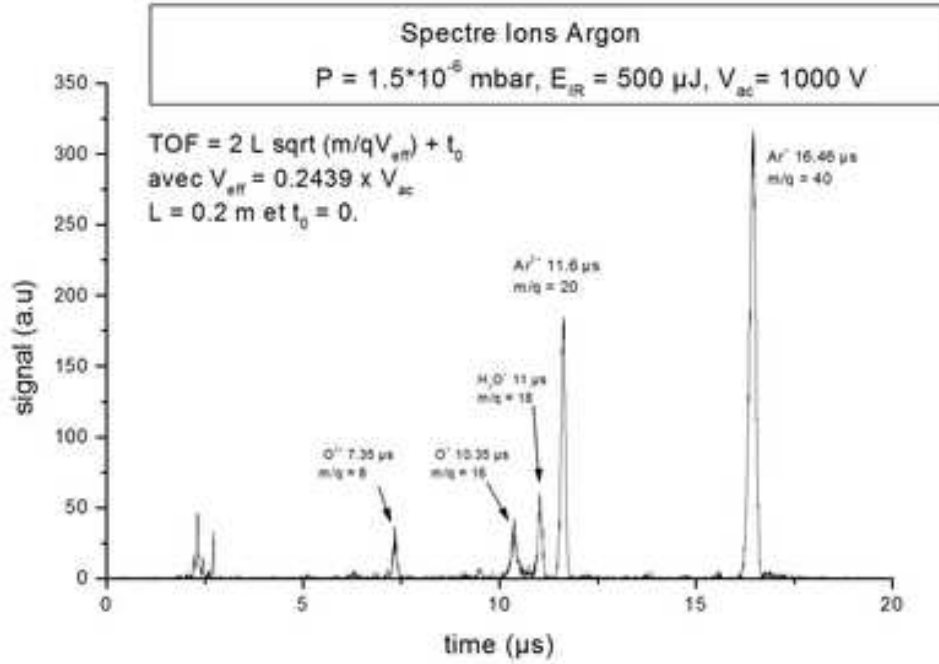


FIGURE 3.5 – Exemple d'un spectre de temps de vol d'ion obtenu dans l'argon.

Nous avons également utilisé le TOF en configuration détection d'électrons. La figure 3.6 donne un exemple de spectre obtenu.

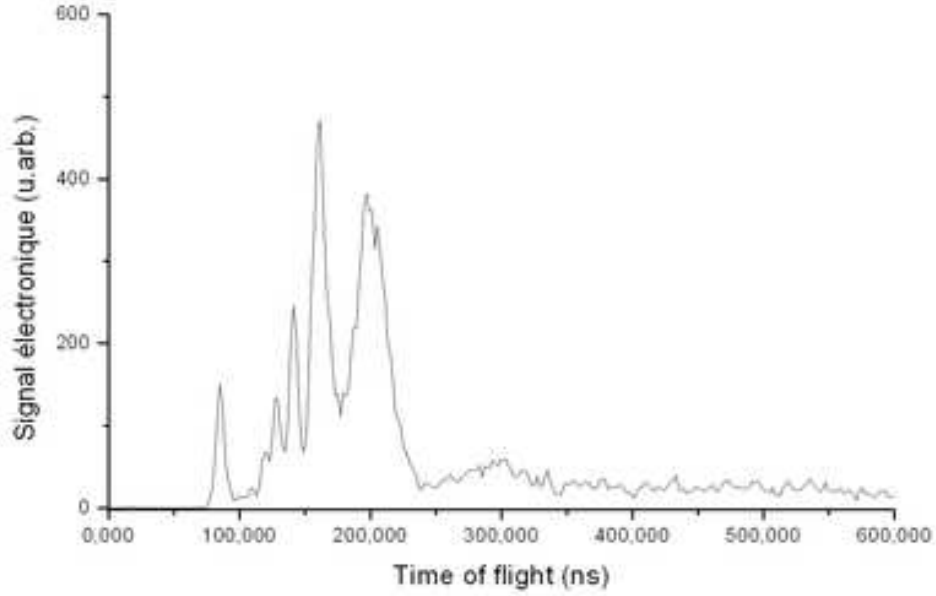


FIGURE 3.6 – Exemple d'un spectre de photoélectrons obtenu dans l'argon avec les impulsions fondamentales. Le potentiel appliqué est de 100 V, soit un potentiel effectif de 24.5 V.

Une fois ce diagnostic bien caractérisé, nous avons pu l'utiliser pour compter les photons XUV.

3.2.2.2 Comptage du nombre de photons avec le spectromètre

Après avoir généré les harmoniques avec l'impulsion fondamentale, on peut laisser le faisceau infrarouge et le faisceau XUV diverger librement jusqu'au TOF situé à 3.5 m de la source. L'intensité de l'infrarouge n'est alors plus suffisante pour ioniser le milieu gazeux et seule l'ionisation à un photon XUV peut avoir lieu. Le nombre d'ions (N_{ion}) détectés va donc être directement relié au nombre de photons XUV (N_{ph}) qui traversent la zone sensible du TOF :

$$N_{ph} = \frac{N_{ion}}{\rho \sigma l \eta} \quad (3.3)$$

où ρ est la densité du gaz, σ la section efficace d'ionisation, l la longueur de la zone sensible et η l'efficacité de détection globale du TOF.

Dans ce cas, on utilise le TOF avec la fente pour maximiser le nombre d'ions (éventuellement détecter l'intégralité du faisceau XUV si son diamètre est inférieur à 2.6 mm). Le gaz est injecté continûment loin de la zone sensible et le faisceau interagit avec la pression ambiante de la région I . À partir de la mesure de la pression ambiante, on peut calculer ρ . Pour la section efficace d'ionisation, connaissant le spectre harmonique, on prendra une moyenne entre la première harmonique au dessus du potentiel d'ionisation du gaz de détection⁶ et la dernière harmonique observée. Pour la longueur d'interaction l , elle correspond en principe à la largeur (dans le sens du faisceau) de la fente, soit ici 1 mm. Ceci est vrai seulement lorsque les ions sont accélérés en ligne droite. Dans notre cas, la lentille électrostatique divergente va réduire la longueur effective d'interaction à 250 μm . L'efficacité de détection globale prend en compte la transmission de la grille devant les MCP (50%) et l'efficacité intrinsèque de détection des MCP pour des ions argon de cette énergie⁷ (5%). Finalement, l'efficacité globale η est de 2.5%.

Remarque sur l'influence de la courbure des lignes de champ :

À cause de la lentille électrostatique, les ions vont avoir tendance à s'éloigner de l'axe du TOF au fur et à mesure de l'accélération. Les simulations sous SIMION permettent d'affirmer que seuls les ions créés sur une longueur de 250 μm vont traverser la fente. La longueur d'interaction est donc réduite d'un facteur 4. Cette correction est prise en compte dans les calculs. Le même phénomène se produit pour la dimension verticale : la hauteur effective de la fente est alors de 2.6 mm. Lorsque le faisceau XUV dans la zone d'interaction a un diamètre supérieur à 2.6 mm, on ne détecte pas la totalité des ions créés. Cet effet pourra être atténué en rapprochant l'électrode (1) de la zone d'interaction, ou en ajoutant des électrodes intermédiaires avec des ponts diviseurs de tension.

6. Les harmoniques d'énergie inférieure à I_p ne produisent pas d'ions et donc ne sont pas comptabilisées dans le nombre de photons calculé.

7. Les ions Ar^+ ont une énergie d'environ 2000 eV lorsqu'ils impactent les MCP. D'après les données constructeur (Technical information Hamamatsu MCP assembly), cela correspond à une efficacité de détection de 5%.

Le tableau 3.2 résume les résultats de ces mesures pour différentes conditions de génération. Les détails du calcul sont présentés dans l'annexe B.

gaz	faisceau	Nb_{ion} /tir	Nb_{ph} /tir	E_{XUV} μJ
Ar	gaussien	240	1.1×10^{11}	0.57
Ar	mis en forme	400	1.9×10^{11}	0.95
Ne	gaussien	16	2.0×10^{10}	0.20
Ne	mis en forme	18	2.3×10^{10}	0.22

TABLE 3.2 – Nombre d'ions et nombre de photons correspondant pour différentes conditions de génération (nature du gaz, mise en forme du faisceau : cf chapitre 4). La troisième colonne donne l'énergie de l'impulsion XUV correspondante (toutes harmoniques confondues) en considérant des photons d'énergie moyenne de 31.5 eV (H21) pour l'argon et de 61.5 eV (H41) pour le néon. Les harmoniques sont générées 18 mm après le foyer dans un jet de gaz pulsé d'argon (diamètre 250 μm) avec 3.5 bar de pression en amont. L'énergie avant l'iris est de 50 mJ.

Nous avons également testé différentes techniques pour s'affranchir du champ fondamental. Le tableau 3.3 résume les résultats pour différentes conditions de propagation avant la détection (génération dans l'argon et faisceau gaussien) :

Conditions	Nb_{ion} /tir	Nb_{ph} /tir	E_{XUV} nJ
2 lames de silice	10	4.5×10^9	22.7
filtre Al 250 nm	2.5	1.1×10^9	5.5
lames + filtre	1	4.5×10^8	2.3
directe	110	5×10^{10}	252

TABLE 3.3 – Nombre d'ions et nombre de photons correspondant pour différentes conditions de détection. La troisième colonne donne l'énergie de l'impulsion XUV correspondante en considérant des photons d'énergie 31.5 eV. Les harmoniques sont générées 20 mm après le foyer dans un jet de gaz d'argon avec 1,2 bar de pression en amont, un diamètre d'iris de 11 mm et 20 mJ sur cible.

3.2.3 Photodiode XUV

Nous avons également utilisé une photodiode XUV pour pouvoir estimer le nombre de photons avec un deuxième diagnostic. Celle-ci est installée à la sortie du TOF alors qu'un filtre aluminium de 250 nm est installé à l'entrée pour s'affranchir de l'infrarouge. Cela permet donc d'avoir une comparaison directe entre les deux mesures. La photodiode utilisée est une XUV-100 (OSI Optoelectronics). Son efficacité quantique est relativement stable ; une paire électron-trou est créée pour une énergie incidente de 3.63 eV (voir figure 3.7). La photodiode est reliée à un oscilloscope numérique qui permet de faire directement

l'intégration du signal électrique reçu pour chaque impulsion. Ainsi l'oscilloscope nous donne la quantité $\int U dt$ en $nV.s$. Le nombre d'électron N_e produit par impulsion XUV s'écrit donc :

$$N_e = \frac{Q}{e} = \frac{1}{Re} \int U dt \quad (3.4)$$

Le nombre de photons N_{ph} pour une harmonique q est ensuite donné par :

$$N_{ph} = \frac{3.63 N_e}{h\nu_q} \quad (3.5)$$

Ici nous mesurons toutes les harmoniques ensembles. Nous prendrons donc une valeur moyenne pour ν en fonction du spectre observé avec le spectromètre à réseau, soit une énergie de photon de 31.5 eV .

Il est à noter en examinant la figure 3.7 que l'efficacité quantique de la photodiode n'est pas vraiment constante sur la gamme spectrale qui nous intéresse. On constate typiquement une baisse d'efficacité autour de 30 eV ; sa valeur est alors de $1e^-/10.9 \text{ eV}$. Les calculs sont donc effectués avec les deux valeurs pour comparer.

La figure 3.8 montre les résultats de ce calcul dans les deux cas, en fonction de l'énergie de génération. Le nombre de photons augmente au départ très rapidement jusqu'à environ 10 mJ , puis la pente devient de plus en plus faible, ce qui traduit la saturation de l'émission XUV. La ligne pointillée correspond aux mêmes conditions que pour les mesures avec le TOF du tableau 3.3 (filtre aluminium et 20 mJ sur cible).

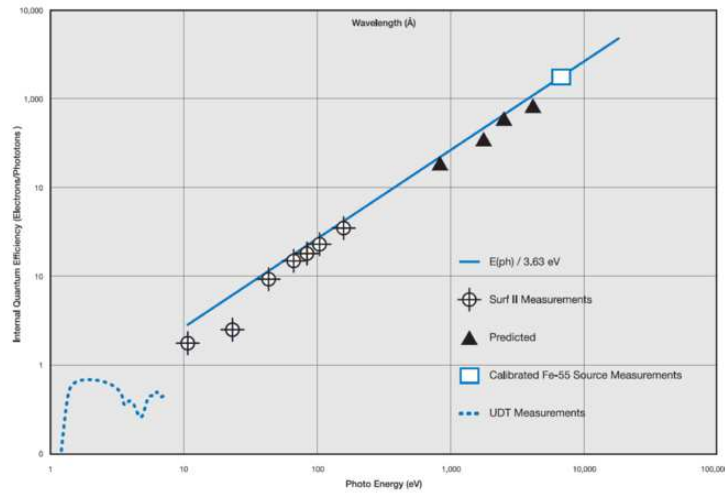


FIGURE 3.7 – Courbe d'efficacité quantique de la photodiode XUV-100.

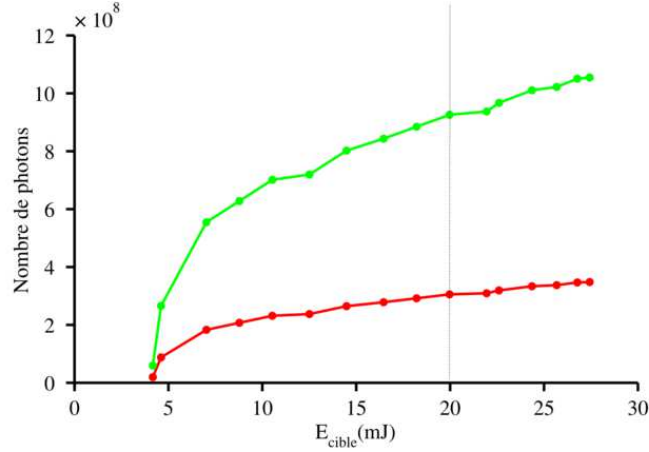


FIGURE 3.8 – Nombre de photons calculé à partir des mesures avec la photodiode : (en rouge) pour une efficacité quantique de $1e^-/3.63 \text{ eV}$ (donnée constructeur); (en vert) pour une efficacité quantique de $1e^-/10.9 \text{ eV}$ en considérant des photons d'énergie 31.5 eV . Les harmoniques sont générées 20 mm après le foyer dans un jet de gaz d'argon avec 1,2 bar de pression en amont, un diamètre d'iris de 11 mm et 20 mJ sur cible.

3.2.4 Comparaison entre les mesures du TOF et de la photodiode XUV

Le dispositif expérimental permet de faire une comparaison directe entre l'estimation du nombre de photons avec le TOF et avec la photodiode. Les harmoniques sont générées 20 mm après le foyer dans un jet de gaz d'argon avec 1.2 bar de pression en amont, un diamètre d'iris de 11 mm et 23 mJ sur cible. Dans ces conditions, le TOF détecte alors 2.5 ions par tir derrière le filtre en aluminium et la photodiode fournit un signal de 20.2 nV.s par tir. Le calcul donne alors 1.1×10^9 photons/tir avec le TOF et 3×10^8 photons/tir avec la photodiode (avec une efficacité quantique de $1e^-/3.63 \text{ eV}$). Il y a un facteur 4 entre ces deux mesures, ce qu'on peut considérer comme un bon accord. Si nous considérons l'efficacité quantique de $1e^-/10.9 \text{ eV}$, l'accord est encore meilleur ($\approx 20\%$ d'écart entre les deux mesures). La photodiode nécessite de s'affranchir complètement de l'infrarouge pour pouvoir mesurer le nombre de photons. En général, on utilise des filtres en aluminium, mais la qualité de fabrication de ces filtres est très importante car le moindre micro-trou va transmettre suffisamment d'infrarouge pour noyer le signal XUV. La plupart des mesures de nombre de photons sont donc effectuées avec le TOF qui est plus facile d'utilisation que la photodiode car il n'est pas nécessaire de s'affranchir de l'infrarouge ($I_{IR} \approx 10^{11} \text{ W/cm}^2$ dans la zone d'interaction pour 50 mJ sur cible).

Maintenant que nous avons présenté la source harmonique et les diagnostics associés, nous nous placerons d'un point de vue global en regardant comment ces divers éléments sont agencés.

3.3 Présentation d'ensemble de l'architecture du système

La salle expérimentale a subi plusieurs évolutions au cours de ces trois dernières années. Lors de mon arrivée au sein du laboratoire, il n'y avait que le compresseur à réseau. Il s'agit de la grosse enceinte rectangulaire en arrière plan sur la figure 3.9. Cette photo a été prise deux mois après le début de ma thèse. On peut y voir la ligne de post compression (cf. chapitre 5) qui était alors en cours de montage. Nous avons ensuite monté la source harmonique (voir figure 3.10) avec au départ un seul diagnostic (spectromètre à réseau). Une fois les spectres bien caractérisés dans les conditions optimales d'utilisation et le TOF fonctionnel, nous avons changé le dispositif expérimental pour pouvoir compter les photons XUV. Le spectromètre à réseau a été désinstallé ; le TOF et la photodiode sont directement installés sur le trajet du faisceau afin de détecter la totalité du faisceau XUV (voir figure 3.11). Nous avons par la suite installé une grosse enceinte pour la caractérisation des harmoniques (voir figure 3.12). Cela permet d'avoir tous les diagnostics fonctionnels simultanément et ouvre même la possibilité d'installer un dispositif RABBITT (cf. chapitre 6) ou encore un système à bi-miroir pour les autocorrélations XUV-XUV.



FIGURE 3.9 – Vue d'ensemble de la salle Eclipse 2 au 30/11/2008.

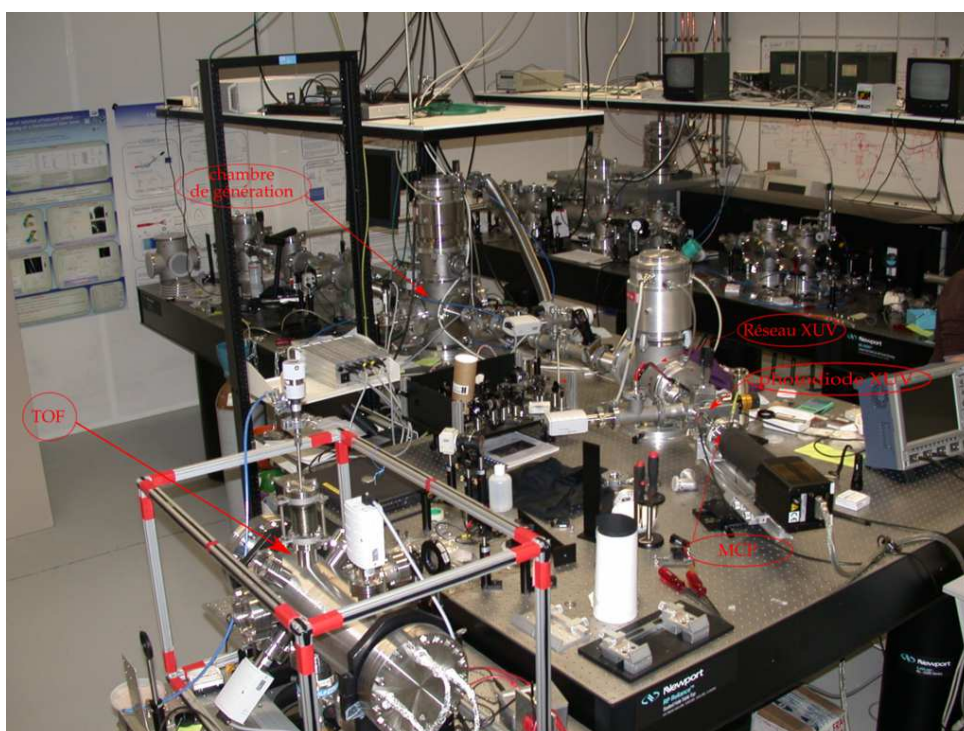


FIGURE 3.10 – Vue d'ensemble de la salle Eclipse 2 au 10/01/2010.



FIGURE 3.11 – Vue d'ensemble de la salle Eclipse 2 au 02/06/2010.



FIGURE 3.12 – Vue d'ensemble de la source harmonique.

3.4 Optimisation et caractérisation de la source harmonique haute énergie

Avant de complexifier la source harmonique en utilisant un dispositif de mise en forme spatiale ou des impulsions post comprimées, il faut d'abord caractériser et optimiser la source dans des conditions standards. Étant donné le but final, nous n'avons pas fait une caractérisation exhaustive de notre source harmonique haute énergie dans le cas de la génération avec l'impulsion directement issue du laser. Nonobstant, cette étude a permis d'apprendre à utiliser la source et de résoudre les divers problèmes "de jeunesse" rencontrés. Cela donne également un point de comparaison pour la suite des travaux. Nous présentons ici les résultats de cette caractérisation.

3.4.1 Influence des différents paramètres d'optimisation

Deux types de paramètres vont intervenir dans la génération d'harmonique : les paramètres laser (énergie des impulsions, durée, diamètre de l'iris, position par rapport au foyer) et les paramètres du milieu (nature du gaz, géométrie, densité). Nous noterons E_{iris} l'énergie des impulsions avant l'iris et ϕ_{iris} le diamètre de ce dernier.

Tous ces paramètres sont interdépendants, néanmoins nous séparerons cette section en deux sous-parties correspondant aux deux géométries testées pour le milieu générateur : une cellule de 8 mm de long et un jet de gaz pulsé de 250 μm de diamètre. Nous avons commencé à mettre en route la source avec la cellule, puis nous sommes passés au jet de gaz qui permet d'avoir un milieu générateur plus fin, ce qui sera par la suite mieux adapté pour la génération avec notre technique de mise en forme spatiale. De plus, à une cadence de 10 Hz, le rendement en terme de gaz injecté est bien meilleur et la pression résiduelle dans la chambre de génération beaucoup plus basse avec le jet de gaz qu'avec la cellule.

3.4.1.1 Génération dans une cellule

Nous présentons ici les premiers spectres obtenus avec la source harmonique haute énergie du CELIA. La cellule offre l'avantage d'être simple d'utilisation et robuste. Elle permet de s'affranchir de certains problèmes potentiels (positionnement, synchronisation,...). De plus, elle permet de produire des milieux longs (ici 8 mm) et de confiner les gaz ; il est donc plus facile d'atteindre la pression optimale de génération qu'avec un jet de gaz. L'inconvénient est que la pression résiduelle dans la chambre de génération est élevée (quelques 10^{-3} mbar) comparativement à un jet de gaz pulsé à 10 Hz (quelques 10^{-4} mbar). Dans toute cette étude, la cellule est placée 10 mm après le foyer.

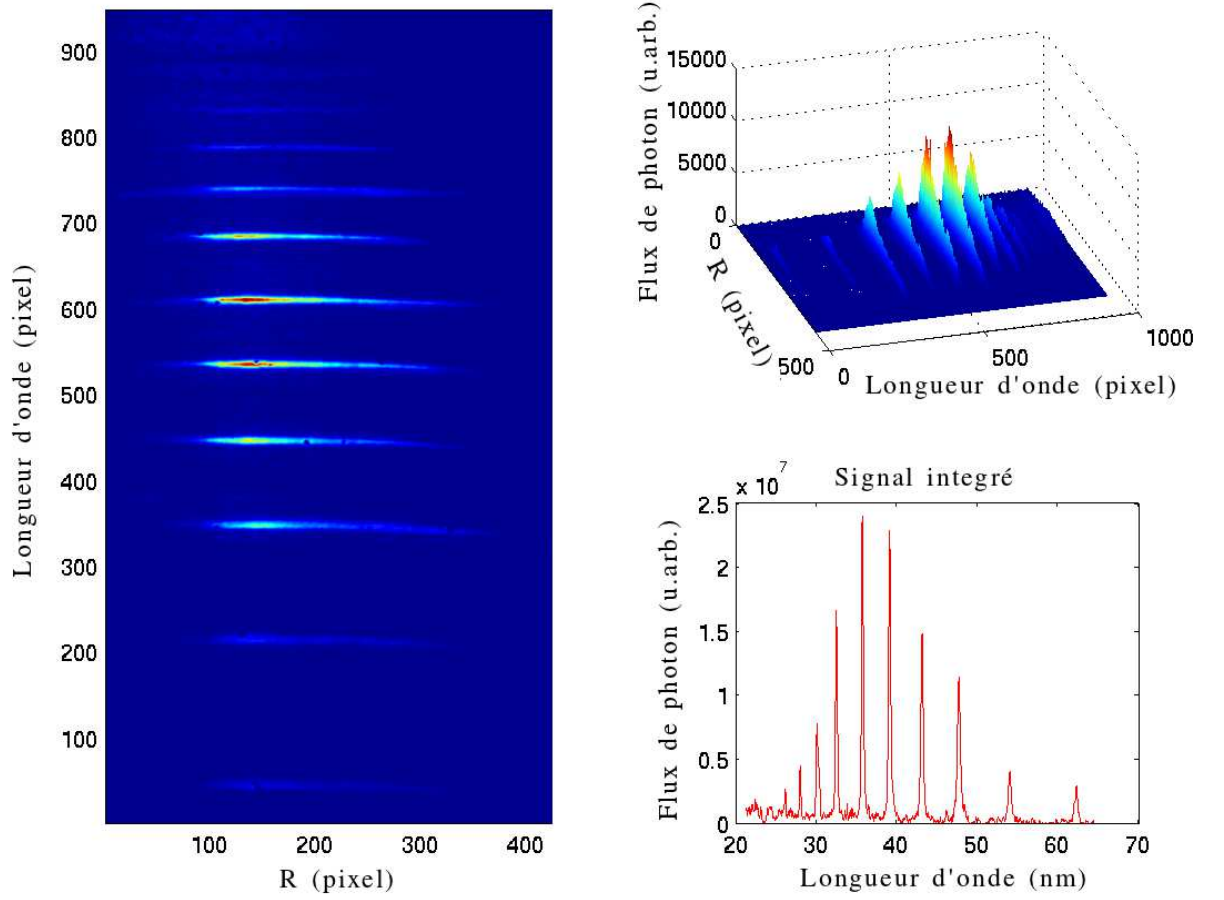


FIGURE 3.13 – Spectre harmonique obtenu dans l’argon pour des conditions de génération optimales ($P = 28$ mbar, $\phi_{iris} = 14$ mm, une énergie avant l’iris 35 mJ soit 20 mJ sur cible). À gauche, le spectre acquis sur les MCP, reconstruit à partir de trois images ; en haut à droite, le graphe en 3D du spectre ; en bas à droite, le spectre intégré. On peut observer dix harmoniques de H13 à H31 (26 à 62 nm). Le spectre est moyenné sur 10 tirs.

L’investigation de l’influence de la position par rapport au foyer manque ici. Nous avons considéré qu’avec la course dont nous disposons sur l’axe z (2 cm) et la grande longueur des paramètres confocaux des faisceaux gaussiens tronqués⁸, ce paramètre ne serait pas très sensible. Nous avons donc focalisé nos études sur les autres paramètres, et nous avons placé le milieu gazeux 10 mm après le foyer.

La figure 3.13 montre un spectre obtenu dans l’argon dans des conditions optimales de génération : une pression en amont de la cellule de 28 mbar, un diamètre d’iris de 14 mm et 35 mJ avant l’iris, soit 20 mJ pour la génération. Le spectre s’étend de l’harmonique

8. 3% de variation de W et 9% de variation de l’intensité pic sur 4 cm de propagation (entre $z = -20$ et $z = +20$ mm) pour un faisceau initialement de largeur W_{1/e^2} de 10 mm tronqué par un iris de 14 mm et focalisé par une lentille de 2 m.

13 à l'harmonique 31 (26 à 62 nm).

La figure 3.14 donne un autre exemple de spectre obtenu dans l'argon avec la cellule. On peut observer 10 harmoniques, de H13 à H29. On distingue bien les trajectoires longues et les trajectoires courtes sur les harmoniques 15, 19 et 21. Les trajectoires courtes apparaissent sous la forme de spots centraux autour desquels les trajectoires longues forment un anneau plus divergent. La taille des anneaux diminue avec l'ordre harmonique et les familles de trajectoires finissent par se confondre dans le *cut-off*, qui s'étend ici jusqu'à l'harmonique 29. Étrangement, les trajectoires longues de l'harmonique 17 n'apparaissent pas, peut-être à cause de l'efficacité du réseau dans cette gamme spectrale (il s'agit ici d'un ancien réseau que nous avons utilisé brièvement avant de recevoir le réseau Hitachi). Par rapport au spectre de la figure 3.13, le *cut-off* va moins loin car l'intensité est plus faible et les harmoniques sont moins divergentes, surtout pour les ordres élevés.

La figure 3.15 montre l'évolution du signal total intégré sur les MCP en fonction de la pression pour les harmoniques hautes (H25 à H33), dans les mêmes conditions de génération que la figure 3.13. Le signal croît de manière quadratique jusqu'à un maximum à environ 32 mbar d'argon. Les conditions optimales de pression sont donc atteintes pour ces conditions de génération. La densité et la longueur du milieu sont donc bien adaptées et l'absorption ne limite pas l'émission. Lorsque la pression augmente encore, le signal décroît lentement, l'absorption devient un facteur limitant.

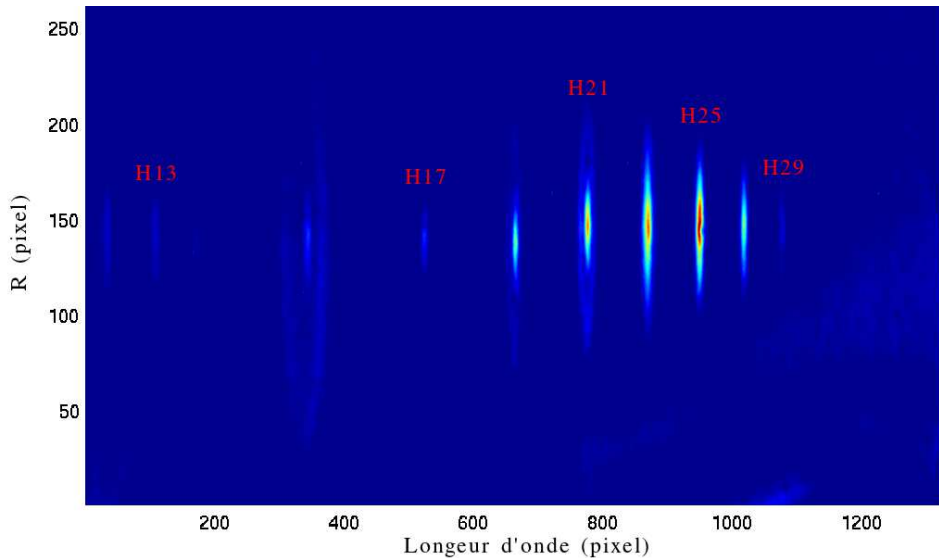


FIGURE 3.14 – Spectre harmonique obtenu dans l'argon pour les conditions de génération suivantes : $P = 23$ mbar, $\phi_{iris} = 10$ mm, une énergie avant l'iris 20 mJ soit 7,3 mJ sur cible. Le spectre est moyenné sur 10 tirs. 9 harmoniques apparaissent : H13 à H29.

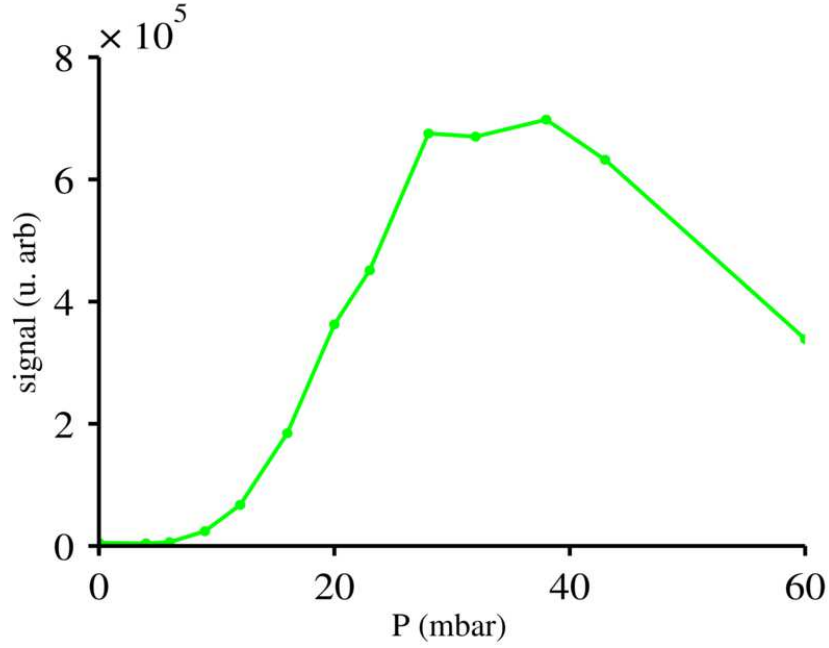


FIGURE 3.15 – Évolution du signal total intégré sur les MCP en fonction de la pression d’argon en amont de la cellule de 8 mm de long. La fenêtre spectrale s’étend de 24 à 32 nm (H25 à H33) ; $E_{iris} = 35$ mJ, $\phi_{iris} = 14$ mm.

La figure 3.16 rend compte de l’influence de l’iris avant le miroir de focalisation : il s’agit du signal total intégré de H25 à H33 en fonction de ϕ_{iris} avec $E_{iris} = 20$ mJ, $P = 23$ mbar. Les harmoniques apparaissent à $\phi_{iris} = 10$ mm. Le signal croît alors rapidement jusqu’à un maximum pour $\phi_{iris} = 12$ mm puis décroît. Donc, pour $\phi_{iris} = 12$ mm, l’intensité dans le milieu est bien adaptée et il y a un bon accord de phase pour ces conditions de génération. Lorsque l’iris est plus ouvert, l’intensité devient trop importante (augmentation de l’énergie transmise par l’iris et diminution de la taille du faisceau focalisé) et l’accord de phase moins bon à cause de l’augmentation du taux d’ionisation. Le signal décroît et l’efficacité de conversion diminue (augmentation de l’énergie laser et diminution du signal).

L’influence de l’énergie sur le signal intégré est présentée sur la figure 3.17. Cette figure n’est pas très bien échantillonnée car il n’y a que quatre points de mesure, néanmoins, on peut observer la tendance : le signal augmente rapidement jusqu’à $E_{iris} = 20$ mJ puis entame une décroissance lente. La diminution du signal pour 25 et 30 mJ peut s’expliquer par une dégradation d’accord de phase à cause de l’augmentation du taux d’ionisation. Pour $E_{iris} = 30$ mJ et $\phi_{iris} = 14$ mm, l’énergie transmise est de 17.5 mJ et l’intensité au centre du faisceau est proche de 10^{15} W/cm², ce qui est bien supérieur à l’intensité de saturation (et même de suppression de barrière dans l’argon : $I_{SB} = 2.47 \times 10^{15}$ W/cm²).

Le milieu générateur peut alors être dépleté : le nombre d'atomes dans l'état fondamental susceptibles de produire un rayonnement XUV diminue au cours du temps. Le signal macroscopique est donc diminué.

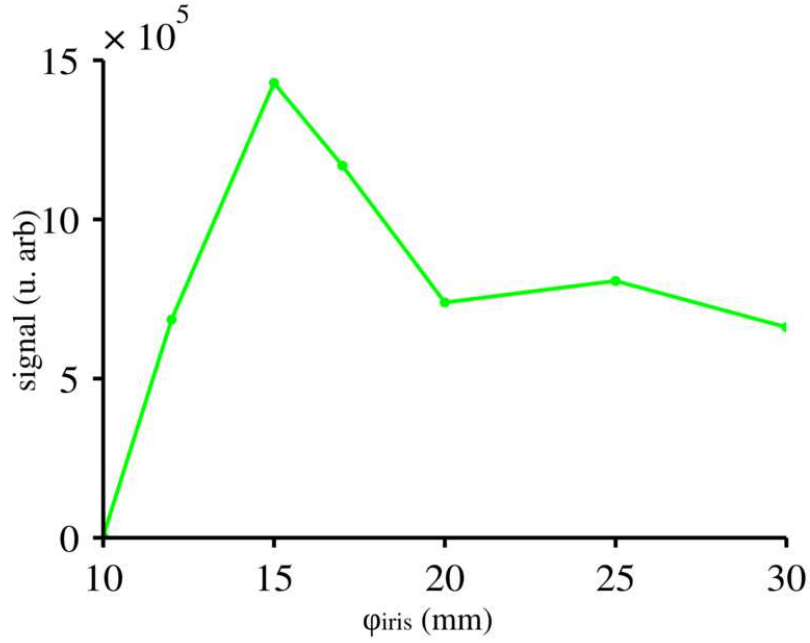


FIGURE 3.16 – Évolution du signal total intégré sur les MCP en fonction de ϕ_{iris} pour une fenêtre spectrale s'étendant de 24 à 32 nm (H25 à H33) ; $E_{iris} = 20$ mJ, $P = 23$ mbar.

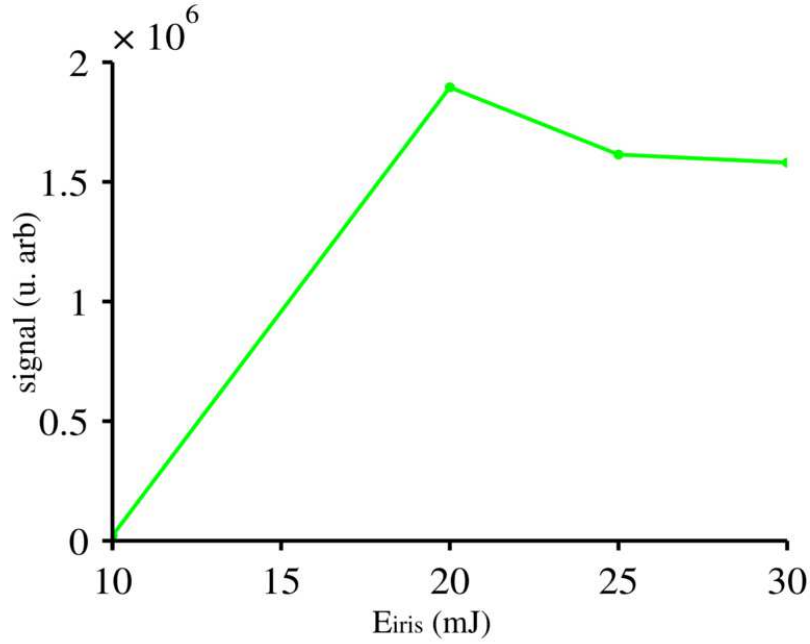


FIGURE 3.17 – Évolution du signal total intégré sur les MCP en fonction de E_{iris} pour une fenêtre spectrale s'étendant de 24 à 32 nm (H25 à H33) ; $\phi_{iris} = 14$ mm, $P = 20$ mbar.

En utilisant une cellule, nous avons pu mettre en route la source harmonique haute énergie et résoudre les divers “problèmes de jeunesse” que peut présenter une nouvelle source. La génération d’harmonique a été caractérisée en fonction du diamètre de l’iris de l’énergie et de la pression et un optimum a été trouvé pour chaque paramètre. L’avantage de la cellule, en plus d’être fiable et robuste, est que le gaz est bien confiné et la pression bien contrôlée. Le fait d’atteindre un optimum de pression montre que de bonnes conditions de génération sont accessibles et cela permettra de comparer les niveaux de signal obtenus avec la génération dans un jet de gaz.

3.4.1.2 Génération dans un jet de gaz

Dans cette partie, le milieu générateur est produit par un jet de gaz pulsé à 10 Hz, de diamètre 250 μm . Une étude systématique de l’influence du diamètre de l’iris et de l’énergie est menée avec trois gaz de génération différents (argon, krypton, néon). Contrairement au cas de la cellule, avec le jet de gaz, plus la pression en amont augmente, plus le signal augmente aussi. Nous n’avons donc pas atteint l’optimum en pression et nous travaillerons alors à la pression maximale permise par le circuit d’alimentation de gaz (3.5 bar) afin de maximiser le signal. Les spectres présentés dans cette partie ont été moyennés sur 20 tirs.

Génération dans l’argon :

La figure 3.18 présente les courbes du flux de photons total (en unités arbitraires) détecté par les MCP en fonction du diamètre de l’iris pour plusieurs valeurs de E_{iris} (énergie incidente sur l’iris).

Si nous nous intéressons qu’aux résultats obtenus dans les mêmes conditions (la sortie du jet de gaz est à un millimètre du faisceau pour les courbes correspondant aux énergies de 35, 50, 75 et 100 mJ), on observe que chaque courbe possède un optimum et que le diamètre d’iris correspondant à cet optimum dépend de E_{iris} . Plus l’énergie augmente plus l’optimum va avoir lieu pour un diamètre d’iris faible : 9 mm pour 35 mJ ; 8 mm pour 50, 75, et 100 mJ ; et l’ensemble du pic se déplace vers les petits diamètres d’iris lorsque E_{iris} augmente.

La courbe noire ($E_{iris} = 25$ mJ) vérifie également cette tendance (optimum pour $\phi_{iris} = 10$ mm), même si dans ce cas le jet de gaz est à ras du faisceau (hauteur minimale du jet de gaz par rapport à l’axe de propagation). Cette observation est donc robuste par rapport à la géométrie du milieu générateur. Le fait d’être plus proche de la sortie du jet permet d’avoir une densité plus importante et un signal plus intense (plus d’un facteur 2 par rapport à la courbe jaune $E_{iris} = 100$ mJ). En éloignant le jet de gaz du faisceau,

le milieu générateur devient moins dense et plus long, et le signal est alors plus faible. Il s'agit donc d'un paramètre de réglage important qui influence la géométrie et la densité du milieu générateur.

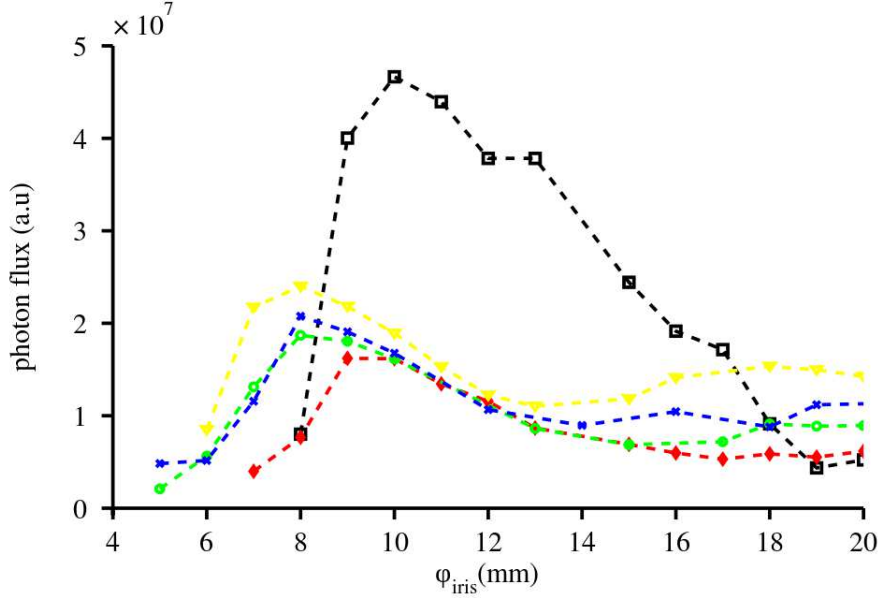


FIGURE 3.18 – Signal intégré sur les MCP en fonction du diamètre de l'iris pour plusieurs énergies incidentes sur l'iris. En noir, 25 mJ ; en rouge 35 mJ ; en vert 50 mJ ; en bleu 75 mJ ; en jaune 100 mJ. Les harmoniques sont générées dans l'argon grâce à un jet de gaz de diamètre 250 μm avec 3.5 bar de pression en amont.

La figure 3.19 montre les spectres correspondant à chacun des optimums. L'allure des spectres est très similaire pour chaque optimum, sauf pour $E_{iris} = 25$ mJ (a) où les conditions de génération sont différentes. Dans ce cas, le profil spatial des harmoniques présente un spot central avec deux lobes. Nous avons donc éloigné le jet de gaz pour obtenir des profils uniformes. Lorsque le jet de gaz est à un millimètre du faisceau (b, c, d, e), les profils spatiaux sont bien définis : les harmoniques présentent un spot central intense (trajectoires courtes) avec autour un halo plus divergent et peu intense (trajectoires longues). Elles présentent un bord droit du côté rouge et une forme d'arc de cercle du côté bleu. Cette forme est due à la présence de *blue-shift* induit par la forte intensité dans le milieu générateur ($1.1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ pour $E_{iris} = 100$ mJ et $\phi_{iris} = 8$ mm). Ce *blue-shift* peut compter deux contributions : un élargissement spectral du fondamental au cours de la génération à cause de l'ionisation et un élargissement des harmoniques dû à la forte variation temporelle de l'intensité ($\propto \frac{dI(t)}{dt}$).

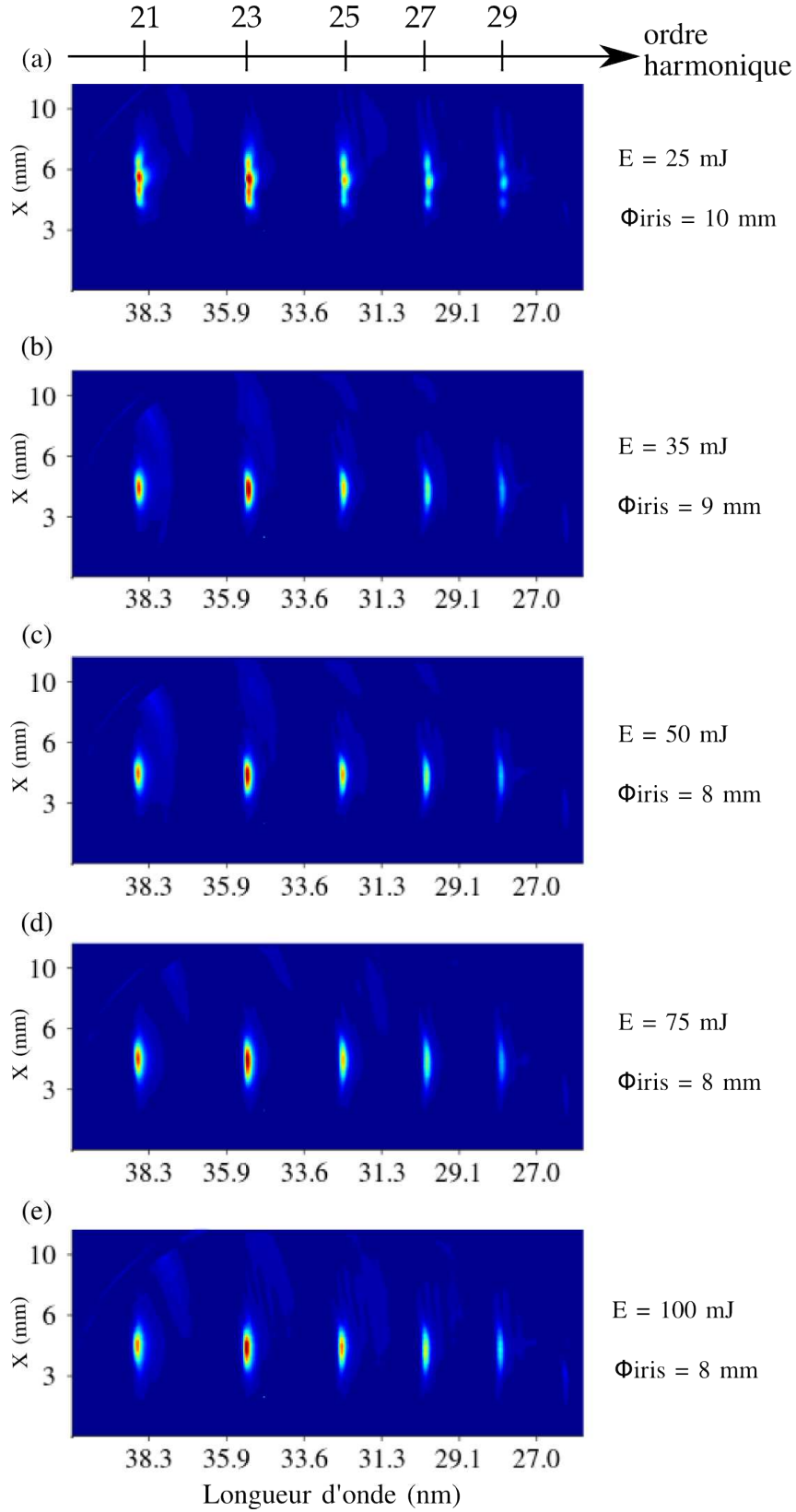


FIGURE 3.19 – Spectres harmoniques obtenus dans l’argon avec un jet de gaz de diamètre 250 μm avec 3.5 bar de pression en amont. La fenêtre d’observation s’étend de 26 à 39 nm (H21 à H29). Les spectres correspondent aux optimums de la figure 3.18 : (a) pour $E_{\text{iris}} = 25 \text{ mJ}$ et $\phi_{\text{iris}} = 10 \text{ mm}$; (b) pour $E_{\text{iris}} = 35 \text{ mJ}$ et $\phi_{\text{iris}} = 9 \text{ mm}$; (c) pour $E_{\text{iris}} = 50 \text{ mJ}$ et $\phi_{\text{iris}} = 8 \text{ mm}$; (d) pour $E_{\text{iris}} = 75 \text{ mJ}$ et $\phi_{\text{iris}} = 8 \text{ mm}$; (e) pour $E_{\text{iris}} = 100 \text{ mJ}$ et $\phi_{\text{iris}} = 8 \text{ mm}$.

La figure 3.20 montre l'évolution des spectres harmoniques en fonction de ϕ_{iris} pour une énergie incidente de 50 mJ. Pour des diamètres d'iris assez fermés ((a) $\phi_{iris} = 9$ mm), le profil des harmoniques est très proche de celui de l'optimum sur la figure 3.19(c). Les trajectoires longues plus divergentes ont par contre complètement disparu. Pour un iris un peu plus ouvert ((b) $\phi_{iris} = 13$ mm), les harmoniques deviennent plus divergentes et moins intenses et un *red-shift* commence à apparaître au centre du faisceau pour les deux harmoniques les plus basses. Pour $\phi_{iris} = 15$ mm (c), le phénomène s'accroît : les harmoniques sont encore moins intenses et le *red-shift* s'étend à toutes les harmoniques.

Pour des diamètres d'iris plus grands (d) et (e), les harmoniques se séparent spectralement et spatialement, donnant naissance à trois spots : une partie sur l'axe qui est décalée vers les longues longueurs d'onde et deux parties hors axe correspondant à la longueur d'onde centrale de l'impulsion génératrice. Pour $\phi_{iris} = 19$ mm, la séparation est bien marquée. Dans ces conditions, l'intensité est très forte (3.9×10^{15} W/cm² pour $E_{iris} = 50$ mJ et $\phi_{iris} = 19$ mm) et le taux d'ionisation augmente très rapidement au centre du faisceau. Le centre du faisceau ne va donc pas contribuer de manière importante à la génération. Par contre, à la périphérie du faisceau où l'intensité est plus faible, la génération d'harmonique sera possible. De plus, le gradient d'intensité sera élevé ce qui donnera lieu à un accord de phase hors axe à cause du terme $\alpha \frac{dI}{dr}$. Un faisceau harmonique annulaire est alors émis, ce qui correspond aux deux spots observés à la position initiale des harmoniques (après sélection par la fente du spectromètre).

Lorsque l'on n'observe que les spots centraux, ils ont clairement l'allure d'un spectre harmonique mais décalé vers le rouge et avec un *cut-off* qui s'étendrait moins loin. Plus l'intensité de génération augmente, plus ce second *cut-off* est repoussé vers des ordres élevés (voir fig. 3.26). Cela fait penser à des recollisions multiples, qui ont été prédites théoriquement ([Balcou 93]). Elles donneraient alors un *cut-off* qui suit la loi : $I_p + 1.5 U_p$. Dans ce cas, les trajectoires électroniques présenteraient une valeur de α très grande ($> 60 \times 10^{-14}$ cm²/W) car leur temps d'excursion est supérieur à T_0 . Les spots qui semblent être décalés vers le rouge (*chirp* positif) pourraient finalement provenir de l'harmonique précédente qui aurait subi un *chirp* négatif important. En effet, dans ces conditions d'interaction avec une intensité bien supérieure à l'intensité de suppression de barrière, on peut considérer que la génération d'harmoniques a lieu dans le front montant de l'impulsion génératrice, et donc que $-\alpha \frac{dI}{dt}$ est négatif, et les harmoniques subissent un *blue-shift*.

Une autre explication possible pour l'observation de cette nouvelle famille d'harmoniques serait l'auto-modulation de phase en régime de forte ionisation (*SPM-induced chirp*, [Kim 04, Zhou 96]), mais dans ce cas la dérive de fréquence étant induite sur le

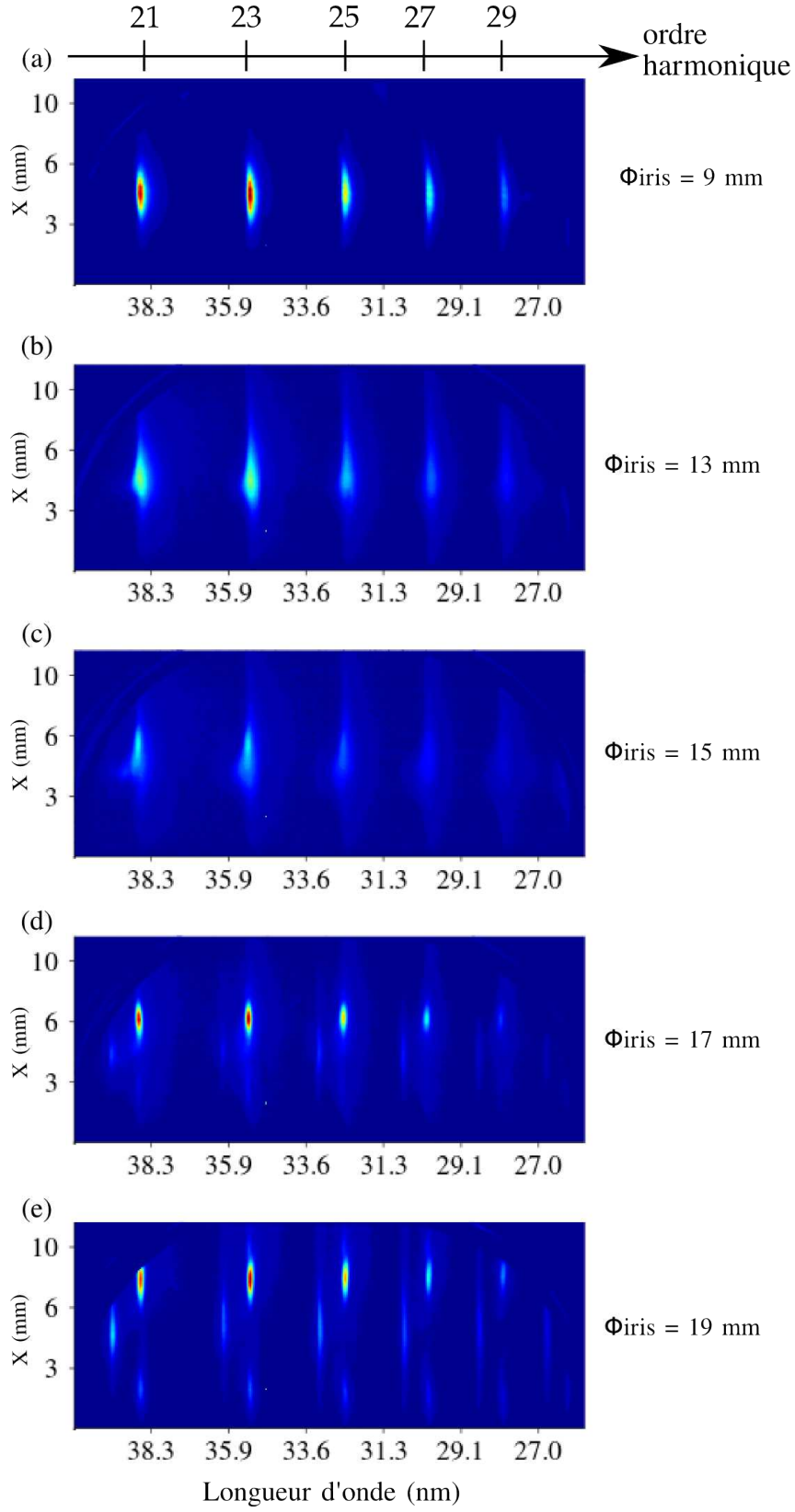


FIGURE 3.20 – Evolution des spectres harmoniques obtenus dans l'argon en fonction de ϕ_{iris} pour $E_{iris} = 50 \text{ mJ}$ avec un jet de gaz de diamètre $250 \mu\text{m}$ avec 3.5 bar de pression en amont. La fenêtre d'observation s'étend de 26 à 39 nm (H21 à H29). (a) $\phi_{iris} = 9 \text{ mm}$; (b) $\phi_{iris} = 13 \text{ mm}$; (c) $\phi_{iris} = 15 \text{ mm}$; (d) $\phi_{iris} = 17 \text{ mm}$; (e) $\phi_{iris} = 19 \text{ mm}$.

fondamental, toutes les harmoniques devraient présenter les mêmes structures spectrales. Or nous constatons que ces structures apparaissent progressivement en fonction de l'ordre harmonique lorsque l'intensité augmente (voir figure 3.26), ce qui semble indiquer que ce phénomène est induit lors du processus de génération. La première hypothèse paraît donc plus adaptée aux observations expérimentales.

Génération dans le néon :

La figure 3.21 montre l'évolution du flux de photons total (en unités arbitraires) détecté par les MCP en fonction du diamètre de l'iris pour plusieurs valeurs de E_{iris} dans le cas de la génération dans le néon. On observe des tendances similaires à l'argon : pour chaque valeur de E_{iris} , les harmoniques apparaissent dès que l'iris est suffisamment ouvert pour obtenir l'intensité minimale pour induire des effets non-linéaires d'ordre élevé. Le signal croît ensuite très rapidement jusqu'à un optimum puis décroît pour atteindre des valeurs très faibles à partir de $\phi_{iris} = 18$ mm quelque soit l'énergie injectée. Par contre, la valeur de ϕ_{iris} pour l'optimum dépend de E_{iris} : 12 mm pour 25 mJ, 10 mm pour 50 mJ et 9 mm pour 100 mJ. On constate également que plus on injecte d'énergie, plus on peut obtenir un signal harmonique important (1.8×10^7 pour 25 mJ contre 4×10^7 pour 100 mJ). Il est à noter que les courbes sont très similaires et se recouvrent pratiquement entre $\phi_{iris} = 12$ mm et 18 mm (phénomène de saturation).

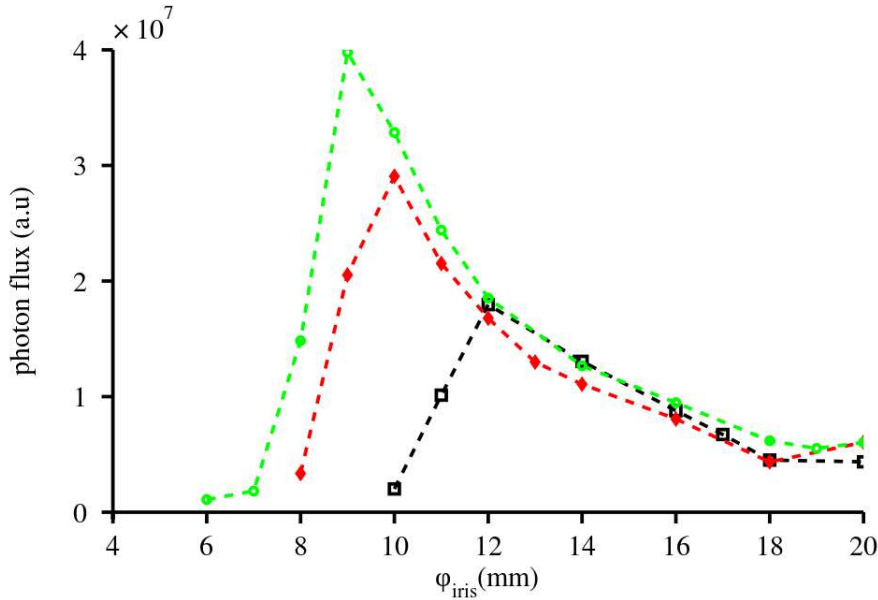


FIGURE 3.21 – Signal intégré sur les MCP en fonction du diamètre de l'iris pour plusieurs énergies incidentes sur l'iris. En noir, 25 mJ; en rouge 50 mJ; en vert 100 mJ. Les harmoniques sont générées dans le néon grâce à un jet de gaz de diamètre 250 μ m avec 3.5 bar de pression en amont.

La figure 3.22 montre les spectres obtenus dans le néon pour chacun des optimums. Les spectres sont dans ce cas très similaires : les harmoniques (pour les trajectoires courtes) sont intenses, bien définies et peu divergentes pour les ordres harmoniques les plus bas.

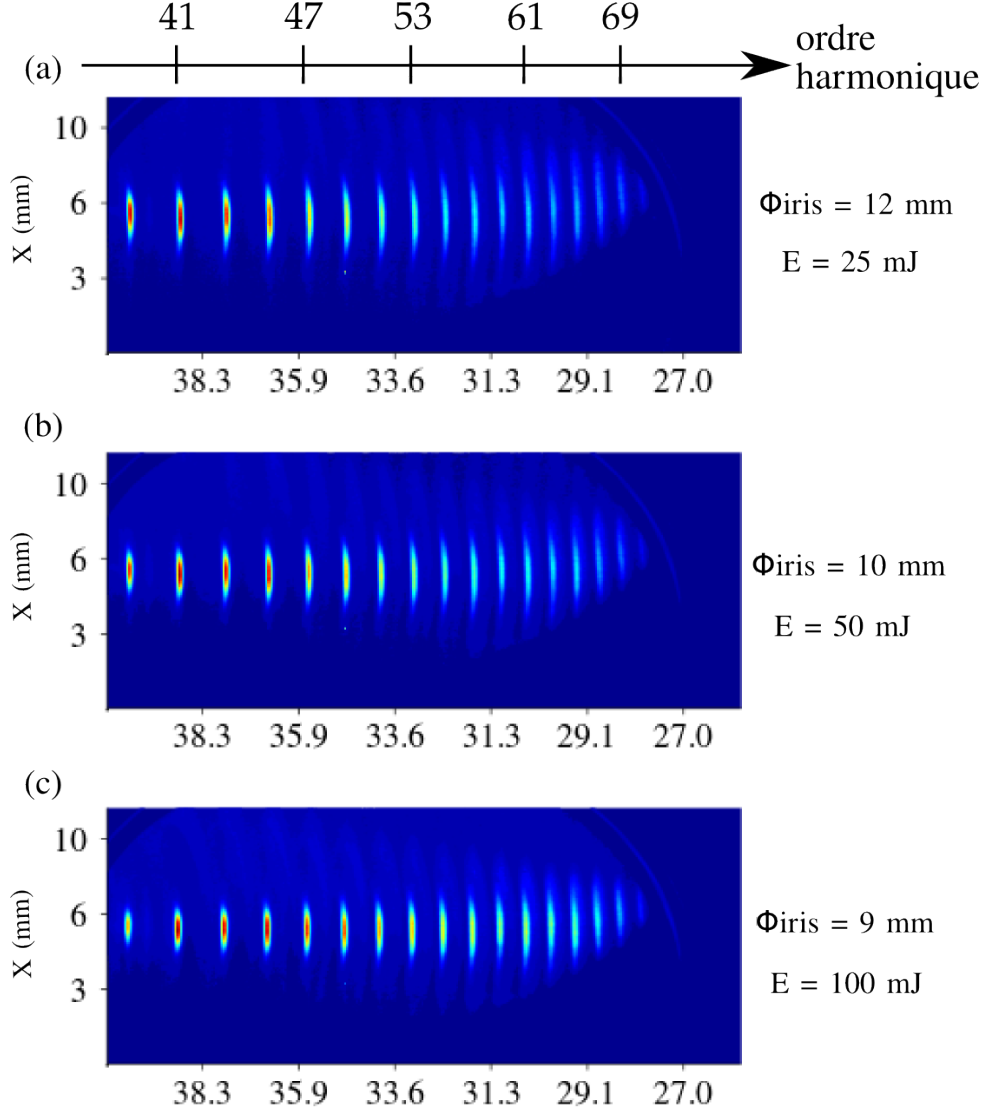


FIGURE 3.22 – Spectres harmoniques obtenus dans le néon avec un jet de gaz de diamètre 250 μm avec 3.5 bar de pression en amont. La fenêtre d’observation s’étend de 11 à 22 nm (H39 à H69). Les spectres correspondent aux optimums de la figure 3.21 : (a) pour $E_{iris} = 25$ mJ et $\phi_{iris} = 12$ mm ; (b) pour $E_{iris} = 50$ mJ et $\phi_{iris} = 10$ mm ; (c) pour $E_{iris} = 100$ mJ et $\phi_{iris} = 9$ mm.

La divergence augmente avec l’ordre harmonique. On distingue clairement les trajectoires longues qui forment des anneaux dissymétriques étirés du côté bleu. Elles sont très divergentes pour les ordres harmoniques les plus bas, et contrairement aux trajectoires courtes, leur divergence diminue avec l’ordre harmonique et elles finissent par se confondre avec les trajectoires courtes (surtout sur le spectre (c) : $E_{iris} = 100$ mJ et $\phi_{iris} = 9$

mm). Plus l'énergie est élevée, plus le diamètre d'iris est petit et plus la divergence des harmoniques est faible.

La figure 3.23 montre des spectres harmoniques obtenus dans l'argon pour différents diamètres d'iris avec $E_{iris} = 100$ mJ.

Pour $\phi_{iris} = 8$ mm (a), le spectre est très joli et on peut distinguer très clairement les trajectoires courtes et les trajectoires longues jusqu'à l'ordre 47. Les spots correspondant aux trajectoires courtes et peu intenses pour les harmoniques basses. Les anneaux sont bien symétriques contrairement au cas des optimums. Les deux types de trajectoires finissent par se confondre à partir de H51 pour produire des harmoniques très intenses jusqu'à H59, avec un *cut-off* qui s'étend jusqu'à H67. On distingue également des spots diffus qui apparaissent en haut de l'image entre les anneaux qui font penser à une autre famille d'harmoniques décalées spectralement et spatialement.

Pour $\phi_{iris} = 10$ mm (b), le spectre est très similaire à celui de l'optimum ($\phi_{iris} = 9$ mm, figure 3.22(c)) à la différence que les trajectoires longues (trop divergentes) ont disparu.

En augmentant encore le diamètre de l'iris ($\phi_{iris} = 12$ mm (c)), les harmoniques deviennent très divergentes et la divergence est similaire pour tous les ordres harmoniques.

Pour $\phi_{iris} = 16$ mm (d), la divergence et le profil des harmoniques restent semblables au spectre précédent, mais l'intensité des harmoniques a grandement diminué.

Sur le dernier spectre ($\phi_{iris} = 19$ mm (e)) on constate que, malgré le potentiel d'ionisation plus élevé du néon, il est également possible d'observer un dédoublement spectral des harmoniques (apparition d'une composante *red-shiftée*). Mais cela ne se produit qu'à l'énergie maximale de l'étude (100 mJ) et pour des diamètres d'iris grands ($\phi_{iris} > 19$ mm).

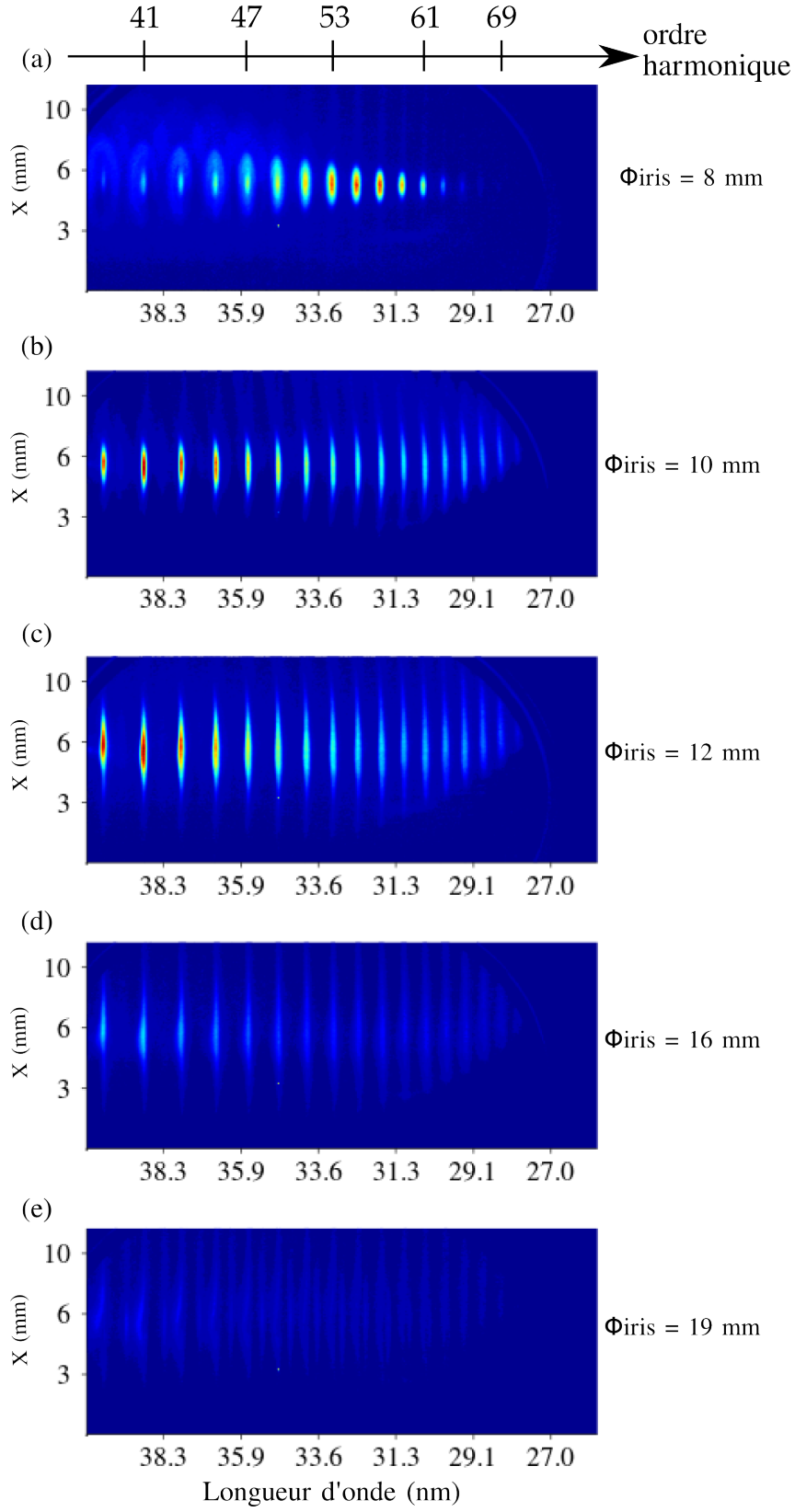


FIGURE 3.23 – Evolution des spectres harmoniques obtenus dans le néon en fonction de ϕ_{iris} pour $E_{iris} = 100 \text{ mJ}$ avec un jet de gaz de diamètre $250 \mu\text{m}$ avec 3.5 bar de pression en amont. La fenêtre d'observation s'étend de 11 à 22 nm (H39 à H69). (a) $\phi_{iris} = 8 \text{ mm}$; (b) $\phi_{iris} = 10 \text{ mm}$; (c) $\phi_{iris} = 12 \text{ mm}$; (d) $\phi_{iris} = 16 \text{ mm}$; (e) $\phi_{iris} = 19 \text{ mm}$.

Génération dans le krypton :

Nous avons également généré des harmoniques dans le krypton, les principaux résultats sont résumés ici. Cette étude a été réalisée ultérieurement à celles présentées précédemment. Entre-temps nous avons pu améliorer le circuit de gaz afin de supporter des pressions un peu plus élevées. Nous utilisons également le jet de gaz, mais avec cette fois ci 4.5 bar de pression en amont. Ce dernier est également placé à 18 mm après le foyer.

La figure 3.24 montre l'évolution du flux de photons total (en unités arbitraires) détecté par les MCP en fonction du diamètre de l'iris pour $E_{iris} = 35$ mJ et 60 mJ dans le cas de la génération dans du krypton. Comme pour le néon et l'argon, il existe un diamètre d'iris optimum pour chaque valeur d'énergie et le diamètre est d'autant plus petit que l'énergie est élevée ($\phi_{iris} = 10.5$ mm pour $E_{iris} = 35$ mJ et $\phi_{iris} = 9.5$ mm pour $E_{iris} = 60$ mJ).

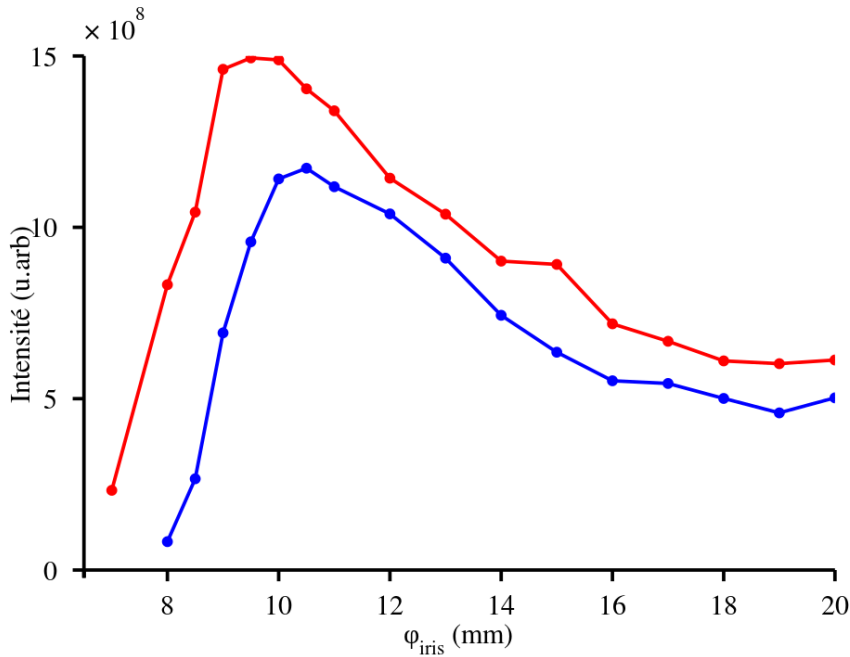


FIGURE 3.24 – Signal intégré sur cinq harmoniques (H21 à H29) en fonction du diamètre de l'iris pour une énergie incidente de 35 mJ (en bleu) et 60 mJ (en rouge). Les harmoniques sont générées dans du Krypton grâce à un jet de gaz de diamètre 250 μ m avec 4.5 bar de pression en amont.

Il est très intéressant d'examiner l'évolution des spectres obtenus dans le krypton en fonction du diamètre de l'iris. Ces spectres sont présentés sur les figures 3.25 et 3.26 dans le cas d'une énergie injectée de 35 mJ.

Pour $\phi_{iris} = 9$ mm (figure 3.25 (a)), on retrouve une fois de plus le spectre caractéristique des petits diamètres d'iris, où on distingue les trajectoires courtes et les trajectoires

longues. Pour l'harmonique 21, l'anneau dû aux trajectoires longues est clairement visible, et assez intense.

En augmentant le diamètre d'iris d'un millimètre ($\phi_{iris} = 10$ mm (b)), l'allure du spectre change radicalement. Les spots centraux deviennent dissymétriques pour les harmoniques 21 et 23 : ils prennent une forme “d'arc” et s'allongent pour les trois autres harmoniques (augmentation de la divergence). Les trajectoires longues deviennent également dissymétriques et ne forment plus que des demi-anneaux. Un deuxième anneau est apparu autour de l'harmonique 21.

Pour $\phi_{iris} = 10.5$ mm (c), toutes les harmoniques commencent à se ressembler, sauf H21 qui a toujours une forme d'arc. Les trajectoires longues sont visibles pour toutes les harmoniques et leur divergence est similaire quelque soit l'ordre ; sauf H21 pour laquelle le premier anneau a disparu, mais qui possède un deuxième anneau peu divergent.

A $\phi_{iris} = 12$ mm (d), tous les anneaux ont disparu et les trajectoires courtes sont elles-mêmes très divergentes (≈ 4 mrad). Une réplique est apparue du côté bleu pour chaque harmonique. Les harmoniques 21 et 23 ont une excroissance en leur centre du côté rouge.

Pour $\phi_{iris} = 14$ mm (e), le spectre harmonique ressemble au précédent, néanmoins, on peut voir que les répliques se sont multipliées du côté bleu pour les harmoniques 21, 23 et 25. Elles commencent alors à être très larges spectralement. Un spot commence à apparaître du côté rouge juste devant l'harmonique 21.

Les spectres pour des diamètres d'iris supérieurs à 14 mm sont exposés sur la figure 3.26.

A $\phi_{iris} = 15$ mm (a), un spot à gauche de l'harmonique 21 est clairement apparu, et un autre devant l'harmonique 23.

En augmentant d'un millimètre ($\phi_{iris} = 16$ mm (c)), les deux spots deviennent plus intenses et plus divergents, alors qu'un troisième apparaît devant l'harmonique 25.

Pour $\phi_{iris} = 17$ mm (d), un spot est apparu devant chaque harmonique. Il semble que les harmoniques initiales commencent à être déplétées par cette nouvelle famille d'harmoniques. Cette dernière fait vraiment penser à un autre *cut-off* (régularité et évolution avec l'intensité). Ce comportement est donc robuste quelque soit le gaz, et cela appuie l'hypothèse de l'observation de recollisions multiples.

Lorsque le diamètre augmente encore ($\phi_{iris} = 19$ mm (d)), les “anciennes” harmoniques se fondent dans les nouvelles par leur centre et se séparent alors spatialement.

Pour $\phi_{iris} = 20$ mm (e), les “nouvelles” harmoniques sont moins intenses alors que les “anciennes” sont clairement séparées en deux parties très divergentes : elles commencent à sortir du détecteur.

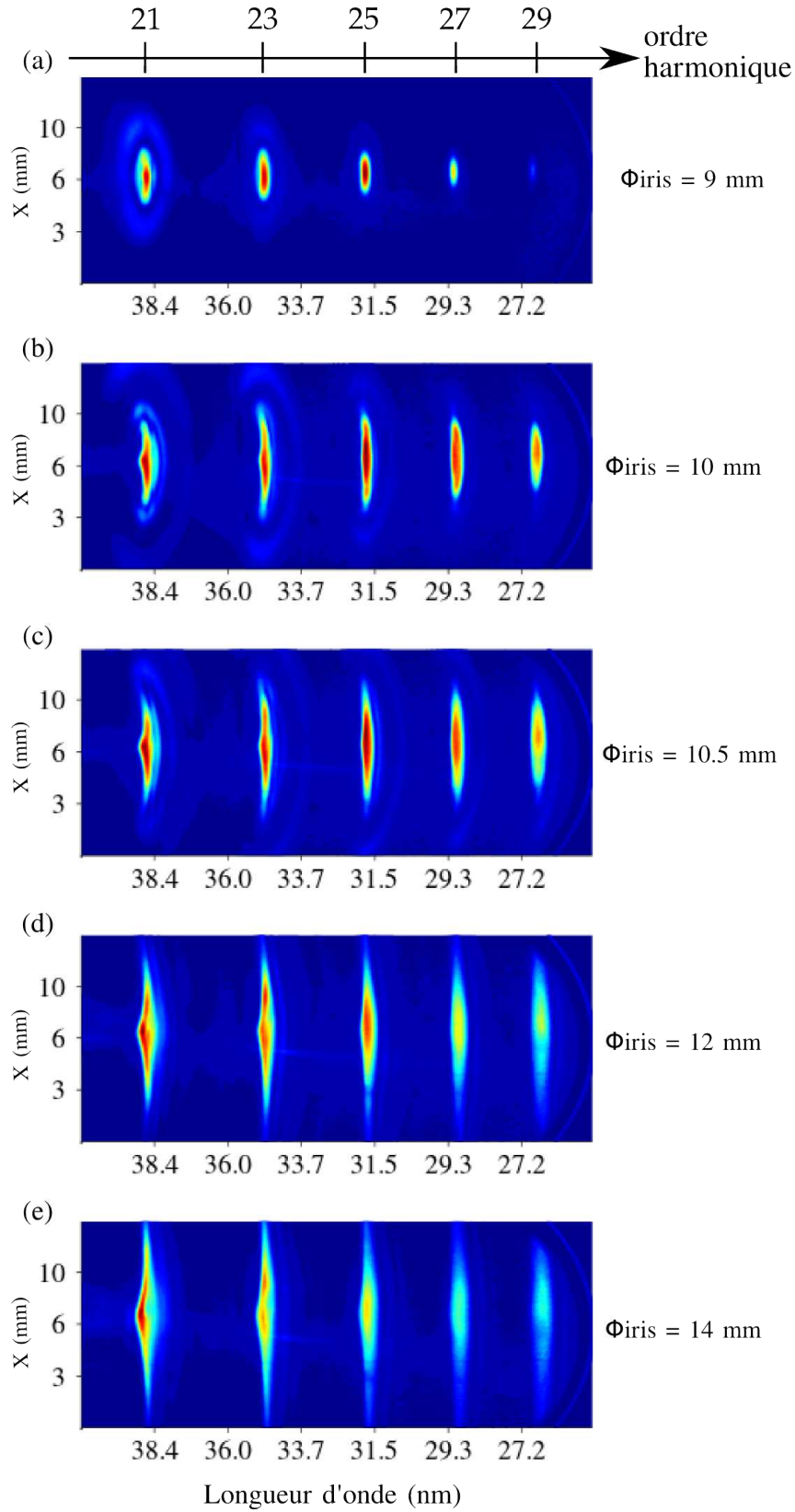


FIGURE 3.25 – Evolution des spectres harmoniques obtenus dans du krypton en fonction de ϕ_{iris} pour $E_{\text{iris}} = 35 \text{ mJ}$ avec un jet de gaz de diamètre $250 \mu\text{m}$ avec 4.5 bar de pression en amont. La fenêtre d'observation s'étend de 26 à 39 nm (H21 à H29). (a) $\phi_{\text{iris}} = 9 \text{ mm}$; (b) $\phi_{\text{iris}} = 10 \text{ mm}$; (c) $\phi_{\text{iris}} = 10.5 \text{ mm}$; (d) $\phi_{\text{iris}} = 12 \text{ mm}$; (e) $\phi_{\text{iris}} = 14 \text{ mm}$.

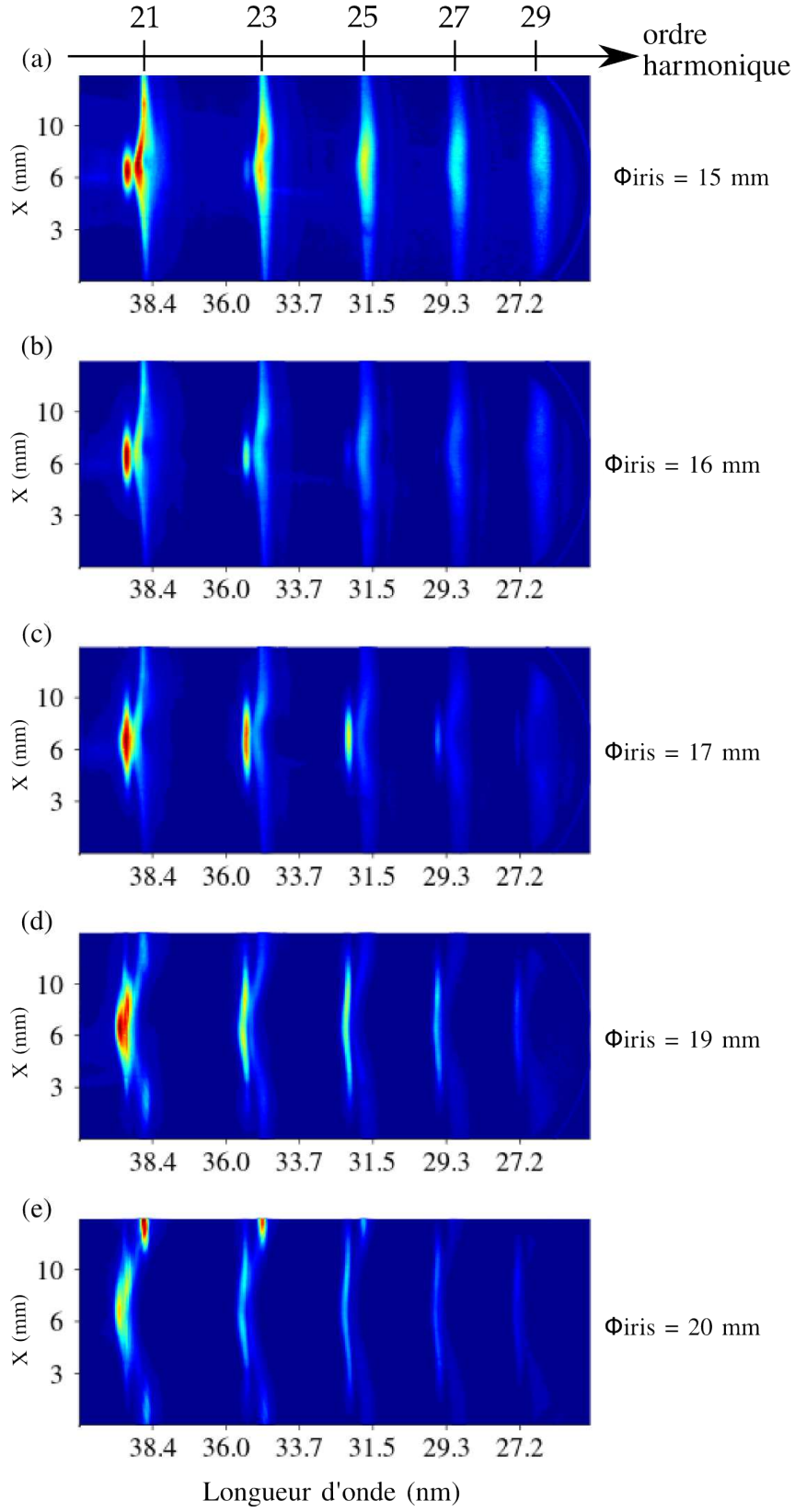


FIGURE 3.26 – Evolution des spectres harmoniques obtenus dans du krypton en fonction de ϕ_{iris} pour $E_{iris} = 35$ mJ avec un jet de gaz de diamètre $250\ \mu\text{m}$ avec 4.5 bar de pression en amont. La fenêtre d'observation s'étend de 26 à 39 nm (H21 à H29). (a) $\phi_{iris} = 15$ mm ; (b) $\phi_{iris} = 16$ mm ; (c) $\phi_{iris} = 17$ mm ; (d) $\phi_{iris} = 19$ mm ; (e) $\phi_{iris} = 20$ mm.

L'étude du krypton qui a un potentiel d'ionisation assez similaire à l'argon présente les mêmes comportements que ce dernier gaz lorsque l'intensité de génération est très supérieure à l'intensité de saturation. Ce phénomène de dédoublement des harmoniques (spatialement et spectralement) a donc été observé pour plusieurs gaz et lors de différentes campagnes expérimentales. Il est donc robuste et méritera d'être étudié de manière plus approfondie ultérieurement.

3.4.2 Récapitulatif des caractéristiques de la source XUV

On peut alors résumer les résultats de cette campagne d'optimisation et de caractérisation de la source dans le tableau suivant :

gaz	ϕ_{opt} mm	$H_{cut-off}$	$E_{cut-off}$ eV	Nb_{ph} /tir	E_{XUV} nJ
Ar	8	33	50	1.1×10^{11}	570
Ne	10	69	105	2×10^{10}	200
Kr	9.5	29	45	-	-

TABLE 3.4 – Récapitulatif des caractéristiques de la source dans des conditions standards avec des impulsions génératrices de 50 mJ et 40 fs. Harmoniques générées dans un jet de gaz de diamètre 250 μ m avec 3.5 bar de pression en amont placé 18 mm après le foyer. Mesures du nombre de photons effectuées avec le spectromètre à temps de vol de H11 à H31 pour l'argon et de H15 à H69 pour le néon.

3.5 Conclusions et perspectives

A l'issue de ce travail de développement de la source harmonique et des diagnostics, nous avons pu obtenir des résultats concluants. La source a été utilisée et caractérisée dans des conditions standards. La génération dans l'argon a permis d'atteindre des flux de photons raisonnables ($> 10^{11}$ photon/tir). La génération dans le néon est maintenant également bien connue. Après avoir commencé par utiliser une cellule, nous sommes ensuite passé à l'utilisation d'un jet de gaz pour le milieu générateur ce qui permettra d'utiliser ensuite au mieux la technique de mise en forme spatiale que nous avons développée. Nous avons pu atteindre les mêmes niveaux de signal avec le jet de gaz qu'avec la cellule, voir même supérieurs. C'est donc que la géométrie du milieu générateur, et la densité que l'on arrive à produire, permettent d'obtenir de bonnes conditions de génération. Nonobstant nous sommes tout de même limités en pression à cause des connections et de la capacité des détendeurs, et tout semble indiquer que le signal harmonique pourrait encore être augmenté. En effet, le signal croît continûment lorsqu'on augmente la pression et lorsque l'on rapproche le jet de gaz du faisceau (mais le profil spatial se dégrade). Il

serait donc judicieux de tester une nouvelle géométrie de génération qui permet à la fois de produire des milieux fins et plus denses que notre jet de gaz actuel (ce dispositif a été développé mais nous n'avons pas eu le temps de le tester).

Il manque également à cette campagne d'optimisation l'étude de l'influence de la position du jet de gaz par rapport au foyer. Nous nous sommes bridés sur ce paramètre, considérant que la course de 2 cm dont on disposait ne permettrait pas d'observer des effets sensibles. Néanmoins, il nous paraît indispensable d'explorer les possibilités que pourrait offrir la génération loin du foyer puisque la position par rapport au foyer influence à la fois l'intensité et le profil spatial du faisceau (en particulier la taille). La source harmonique subira donc très prochainement une jouvence qui permettra d'installer une platine de translation de 15 cm de course dans la chambre de génération. Ceci ouvrira de nouvelles et, à mon avis, prometteuses possibilités d'optimisation, mais ce travail fera l'objet d'une nouvelle thèse.

Les conditions inhabituelles dans lesquelles nous travaillons (intensité supérieure à l'intensité de saturation) nous ont permis d'observer des phénomènes eux aussi inhabituels. Le dédoublement spatial et spectral des harmoniques suscite la curiosité. Si l'apparition de cette "nouvelle famille" d'harmoniques est bien la signature de recollisions multiples, cela signifie que nous avons trouvé des conditions où elles sont observables, et cela présente un intérêt certain pour la physique attoseconde. Cette hypothèse est à approfondir et pourra être étudiée dans une prochaine thèse.

Maintenant que la source est bien connue et fonctionne en routine, nous allons pouvoir complexifier le dispositif de génération en introduisant la mise en forme spatiale de faisceaux lasers intenses. Le prochain chapitre présente la technique de mise en forme spatiale développée ainsi que la génération d'harmoniques avec le faisceau mis en forme.

Chapitre 4

Mise en forme spatiale de faisceaux laser femtosecondes pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé

Pour augmenter l'énergie des harmoniques, une possibilité est d'augmenter l'énergie des impulsions génératrices, tout en conservant une bonne efficacité de conversion. Lorsque l'énergie du fondamental atteint un certain seuil, les effets non linéaires deviennent problématiques. Dans notre cas, avec des impulsions de 40 fs et un faisceau de largeur $W_0 = 10$ mm, dès que l'énergie des impulsions atteint 15 - 20 mJ (0.5 TW) l'importance de l'intégrale B devient critique même sans focalisation. Il faut donc s'affranchir de toute propagation dans des milieux denses et de préférence transporter le faisceau comprimé sous vide. Ces contraintes vont poser problème lorsque l'on cherche à confiner temporellement les trains d'impulsions attosecondes. Des techniques telles que les portes de polarisation [Sola 06] ne seront pas utilisables puisqu'elles nécessitent la traversée de lames $\lambda/4$. De plus, la durée des impulsions et le fait que leur phase absolue ne soit pas stabilisée semblent interdire la génération d'impulsions attosecondes isolées (IAP).

Pourtant, une approche théorique compatible avec l'utilisation d'impulsions haute énergie, développée récemment par V. Strelkov ([Strelkov 08], [Strelkov 09]), prédit la production d'impulsions attosecondes isolées avec des impulsions relativement longues (10 - 20 fs). Cette approche, qui utilise des faisceaux aux profils quasi *flat top* pour générer les harmoniques, est également robuste aux fluctuations de la phase absolue. Elle constitue donc une technique idéalement adaptée aux lasers de classe Éclipse. En couplant la technique de post compression (qui sera présentée au chapitre suivant) avec un dispositif de mise en forme spatiale, il deviendrait alors possible de générer des impulsions attosecondes isolées à haute énergie. Nous avons donc développé une technique de mise en

forme spatiale adaptée aux faisceaux laser intenses et utilisé le faisceau mis en forme pour générer des harmoniques d'ordre élevé. Je présenterai dans ce chapitre la démarche du développement d'un dispositif adapté à notre laser, les résultats expérimentaux obtenus sur la mise en forme spatiale du faisceaux infrarouge et les résultats obtenus lors de la génération d'harmoniques avec le faisceau mis en forme.

4.1 Interêts d'un faisceau *flat top* pour la génération d'harmonique

Contrairement aux profils gaussiens où l'intensité a une dépendance rapide en fonction de la coordonnée radiale, un profil *flat top* présente un important volume où l'intensité est constante. L'interaction du faisceau *flat top* avec un milieu gazeux va donc produire des taux d'ionisation similaires sur l'axe (au centre du faisceau laser) et à la périphérie. La densité électronique influence de manière importante la vitesse de phase de l'infrarouge (mais peu celle des harmoniques) et donc l'accord de phase. Le profil *flat top* produit donc des conditions d'accord de phase identiques dans le grand volume où l'intensité est constante. Si cet accord de phase a lieu pendant un temps très court (moins qu'un demi-cycle optique) une seule impulsion attoseconde sera émise. On parle alors de confinement par accord de phase transitoire. De plus, la technique de mise en forme spatiale permet de contrôler l'avance de phase géométrique et même d'inverser son signe. Le contrôle de l'avance de phase du fondamental peut permettre, dans certaines conditions, de compenser l'effet de la dispersion électronique et éventuellement celle du gaz neutre, afin de satisfaire l'accord de phase. Les termes qui régissent l'accord de phase évoluent au cours de la propagation et donc en fonction du temps : la densité d'électrons libres va augmenter et celle d'atomes neutres diminuer. L'accord de phase peut donc avoir lieu de façon transitoire au cours de la propagation de l'impulsion de génération ([[Mével 00](#), [Kazamias 03](#), [Strelkov 08](#)]). Ce phénomène peut être utilisé pour confiner temporellement l'émission XUV. Cet accord de phase transitoire étant dépendant de l'intensité, l'instant où il se produit sera dépendant de la coordonnée radiale dans le cas d'un faisceau gaussien. Dans ce cas, le temps d'émission global est allongé, le confinement temporel n'est pas très efficace. Le profil *flat top* permet de s'affranchir de cette limitation.

Cette approche est idéale pour la génération d'harmoniques avec des impulsions laser haute énergie. En effet, la longueur sur laquelle le profil du faisceau reste *flat top* est proportionnelle au paramètre confocal. Il est donc avantageux d'utiliser des longues focales pour que la mise en forme soit effective sur toute la longueur du milieu. De plus,

le profil flat top présente des intensités crêtes intrinsèquement plus petites qu'un profil gaussien. Il faut donc des impulsions laser très énergétiques pour atteindre les intensités adéquates pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé. L'utilisation d'un champ générateur plus énergétique devrait avoir pour effet de produire des rayonnements XUV plus intenses; néanmoins, plusieurs effets sont en compétition. Lorsqu'un confinement temporel est obtenu, l'émission harmonique a lieu pendant un bref instant correspondant à une tranche du profil temporel de l'impulsion génératrice. Seule l'énergie comprise dans cette tranche temporelle contribue à la génération d'harmonique. En considérant des efficacités de conversion équivalentes, l'énergie des harmoniques se trouve donc réduite de manière proportionnelle au confinement de l'instant d'émission. Cependant, le contrôle de l'avance de phase permet d'annuler la dispersion de phase géométrique et d'accroître l'efficacité de conversion (dans la fenêtre de l'accord de phase transitoire). Ainsi, malgré l'effet de confinement temporel, l'efficacité de conversion globale devrait rester comparable, donnant lieu à des intensités XUV plus élevées. Sachant que des travaux antérieurs sur la génération d'harmoniques à haut flux ont déjà démontré des énergies supérieures au microjoule ([Takahashi 02a], [Takahashi 02b], [Hergott 02]), on peut envisager de produire des impulsions attosecondes isolées de l'ordre du microjoule. Avec de telles impulsions, il devient possible d'implémenter des expériences pompe-sonde XUV-XUV avec des résolutions temporelles attosecondes.

4.2 Mise en forme du faisceau infrarouge

4.2.1 Le principe : interférences à deux faisceaux

Le dispositif expérimental proposé par V. Strelkov pour la mise en forme spatiale repose sur l'utilisation de lames de phase complémentaires. Le schéma de ce dispositif est présenté sur la figure 4.1. Le faisceau incident de largeur W_{1/e^2} passe au travers d'un iris de diamètre ϕ_{iris} pour fixer sa taille. Puis il traverse deux lames de phase complémentaires (de même épaisseur) : une lame de diamètre ϕ_{plate} (P1) et une lame annulaire de diamètre interne ϕ_{plate} (P2). P1 est réglable en inclinaison afin de pouvoir augmenter l'épaisseur de matériaux traversée. Lorsque P1 est perpendiculaire au faisceau incident, les lames de phase n'ont pas d'effet. Mais lorsqu'on incline P1 d'un petit angle α , on introduit un déphasage $\delta\phi$ entre le faisceau qui traverse P1 et le faisceau qui traverse P2. Les deux faisceaux sont ensuite focalisés par une lentille de focale f . Proche du foyer, où les deux faisceaux se superposent, le déphasage induit des interférences modifiant ainsi le profil d'intensité. En choisissant bien les différents paramètres : W_{1/e^2} , ϕ_{iris} , ϕ_{plate} , $\delta\phi$, il est

possible d'obtenir un profil d'intensité quasi flat top sur la cible (ici entre z_1 et z_2). La position où se forme le profil flat top au regard du foyer gaussien dépend également de ces différents paramètres et en particulier du déphasage introduit. La persistance du profil flat top le long de l'axe de propagation du laser dépend principalement de la distance focale (ou plutôt du rapport f/ϕ_{iris}). Dans le cas des simulations de V. Strelkov, avec $W_{1/e^2} = 10$ mm, $\phi_{iris} = 2.8 \times W_{1/e^2}$, $\phi_{plate}/W_{1/e^2} = 1.9$, $\delta\phi = -\pi$ et $f = 1$ m, le profil flat top est maintenu sur une distance de propagation d'environ 1 mm.

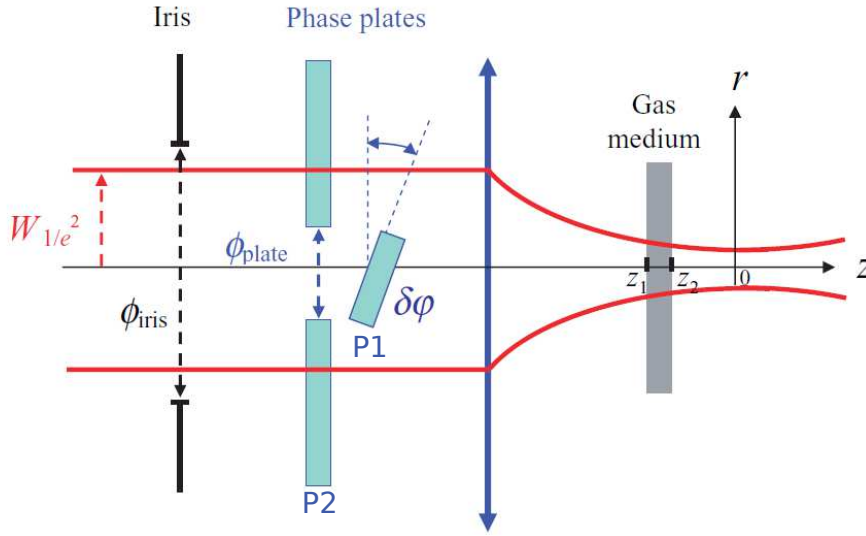


FIGURE 4.1 – Dispositif de mise en forme spatiale de faisceaux laser reposant sur le principe de lames de phase.

La figure 4.2 présente le résultat des simulations effectuées par V. Strelkov avec le dispositif expérimental de la figure 4.1 et les paramètres cités précédemment. Le profil d'intensité (a) décroît légèrement au cours de la propagation (sens des z croissants, $z = 0$ correspond au foyer gaussien) mais est quasiment constant radialement jusqu'à $r = 30$ μm . La phase géométrique (b) ne varie pratiquement pas le long de la propagation excepté à la périphérie du faisceau.

Ce dispositif a également été testé expérimentalement pour mettre en forme des faisceaux laser hélium-néon (travaux préliminaires au CELIA). Il a ensuite été testé avec un faisceau laser femtoseconde pour générer des harmoniques dans le cadre de la thèse de Willem Boutu (CEA Saclay), et les jolis résultats qu'ils ont obtenus nous ont encouragé à poursuivre cette approche. Cependant, avec leur dispositif expérimental, l'énergie de l'impulsion fondamentale était limitée à cause des effets non-linéaire induits par la traversée des lames de phase. Nous avons donc développé un dispositif de mise en forme spatiale qui nous permettra d'utiliser la totalité de l'énergie disponible.

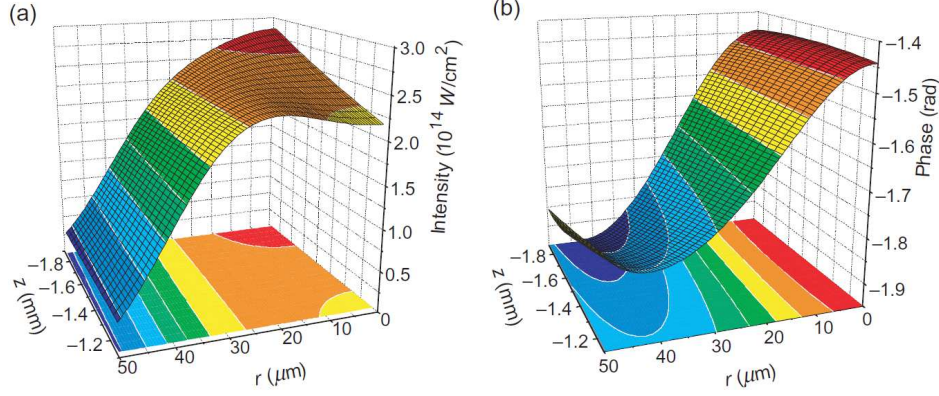


FIGURE 4.2 – Simulation du profil d'intensité (a) et de la distribution de la phase (b) d'un faisceau flat top obtenu avec le dispositif expérimental à lames de phase et les paramètres suivants : $W_{1/e^2} = 10$ mm, $\phi_{iris} = 2.8 \times W_{1/e^2}$, $\phi_{plate}/W_{1/e^2} = 1.9$, $\delta\phi = -\pi$ et $f = 1$ m.

4.2.2 Solution technique pour les impulsions intenses : *Two Optical Paths mirror*

Dans le cadre de ma thèse, nous cherchons à générer des harmoniques à haut flux en utilisant des énergies d'impulsion génératrice élevées. Le dispositif de mise en forme spatiale basé sur l'utilisation de lames de phase n'est donc pas adapté. Nous avons donc développé une nouvelle solution technique qui repose sur le même principe d'interférence à deux faisceaux mais qui ne fait intervenir que des réflexions. On s'affranchit ainsi des effets non-linéaires dans les lames de phase. Ces dernières ainsi que la lentille sont remplacées par une seule optique : le miroir à deux chemins optique ou *Two Optical Paths mirror* en anglais (*TOP mirror*), il sera également dénommé miroir flat top dans ce manuscrit. Le *TOP mirror* est fabriqué à partir d'un substrat de miroir sphérique standard de rayon de courbure $R = 4$ m. Une pastille circulaire de diamètre $\phi_{plate} = 20$ mm et d'une épaisseur $e = 195 \pm 5$ nm (voir section 4.2.3) est déposée sur le substrat. Puis un coating est à son tour déposé sur la totalité du substrat pour réfléchir efficacement dans une gamme de longueurs d'onde allant de 660 nm à 950 nm. La réflexion d'un faisceau de largeur $W_{1/e^2} = 10$ mm⁹ sur une telle optique va donc avoir plusieurs effets. Le faisceau va être séparé en deux parties : le faisceau central réfléchi par la surface correspondant à la pastille (de diamètre ϕ_{plate}) et le faisceau externe (annulaire de diamètre interne ϕ_{plate} et de diamètre externe ϕ_{iris}). Ces deux faisceaux sont déphasés de $\delta\phi = 4\pi \times \frac{e}{\lambda_0} \approx 0.96\pi$. Le *TOP mirror* va également focaliser ces deux faisceaux avec une distance focale $f = 2$ m et ainsi induire des interférences destructives à proximité du foyer. De la même manière que les lames de

9. Pour un faisceau de largeur W_{1/e^2} , le diamètre utile est de $3W_{1/e^2}$. C'est à dire que 99% de l'énergie est contenue dans ce diamètre.

phase, ces interférences vont permettre de modifier le profil d'intensité du faisceau, tout en conservant une symétrie cylindrique.¹⁰

Le *TOP mirror* est donc un élément statique, on perd le réglage du déphasage ; la mise en forme spatiale est alors contrôlée par l'iris réglable sous vide. Un élément simple et robuste est toutefois souvent préférable lorsqu'on monte une expérience complexe comme la génération d'impulsions attoseconde unique. Le *TOP mirror* est une optique qui fonctionne en réflexion et pourvue d'un coating large bande, ce qui permet d'être quasi achromatique¹¹ et de s'affranchir des effets non-linéaires. Le *TOP mirror* est donc adapté pour l'utilisation d'impulsions intenses et ultra-brèves. Le seuil de dommage du miroir est alors la seule limitation en terme d'intensité pour l'impulsion incidente. Il s'agit donc dans ce cas uniquement d'une limite technologique, cependant les seuils de dommage pour des miroirs large bande peuvent de nos jours atteindre des valeurs de l'ordre de 500 mJ/cm² pour des durées d'impulsion de 50 fs. Le miroir dont nous disposons peut supporter 100 mJ/cm², ce qui nous permet d'utiliser les 150 mJ disponible du laser Eclipse.

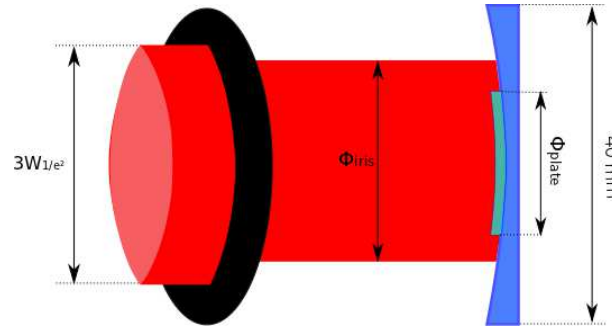


FIGURE 4.3 – Dispositif de mise en forme spatiale pour les faisceaux femtosecondes intenses.

4.2.3 Théorie et simulations

Nous avons effectué des séries de simulations afin de dimensionner le *TOP mirror* en fonction des caractéristiques requises pour la génération d'harmoniques. La mise en forme spatiale doit satisfaire les conditions suivantes :

- produire un profil quasi flat top afin de confiner temporellement l'émission XUV,
- avoir lieu à une position bien déterminée correspondant au milieu gazeux et proche du foyer pour que l'intensité soit suffisante pour induire des effets non-linéaires tels que la génération d'harmonique,

10. Ce qui n'est pas le cas du dispositif avec les lames de phase. En effet, lorsqu'on incline P1, la projection de sa surface sur un plan perpendiculaire à la propagation du faisceau devient une ellipse.

11. Le déphasage introduit par la marche du *TOP mirror* dépend de la longueur d'onde, néanmoins, la variation de ce déphasage pour un spectre qui supporte des impulsions de 10 fs est suffisamment faible pour permettre une mise en forme spatiale effective

- être effective sur une longueur de propagation de quelques millimètres afin de garantir une longueur d'interaction suffisante dans le milieu gazeux,
- produire des volumes générateurs importants afin d'injecter plus d'énergie dans la génération et ainsi optimiser le signal harmonique.

Il faut également prendre en compte les caractéristiques du faisceau incident :

- le laser Éclipse délivre des impulsions de 140 mJ pour une durée de 40 fs,
- le profil du faisceau est pratiquement gaussien avec $W_0 = 10$ mm.

L'énergie disponible est donc bien supérieure au standard pour la génération d'harmonique. Sachant que l'intensité de saturation pour la HHG est de l'ordre de quelques 10^{15} W/cm² dans l'hélium, en considérant un foyer gaussien, il faudrait un waist (W_0) d'environ 330 μ m pour pouvoir utiliser pleinement toute cette énergie. Avec $W_{1/e^2} = 10$ mm, cela impliquerait d'utiliser une focale de 13 mètres. La taille de notre salle expérimentale (7 m de long) ne permet pas de monter de telles installations. Nous utilisons donc une focale de 2 mètres pour des raisons d'encombrement.

Nous avons simulé le profil du faisceau infrarouge avec $W_{1/e^2} = 10$ mm, et $f = 2$ m. Nous avons fait varier les paramètres $\delta\phi$, ϕ_{plate} et ϕ_{iris} et calculé le profil du faisceau le long de la propagation de $z = -15$ à $+15$ mm autour du foyer gaussien (situé en $z = 0$).

Pour ce faire, nous utilisons les formules suivantes :

E_{ext} est le champ électrique associé au faisceau réfléchi par la partie externe du miroir flat top :

$$E_{ext}(r) = E_0 e^{-i \frac{\pi r^2}{\lambda f}} e^{-\frac{r^2}{W_1^2}} \quad (4.1)$$

Pour des raisons de clarté, dans les équations, la largeur du faisceau W_{1/e^2} est noté W_1 .

E_{int} est le champ électrique associé au faisceau réfléchi par la partie interne du miroir flat top :

$$E_{int}(r) = E_0 e^{-i \frac{\pi r^2}{\lambda f}} e^{-\frac{r^2}{W_1^2}} e^{-i\delta\phi} \quad (4.2)$$

Ainsi le champ électrique juste après le miroir s'écrit en $z = z_m = -2$ m :

$$\begin{cases} E(r, z_m) = E_{int}(r, z_m) & \text{pour } r < \phi_{plate} \\ E(r, z_m) = E_{ext}(r, z_m) & \text{pour } r > \phi_{plate} \end{cases} \quad (4.3)$$

Connaissant $E(r, z_m)$, et en considérant une symétrie cylindrique, on peut calculer le champ électrique au foyer en utilisant une transformée de Hankel [Siegman 86] :

$$E(r_0, z) = \frac{2\pi i}{\lambda(f+z)} \int_0^\infty r E(r, z_m) e^{-i \frac{\pi(r^2 + r_0^2)}{\lambda(f+z)}} J_0\left(\frac{2\pi r r_0}{\lambda(f+z)}\right) dr \quad (4.4)$$

$J_0(X)$ est la fonction de Bessel d'ordre zéro (voir annexe E), r_0 la coordonnée radiale dans le plan z de la région focale, r est la coordonnée radiale dans le plan z_m juste après le miroir.

Nous avons effectué les simulations de manière systématique en fonction des paramètres $\delta\phi$, ϕ_{plate} et ϕ_{iris} en utilisant les valeurs suivantes :

- $\delta\phi = 0.6 \pi, 0.8 \pi, 1 \pi, 1.2 \pi, 1.4 \pi$.
- $\phi_{plate} = 16, 18, 20, 22, 24$ mm.
- ϕ_{iris} varie de 14 mm à 36 mm par pas de 2 mm.

Pour certaines conditions particulièrement intéressantes, le pas a été raffiné pour ϕ_{iris} . Nous définissons également le rapport d'énergie entre le faisceau interne et le faisceau externe $\eta_E = \frac{E_{ext}}{E_{int}}$.

Dans un souci de concision et de clarté, ces résultats ne sont pas présentés de manière exhaustive. Je décris dans la suite de cette partie les résultats importants et les tendances observées.

Les interférences destructives dues au déphasage entre les deux faisceaux donnent lieu à une propagation et une avance de phase anormale dans la région focale. Il est possible d'obtenir pour un plan z donné des profils très variés et l'évolution du profil au cours de la propagation est plus ou moins rapide selon les conditions. En l'occurrence, nous obtenons des profils flat top pour plusieurs jeux de paramètres. Nous considérons dans la suite de cette partie que les profils flat top sont maintenus au cours de la propagation tant que la variation de l'intensité pic est inférieure à 5%.

4.2.3.1 Influence du diamètre de l'iris ϕ_{iris}

Ce paragraphe ouvre la discussion sur les résultats des simulations de la mise en forme spatiale du faisceau infrarouge pour $\phi_{plate} = 16$ mm et $\delta\phi = 1 \pi$. Lorsque le diamètre de la pastille est petit, il y a une grande quantité d'énergie disponible dans le faisceau externe pour créer l'interférence destructive. Une grande variété de profils est alors accessible et la dépendance de la mise en forme spatiale en fonction de ϕ_{iris} est alors très forte. C'est pourquoi il est intéressant de choisir ce cas pour étudier l'influence du diamètre de l'iris.

Les figures 4.4 et 4.5 présentent la superposition de 31 profils de faisceau (pour des

plans z allant de -15 à +15 mm) pour chaque valeur ϕ_{iris} .

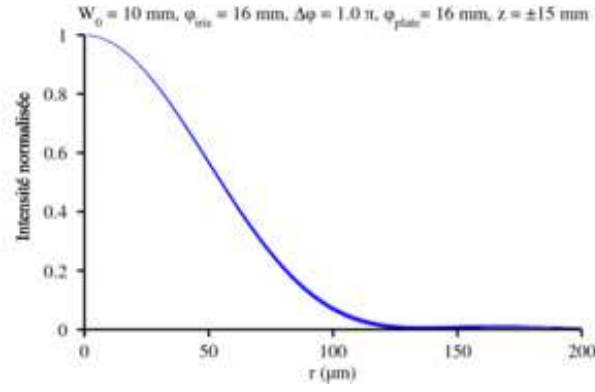
Pour $\phi_{iris} = 16$ mm (figure 4.4(a), $\eta_E = 0$), il n'y a pas de faisceau externe et donc pas d'effet de mise en forme spatiale. On constate que les profils sont gaussiens et parfaitement superposés quelque soit le plan z . Pour des faisceaux gaussiens fortement tronqués, la longueur de Rayleigh est très importante.¹²

Pour $\phi_{iris} = 18$ mm (figure 4.4(a), $\eta_E = 11.1\%$), il commence à y avoir un léger effet de mise en forme spatiale ; les profils sont toujours gaussiens mais ne sont plus parfaitement superposés. Pour $\phi_{iris} = 20$ mm (figure 4.4(a), $\eta_E = 19.8\%$, ce cas est également repris sur la figure 4.7 qui présente en plus l'évolution au cours de la propagation en 3D et en 2D), l'effet de mise en forme spatiale devient clair : les profils évoluent de manière importante au cours de la propagation et on observe un profil flat top au voisinage de $z = 0$. Lorsqu'on augmente le diamètre de l'iris de 1 mm ($\phi_{iris} = 21$ mm, $\eta_E = 23.2\%$, figure 4.5(a)), le profil en $z = 0$ commence à se creuser et à former un donut. La dépendance en fonction de ϕ_{iris} est donc très rapide pour $\phi_{plate} = 16$ mm (et $W_0 = 10$ mm). On remarque quand même un profil flat top en $z = -11$ et $z = 11$ mm, mais il apparaît brièvement au cours de la propagation comme intermédiaire entre le profil gaussien et le profil donut. Il s'agit donc de profils flat top transitoires qui ne vont pas être intéressants pour la génération d'harmoniques qui requiert quand même une longueur d'interaction de quelques millimètres pour produire un rayonnement suffisamment intense. De plus, lorsqu'on change légèrement le diamètre de l'iris, le profil change radicalement, ce qui implique un contrôle difficile du profil spatial dans cette zone.

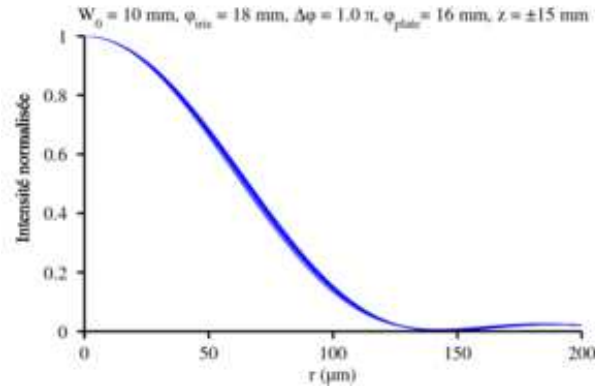
A $\phi_{iris} = 22$ mm (figure 4.5(b), $\eta_E = 26.2\%$) le creux s'accroît encore et le profil donut devient de plus en plus clair. En augmentant encore le diamètre de l'iris ($\phi_{iris} = 24$ mm, $\eta_E = 30.7\%$, 4.5(c)), l'intensité dans le creux devient inférieure à 50% de l'intensité sur les bords. Le profil flat top transitoire présente une zone plane pour $r < 45 \mu\text{m}$ entourée d'un anneau plus intense (entre 45 et $80 \mu\text{m}$).

La figure 4.6, composée de trois sous-figures, présente pour un diamètre d'iris de 30 mm ($\eta_E = 37.0\%$), l'évolution du profil en 3D au cours de la propagation (4.6(a)), l'évolution du profil en 2D au cours de la propagation (4.6(b)) et la superposition des profils pour différents plans z de -15 à +15 mm (4.6(c)). On constate que dans ce cas, même le profil flat top transitoire n'existe pas. Le profil évolue de gaussien à donut en passant par une forme présentant trois maximums. Le profil donut a alors une intensité nulle au centre.

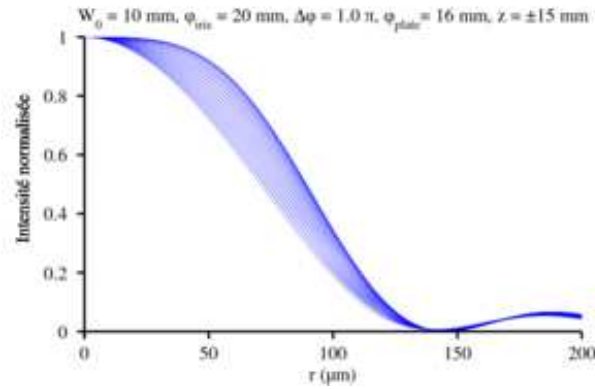
12. Les équations de propagation des faisceaux gaussiens ne sont plus valables pour les faisceaux gaussiens tronqués. Il faut utiliser les transformées de Henkel pour faire le calcul du champs dans un plan donné. Le paramètre confocal est alors bien supérieur à $\frac{2\pi W_0^2}{\lambda_0}$.



(a) $\phi_{iris} = 16$ mm

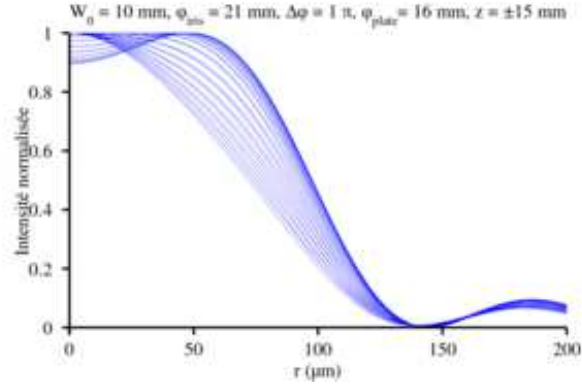


(b) $\phi_{iris} = 18$ mm

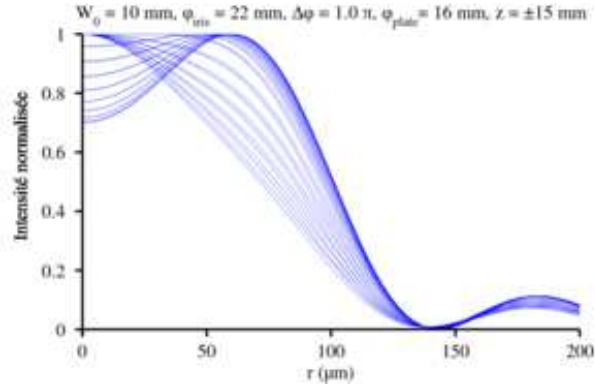


(c) $\phi_{iris} = 20$ mm

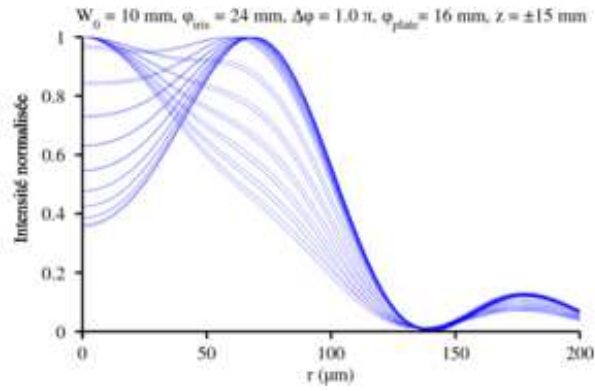
FIGURE 4.4 – Profil du faisceau mis en forme pour différents plans z de -15 à +15 mm, $\phi_{plate} = 16$ mm, $\delta\phi = 1\pi$ et $\phi_{iris} = 16$ -18-20 mm.



(a) $\phi_{iris} = 21$ mm

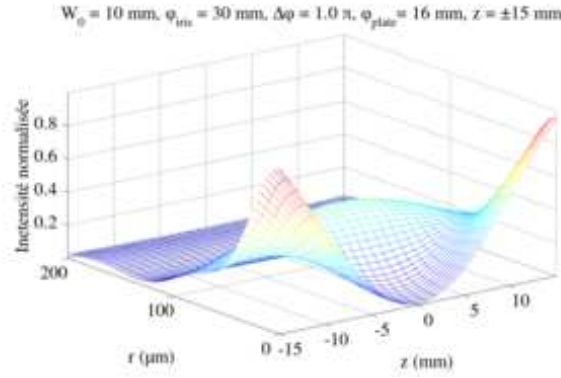


(b) $\phi_{iris} = 22$ mm

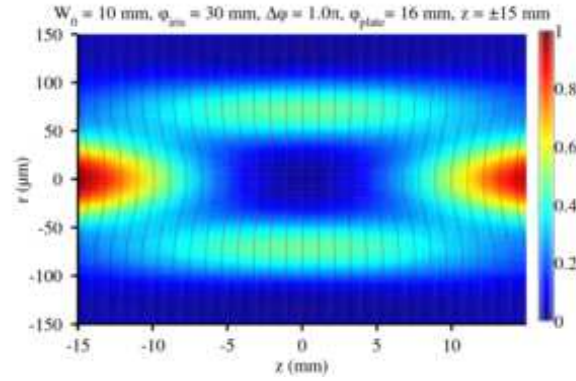


(c) $\phi_{iris} = 24$ mm

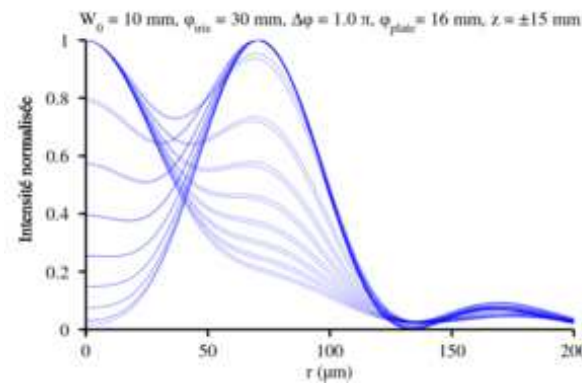
FIGURE 4.5 – Profil du faisceau mis en forme pour différents plans z de -15 à $+15$ mm. $\phi_{plate} = 16$ mm, $\delta\phi = 1\pi$ et $\phi_{iris} = 21$ - 22 - 24 mm.



(a) Évolution en trois dimensions du profil du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15$.



(b) Cartographie en deux dimensions du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15$. Les lignes rouges représentent la phase transverse



2

(c) Profil du faisceau infrarouge pour différents plans z de -15 à $+15$ mm.

FIGURE 4.6 – Propagation du faisceau mis en forme pour $\phi_{plate} = 16$ mm, $\delta\phi = 1\pi$ et $\phi_{iris} = 30$ mm.

4.2.3.2 Influence du diamètre de la pastille ϕ_{plate}

Les figures 4.7, 4.8, 4.9, 4.10 présentent les profils flat top obtenus pour des diamètres de pastille respectivement de 16, 20, 22, 24 mm et un déphasage de π .

Sur la figure 4.7 le profil flat top est obtenu pour $\phi_{iris} = 20$ mm ($\eta_E = 19.8\%$). Le profil n'est pas très aplati et l'intensité reste élevée dans la zone où la mise en forme a lieu. Lorsqu'on augmente le diamètre de l'iris d'un millimètre ($\phi_{iris} = 21$ mm, $\eta_E = 23.2\%$), le profil commence déjà à se creuser et l'on obtient seulement un flat top transitoire aux deux extrémités du creux au voisinage des plans $z = -8$ et $z = 8$ (voir figure 4.5(a)). Il n'est donc pas possible d'obtenir un profil flat top persistant au cours de la propagation avec une pastille de 16 mm de diamètre. De plus, due à la trop grande quantité d'énergie contenue dans le faisceau externe, la dépendance du profil en fonction de ϕ_{iris} est trop importante et ne permettra pas un contrôle fin de la mise en forme spatiale. En conclusion, une pastille de 16 mm de diamètre est trop petite pour un faisceau de largeur $W_{1/e^2} = 10$ mm.

Pour $\phi_{plate} = 18$ mm, un profil quasi flat top (pas aussi plat que pour les résultats qui suivent) et persistant au cours de la propagation a lieu pour $\phi_{iris} = 23$ mm ($\eta_E = 15.8\%$). Néanmoins, pour $\phi_{iris} = 24$ mm ($\eta_E = 17.7\%$), le profil commence déjà à se creuser de manière sensible en $z = 0$ (profil donut). La dépendance de la mise en forme spatiale en fonction de ϕ_{iris} est encore trop forte.

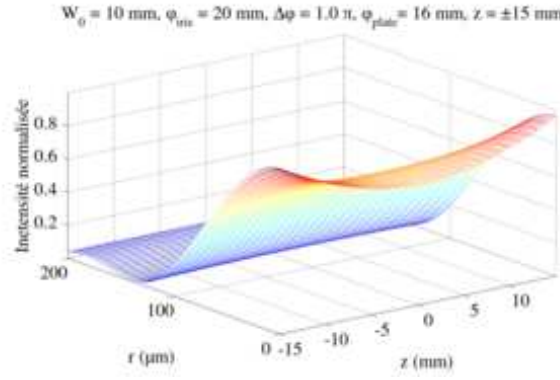
Dans le cas de $\phi_{plate} = 20$ mm (figure 4.8), on obtient un profil flat top bien plat et stable le long de la propagation pour un diamètre d'iris de 27 mm ($\eta_E = 12.6\%$). Le profil flat top est maintenu de $z = -3$ à $z = 3$ mm (4.1% de variation sur 6 mm de propagation). La dépendance de la mise en forme spatiale en fonction de ϕ_{iris} est suffisamment lente pour permettre un contrôle fin. La largeur à mi-hauteur est de $145 \mu\text{m}$ et la mise en forme spatiale a lieu au foyer, ce qui garantit une intensité suffisante pour produire des effets non linéaires. Ce jeu de paramètres permet de satisfaire les conditions décrites précédemment (au début de la section 4.2.3).

Pour $\phi_{plate} = 22$ mm (figure 4.9), le profil flat top est obtenu pour $\phi_{iris} = 32$ mm ($\eta_E = 9.1\%$). Il est maintenu sur une longueur de propagation de 4 mm (3% de variation de $z = -2$ à $z = +2$ mm). La largeur à mi-hauteur est de $132 \mu\text{m}$. Nous avons donc également un profil flat top dans ces conditions, mais les caractéristiques sont moins bonnes que pour $\phi_{plate} = 20$ mm. De plus, l'iris doit être très ouvert ce qui diminue les possibilités de réglages.

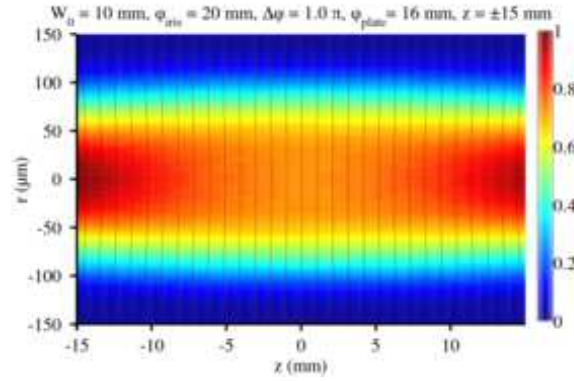
La figure 4.10 montre les résultats obtenus pour un diamètre de pastille de 24 mm. Dans ce cas, il faut ouvrir l'iris jusqu'à 36 mm ($\eta_E = 5.8\%$) pour produire un profil flat top. Il est maintenu sur une longueur de propagation de 4 mm (3.5% de variation de z

= - 2 à $z = + 2$ mm). La largeur à mi-hauteur est de $120 \mu\text{m}$. On constate donc que la largeur du profil flat top est d'autant plus petite que ϕ_{plate} est grand, de même que la longueur de persistance du profil flat top. La valeur du rapport η_E entre les énergies des deux faisceaux pour obtenir le profil flat top diminue lorsque ϕ_{plate} augmente (bien qu'il faille ouvrir plus l'iris).

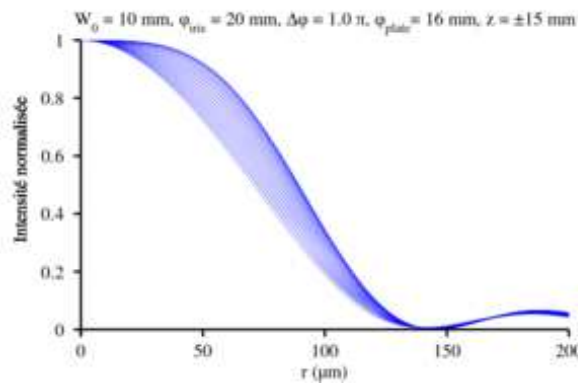
En conclusion de l'étude de l'influence du diamètre de la pastille, $\phi_{plate} = 20$ mm (et un déphasage $\delta\phi = \pi$) offre les meilleurs conditions pour la mise en forme spatiale pour un faisceau de largeur $W_{1/e^2} = 10$ mm. Nous avons donc retenu cette valeur pour la fabrication du miroir flat top. Par ailleurs, lorsqu'on considère l'application expérimentale, il faut prendre en compte le fait que le faisceau délivré par le laser n'est pas une gaussienne parfaite et que plus on s'éloigne du centre du faisceau plus le profil d'intensité présente des défauts. Il est donc préférable d'avoir un diamètre de pastille pas trop grand pour que le diamètre optimal pour la mise en forme spatiale tronque suffisamment le faisceau pour s'affranchir de la plupart des imperfections. De plus, une pastille de diamètre $2W_{1/e^2}$ permet d'avoir de bonnes possibilités de réglages avec l'iris.



(a) Évolution en trois dimensions du profil du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15 \text{ mm}$.

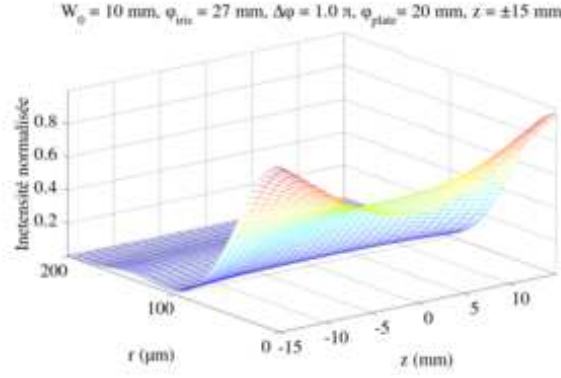


(b) Cartographie en deux dimensions du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15 \text{ mm}$. Les lignes rouges représentent la phase transverse.

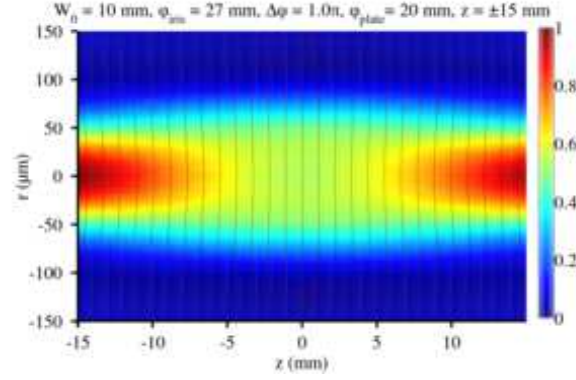


(c) Profil du faisceau infrarouge pour différents plans z de -15 à $+15 \text{ mm}$.

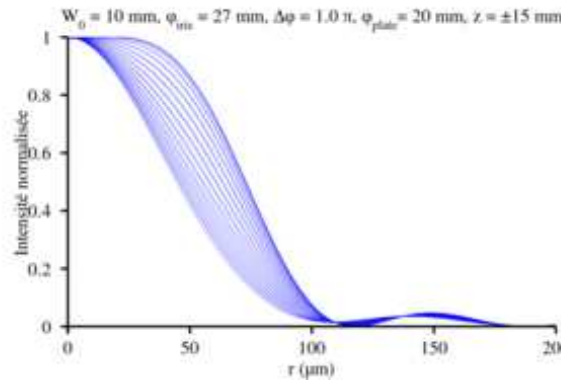
FIGURE 4.7 – Propagation du faisceau mis en forme pour $\phi_{\text{plate}} = 16 \text{ mm}$, $\delta\phi = 1 \pi$ et $\phi_{\text{iris}} = 20 \text{ mm}$.



(a) Évolution en trois dimensions du profil du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15 \text{ mm}$.

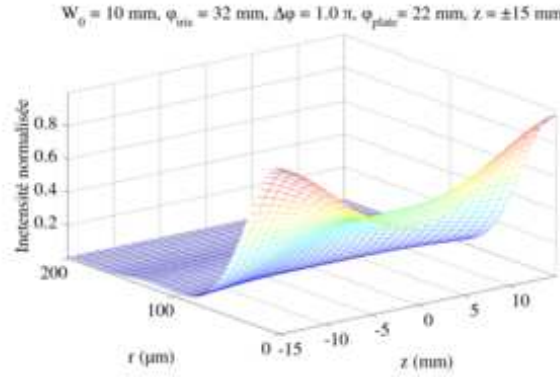


(b) Cartographie en deux dimensions du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15 \text{ mm}$. Les lignes rouges représentent la phase transverse.

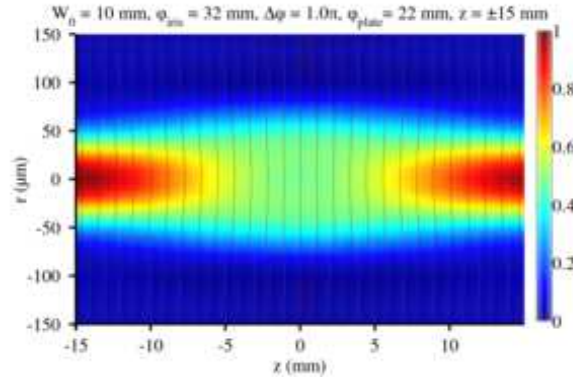


(c) Profil du faisceau infrarouge pour différents plans z de -15 à $+15 \text{ mm}$.

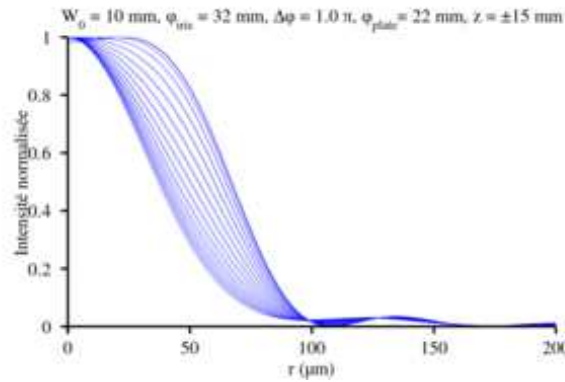
FIGURE 4.8 – Propagation du faisceau mis en forme pour $\phi_{plate} = 20 \text{ mm}$, $\delta\phi = 1 \pi$ et $\phi_{iris} = 27 \text{ mm}$.



(a) Évolution en trois dimensions du profil du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15 \text{ mm}$.

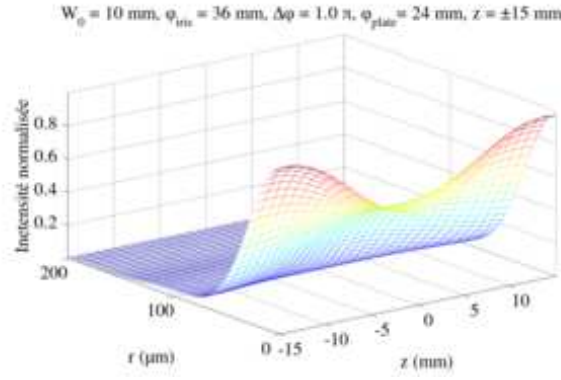


(b) Cartographie en deux dimensions du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15 \text{ mm}$. Les lignes rouges représentent la phase transverse.

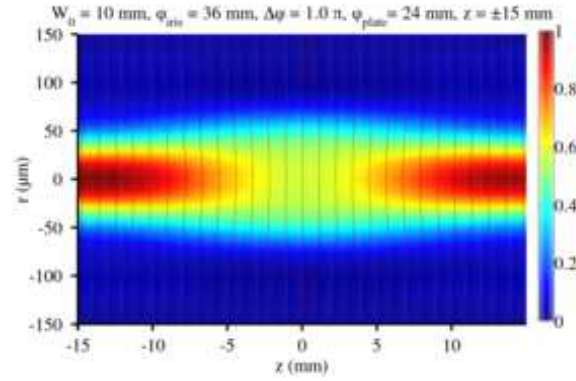


(c) Profil du faisceau infrarouge pour différents plans z de -15 à $+15 \text{ mm}$.

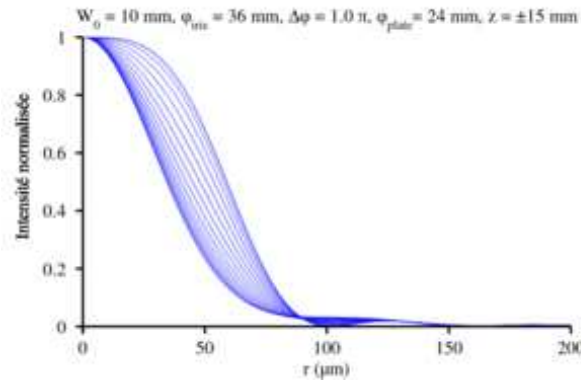
FIGURE 4.9 – Propagation du faisceau mis en forme pour $\phi_{\text{plate}} = 22 \text{ mm}$, $\delta\phi = 1 \pi$ et $\phi_{\text{iris}} = 32 \text{ mm}$.



(a) Évolution en trois dimensions du profil du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15$ mm.



(b) Cartographie en deux dimensions du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15$ mm. Les lignes rouges représentent la phase transverse.



(c) Profil du faisceau infrarouge pour différents plans z de -15 à $+15$ mm.

FIGURE 4.10 – Propagation du faisceau mis en forme pour $\phi_{plate} = 24$ mm, $\delta\phi = 1\pi$ et $\phi_{iris} = 36$ mm.

4.2.3.3 Influence du déphasage $\delta\phi$

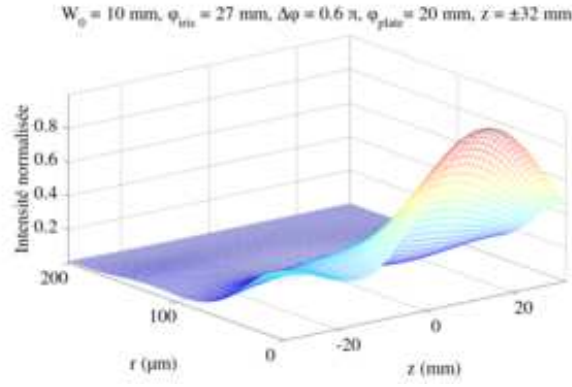
Les figures 4.11, 4.12, 4.13 montrent l'évolution du profil du faisceau au cours de la propagation pour $\phi_{plate} = 20$ mm, $\phi_{iris} = 27$ mm ($\eta_E = 12.6\%$) et respectivement, $\delta\phi = 0.6\pi$, $\delta\phi = 0.8\pi$, $\delta\phi = 1.2\pi$.

Sur la figure 4.11, où le déphasage est le plus faible, la mise en forme spatiale est effective bien avant le foyer. On simule donc le profil du faisceau de $z = -32$ à $+32$ mm. Un profil flat top apparaît entre $z = -19$ et $z = -13$ mm. Le faisceau est très large ($fwhm = 156 \mu\text{m}$) et l'intensité est relativement faible.

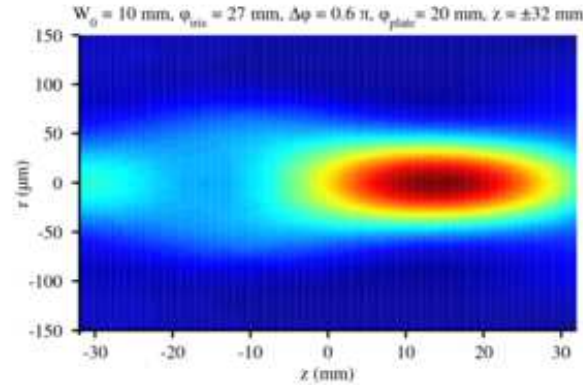
Pour $\delta\phi = 0.8\pi$ (figure 4.12), le profil flat top se forme un peu plus proche du foyer, entre $z = -11$ et $z = -5$ mm. Le faisceau est un peu moins large ($fwhm = 146 \mu\text{m}$) et l'intensité un peu plus élevée que précédemment.

Le cas $\delta\phi = 1\pi$ est exposé sur la figure 4.8 et a été étudié dans le paragraphe précédent, dans ce cas le profil flat top se forme au foyer. On remarque que pour $\delta\phi = 1.2\pi$, le profil flat top se forme dans une position symétrique par rapport au plan $z = 0$ de celle de $\delta\phi = 0.8\pi = 2\pi - 1.2\pi$ (entre $z = 5$ et $z = 11$ mm) et la largeur du faisceau est également de $146 \mu\text{m}$.

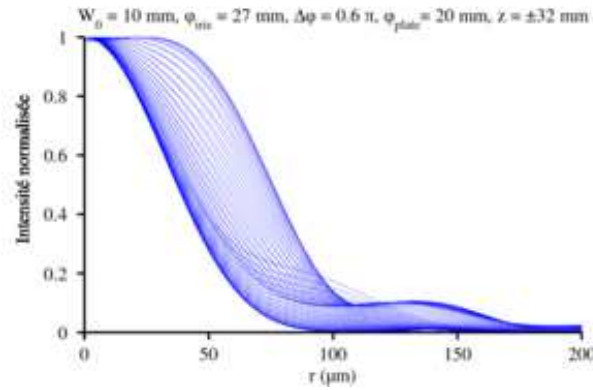
De manière générale, on constate que lorsque le profil flat top se forme à une position $-z_\alpha$ pour un déphasage $\delta\phi = \alpha\pi$ (avec $0 < \alpha < 1$), il se formera à la position symétrique par rapport au plan $z = 0$, en $+z_\alpha$ pour un déphasage $\delta\phi = -\alpha\pi + 2\pi$. La diffraction est pratiquement négligeable sur une propagation de quelques millimètres et les simulations donnent des résultats vraiment symétriques. Les caractéristiques du flat top sont équivalentes quelque soit l'endroit où il se forme, sauf pour l'intensité pic qui est plus importante lorsqu'on se rapproche du foyer.



(a) Évolution en trois dimensions du profil du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -32$ à $+32 \text{ mm}$.

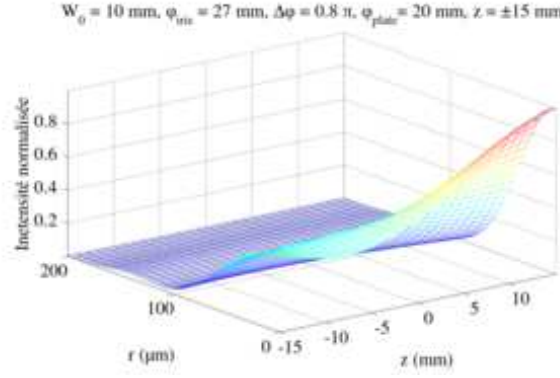


(b) Cartographie en deux dimensions du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -32$ à $+32 \text{ mm}$.

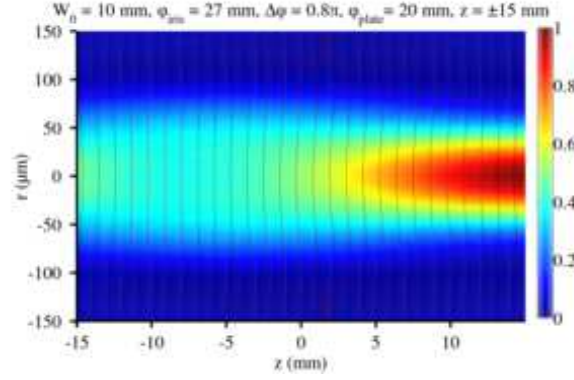


(c) Profil du faisceau infrarouge pour différents plans z de -32 à $+32 \text{ mm}$.

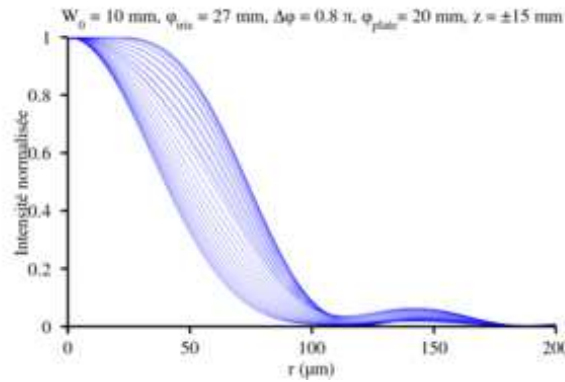
FIGURE 4.11 – Propagation du faisceau mis en forme pour $\phi_{\text{plate}} = 20 \text{ mm}$, $\delta\phi = 0.6 \pi$ et $\phi_{\text{iris}} = 27 \text{ mm}$.



(a) Évolution en trois dimensions du profil du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15$ mm.

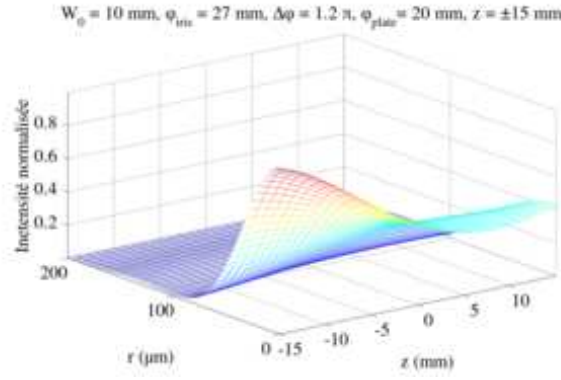


(b) Cartographie en deux dimensions du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15$ mm. Les lignes rouges représentent la phase transverse.

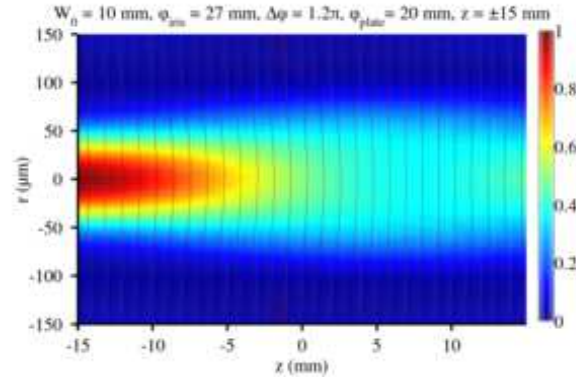


(c) Profil du faisceau infrarouge pour différents plans z de -15 à $+15$ mm.

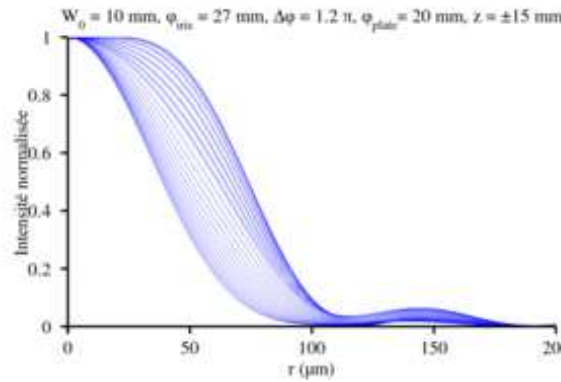
FIGURE 4.12 – Propagation du faisceau mis en forme pour $\phi_{\text{plate}} = 20 \text{ mm}$, $\delta\phi = 0.8\pi$ et $\phi_{\text{iris}} = 27 \text{ mm}$.



(a) Évolution en trois dimensions du profil du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15 \text{ mm}$.



(b) Cartographie en deux dimensions du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -15$ à $+15 \text{ mm}$. Les lignes rouges représentent la phase transverse.



(c) Profil du faisceau infrarouge pour différents plans z de -15 à $+15 \text{ mm}$.

FIGURE 4.13 – Propagation du faisceau mis en forme pour $\phi_{plate} = 20 \text{ mm}$, $\delta\phi = 1.2\pi$ et $\phi_{iris} = 27 \text{ mm}$.

4.2.3.4 Avance de phase

La figure 4.14 présente les avances de phase de faisceaux gaussiens tronqués ($\phi_{iris} = 14 - 16 - 18 - 20$ mm) et de faisceaux mis en forme avec le *TOP mirror* ($\phi_{iris} = 22 - 24 - 26 - 27 - 28 - 30 - 32 - 34$ mm) dans la configuration $\phi_{plate} = 20$ mm, $\delta\phi = 1\pi$. L'avance de phase des faisceaux gaussiens tronqués (pointillés) est quasiment linéaire sur l'intervalle $z = [-15, +15]$ mm. Pour $\phi_{iris} = 22$ mm, l'avance de phase commence légèrement à se différencier d'une droite. Et plus on augmente le diamètre de l'iris, plus la partie de la courbe avant le foyer ($z = [-15, 0]$) devient concave (vue de dessus) et plus la partie après le foyer devient convexe. La courbe passe par une forme assez remarquable pour $\phi_{iris} = 27$ mm (diamètre d'iris pour lequel on obtient le profil flat top persistant, voir figure 4.8) : l'avance de phase est pratiquement plane dans la zone correspondant au profil flat top, entre $z = -4$ et $z = +4$ mm. Par ailleurs, pour des diamètres d'iris plus grands, c'est au voisinage du point d'inflexion de l'avance de phase que l'on observe les profils flat top transitoires (en $z = -5$ et $z = +5$ pour $\phi_{iris} = 34$ mm). C'est donc lorsque la dérivée de l'avance de phase s'annule ($\frac{\partial\phi(z)}{\partial z} \approx 0$) que l'on obtient les profils flat top.

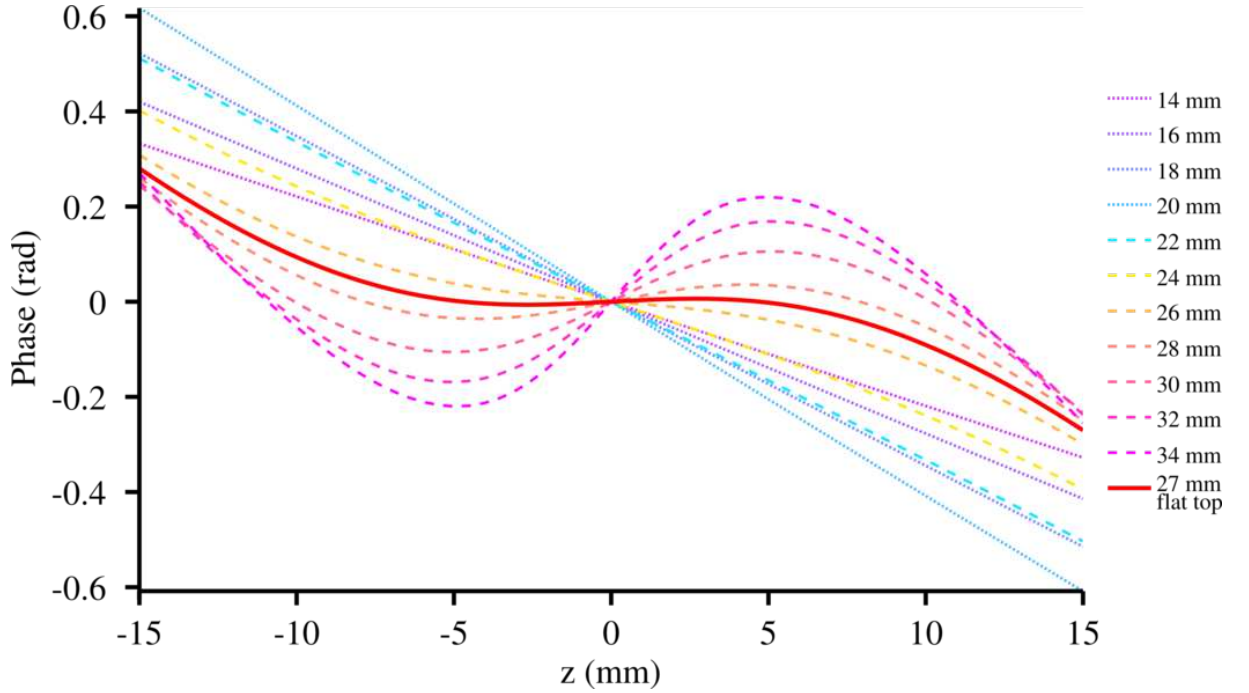


FIGURE 4.14 – Avance de phase, sur l'intervalle $z = [-15, +15]$ mm, de faisceaux gaussiens tronqués (pointillés) : $\phi_{iris} = 14 - 16 - 18 - 20$ mm. Et avance de phase des faisceaux mis en forme avec le TOP mirror (tirets) : $\phi_{plate} = 20$ mm, $\delta\phi = 1\pi$ et $\phi_{iris} = 22 - 24 - 26 - 28 - 30 - 32 - 34$ mm. La courbe continue rouge correspond au profil flat top persistant au cours de la propagation $\phi_{iris} = 27$ mm.

En résumé des observations faites sur l'ensemble des simulations :

- lorsque l'avance de phase est décroissante, le profil est gaussien,

- lorsqu'elle est croissante, on obtient des profils *donut* (plus la pente est importante plus le profil est creusé),
- au niveau des points d'inflexion on obtient des profils flat top transitoires,
- lorsque l'avance de phase est plane le profil flat top est maintenu sur une distance de quelques millimètres.

4.2.3.5 Conclusion : dimensionnement final du *TOP mirror*

Après avoir simulé les profils des faisceaux mis en forme avec le *TOP mirror* en fonction des différents paramètres ($\delta\phi$, ϕ_{plate} et ϕ_{iris}), on conclut que les meilleurs résultats pour un faisceau incident gaussien de largeur $W_{1/e^2} = 10$ mm, et une longueur de focalisation de 2 mètres, sont obtenus pour $\phi_{plate} = 20$ mm et $\delta\phi = 1\pi$. C'est donc les valeurs que nous choisirons pour la fabrication du miroir flat top. Dans ce cas le profil flat top se forme en $z = -3$ mm et persiste jusqu'en $z = +3$ mm, pour un diamètre d'iris $\phi_{iris} = 27$ mm. Le profil flat top se propage donc sur une distance de 6 mm et a une largeur moyenne $fwhm \approx 145$ μm . Néanmoins, pour ces simulations, nous partons d'un profil gaussien parfait avec une symétrie de révolution et nous considérons une focalisation parfaite. D'un point de vue expérimental, il faut prendre en compte beaucoup d'autre facteurs :

- le profil du faisceau laser Eclipse n'est pas parfaitement gaussien et présente des modulations et des imperfections (surtout sur les bords),
- le paramètre M^2 du faisceau n'est pas égal à un et va avoir de l'importance lors de la focalisation,
- l'optique de focalisation n'a pas une qualité optique parfaite,
- l'angle d'incidence sur le miroir sphérique n'est pas de zéro degré, ce qui peut induire de l'astigmatisme,
- la marche déposée sur le miroir n'a pas des bords parfaitement abrupts, ils s'étendent sur une largeur d'environ 350 μm et créent de la diffraction.

On se place donc au centre de l'espace de paramètres où la mise en forme spatiale fonctionne bien. Malgré ces facteurs non pris en compte lors des simulations, on devrait rester dans des conditions où la mise en forme fonctionne et obtenir des profils flat top expérimentalement.

4.2.4 Profils expérimentaux de faisceaux femtosecondes

Nous avons en premier lieu testé le *TOP mirror* pour mettre en forme le faisceau laser Éclipse. La tache focale est caractérisée au moyen d'un dispositif d'imagerie pour l'infrarouge et d'une camera CCD 12 bits.

4.2.4.1 Dispositif d'imagerie

Le dispositif expérimental de mise en forme et de caractérisation est présenté sur la figure 4.15. Nous utilisons un système d'imagerie $2f - 2f$ avec une lentille de focale $f = +400$ mm (grandissement de 1). L'image est réalisée expérimentalement directement avec le faisceau infrarouge en mettant un objet ponctuel sur son trajet afin de s'affranchir de l'erreur de mesure sur les distances et la dépendance de la focale en fonction de la longueur d'onde. En effet, une imagerie faite dans le domaine visible induit une erreur de position à cause de la différence d'indice optique du matériau de la lentille pour le visible et pour l'infrarouge. On caractérise le profil du faisceau sur une plage de 2 cm autour du foyer gaussien (ce qui correspond à la course de la platine de translation du jet de gaz pour la génération d'harmoniques). Connaissant la position de la caméra et le grandissement, on sait exactement à quel endroit on regarde le faisceau.

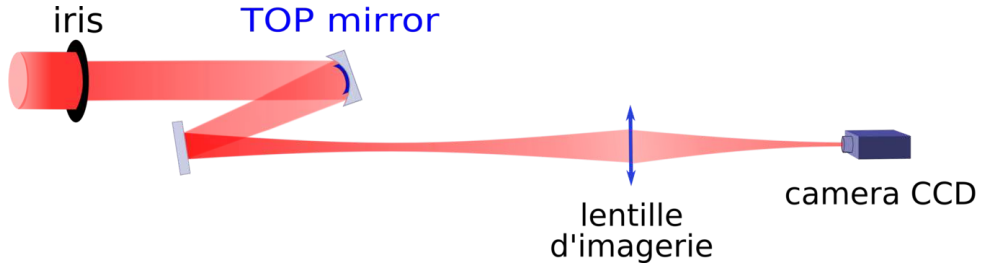


FIGURE 4.15 – Dispositif expérimental de mise en forme spatiale du faisceau femtoseconde et de caractérisation des profils obtenus.

4.2.4.2 Résultats

Les profils spatiaux du faisceau mis en forme sont étudiés en fonction de la taille de l'iris ϕ_{iris} , et de la coordonnée longitudinale z (axe de propagation du faisceau). Ces études ont été effectuées au cours de deux campagnes expérimentales (en Juillet 2010, puis en Octobre-Novembre 2010) qui avaient pour but de générer des harmoniques avec le dispositif de mise en forme spatiale. La première étape de chaque campagne expérimentale a été de caractériser le faisceau générateur et en particulier le profil spatial du faisceau mis en forme. Les résultats de Juillet ont donné lieu à une publication dans Optics Letters [Dubrouil 11], néanmoins ils ont été améliorés en Octobre-Novembre. C'est pourquoi il est important de présenter les résultats des deux campagnes expérimentales.

Campagne de Juillet 2010 :

Il s'agit ici des premiers essais de mise en forme spatiale avec le miroir flat top. Des

profils expérimentaux obtenus avec le laser Eclipse sont présentés sur les figures 4.16 ($\phi_{iris} = 8 - 10 - 12 - 15 - 18$ mm) et 4.17 ($\phi_{iris} = 20 - 23 - 25 - 27 - 30$ mm). On peut apprécier à gauche les images de la tache focale acquies avec la caméra CCD, tandis qu'à droite sont exposés les profils verticaux et horizontaux correspondants. Sur la figure 4.16, les diamètres d'iris sont inférieurs à 20 mm, il s'agit donc de faisceaux gaussiens tronqués. La tache focale a une forme typiquement gaussienne, et la largeur du faisceau diminue lorsque ϕ_{iris} augmente. La largeur à mi-hauteur des profils verticaux ($fwhm_V$) passe de $216 \mu m$ (pour $\phi_{iris} = 8$ mm) à $98 \mu m$ (pour $\phi_{iris} = 18$); de $230 \mu m$ à $125 \mu m$ pour la largeur des profils horizontaux ($fwhm_H$). Les largeurs des profils horizontaux et verticaux sont sensiblement différentes, ce qui témoigne de la présence d'aberrations géométriques.

La figure 4.17 présente les profils expérimentaux obtenus avec le dispositif de mise en forme spatiale. Pour $\phi_{iris} = 20$ mm, il y a déjà un petit effet de mise en forme car l'iris est loin du *TOP mirror* (1.5 m), et à cause de la diffraction, le diamètre du faisceau est plus grand que 20 mm en arrivant sur le miroir.

Pour $\phi_{iris} = 23$ mm, on commence à observer un effet clair de la mise en forme spatiale : la largeur du profil vertical passe de $88 \mu m$ (pour $\phi_{iris} = 20$ mm) à $106 \mu m$ et la largeur du profil horizontal se maintient ($125 \mu m$ pour $\phi_{iris} = 20$ mm contre $124 \mu m$ pour $\phi_{iris} = 23$ mm). La mise en forme spatiale inverse la tendance : la largeur du faisceau augmente lorsque le diamètre de l'iris augmente.

Cette tendance se confirme pour $\phi_{iris} = 25$ mm, par rapport à $\phi_{iris} = 23$ mm, $fwhm_V$ passe de $106 \mu m$ à $110 \mu m$ et $fwhm_H$ de $124 \mu m$ à $127 \mu m$. En augmentant encore ϕ_{iris} , on constate que l'effet de mise en forme spatiale est effectif seulement sur le profil vertical. Si l'on compare $\phi_{iris} = 25$ mm et $\phi_{iris} = 27$ mm, $fwhm_V$ passe de $110 \mu m$ à $122 \mu m$ et alors que $fwhm_H$ passe de $127 \mu m$ à $114 \mu m$. Cette réduction de la largeur du profil horizontal est à la fois due aux aberrations géométriques et à un manque d'énergie disponible pour la mise en forme spatiale. En effet, le faisceau incident sur l'iris est légèrement coupé de chaque côté dans le plan horizontal à cause des contraintes de positionnement sur les miroirs et les tubes de transport de faisceaux. Ce point sera amélioré pour la campagne d'Octobre. Pour $\phi_{iris} = 30$ mm, la tendance se confirme et un faisceau de forme ovale est détecté avec $fwhm_V = 129 \mu m$ et $fwhm_H = 118 \mu m$.

L'évolution de la largeur du faisceau en fonction de ϕ_{iris} est présentée sur la figure 4.18. On observe bien la tendance naturelle d'un faisceau gaussien à rétrécir lorsque ϕ_{iris} augmente. Le décalage entre la courbe verte ($fwhm_V$) et la courbe rouge ($fwhm_H$) témoigne des aberrations géométriques. Alors que $fwhm_H$ se stabilise à environ $125 \mu m$, $fwhm_V$ décroît jusqu'à $89 \mu m$ pour $\phi_{iris} = 20$ mm. La mise en forme spatiale (selon une seule direction) apparaît alors et $fwhm_V$ augmente jusqu'à $130 \mu m$.

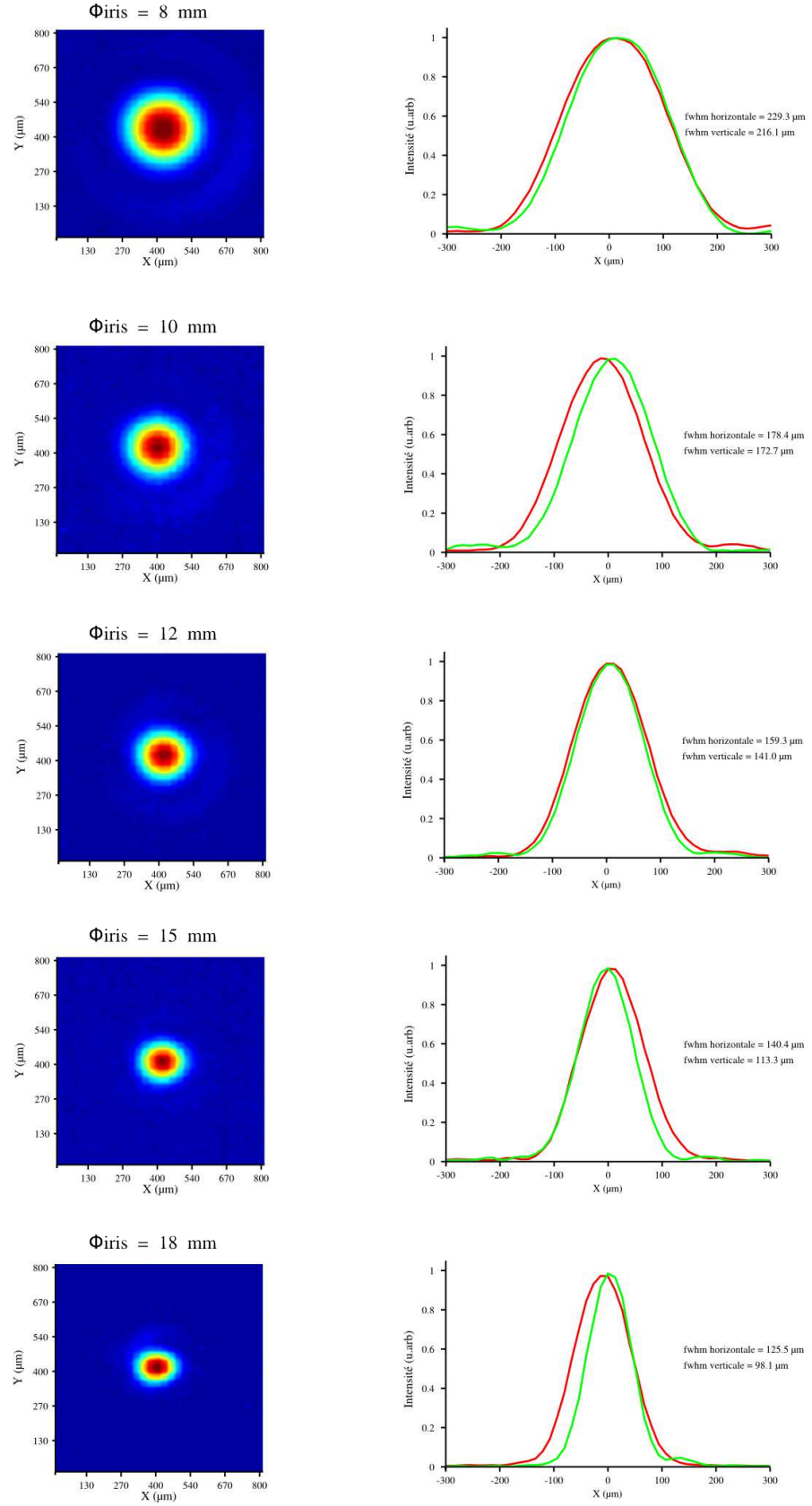


FIGURE 4.16 – Profils expérimentaux sans mise en forme spatiale en $z = 18$ mm.

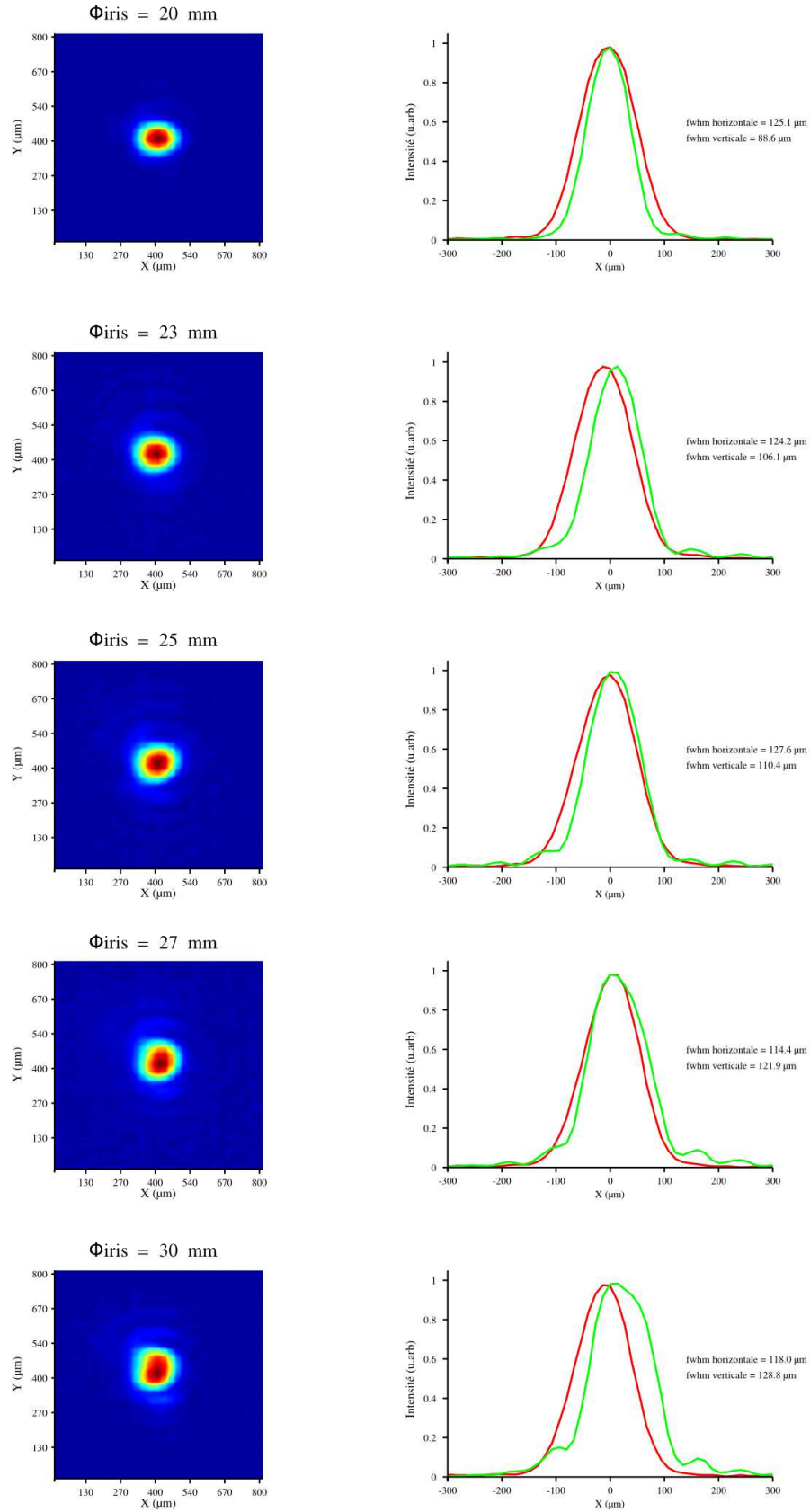


FIGURE 4.17 – Profils expérimentaux obtenus en $z = 18$ mm avec le dispositif de mise en forme spatiale.

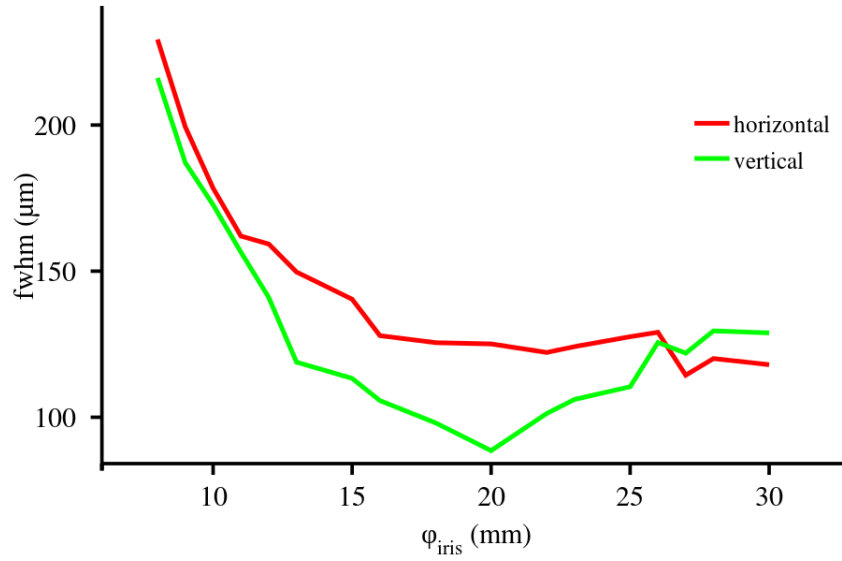


FIGURE 4.18 – Évolution de la largeur (fwhm) des profils expérimentaux obtenus avec le dispositif de mise en forme spatiale en fonction de ϕ_{iris} en $z = 18$ mm. En vert, coupe verticale de la tache focale. En rouge coupe horizontale de la tache focale.

Campagne d'Octobre 2010 :

Par rapport à la campagne précédente, nous avons repositionné les tables, les croix à vide et les miroirs, afin de profiter de l'entièreté du faisceau. Nous avons également constaté que l'alignement sur le *TOP mirror* était très critique pour la qualité de la mise en forme spatiale. De nouveaux diagnostics pour l'alignement ainsi qu'une nouvelle procédure ont alors été mis en place pour affiner cet alignement. Une nouvelle caméra CCD présentant une meilleure résolution est également utilisée. C'est pourquoi sur les images, le faisceau paraît plus gros que sur les figures 4.16 et 4.17.

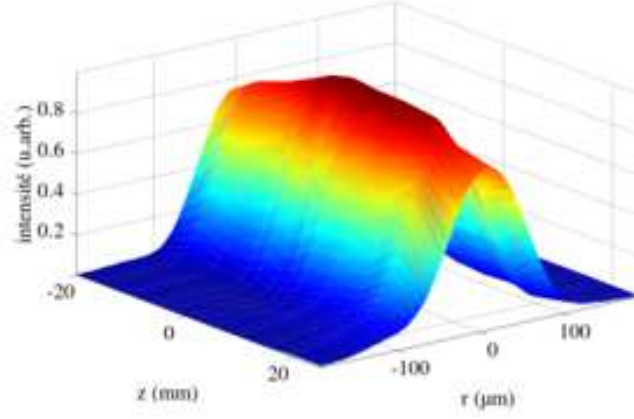
Nous commençons par définir la position du foyer qui servira comme origine de l'axe z (cette étude manque à la campagne de Juillet).

La figure 4.19 montre l'évolution au cours de la propagation d'un faisceau gaussien tronqué ($\phi_{iris} = 19$ mm) mesurée expérimentalement avec le dispositif d'imagerie. L'acquisition a été effectuée de $z = -20$ mm à $z = +40$ mm (la figure ne présente que l'intervalle qui s'étend de $z = -20$ à $z = 25$ mm). La sous-figure 4.19(a) affiche l'évolution en trois dimensions du profil horizontal du faisceau en fonction de z . La sous-figure 4.19(b) présente l'intensité crête pour le profil vertical (en vert) et pour le profil horizontal (en rouge). La sous-figure 4.19(c) montre les largeurs à mi-hauteur du profil vertical (en vert) et pour le profil horizontal (en rouge). Sur ces figures le foyer ($z = 0$) est défini là où le faisceau est le plus intense. Au vue de la courbe de l'intensité crête en fonction de z , ce

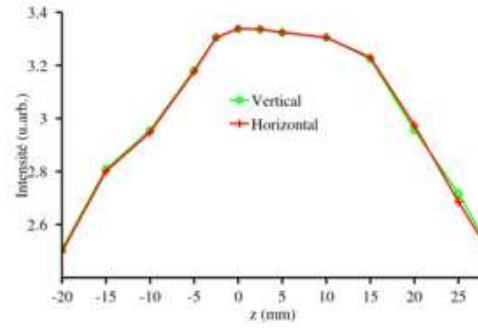
critère paraît mal adapté. L'intensité forme en fait un extremum qui se maintient entre les positions $z = -2.5$ et $z = +12.5$ mm (variation inférieure à 2.7%). Il est plus judicieux de définir la position du foyer gaussien comme le centre de cet intervalle. Nous prendrons dorénavant comme origine de l'axe $fwhmz$, le plan de coordonnée $z = +5$ de la figure 4.19. Par ailleurs, les largeurs à mi-hauteur ne permettent pas de définir la position du foyer. En effet, ni la largeur du profil horizontal, ni la largeur du profil vertical ne présentent d'évolutions significatives entre $z = -20$ et $z = +25$ mm. La largeur du profil vertical fluctue autour de $95 \mu\text{m}$ et celle du profil horizontal autour de $110 \mu\text{m}$. Le faisceau est donc asymétrique, néanmoins, l'astigmatisme¹³ ne semble pas jouer un rôle important car la différence entre les deux largeurs restent constante au cours de la propagation. Lorsqu'on s'éloigne encore du foyer (à partir de $z = 30$ mm), la largeur de chaque profil commence à augmenter rapidement et l'énergie s'écarte de l'axe $r = 0$: il s'agit clairement de la phase de défocalisation.

La position $z = 0$ définie ici sert de référence pour toute la campagne expérimentale. On s'aperçoit alors que la position où est réalisé le profil flat top peut varier de quelques millimètres d'un jour sur l'autre. Cela dépend des caractéristiques du faisceau laser en entrée de salle et de l'alignement sur le *TOP mirror*.

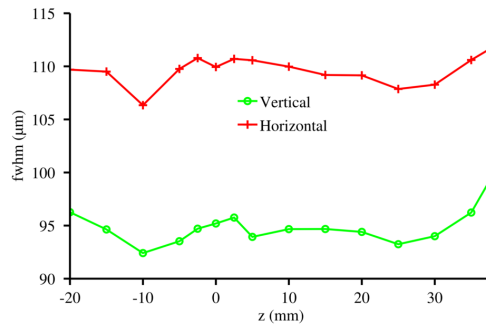
13. L'astigmatisme se caractérise par la présence d'un foyer sagittal et d'un foyer tangentiel. Lorsque cet astigmatisme est induit par une optique sphérique utilisée avec un angle d'incidence non nul α_i , la focale sagittale s'écrit : $f_s = \frac{f_0}{\cos(\alpha_i)}$ et la focale tangentielle : $f_t = f_0 \cos(\alpha_i)$. Dans notre dispositif expérimental, l'angle d'incidence est d'environ 2° , ce qui induit une différence entre le foyer tangentiel et le foyer sagittal de 3 mm. Cette astigmatisme est donc négligeable en comparaison du paramètre confocal comme l'indiquent les données expérimentales.



(a) Évolution en trois dimensions du profil horizontal expérimental du faisceau infrarouge au cours de la propagation de $z = -20$ à $+25$ mm.



(b) Intensité crête du profil vertical (vert) et du profil horizontal (rouge) du faisceau infrarouge en fonction de z .



(c) Largeur à mi-hauteur du profil vertical (vert) et du profil horizontal (rouge) du faisceau infrarouge en fonction de z .

FIGURE 4.19 – Évolution du faisceau infrarouge sans mise en forme spatiale au cours de la propagation de $z = -20$ à $+25$ mm, avec $\phi_{iris} = 19$ mm.

La figure 4.20 montre des profils de faisceau infrarouge obtenus en $z = 10$ mm. Suite aux modifications implémentées pour cette nouvelle campagne, la mise en forme spatiale est nettement plus efficace. On obtient des largeurs de profils très importantes : pour $\phi_{iris} = 30$ mm, $fw_{H_V} = 132 \mu\text{m}$ et $fw_{H_H} = 160 \mu\text{m}$. Cependant, pour des diamètres d'iris très importants (27 - 30 mm) la tache focale n'a plus une symétrie cylindrique à cause des imperfections du faisceau incident.

Pour $\phi_{iris} = 25$ mm, on obtient un joli faisceau assez circulaire avec des largeurs telles que : $fw_{H_V} = 108 \mu\text{m}$ et $fw_{H_H} = 121 \mu\text{m}$. Ces largeurs de faisceau correspondent à celle du faisceau gaussien tronqué par un iris de 14 mm avec un profil plus plat. De plus dans ce cas, l'énergie disponible est pleinement utilisée (transmission de 59% pour $\phi_{iris} = 14$ mm contre 94% pour $\phi_{iris} = 25$ mm). Ce faisceau mis en forme est donc assez prometteur pour la génération d'harmonique.

La figure 4.21 (à comparer avec la figure 4.18) met en évidence l'évolution de la largeur des profils verticaux (en vert) et horizontaux (en rouge) en fonction de ϕ_{iris} . On constate à nouveau le rétrécissement du faisceau gaussien tronqué lorsqu'on ouvre l'iris ainsi que l'astigmatisme du faisceau. A $\phi_{iris} = 20$ mm, la mise en forme spatiale rentre en jeu et cette fois l'effet est équivalent pour les profils verticaux et horizontaux. Les largeurs augmentent jusqu'à $fw_{H_V} = 132 \mu\text{m}$ et $fw_{H_H} = 160 \mu\text{m}$.

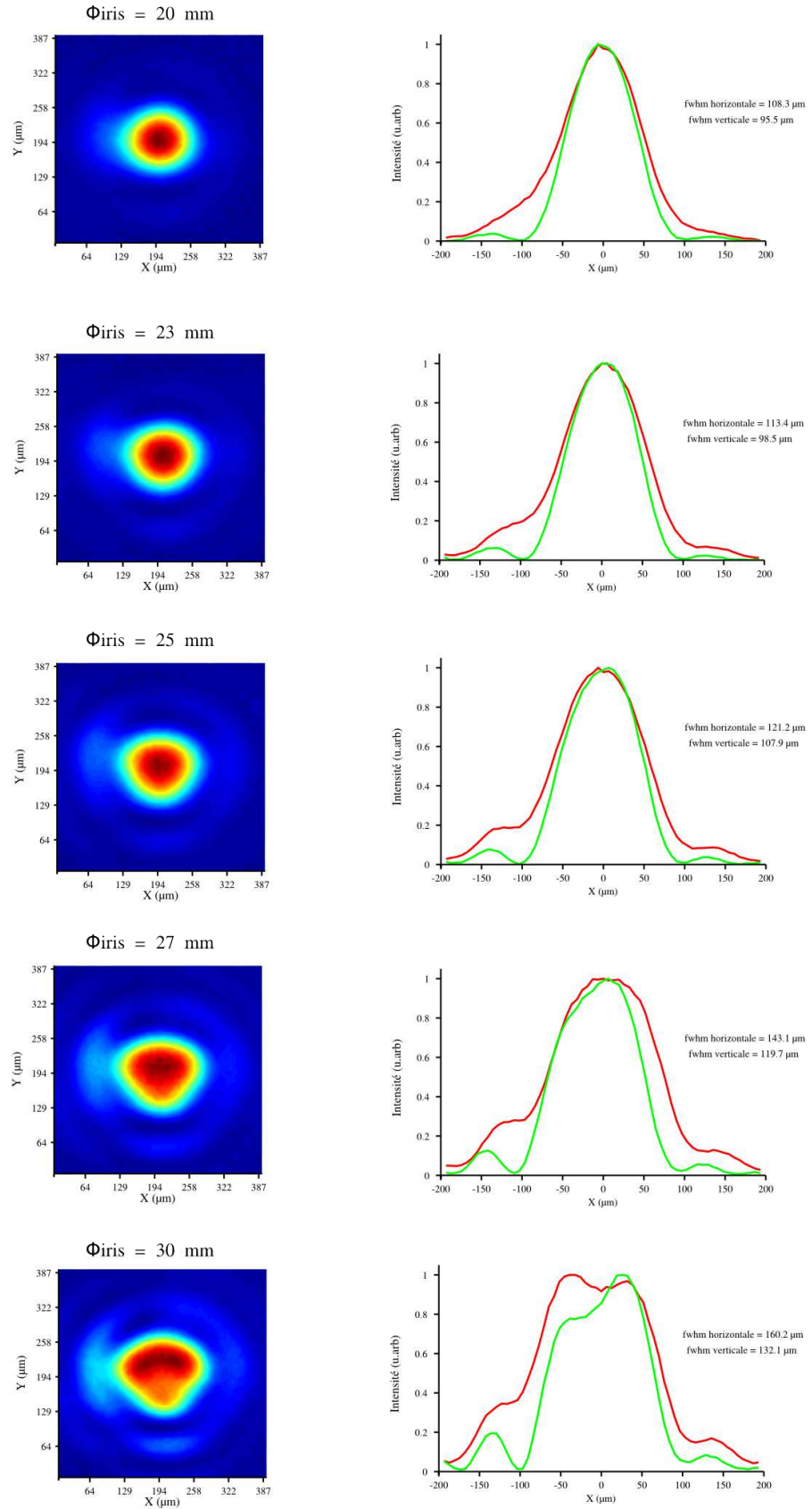


FIGURE 4.20 – Profils expérimentaux obtenus en $z = 10 \text{ mm}$ avec le dispositif de mise en forme spatiale.

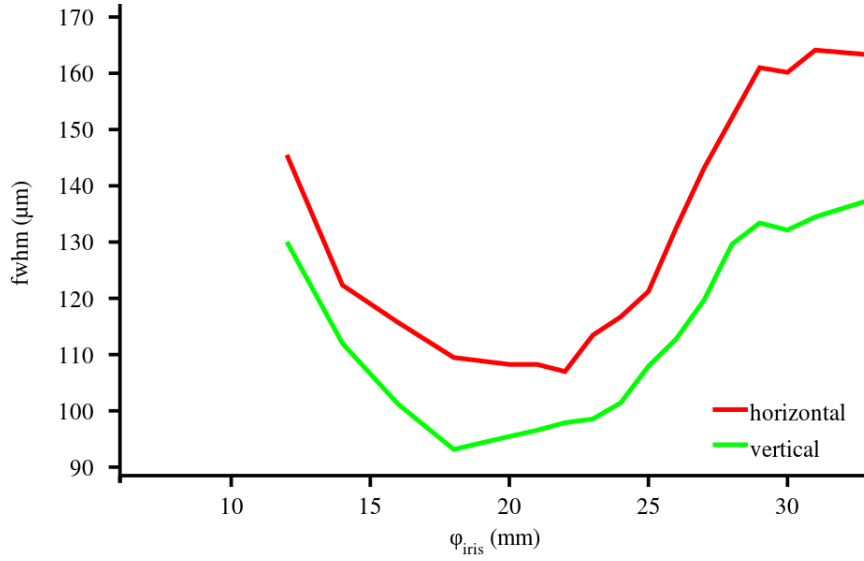


FIGURE 4.21 – Évolution de la largeur (fwhm) des profils expérimentaux obtenus $z = 10$ mm avec le dispositif de mise en forme spatiale en fonction de ϕ_{iris} avec $z = 10$ mm. En vert, coupe verticale de la tache focale. En rouge coupe horizontale de la tache focale.

La figure 4.22 expose les meilleurs profils flat top obtenus avec le dispositif de mise en forme spatiale. Ces résultats correspondent à un diamètre d'iris de 27 mm en $z = 10$ et $z = 12.5$ mm. Le profil d'intensité est très plat et uniforme sur un rayon d'environ $45 \mu\text{m}$. La figure 4.23 retrace l'évolution de ces profils au cours de la propagation. On obtient donc un joli profil flat top sur plus de 2.5 mm de longueur de propagation, ce qui autorise la génération d'harmoniques avec le faisceau mis en forme sur cet intervalle. Il conviendra donc de tester cette configuration pour générer les harmoniques.

Nous avons aussi vérifié qu'il est possible d'obtenir des profils de faisceau donut en ouvrant un peu plus l'iris. La figure 4.24 montre un profil donut obtenu en $z = 14.5$ mm avec $\phi_{iris} = 30$ mm. Avec un tel diamètre d'iris, l'énergie disponible dans le faisceau externe crée une interférence suffisante pour creuser le profil au centre du faisceau.

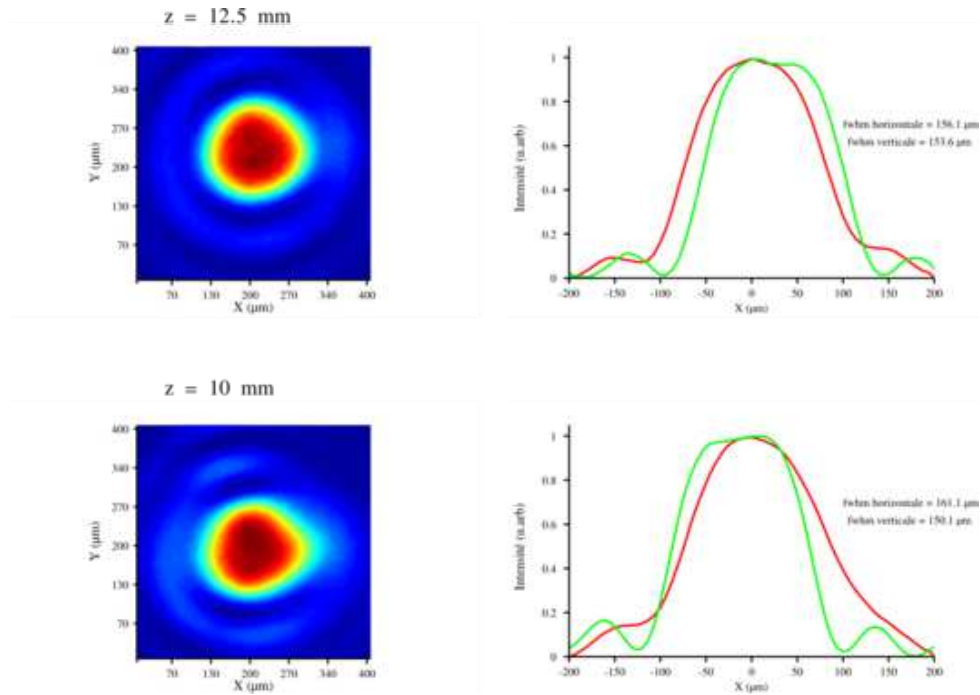


FIGURE 4.22 – Profils expérimentaux obtenus avec le dispositif de mise en forme spatiale en $z = 10$ et $z = 12.5$ mm.

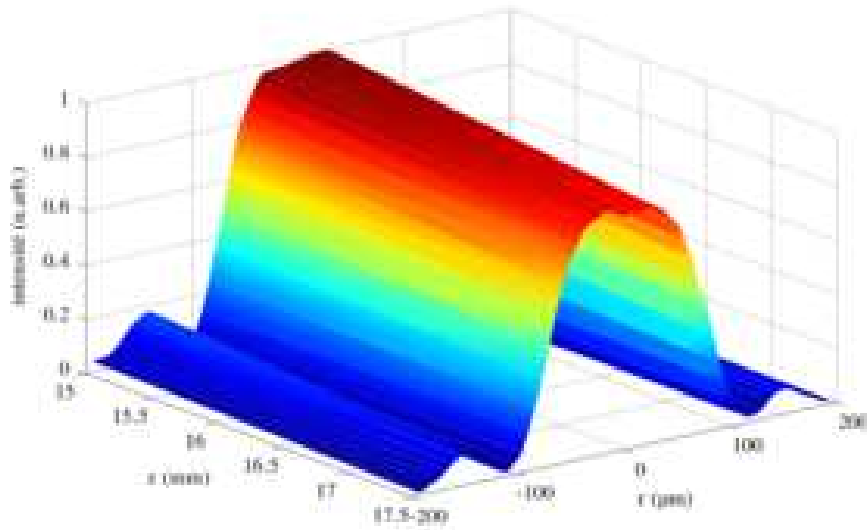


FIGURE 4.23 – Évolution des profils expérimentaux flat top obtenus avec le dispositif de mise en forme spatiale entre $z = 10$ et $z = 12.5$ mm.

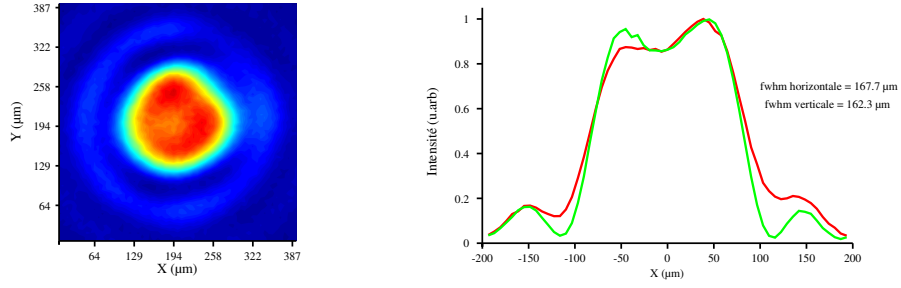


FIGURE 4.24 – Profils expérimentaux obtenus avec le dispositif de mise en forme spatiale pour $\phi_{iris} = 30$ mm et $z = 14.5$ mm.

En conclusion de ces campagnes expérimentales de mise en forme spatiale de faisceaux intenses, on constate que le dispositif fonctionne correctement. Les modifications faites pour la campagne d'Octobre ont porté leur fruits : on arrive à obtenir des profils de faisceaux similaires à ceux des simulations même si les paramètres pour les obtenir sont sensiblement différents (en particulier la position z). Ceci s'explique par le fait que de nombreux paramètres expérimentaux ne sont pas pris en compte dans les simulations tels que : les imperfections du profil du faisceau laser Eclipse (non uniforme), le paramètre M^2 qui est considéré égal à 1, le rapport de Strehl et la qualité optique du miroir sphérique. De plus, les caractéristiques et la qualité de la marche déposée sur le miroir n'ont pas été vérifiées. Néanmoins, on peut considérer que ces campagnes expérimentales sont satisfaisantes et en relativement bon accord avec les simulations. Nous avons finalement pu identifier les conditions nous permettant d'obtenir un faisceau laser d'une largeur importante avec un profil d'intensité plat qui se maintient sur plusieurs millimètres.

Nous allons maintenant tester la technique de mise en forme spatiale pour la génération d'harmoniques, et nous intéresser à l'impact des profils de faisceaux infrarouges obtenus sur le faisceau XUV émis.

4.3 Génération d'harmoniques avec le faisceau mis en forme

Le dispositif expérimental pour la génération d'harmoniques avec un faisceau spatialement mis en forme est présenté sur la figure 4.25. On retrouve donc l'iris réglable sous vide ainsi que le *TOP mirror* qui focalise le faisceau dans un jet de gaz pulsé où les harmoniques sont générées. Le jet de gaz, d'un diamètre de $250 \mu\text{m}$, est placé le plus près possible du faisceau afin de maximiser la pression dans le milieu générateur et de minimiser sa longueur. Cette dernière est estimée à 2.5 - 3 mm grâce à l'imagerie du

plasma dans le jet de gaz. Le faisceau XUV arrive ensuite sur la fente d'entrée (d'une largeur de $500 \mu\text{m}$) du spectromètre après 180 cm de propagation (le spectromètre est présenté plus en détail dans la section 3.2.1). Le spectromètre est équipé d'un réseau Hitachi concave à champ plat qui fait l'image de la fente sur le détecteur dans la dimension spectrale et laisse diverger le faisceau pour la dimension spatiale. La détection est assurée par des galettes de micro-canaux (MCP) double étage couplées à un écran de phosphore. Ce dernier est imagé sur le chip d'une caméra CCD 12 bit qui nous permet d'acquérir les spectres harmoniques. L'intérêt de ce spectromètre est d'offrir à la fois une résolution spatiale et spectrale : la dimension verticale des images correspond au profil spatial des harmoniques après 3 m de propagation libre.

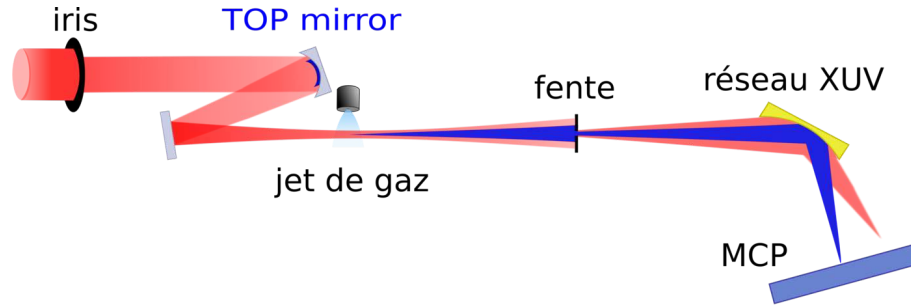


FIGURE 4.25 – Dispositif expérimental pour la génération d'harmoniques avec un faisceau spatialement mis en forme et la caractérisation spectrale et spatiale du faisceau XUV émis.

4.3.1 Campagne de juillet 2010 :

Ces conditions expérimentales nous ont permis d'observer des harmoniques avec et sans mise en forme spatiale. Nous avons caractérisé ces harmoniques en fonction des paramètres suivants :

- la nature du gaz (néon ou argon)
- l'énergie incidente sur l'iris E_{iris}
- le diamètre de l'iris ϕ_{iris}

Le jet de gaz est placé à l'endroit où nous avons détecté le profil flat top, environ 17-18 mm après le foyer. La pression en amont du jet de gaz est de 3.5 bars pour cette campagne.

4.3.1.1 Observation directe des spectres harmoniques

La figure 4.26 révèle les spectres résolus spatialement des harmoniques générées dans le néon, avec $E_{iris} = 50 \text{ mJ}$ et pour différentes valeurs de ϕ_{iris} . La fenêtre observation s'étend de 10 nm à 22 nm (57 à 110 eV).

Pour $\phi_{iris} = 8$ mm (génération avec un faisceau gaussien tronqué), l'intensité devient tout juste suffisante pour générer les harmoniques dans cette gamme spectrale. On n'observe alors que huit harmoniques (à partir de H39) avec des intensités faibles, des profils spatiaux larges et un *cut off* qui se situe à 81 eV (H53). En augmentant le diamètre de l'iris de 1 mm ($\phi_{iris} = 9$ mm), le *cut-off* est repoussé jusqu'au bord de la fenêtre d'observation, à environ 110 eV. Les harmoniques sont plus intenses et bien définies : on peut distinguer les structures dues aux trajectoires courtes et aux trajectoires longues. Les trajectoires courtes apparaissent comme des spots centraux intenses avec des largeurs spectrales faibles et des divergences faibles, alors que les trajectoires longues sont des anneaux, larges spectralement et bien plus divergents. La taille des anneaux diminue avec l'ordre harmonique alors que les spots centraux suivent une tendance inverse. Les trajectoires courtes et longues finissent par se confondre au niveau du *cut-off*.

Pour $\phi_{iris} = 10$ mm, les harmoniques les plus basses (H39 à H47) deviennent très intenses et les trajectoires longues deviennent trop divergentes pour être observées. On commence à les distinguer à partir de H47. De la même manière que pour $\phi_{iris} = 9$ mm, leur divergence diminue avec l'ordre harmonique alors que les trajectoires courtes deviennent plus divergentes et les deux finissent par se confondre dans le *cut-off*. Par ailleurs, les profils spectraux sont très différents, les harmoniques sont dissymétriques avec un front abrupt et rectiligne du côté rouge du spectre et bombé du côté bleu ; les trajectoire longues ont alors la forme de “bananes”. Ceci s'explique par un *blue-shift* du spectre fondamental et/ou des harmoniques dû à une forte intensité dans le milieu générateur.

Pour $\phi_{iris} = 11$ mm, les harmoniques sont toujours dissymétriques, mais elles deviennent plus divergentes quelque soit l'ordre harmonique. Le signal sur les harmoniques hautes (à partir de H55) est nettement réduit par rapport à $\phi_{iris} = 10$ mm.

Pour $\phi_{iris} = 12$ mm, les harmoniques présentent des profils spectraux similaires, néanmoins, le signal diminue pour tous les ordres harmoniques et la divergence est plus importante. L'intensité dans le milieu générateur devient trop forte pour générer les harmoniques efficacement. Cette tendance se confirme lorsqu'on augmente encore le diamètre de l'iris, le signal ne cesse de diminuer et la divergence d'augmenter pour $\phi_{iris} = 13 - 14 - 16$ mm.

Pour $\phi_{iris} = 18$ mm (figure 4.27), la divergence est maximale et le faisceau XUV a pratiquement disparu.

Pour $\phi_{iris} = 20$ mm, on commence déjà à voir un effet de mise en forme spatiale et le faisceau XUV semble réapparaître pour les harmoniques les plus basses (H39 à H45). Bien que l'iris soit exactement de la taille de la pastille (à l'erreur de mesure près), le miroir étant relativement loin (1.5 m) de l'iris, à cause de la diffraction, le diamètre du faisceau sur le miroir est légèrement supérieur au diamètre de l'iris et la mise en forme

spatiale peut déjà commencer.

Pour $\phi_{iris} = 22$ mm, le faisceau XUV réapparaît de manière plus significative (jusqu'à H49).

Pour $\phi_{iris} = 24$ mm, l'effet de la mise en forme spatiale devient très clair, presque toutes les harmoniques sont réapparues et les harmoniques les plus basses (H39 à H47) deviennent relativement intenses avec des divergences faibles.

En augmentant le diamètre de l'iris d'encore un millimètre ($\phi_{iris} = 25$ mm), les harmoniques deviennent très intenses (jusqu'à H47) et prennent toutes une forme circulaire : elles sont larges spectralement et très peu divergentes.

Pour $\phi_{iris} = 26$ mm, le faisceau est un peu plus intense (surtout pour les harmoniques hautes) et un peu plus divergent avec toujours des profils spatiaux propres et très similaires d'une harmonique à l'autre.

Lorsqu'on augmente encore ϕ_{iris} , le faisceau XUV commence à diverger et le profil spatial devient chahuté. Il est possible que les fronts deviennent perturbés dû à la contribution de l'extrême périphérie du faisceau qui présente des imperfections tant en terme de phase qu'en terme d'intensité. De plus, plus l'iris est ouvert, plus le saut de phase transverse (gradient important) se rapproche de l'axe.

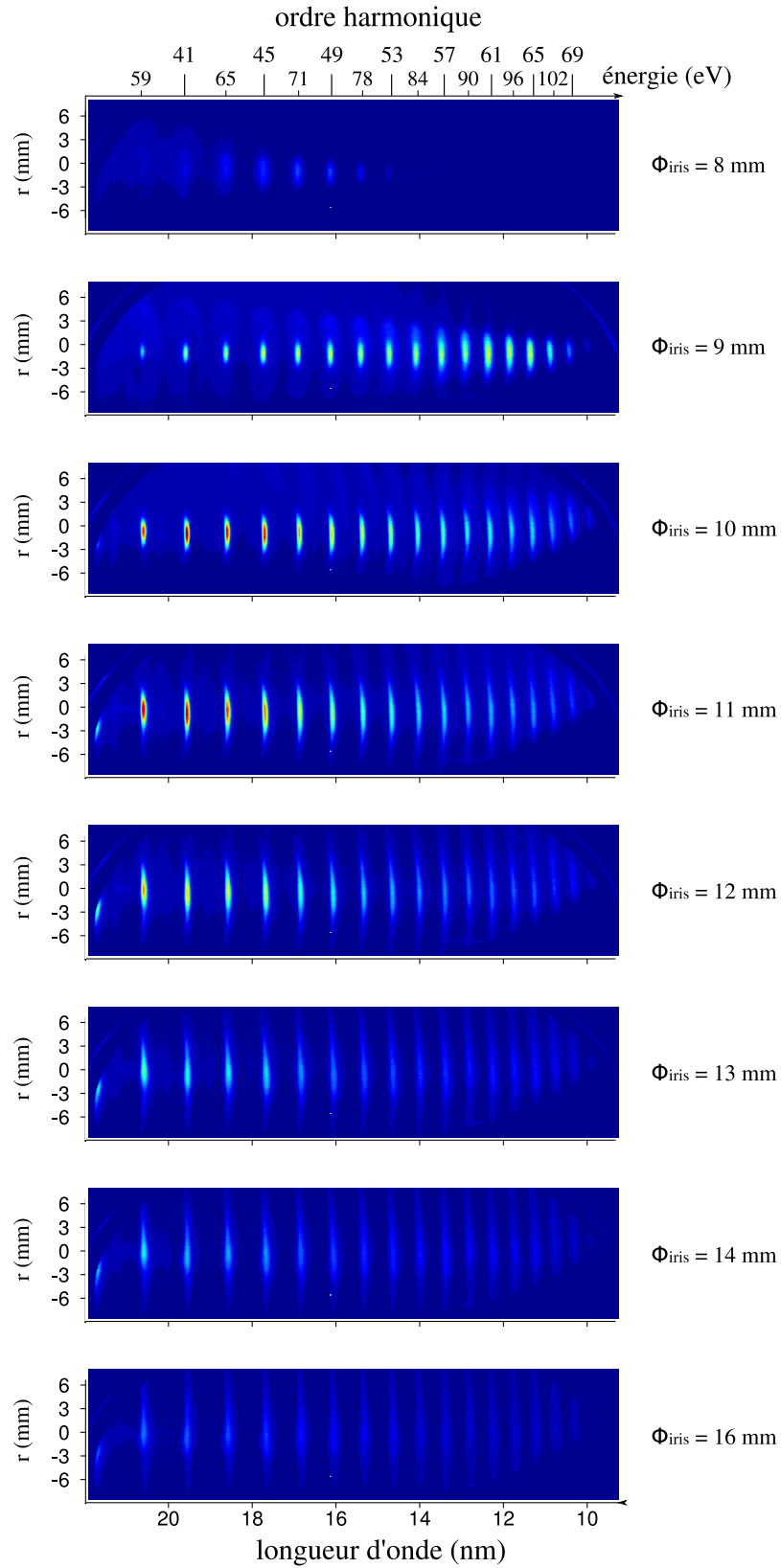


FIGURE 4.26 – Spectres harmoniques résolus spatialement pour différents diamètres d’iris. Harmoniques générées dans le néon sans mise en forme spatiale ($\phi_{\text{iris}} < 20$) et une énergie incidente sur l’iris de 50 mJ. La fenêtre spectrale s’étend 10 nm à 22 nm (57 à 110 eV, H39 à H69). Jet de gaz à 18 mm après le foyer avec une pression en amont de 3.5 bar. Les spectres sont moyennés sur 20 tirs.

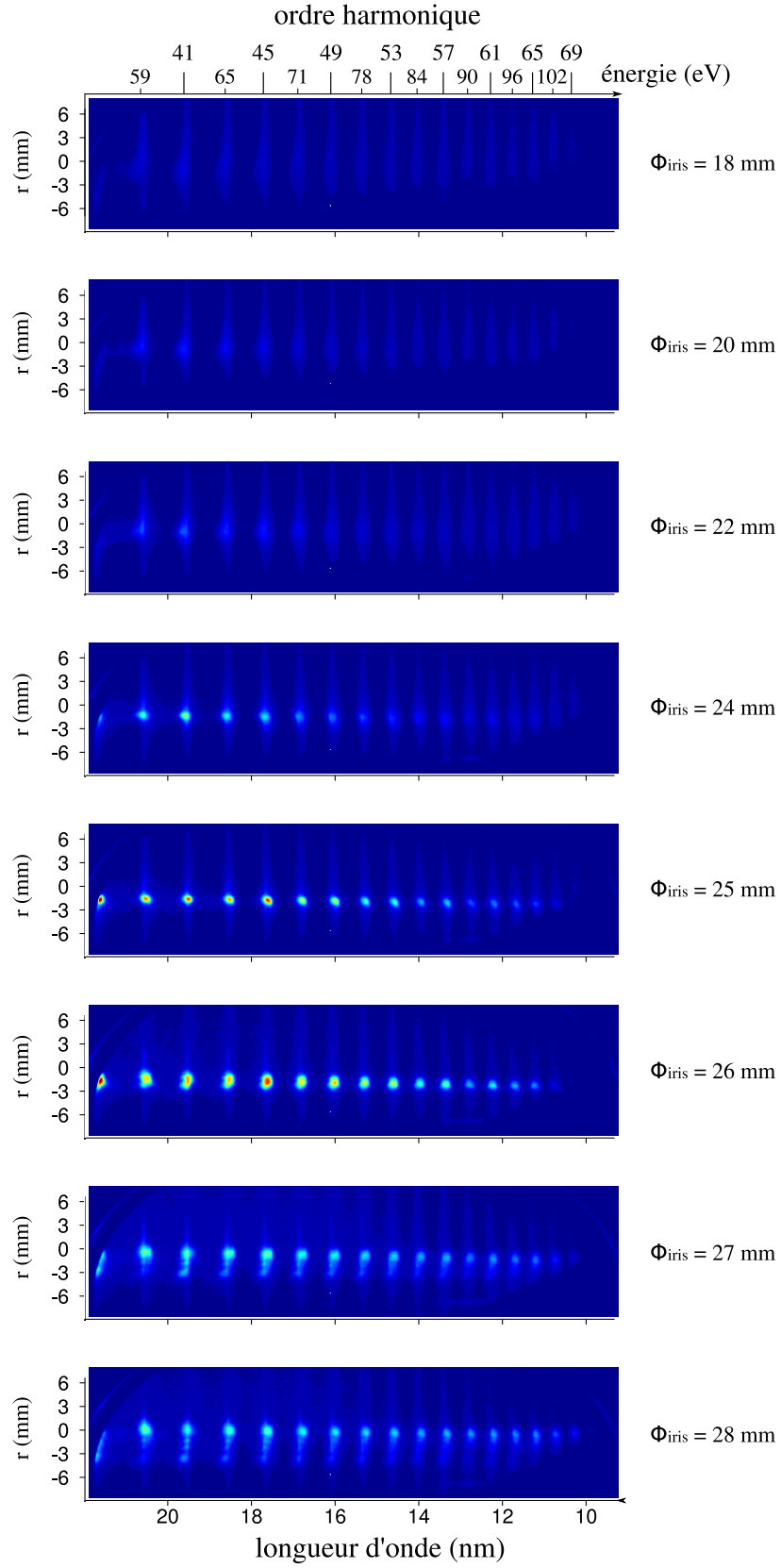


FIGURE 4.27 – Spectres harmoniques résolus spatialement pour différents diamètres d'iris. Harmoniques générées dans le néon avec le faisceau mis en forme ($\phi_{iris} > 20$) et une énergie incidente sur l'iris de 50 mJ. La fenêtre spectrale s'étend 10 nm à 22 nm (57 à 110 eV, H39 à H69). Jet de gaz à 18 mm après le foyer avec une pression en amont de 3.5 bar. Les spectres sont moyennés sur 20 tirs.

4.3.1.2 Divergence et flux de photon

La figure 4.28 résume de manière quantitative l'effet du diamètre de l'iris sur les spectres harmoniques. Elle se compose de trois sous-figures avec un axe des abscisses commun qui correspond à ϕ_{iris} . La figure 4.28(a) met en évidence l'évolution du profil spectral et spatial de l'harmonique 45 en fonction de ϕ_{iris} . Au départ ($\phi_{iris} = 8$ mm), les trajectoires courtes et longues sont confondues car le *cut-off* est proche de H45. Cette dernière est donc large spectralement et assez divergente. Ensuite ($\phi_{iris} = 9$ mm), les trajectoires courtes et longues se séparent et on observe un spot central intense et peu divergent ainsi qu'un anneau très divergent et large spectralement. Pour $\phi_{iris} = 10$ mm, les trajectoires longues ont presque disparu et le spot central est devenu très intense et plus divergent. A partir de là, l'intensité de H45 décroît alors que la divergence ne cesse d'augmenter jusqu'à $\phi_{iris} = 18$ mm. On voit H45 réapparaître à partir de $\phi_{iris} = 20$ mm. Elle devient très intense et très peu divergente pour $\phi_{iris} = 25$ mm ; encore plus intense pour $\phi_{iris} = 26$ mm mais un peu plus divergente. Le profil spatial de H45 devient chahuté lorsque ϕ_{iris} est supérieur à 27 mm.

La figure 4.28(b) présente la divergence en fonction de ϕ_{iris} pour six groupes d'harmoniques. La divergence est définie comme la largeur du profil spatial (*fwhm*) divisée par la distance de propagation. La divergence est croissante pour toutes les harmoniques de $\phi_{iris} = 8$ mm à $\phi_{iris} = 18$ mm. Seulement trois points contrarient la tendance : pour $\phi_{iris} = 8$ mm, H39-41 (rouge) et H43-45 (vert) et pour $\phi_{iris} = 9$ mm, H39-41. Pour ces points, la contribution des trajectoires longues est suffisamment importante pour imposer la divergence. La divergence la plus faible pour la génération avec le faisceau gaussien tronqué est de 0.6 mrad (courbe jaune : H51-53-55, $\phi_{iris} = 8$ mm) ; la divergence la plus élevée (≈ 4 mrad) est atteinte en $\phi_{iris} = 18$ mm avec les harmoniques H57-59-61 (courbe cyan). La divergence de toutes les harmoniques est ensuite réduite lorsque l'on commence à faire de la mise en forme spatiale ($\phi_{iris} = 20$ mm). Elle décroît très rapidement jusqu'à atteindre son minimum en $\phi_{iris} = 25$ mm pour les harmoniques 39 à 55. La divergence est alors comprise entre 340 et 350 μ rad et est inférieure à 400 μ rad pour les harmoniques 57 à 69.

La divergence θ du faisceau XUV est en général imposée par la contribution de deux termes ($\theta = \theta_1 + \theta_2$) : θ_1 est proportionnel à la taille de la source ($\sim \lambda/w_0$), θ_2 est dû au gradient radial de phase atomique qui induit une courbure du front d'onde ($\theta_2 \sim \alpha \frac{\partial I}{\partial r}$). En général, θ_2 est largement dominant. Avec le profil flat top, la phase atomique est presque constante, la contribution de θ_2 est alors fortement réduite et la divergence du faisceau XUV devient très faible. Pour $\phi_{iris} = 26$ mm, c'est au tour des harmoniques 57 à 69

d'atteindre leur minimum de divergence ($\approx 350 \mu\text{rad}$). On constate également que l'ordre des différents groupes d'harmoniques s'inversent entre les diamètres $\phi_{iris} = 25$ et $\phi_{iris} = 26$ mm, cela indique qu'il existe un diamètre intermédiaire (≈ 25.5 mm) où toutes les harmoniques ont quasiment la même divergence. C'est intéressant pour la focalisation du faisceau XUV, toutes les harmoniques seront focalisées au même endroit. À partir de $\phi_{iris} = 27$ mm, les profils spatiaux sont perturbés, ce qui donne lieu à des valeurs de divergence assez disparates en fonction de l'ordre harmoniques.

La figure 4.28(b) est à comparer avec la figure 4.28(c) qui met en évidence le nombre total de photons XUV collectés sur les MCP en fonction du diamètre de l'iris pour les mêmes six groupes d'harmoniques. Le signal croît rapidement de $\phi_{iris} = 8$ mm jusqu'à $\phi_{iris} = 10$ mm où se trouve l'optimum pour le faisceau gaussien tronqué (2.5 en unité arbitraires pour H43-45). Le signal décroît ensuite rapidement jusqu'à atteindre le minimum : 0.2 u. arb pour H63-65-67-69 et 0.6 u.arb pour H39-41 pour $\phi_{iris} = 18$ mm. Puis la mise en forme spatiale fait remonter le flux de photon à partir de $\phi_{iris} = 20$ mm, pour atteindre un autre optimum (1.7 u.arb pour H39-41), que l'on nommera l'optimum flat top, pour $\phi_{iris} = 26$ mm. Le signal est ensuite relativement constant et correspond aux conditions où les profils spatial et spectral des harmoniques sont perturbés.

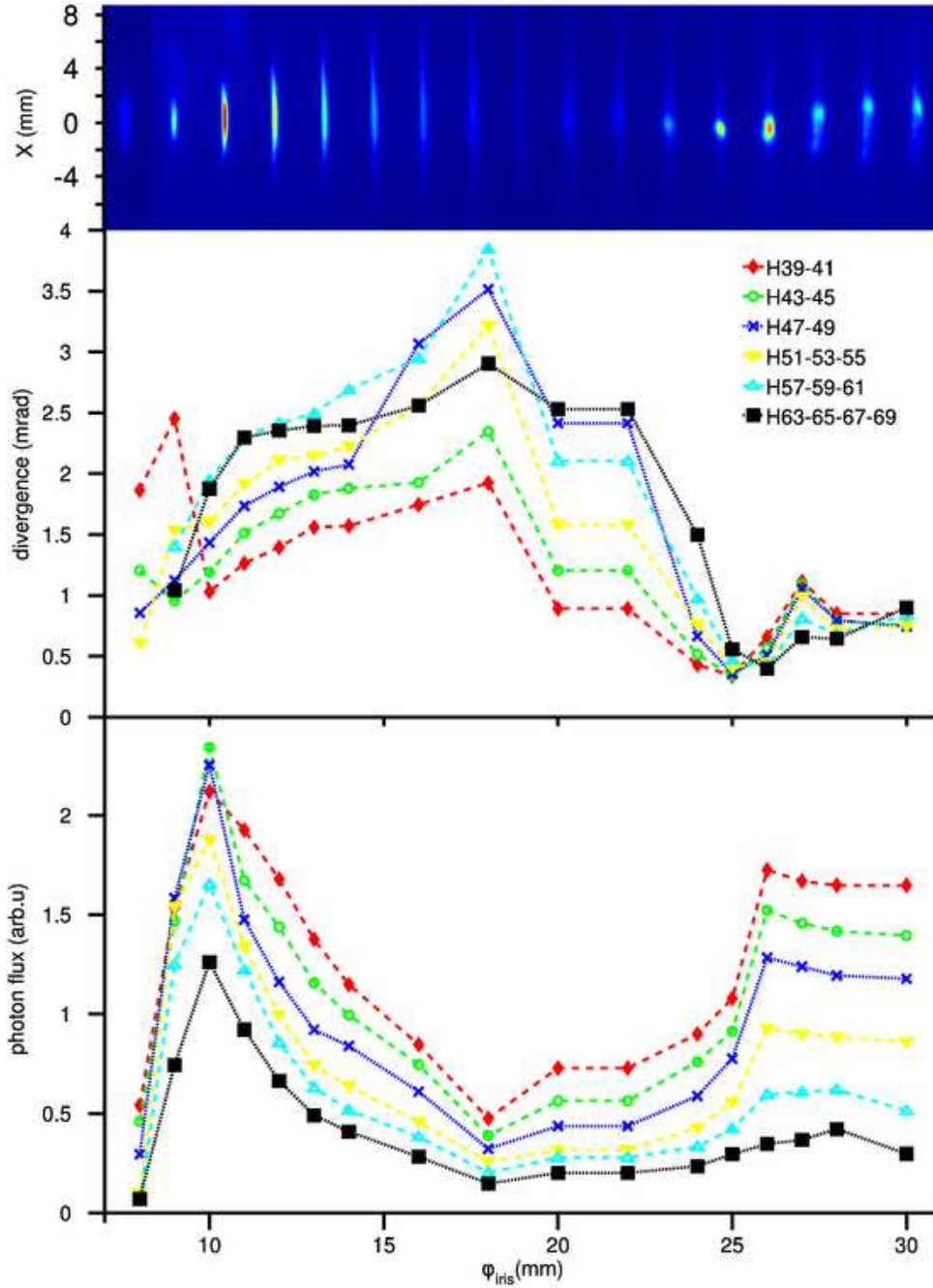


FIGURE 4.28 – (a) Evolution du profil spatial et spectral de l'harmonique 45 en fonction du diamètre de l'iris : les spectres résolus spatialement de H45 sont extraits pour différentes valeurs de ϕ_{iris} et tracés les uns à côté des autres. (b) Divergence du faisceau XUV ($fwhm/D$) en fonction de ϕ_{iris} pour plusieurs groupes d'harmoniques, (c) signal harmonique total intégré sur la caméra CCD : H39-41 (rouge), H43-45 (vert), H47-49 (bleu), H51-55 (jaune), H57-61 (cyan), H63-69 (noir).

4.3.1.3 Largeur spectrale

Il est également intéressant d'étudier la largeur du profil spectral des harmoniques. La fig-

ure 4.29 présente l'évolution de la largeur spectrale de chaque harmonique en fonction du diamètre de l'iris. La courbe continue en violet correspond à l'harmonique 45, cela permet de comparer avec la figure 4.28 et de relier l'évolution de la largeur spectrale avec le profil spatial de H45. Les largeurs spectrales sont estimées en sommant une coupe d'une largeur de 10 pixel de l'harmonique considérée et en calculant la largeur à mi-hauteur (*fwhm*).

Pour $\phi_{iris} = 8$ mm, la largeur spectrale des harmoniques est très importante car les trajectoires longues contribuent de manière prépondérante et imposent la largeur spectrale. De plus, cette dernière est d'autant plus grande que l'ordre harmonique est faible. Dès $\phi_{iris} = 9$ mm, la contribution des trajectoires longues est nettement réduite car les spots centraux sont devenus beaucoup plus intenses que les anneaux. La largeur spectrale s'en trouve nettement réduite et plus homogène au regard de l'ordre harmonique.

Pour $\phi_{iris} = 10$ mm, qui correspond à l'optimum en terme de flux de photon avec le faisceau gaussien tronqué, toutes les harmoniques ont également une largeur spectrale minimale dans ces conditions. Ensuite, on assiste à une croissance homogène pour tous les ordres harmoniques, avec un saut important entre $\phi_{iris} = 16$ mm et $\phi_{iris} = 18$ mm. Cette croissance peut s'expliquer par l'augmentation de l'intensité dans le milieu générateur, et du taux d'ionisation, qui induit un élargissement spectral du fondamental et/ou des harmoniques (*blue-shift*).

A partir de $\phi_{iris} = 20$ mm, la largeur spectrale cesse d'augmenter ; la mise en forme spatiale a pour effet de stopper la tendance. Puis les largeurs spectrales diminuent car la mise en forme permet de réduire l'intensité dans le milieu. On atteint alors un minimum pour $\phi_{iris} = 25$ mm puis on remonte un peu pour $\phi_{iris} = 26$ mm où toutes les harmoniques (sauf H39) ont des largeurs spectrales très similaires. Ces diamètres d'iris correspondent à l'optimum flat top, il est intéressant de les comparer avec l'optimum du faisceau gaussien tronqué : les harmoniques sont spectralement plus larges d'un facteur de presque deux pour tous les ordres harmoniques. Si l'on admet que les intensités sont comparables en flat top et en gaussien, cet élargissement spectral serait consistant avec un probable confinement temporel de l'émission XUV. Les largeurs spectrales pour $\phi_{iris} = 27-28-30$ mm sont très disparates ; elles ne sont pas vraiment significatives car il s'agit de la zone où les profils sont perturbés.

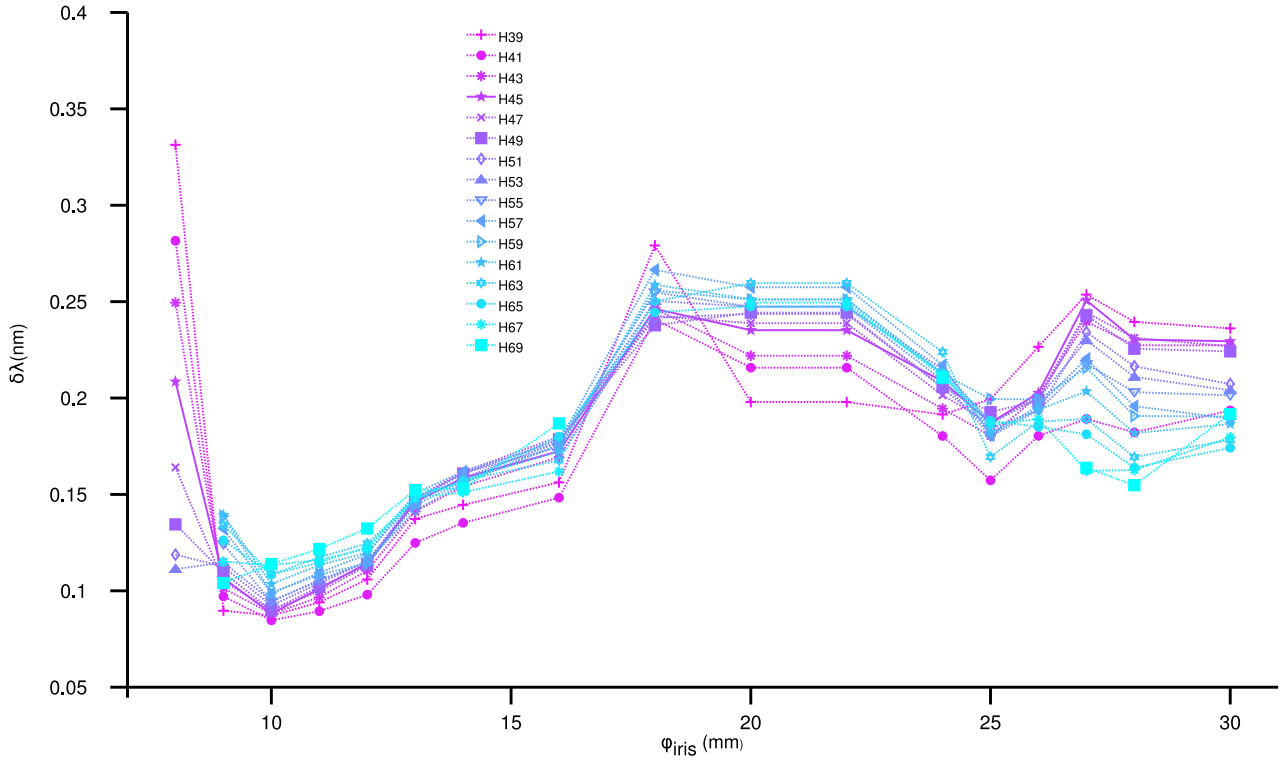


FIGURE 4.29 – (a) Évolution de la largeur spectrale des harmoniques en fonction du diamètre de l'iris.

4.3.1.4 Mesures avec un spectromètre à temps de vol

Afin de quantifier le flux de photon XUV, nous avons utilisé ces harmoniques pour ioniser des gaz dans notre spectromètre à temps de vol en configuration pour la détection des ions (TOF ion). Les mesures de temps de vol ont été faites pour les deux optimums : avec le faisceau gaussien tronqué et avec le faisceau flat top. Le faisceau XUV se propage librement jusqu'au TOF ion qui se situe à 3.5 m de la source. On utilise pour des raisons pratiques le même gaz pour la génération et pour la détection (les mesures ont été faites pour le néon et pour l'argon). Le gaz est injecté en flux continu loin de la zone d'interaction. Le faisceau XUV interagit alors avec une pression ambiante de 1×10^{-5} mbar. Connaissant la densité de gaz, la section efficace de photo-ionisation et l'efficacité de détection du TOF, on peut estimer le nombre de photons qui traversent la zone d'interaction (0.25×2.6 mm) à partir du signal ionique. La formule est présentée dans la partie 3.2.2 ainsi que des exemples de calculs.

Dans le néon, l'optimum en faisceau gaussien tronqué produit en moyenne 16 ions par tir contre 19 ions par tir pour l'optimum flat top. Ceci correspond respectivement à 5.1×10^9 et 5.9×10^9 photons par tir, toutes harmoniques confondues (H15 à H69). Pour l'argon,

et dans les mêmes conditions de génération, le nombre d'ions détectés par tir s'élève à 250 pour le faisceau gaussien tronqué contre 416 pour le faisceau flat top. Ces signaux ioniques correspondent respectivement à 2.9×10^{10} et 4.8×10^{10} photons par tir (de H11 à H31).

Bien que les flux de photons XUV incidents sur les MCP soient comparables pour les deux optimums, le nombre de photons qui traverse la zone sensible du TOF est toujours supérieur dans le cas du flat top (presque un facteur deux dans le cas de l'argon). Ceci confirme que la mise en forme spatiale produit des faisceaux XUV plus intenses grâce aux faibles divergences qu'elle induit.

4.3.1.5 Conclusion de la campagne de Juillet

Il s'agit ici des premiers tests avec le dispositif de mise en forme spatiale que nous avons développé (*TOP mirror*). Il nous a permis de mettre en forme des faisceaux intenses (~ 4 TW) et de générer des harmoniques avec ces faisceaux. *In fine*, le but de notre salle expérimentale étant d'étudier la physique non linéaire dans le domaine XUV, la mise en forme spatiale a été implémentée pour produire des sources XUV intenses. On voudrait donc observer une augmentation du nombre total de photons par rapport aux conditions de génération standard. Ce qui n'a pas été vraiment le cas pour ce premier test, néanmoins, nous avons quand même observé des intensités plus importantes grâce aux faibles divergences produites par le faisceau mis en forme.

On peut considérer que ces premiers tests de mise en forme spatiale de faisceaux lasers intenses et de génération à haute énergie avec le faisceau mis en forme sont concluants. On observe des signatures claires de la mise en forme spatiale sur le faisceau XUV, en terme de profil spatial, de divergence, de flux de photons et de profil spectral. Néanmoins, tous les objectifs n'ont pas encore été atteints lors de cette première campagne. Il conviendra dans une seconde campagne d'améliorer la mise en forme de l'infrarouge, de faire une étude plus approfondie en fonction des différents paramètres et de trouver des conditions où le profil flat top permet d'augmenter le nombre total de photons par rapport aux conditions de génération standard. Ces travaux seront réalisés lors de la campagne d'Octobre 2010.

4.3.2 Campagne d'Octobre 2010

Pour cette campagne expérimentale, la mise en forme spatiale de l'infrarouge a sensiblement été améliorée comme en témoigne la partie 4.2.4.2. Des études systématiques du spectre harmonique en fonction de différents paramètres ont été effectuées :

- la nature du gaz (néon, argon, krypton)
- le diamètre de l'iris ϕ_{iris}
- la position z par rapport au foyer
- l'énergie incidente sur l'iris E_{in}
- la pression de gaz en amont du jet

Ces études plus poussées, ainsi que l'amélioration de la mise en forme spatiale ont permis d'optimiser le nombre de photons XUV généré avec le faisceau flat top. Dans tous les résultats présentés dans cette section, les harmoniques sont générées au moyen du jet de gaz pulsé de 250 μm de diamètre. L'influence de la mise en forme spatiale sur les profils spatiaux XUV et sur la divergence ayant été bien étudiée dans la section relative à la campagne de Juillet, nous nous concentrons ici sur les études complémentaires apportées par la campagne d'Octobre.

4.3.2.1 Génération dans l'argon

La figure 4.30 montre le nombre de photons XUV intégré sur l'ensemble du détecteur en fonction du diamètre de l'iris, dans les cas de la génération dans jet un d'argon avec 5 bar de pression en amont. On observe les harmoniques H21 à H29. Le jet de gaz se trouve cette fois-ci 15 mm après le foyer. L'énergie de l'impulsion génératrice avant l'iris est de 50 mJ. Le signal augmente rapidement jusqu'à atteindre un premier optimum (optimum du faisceau gaussien tronqué ou optimum classique pour $\phi_{iris} = 10$ mm) comme reporté dans la section 3.4.1.2, puis le signal décroît lentement jusqu'à 0.7×10^9 u. arb. A partir de $\phi_{iris} = 20$ mm, le signal remonte rapidement jusqu'à atteindre l'optimum flat top vers $\phi_{iris} = 26 - 27$ mm, puis le niveau de signal se stabilise. On peut constater que l'optimum flat top est supérieur à l'optimum du faisceau gaussien tronqué (1.7×10^9 contre 1.2×10^9 en unité arbitraire). Dans ces conditions, le flat top permet d'augmenter l'énergie du faisceau XUV par rapport au cas standard du faisceau gaussien tronqué. Cela dépend principalement de la qualité de la mise en forme spatiale qui a été améliorée pour cette campagne (faisceau non coupé, et amélioration de la procédure d'alignement). La qualité du faisceau en amont du dispositif de mise en forme est également cruciale, et des paramètres laser instables d'un jour sur l'autre vont rendre la technique difficile à utiliser.

L'influence de la pression en amont du jet de gaz (P_{jet}) est mise en évidence sur la figure 4.31. Elle présente le flux total de photons XUV en fonction de P_{jet} pour un diamètre d'iris de 26 mm (optimum flat top). Le jet de gaz est également situé en $z = 15$ mm. On constate que le flux de photons croît continûment jusqu'à $P_{jet} = 7$ bar, où le signal semble se stabiliser, voire même commencer à décroître. Il aurait fallu augmenter

encore la pression pour confirmer cette tendance, néanmoins il semble que l'optimum de pression soit atteint.

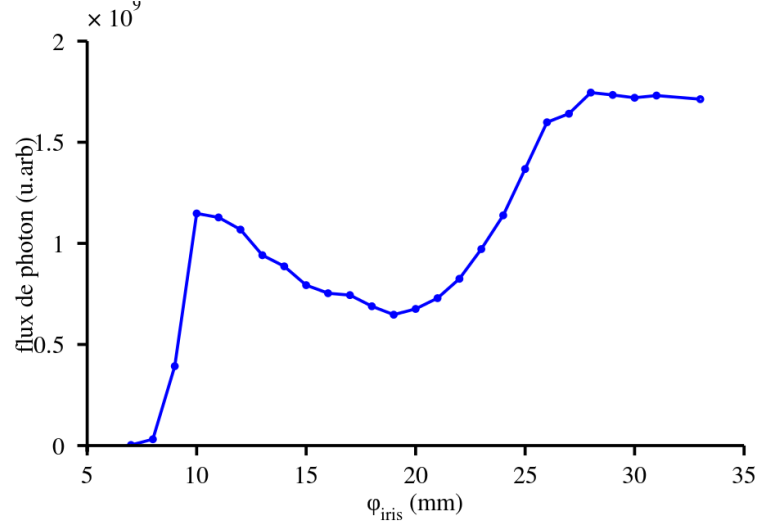


FIGURE 4.30 – Flux total de photons XUV arrivant sur le détecteur (MCP) en fonction du diamètre de l'iris. Les harmoniques sont générées dans l'argon avec une pression en amont du jet de gaz de 5 bar. Le jet de gaz se trouve 15 mm après le foyer. L'énergie incidente sur l'iris est de 50 mJ. La fenêtre d'observation s'étend de H21 à H29.

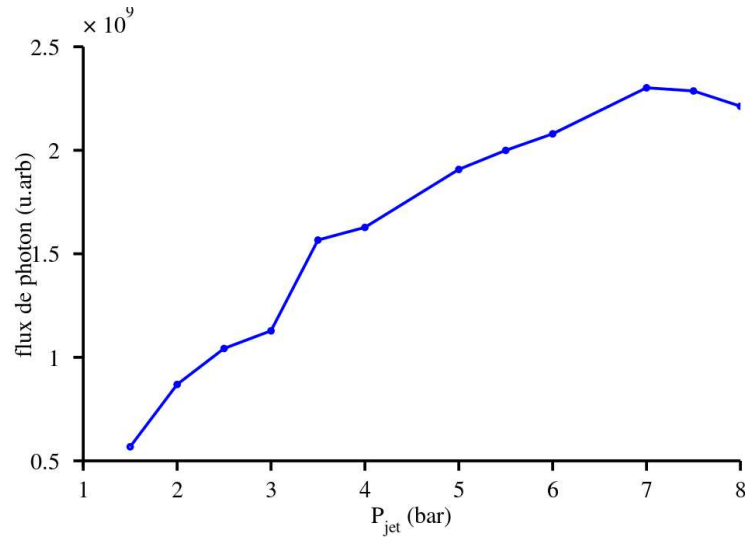


FIGURE 4.31 – Flux total de photons XUV arrivant sur le détecteur (MCP) en fonction de la pression en amont du jet de gaz. Les harmoniques sont générées dans l'argon. Le jet de gaz se trouve 15 mm après le foyer. L'énergie incidente sur l'iris est de 50 mJ. La fenêtre d'observation s'étend de H21 à H29.

4.3.2.2 Génération dans le néon

La figure 4.30 présente le nombre de photons XUV intégré sur l'ensemble du détecteur en fonction du diamètre de l'iris (dans le néon avec $P_{\text{jet}} = 5 \text{ bar}$). On observe les har-

moniques de l'ordre 39 jusqu'à l'ordre 69. Le jet de gaz se situe toujours à 15 mm après le foyer. L'énergie de l'impulsion génératrice avant l'iris est de 50 mJ. On retrouve à nouveau la même évolution que pour l'argon, avec un optimum classique, une décroissance jusqu'à $\phi_{iris} = 20$ mm, puis une remontée jusqu'à l'optimum flat top vers $\phi_{iris} = 26$ mm. On peut constater encore une fois que le flux de photons présente un optimum flat top supérieur à l'optimum classique (6×10^7 contre 8×10^7 u. arb.).

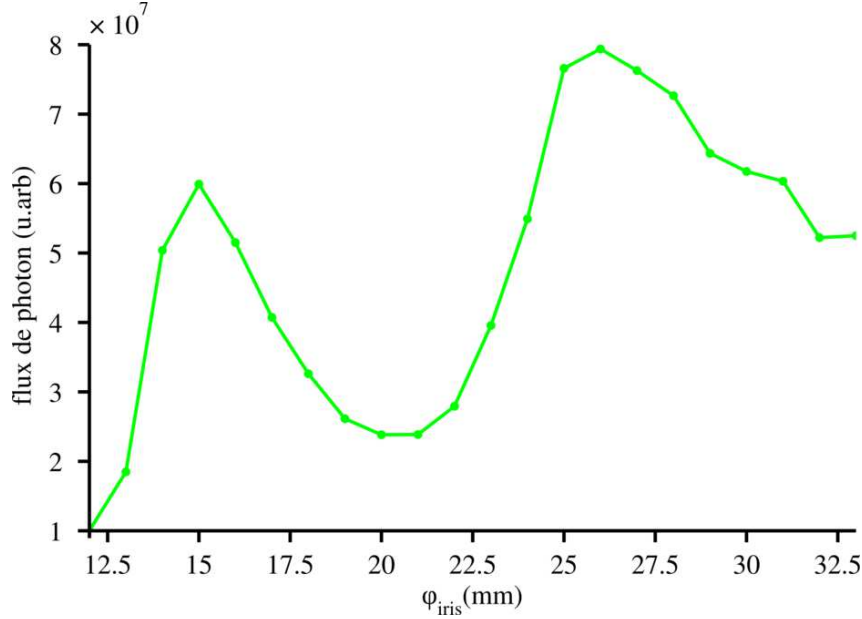


FIGURE 4.32 – Flux total de photons XUV arrivant sur le détecteur (MCP) en fonction du diamètre de l'iris. Les harmoniques sont générées dans l'argon avec une pression en amont du jet de gaz de 5 bar. Le jet de gaz se trouve 15 mm après le foyer. L'énergie incidente sur l'iris est de 50 mJ. La fenêtre d'observation s'étend de H39 à H69.

La figure 4.33 montre l'importance de la position du milieu générateur par rapport au faisceau flat top. Il s'agit du flux de photons XUV intégré en fonction de la position du jet de gaz z . Les harmoniques sont générées dans le néon (H39 - H69). La position du jet varie entre 0 à 20 mm (course de la platine) et la pression en amont est de 5 bar. Le diamètre de l'iris est de 26 mm pour une mise en forme spatiale optimale. L'énergie sur cible est de 50 mJ. On constate donc que lorsque le jet se trouve au niveau du foyer ($z = 0$) le signal est très faible. Le signal augmente lorsqu'on s'éloigne du foyer, à partir de $z = 11$ mm, l'accroissement devient très rapide jusqu'à atteindre un maximum en $z = 16$ mm, puis il décroît à nouveau. Il y a un facteur sept entre le signal au foyer et le signal au niveau du faisceau flat top. De plus, le maximum de signal s'étend sur une distance d'environ 2 mm, ce qui correspond bien aux longueurs sur lesquelles on a pu observer expérimentalement un faisceau flat top se maintenir (cf. 4.2.4.2). Cette étude confirme que la position du jet de gaz est un paramètre primordial pour la génération d'harmoniques avec le faisceau mis

en forme.

Le figure 4.34 présente une étude du flux de photons XUV intégré en fonction de l'énergie réalisée dans le néon (H39 - H69) avec le faisceau mis en forme ($\phi_{iris} = 26$ mm, $z = 15$ mm). La pression en amont du jet de gaz est toujours de 5 bar. L'axe des abscisses représente l'énergie sur cible. Le signal est d'abord nul (au bruit de fond près), l'intensité n'est pas suffisante pour générer l'harmonique 39. L'augmentation de la largeur du faisceau due à la mise en forme spatiale nécessite d'injecter beaucoup d'énergie pour atteindre une intensité suffisante pour la génération d'harmoniques. A partir de 20 mJ, H39 apparaît et le signal commence à augmenter très rapidement jusqu'à atteindre un maximum à 70 mJ (7.9×10^7 u. arb). Il décroît ensuite très rapidement (2×10^7 pour 100 mJ) pour finir à 1×10^7 pour une énergie de 115 mJ. Lorsque l'énergie sur cible est supérieure à 70 mJ, l'intensité devient trop importante ($> 6 \times 10^{15}$ W/cm², et $I_{SB} = 8.65 \times 10^{14}$ W/cm² pour le néon), l'ionisation est ultra-rapide, l'accord de phase quasi inexistant et le milieu est déplété avant de pouvoir produire un signal macroscopique utilisable.

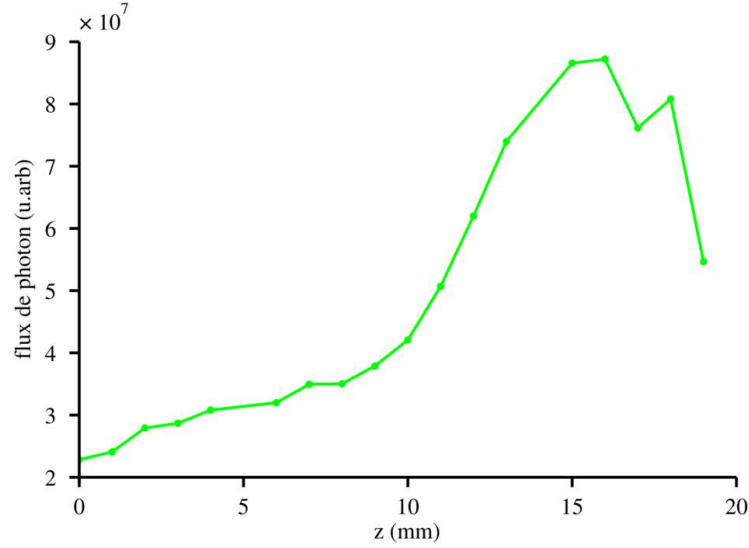


FIGURE 4.33 – Flux total de photons XUV arrivant sur le détecteur (MCP) en fonction de la position z par rapport au foyer. Les harmoniques sont générées dans le néon avec une pression en amont du jet de gaz de 5 bar. Le diamètre de l'iris est de 26 mm pour une mise en forme spatiale optimale. L'énergie sur cible est de 50 mJ. La fenêtre d'observation s'étend de H39 à H69. La position $z = 0$ correspond au foyer du faisceau gaussien

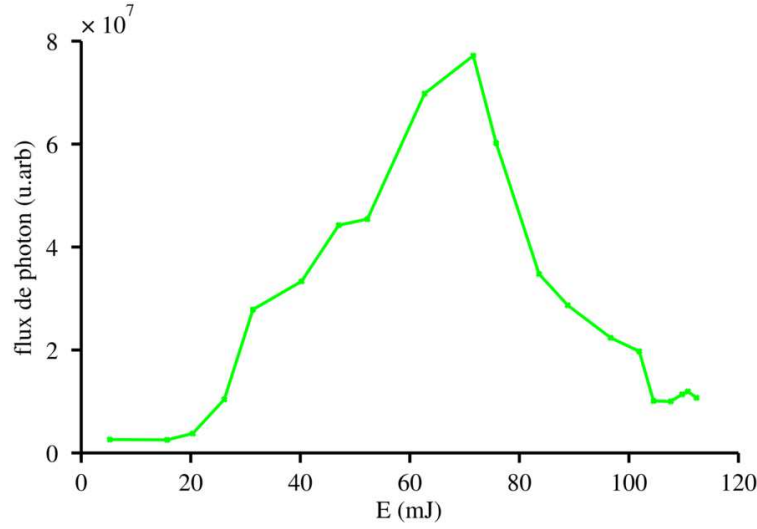


FIGURE 4.34 – Flux total de photons XUV arrivant sur le détecteur (MCP) en fonction de l'énergie de l'impulsion génératrice. Les harmoniques sont générées dans le néon avec une pression en amont du jet de gaz de 5 bar. Le diamètre de l'iris est de 26 mm pour une mise en forme spatiale optimale. Le jet de gaz se trouve 15 mm après le foyer. La fenêtre d'observation s'étend de H39 à H69.

4.3.2.3 Génération dans le krypton

La figure 4.36 présente une étude du flux de photons XUV généré dans le krypton en fonction du diamètre de l'iris. Le jet de gaz est situé en $z = 15$ mm. Deux cas sont présentés : $E_{iris} = 35$ mJ (courbe bleue) et $E_{iris} = 60$ mJ (courbe rouge). On observe un optimum classique (respectivement pour $\phi_{iris} = 10$ et $\phi_{iris} = 9$) comme décrit dans la section 3.4.1.2. Le signal décroît jusqu'à 0.6×10^9 u.arb pour $E_{iris} = 60$ mJ, puis croît de nouveau jusqu'à $\phi_{iris} = 25 - 27$ mm et l'optimum flat top est légèrement plus élevé que l'optimum classique (1.7×10^9 u.arb contre 1.5×10^9 u.arb). Pour $E_{iris} = 35$ mJ, la courbe suit la même tendance avec des niveaux de signal un peu plus faibles jusqu'à $\phi_{iris} = 25$ mm. Ensuite le signal se stabilise (contrairement au cas $E_{iris} = 60$ mJ) puis présente un léger sursaut autour de $\phi_{iris} = 30$ mm. L'effet de la mise en forme spatiale est donc clairement visible dans le cas de la génération dans le krypton également.

La figure 4.36 présente une étude du flux de photons XUV en fonction de la pression en amont du jet de gaz. Les harmoniques sont générées avec le faisceau mis en forme ($\phi_{iris} = 26$ mm, $z = 15$ mm) dans du krypton avec une énergie sur cible de 50 mJ. On observe les mêmes harmoniques que précédemment (H21 à H29). On constate que le signal est linéairement croissant en fonction de la pression et que la pression optimale ne peut être atteinte. Expérimentalement nous sommes limités à une pression de 9 Bar par les connections des tubes de transport de gaz et par le pompage du gaz dans la chambre de génération. Cependant, nous nous sommes rendus compte ultérieurement que

le jet commençait à se boucher lors de la campagne sur le krypton, ce qui peut expliquer l'allure de la courbe. Dans tous les cas, il serait judicieux de tester une nouvelle géométrie d'interaction (cellule pulsée) qui permettrait de confiner le gaz sur une courte longueur (typiquement 2 - 3 mm pour le flat top) afin d'augmenter la pression locale.

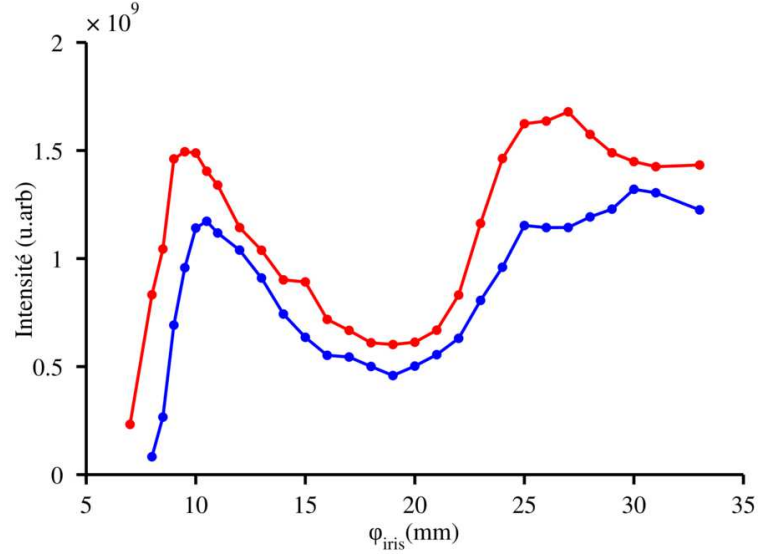


FIGURE 4.35 – Flux total de photons XUV arrivant sur le détecteur (MCP) en fonction de ϕ_{iris} . Les harmoniques sont générées dans du krypton avec une pression en amont du jet de gaz de 5 bar. $E_{iris} = 35$ mJ (courbe bleue) et $E_{iris} = 60$ mJ (courbe rouge). Le jet de gaz se trouve 15 mm après le foyer. La fenêtre d'observation s'étend de H21 à H29.

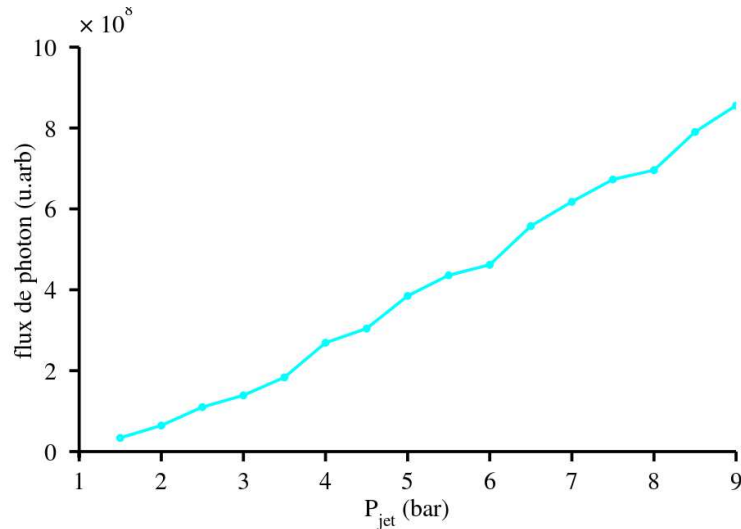


FIGURE 4.36 – Flux total de photons XUV arrivant sur le détecteur (MCP) en fonction de la pression de gaz en amont du jet. Les harmoniques sont générées dans du krypton. Le diamètre de l'iris est de 26 mm pour une mise en forme spatiale optimale. Le jet de gaz se trouve 15 mm après le foyer. L'énergie sur cible est de 50 mJ. La fenêtre d'observation s'étend de H21 à H29.

4.4 Conclusion sur la mise en forme spatiale

Le nouveau dispositif de mise en forme spatiale que nous avons développé est adapté aux faisceaux intenses et présente en plus la qualité d'être large bande (adapté aux impulsions courtes). Nous l'avons développé pour la génération d'harmoniques à haute énergie, mais ce dispositif peut être également utile pour d'autres applications en champ fort qui nécessitent une mise en forme. Le fait de pouvoir produire un faisceau flat top, c'est à dire avec une intensité constante dans un large volume, offre un meilleur contrôle sur les phénomènes dépendants de l'intensité de la physique à haut flux.

Dans notre cas, le but est de confiner temporellement l'émission XUV et de maximiser l'énergie des impulsions attosecondes produites. Ainsi, une source haute énergie basée sur cette mise en forme pourrait permettre de produire des impulsions XUV suffisamment intenses pour induire des transitions à deux photons avec des ordres harmoniques relativement élevés. Pour faire des transitions à deux photons XUV-XUV, il faut dans tous les cas focaliser le faisceau XUV. Mais c'est également la qualité de la focalisation du faisceau qui va permettre d'atteindre de fortes intensités XUV au foyer ; plus que l'énergie du faisceau lui même avant la focalisation. Le fait que toutes les harmoniques se comportent de la même façon spatialement, quelque soit l'ordre, est alors un avantage. En effet, au foyer la qualité temporelle des impulsions attosecondes ainsi que l'intensité s'en trouvent améliorées. Avec des faisceaux gaussiens normaux, la position apparente de la source dépend de l'ordre harmonique et donc, la position du foyer lorsqu'on focalise le faisceau XUV est également dépendante de l'ordre harmonique. La durée des impulsions attosecondes focalisées est alors dépendante du point d'observation ([Frumker 09],[Bourassin-Bouchet 10]). Le faisceau flat top permet de trouver des conditions qui permettent de s'affranchir de ces limitations.

Par ailleurs, les divergences obtenues avec le faisceau flat top (340 - 360 μ rad) sont les plus faibles jamais observées avec un faisceau XUV produit par génération d'harmoniques dans des gaz. Seuls Takahashi *et al.* ([Takahashi 03a]) ont observé des valeurs de divergence comparables. Cependant, ils utilisaient une focale de 5 m et ils obtiennent cette divergence (~ 0.3 mrad annoncée) seulement pour l'harmonique 57 (13.6 nm).

En ce qui concerne le confinement temporel, l'analyse des spectres harmoniques révèle un élargissement spectral des harmoniques générées avec le faisceau flat top par rapport à celles générées avec le faisceau gaussien. Cet élargissement spectral pourrait être la signature d'un confinement temporel, néanmoins, d'autre facteurs pourraient produire le même effet (intensité, accord de phase,...) ; il faudra donc caractériser directement le profil temporel des impulsions obtenues pour pouvoir conclure.

Les résultats sont prometteurs mais ces travaux restent à poursuivre. En particulier, l'efficacité de la mise en forme spatiale pour la génération d'harmoniques est très dépendante de la qualité du faisceau incident et de l'alignement sur le *TOP mirror*. En procédant à un filtrage spatial et en couplant le dispositif de mise en forme à un miroir déformable, des conditions stables et reproductibles d'un jour sur l'autre pourront être obtenues.

Il serait également intéressant d'utiliser des impulsions génératrices de l'ordre de 10-12 fs. Dans ce cas, le faisceau flat top, grâce au confinement temporel de l'émission XUV qu'il induit ([Strelkov 08], [Strelkov 09]), permettra de produire des impulsions attosecondes uniques sans la contrainte de stabilisation de la phase absolue. De plus, ce dispositif permet d'utiliser des impulsions très intenses et même de maximiser l'émission XUV, on peut donc s'attendre à produire des impulsions attosecondes isolées de l'ordre de la centaine de nanojoule. Le confinement temporel va également permettre une augmentation de l'intensité (impulsions plus courtes pour une énergie équivalente). Des impulsions attosecondes uniques intenses donneront accès à des résolutions temporelles attosecondes pour des expériences pompe-sonde XUV-XUV. Les expériences reportées dans ce chapitre sont donc une avancée vers la génération d'impulsions attosecondes uniques à haute énergie.

En l'occurrence, pour pouvoir produire ces IAP intenses, il faut disposer d'une source d'impulsions de 10-12 fs et de 10 mJ. Nous montrerons dans le prochain chapitre qu'il est possible d'obtenir une source présentant ces caractéristiques à partir d'une chaîne Titane-Saphir haute énergie via une technique de post compression basée sur l'ionisation de gaz rares.

Chapitre 5

Post compression d'impulsions femtosecondes intenses par ionisation d'un gaz rare

Nous avons vu qu'il est possible d'obtenir, avec la technique de mise en forme spatiale présentée au chapitre précédent, des impulsions attosecondes isolées lorsque l'impulsion qui génère les harmoniques est de l'ordre de la dizaine de femtosecondes. De plus, pour une impulsion génératrice d'une dizaine de millijoules, en considérant une efficacité de conversion standard ($\sim 10^{-5}$), l'énergie de l'IAP pourrait atteindre la centaine de nanojoules. Nous voulons donc tester cette approche, mais une source de 10 fs - 10 mJ est assez rare, et même inexistante pour la génération d'harmoniques. De nos jours, seuls les OPCPA sont capables de fournir de telles énergies dans le domaine sub-10 fs, mais ils sont mal adaptés à la génération d'harmoniques à cause de qualités de profils spatiaux et de fronts d'onde qui sont généralement insuffisantes.

Nous disposons d'une réserve d'énergie importante sur la chaîne laser Eclipse, et même d'un surplus étant donné qu'il est très difficile d'utiliser toute cette énergie pour la génération d'harmoniques. Nous avons donc choisi de partir de l'impulsion fondamentale, et de développer une technique de post compression haute énergie pour atteindre le terawatt en 10 fs. Cette technique sera basée sur la propagation guidée dans une fibre creuse. Au regard des précédents travaux sur la post compression, il paraît ambitieux d'extraire en sortie de fibre des énergies de l'ordre de 10 mJ. En effet, l'énergie des impulsions post comprimées est généralement limitée. Des durées de 4.3 fs ont été démontrées en utilisant l'auto-modulation de phase ([Chen 09]), mais l'énergie des impulsions est de seulement 1 mJ. Les techniques basées sur les filaments autoguidant permettent d'obtenir 2 mJ pour des durées de 10 fs. Bohman *et al* ont obtenu 5 fs - 5 mJ par auto-modulation de phase

(en anglais : SPM, i.e. *Self Phase Modulation*) dans un capillaire de 2.2 mètres de long présentant un gradient de pression ([Bohman 10]). Cependant notre approche pour la post compression s'appuiera pour la première fois sur l'élargissement spectral par ionisation, qui est un processus très efficace lorsque l'interaction avec le gaz a lieu à haute intensité. Les résultats expérimentaux de ce chapitre se divisent en trois grands axes : la recompression à l'air (preuve de faisabilité), la recompression sous vide (recompression de toute l'énergie), et la génération d'harmoniques avec l'impulsion post comprimée (validation de la technique).

5.1 Notre approche : l'élargissement spectral par ionisation et propagation guidée

5.1.1 Couplage d'impulsions intenses dans des fibres creuses

Les techniques de post compression comportent fondamentalement deux étapes :

1. une étape d'élargissement spectral (souvent SPM) puisque la durée potentielle (limite de Fourier) de l'impulsion est liée à la largeur spectrale par la relation A.3.
2. une étape de recompression pour remettre toutes les composantes spectrales en phase (lorsque cela c'est possible) pour satisfaire à la relation A.4, et obtenir la durée minimale.

Pour la première étape, il va falloir une grande longueur d'interaction pour élargir le spectre efficacement. De plus, il faut prendre en compte l'aspect spatial ; l'élargissement spectral est dû aux effets non-linéaires et en conséquence, il dépend de l'intensité. L'élargissement spectral va donc en principe dépendre du profil spatial en intensité. Pour palier ce problème, nous utiliserons ici une propagation guidée dans un capillaire creux. Cela permettra non seulement d'utiliser une grande longueur d'interaction, mais également d'obtenir un élargissement spectral homogène spatialement, et un profil spatial de bonne qualité.

Nous étudions donc dans cette section le couplage d'impulsions intenses dans des capillaires diélectriques creux. F. Dorchies *et al.* [Dorchies 99] ont montré qu'il était possible de guider des impulsions femtosecondes d'intensités supérieures à 10^{16} W/cm² dans des capillaires creux sur des longues distances (~ 100 fois la longueur de Rayleigh).

5.1.1.1 Modes hybrides EH_{nm} d'un capillaire creux

Un faisceau laser injecté dans un capillaire se propage selon les modes propres du capillaire. Ces modes propres se divisent en trois catégories [E. A. J. Marcatili 64] :

1. Électrique circulaire Transverse (TE_{0m}) : les composantes radiales et axiales du champ électrique sont nulles
2. Magnétique circulaire Transverse (TM_{0m}) : les composantes radiales et axiales du champ magnétique sont nulles
3. Mode hybride (EH_{nm}) où toutes les composantes des champs sont non nulles

Dans le cas d'une impulsion laser polarisée linéairement¹⁴, seuls les modes hybrides peuvent être excités. Dans un repère cylindrique où l'impulsion se propage selon l'axe z , les composantes du champ électrique d'un mode EH_{nm} s'écrivent :

$$\begin{cases} E_{r,nm}(r, \theta) = J_{n-1}\left(\alpha_{nm}\frac{r}{a}\right) \sin(n\theta + \varphi) \\ E_{\theta,nm}(r, \theta) = J_{n-1}\left(\alpha_{nm}\frac{r}{a}\right) \cos(n\theta + \varphi) \end{cases} \quad (5.1)$$

où J_{n-1} est la fonction de Bessel d'ordre $n-1$ (voir annexe F), α_{nm} est la racine m -ème de l'équation $J_{n-1}(\alpha_{nm}) = 0$, φ est une constante de phase, et a le rayon du capillaire.

On peut en déduire le profil d'intensité du mode EH_{nm} :

$$I_{nm}(r) = I_0 J_{n-1}^2\left(\alpha_{nm}\frac{r}{a}\right) \quad (5.2)$$

Plus les valeurs de n et de m augmentent moins les couplages sont efficaces (pour des faisceaux gaussiens), nous serons donc intéressés à coupler le faisceau laser dans le mode EH_{11} qui offre le meilleur rendement, et présente de plus un profil pratiquement gaussien. Dans ce cas l'équation 5.2 devient :

$$I_{11}(r) = I_0 J_0^2\left(\alpha_{11}\frac{r}{a}\right) \quad (5.3)$$

14. Les expériences présentées dans ce chapitre utilisent des impulsions polarisées linéairement afin d'augmenter la probabilité d'ionisation, et donc l'élargissement spectral (cf 5.1.2).

avec $J_0(x) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{(p!)^2} \left(\frac{x}{2}\right)^{2n}$ et $\alpha_{11} = 2.4048$.

Les modes tels que $n = 1$ sont les plus probables, ce sont également les modes de moindre perte, nous restreindrons alors notre étude théorique au mode de type EH_{1m} . Leurs profils spatiaux sont exposés sur la figure 5.1 jusqu'à $m = 4$.

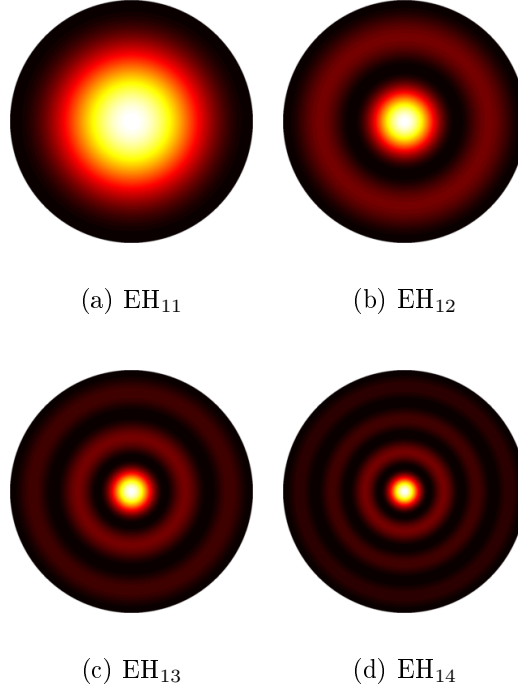


FIGURE 5.1 – Modes hybrides EH_{nm} d'un capillaire diélectrique creux.

Connaissant la distribution spatiale de ces différents modes dans le capillaire, on peut calculer le taux de couplage C_{1m} d'un faisceau laser gaussien dans les modes de propagation EH_{1m} en fonction du rapport $\frac{w_0}{a}$:

$$C_{1m} = \frac{\left(\int_0^a e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} J_0\left(\alpha_{1m} \frac{r}{a}\right) r dr \right)^2}{\int_0^{+\infty} e^{-2\frac{r^2}{w_0^2}} r dr \int_0^a J_0^2\left(\alpha_{1m} \frac{r}{a}\right) r dr} \quad (5.4)$$

Ce taux de couplage représente la fraction de l'énergie incidente qui est couplée dans les modes EH_{1m} du capillaire. La dépendance de la transmission du capillaire est fonction du rapport $\frac{w_0}{a}$ pour le mode EH_{11} , et la formule 5.4 permet de calculer l'extremum : le taux de couplage peut atteindre un maximum de 98% pour $\frac{w_0}{a} = 0.645$. Expérimentalement, nous ajusterons donc la distance de focalisation, et le diamètre du capillaire pour se trouver

dans ces conditions. Le capillaire utilisé dans notre montage a une longueur de 40 cm, et un rayon interne de 210 μm pour s'adapter au *waist* de 136 μm .

5.1.1.2 Influence de la propagation guidée sur l'impulsion laser

Amortissement

Lors de la propagation à l'intérieur du capillaire, l'impulsion laser est soumise à des pertes qui dépendent du mode propre dans lequel elle est couplée. Le mode EH_{11} présente les caractéristiques les plus proches de l'impulsion incidente (meilleur taux de couplage), mais c'est aussi celui qui subit le moins de pertes au cours de la propagation. L'énergie transportée par une impulsion laser couplée dans un mode EH_{1m} subit une décroissance exponentielle en fonction de la longueur du capillaire. On exprime la transmission énergétique du capillaire pour le mode EH_{1m} tel que :

$$\begin{cases} E_{out} = T_{1m} E_{in} \\ T_{1m} = e^{-\eta_{1m} L} \end{cases} \quad (5.5)$$

où E_{in} est l'énergie à l'entrée du capillaire, E_{out} l'énergie en sortie, et η_{1m} le taux d'amortissement défini par ([Dorchies 99]) :

$$\eta_{1m} = \text{Im} \left(\frac{\alpha_{1m}^2 \lambda^2 (\varepsilon_v + \varepsilon_w)}{8 \pi^2 a^3 (\varepsilon_v - \varepsilon_w)^{\frac{1}{2}}} \right) \quad (5.6)$$

où $\varepsilon_w = 2.25$ est la permittivité relative du diélectrique, et ε_v la permittivité relative du vide égale à 1. Pour un capillaire de rayon interne $a = 210 \mu\text{m}$, à une longueur d'onde de 800 nm, le taux d'amortissement η_{11} du mode EH_{11} est égale à 0.014716 m^{-1} . Un capillaire de longueur $L = 40 \text{ cm}$ a donc une transmission théorique de 99,41%. En considérant le taux de couplage maximum (98%) et cette transmission théorique, on obtient une efficacité de couplage totale de 97,4% pour notre capillaire. Nous verrons qu'expérimentalement de nombreux paramètres vont dégrader cette transmission, à commencer par le profil spatial du faisceau incident.

Vitesse de groupe

La vitesse de groupe d'une impulsion laser qui se propage dans un capillaire dépend du

mode dans lequel elle est couplée. Pour les modes EH_{1m} cette vitesse de groupe s'écrit :

$$\nu_{1m}^g = c \sqrt{1 - \left(\frac{\alpha_{1m} \lambda}{2 \pi a} \right)^2} \quad (5.7)$$

Ainsi, lorsque plusieurs modes sont excités simultanément, l'impulsion va subir un élargissement temporel associé à une inhomogénéité spatiale. Pour notre capillaire, le décalage temporel entre le mode EH_{11} et le mode EH_{13} s'élève à 16.9 fs. Dans ces cas là, on peut assister à un battement entre plusieurs modes [Courtois 01] qui va modifier les conditions d'interaction à l'intérieur du capillaire. Il est donc crucial de n'exciter qu'un seul mode, le EH_{11} . La qualité du couplage est un élément déterminant pour la réussite des techniques de post compression en géométries guidées.

A partir de la relation 5.7, on peut calculer la dispersion de vitesse de groupe pour un mode EH_{1m} :

$$GVD_{1m} \approx -\frac{\alpha_{1m}^2 \lambda^3}{8 \pi^3 a^2 c^2} \quad (5.8)$$

On calcule grâce à cette relation la dispersion de retard de groupe (GDD) dans le cas de notre capillaire pour le mode EH_{11} . Elle est relativement faible (1.2 fs²), et donc les impulsions ne subissent pas d'élargissement temporel notable au cours de la propagation dans le capillaire lorsqu'il est vide. Nous verrons par la suite que cette valeur est largement négligeable en comparaison de la dispersion introduite lors de l'interaction de l'impulsion avec le gaz rare.

5.1.2 Théorie de l'élargissement spectral par ionisation

Une impulsion intense ultra-courte ($> 10^{15}$ W/cm²) qui se propage dans un milieu gazeux, va avoir pour effet d'ioniser ce milieu. Il y a alors une augmentation ultra-rapide de la densité électronique du milieu $n_e(t)$ au cours de la propagation. L'indice de réfraction du plasma créé dépend de $n_e(t)$ au travers de la formule :

$$n(t) = \left(1 - \frac{n_e(t)}{n_c} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (5.9)$$

où $n_c = 1.73 \times 10^{21}$ cm⁻³ est la densité critique du plasma à 800 nm¹⁵.

L'évolution temporelle de la densité électronique au cours de la propagation va entraîner une variation ultra rapide de l'indice optique du milieu. Ceci implique que le chemin op-

15. Densité à partir de laquelle la longueur d'onde considérée ne peut plus se propager dans le plasma

tique vu par les différentes composantes spectrales de l'impulsion va évoluer au cours du temps créant ainsi de nouvelles fréquences. La variation d'indice est donnée par :

$$n_e \ll n_c \Rightarrow n(t) \approx 1 - \frac{1}{2} \frac{n_e(t)}{n_c}$$

$$\frac{\partial n(t)}{\partial t} = -\frac{1}{2 n_c} \frac{\partial n_e(t)}{\partial t} \quad (5.10)$$

La densité électronique $n_e(t)$ croît au cours de l'ionisation ce qui implique une variation d'indice négative. Cela qui signifie que le chemin optique vu par l'impulsion diminue au cours du temps. Ce sont donc des longueurs d'onde plus courtes qui sont créées (*blue-shift*)¹⁶. Pour mettre en évidence cette dérive de fréquence vers les longueurs d'onde courtes, on peut écrire la pulsation instantanée d'une impulsion ayant accumulée une phase temporelle $\varphi(t)$ lors de la traversée d'un milieu de longueur l dont l'indice n varie au cours du temps :

$$\omega(t) = \frac{d\phi}{dt} = \omega_0 - \frac{\omega_0}{c} \int_0^l \frac{dn(t, z)}{dt} dz \quad (5.11)$$

soit pour le cas de l'ionisation,

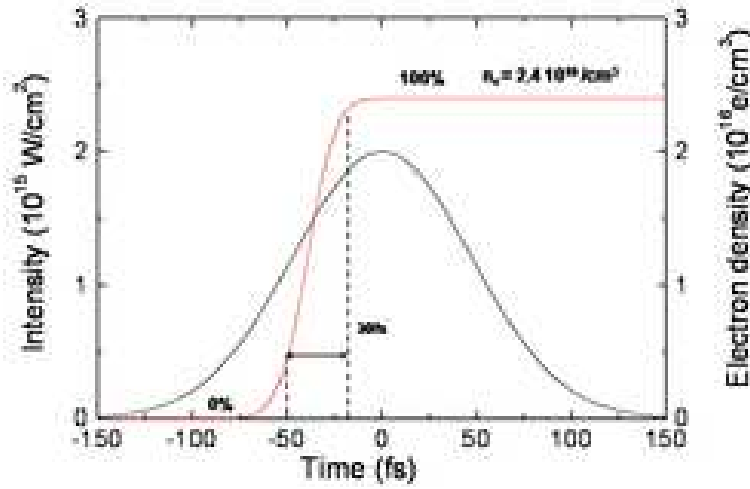
$$\omega(t) = \frac{d\phi}{dt} = \omega_0 + \frac{\omega_0}{c} \int_0^l \frac{\partial n_e(t, z)/\partial t}{2(1 - n_e(t, z)/n_c)^{1/2}} dz \quad (5.12)$$

ou encore au premier ordre,

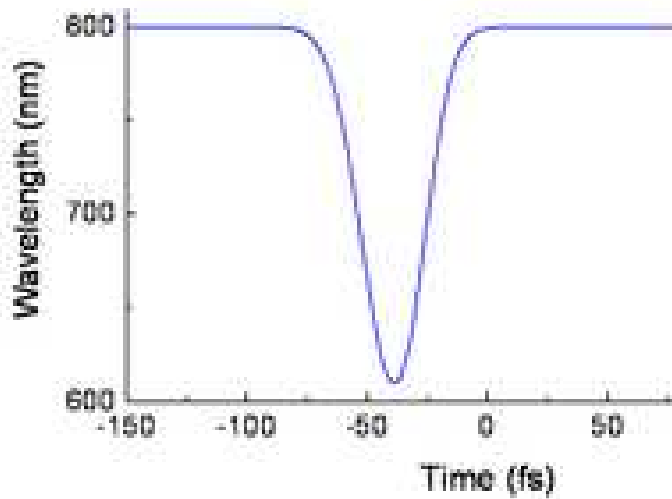
$$\omega(t) = \omega_0 - \frac{\omega_0}{2 c n_c} \int_0^l \frac{\partial n_e(t, z)}{\partial t} dz \quad (5.13)$$

La formule 5.13 permet de faire une simulation simpliste de la dérive de fréquence afin de se rendre compte de l'efficacité de l'ionisation (voir figure 5.2). Le taux d'ionisation est évalué avec la méthode ADK ([Ammosov 86]). Pour une intensité de 2×10^{15} W/cm², une pression de 1 mbar d'hélium sur une longueur de 40 cm et une longueur d'onde initiale de 800 nm, la longueur d'onde dérive donc jusqu'à 600 nm. Ce cas n'est pas réaliste puisqu'il ne prend pas en compte la propagation, mais il permet de se rendre compte de l'efficacité de l'élargissement spectral par ionisation, et d'intuiter le processus.

16. Pour intuer ce phénomène, on peut comparer à l'effet Doppler. Lorsqu'un objet en mouvement émet une onde électromagnétique à une fréquence donnée f_0 , la fréquence reçue par un observateur f_r dans le cas où l'objet se rapproche est $(1 + \frac{v}{c}) f_0$; on a alors une dérive vers les fréquences plus élevées $f_r > f_0$, c'est à dire vers les longueurs d'onde plus courtes (*blue-shift*). Ceci est dû à la diminution de la distance au cours du temps, de la même manière que la distance optique dans le cas de la variation ultra-rapide de l'indice de réfraction.



(a) Évolution de la densité électronique (méthode ADK) au cours du temps (en rouge) pour un profil temporel gaussien (en noir).



(b) Évolution de la longueur d'onde instantanée à la sortie du capillaire de longueur $l = 40$ cm.

FIGURE 5.2 – Taux d'ionisation (a) et fréquence instantanée (b) pour une longueur d'onde initiale de 800 nm, une intensité de 2×10^{15} W/cm², une impulsion de 40 fs, une pression de 1 mbar d'hélium sur une longueur de 40 cm.

La dérive de fréquence va être d'autant plus importante que $\frac{\partial n(t)}{\partial t}$ est grand, et donc $\frac{\partial n_e(t)}{\partial t}$. Plus l'intensité est élevée et plus l'impulsion est courte, plus l'ionisation est rapide et plus le *blue-shift* est important. Également, plus la densité initiale de gaz neutre est élevée, plus la densité électronique le sera et donc $\frac{\partial n_e(t)}{\partial t}$ sera d'autant plus important.

La pression de gaz et l'intensité d'interaction seront donc des paramètres déterminants sur l'allure des spectres en sortie de capillaire. La nature du gaz utilisé va également changer radicalement l'allure des spectres obtenus, car la dynamique de l'ionisation est régie par la valeur du potentiel d'ionisation du gaz rare (ici, principalement de l'hélium, et quelques études dans le néon et l'argon). Les valeurs des potentiels de première et deuxième ionisation des gaz rares sont présentées dans le tableaux F.2. Les spectres expérimentaux obtenus en fonction de la pression et de l'intensité sont présentés dans la partie 5.2.2.2; mais avant nous allons détailler le dispositif expérimental qui nous a permis de mener ces études, et montrer l'influence de la pression et de l'intensité sur le couplage dans le capillaire.

5.2 Étude expérimentale phase 1 : recompression à l'air

Les travaux présentés dans cette partie ont été réalisés durant deux campagnes expérimentales séparées de plusieurs mois. La technique de post compression par ionisation a été développée dès le début de ma thèse (2009) en collaboration avec le groupe GOLF (D. Descamps, C. Fourcade-Dutin). Nous avons relancé le dispositif de post compression durant ma troisième année de thèse (2011) dans le but de recomprimer toute l'énergie sous vide, et de générer des harmoniques avec les impulsions post comprimées. Nous avons pu améliorer les résultats de la première campagne à cette occasion, et fiabiliser l'ensemble du système.

5.2.1 Dispositif expérimental

La figure 5.4 représente le montage expérimental réalisé pour la post compression haute énergie par ionisation pour la démonstration de faisabilité de la technique où la recompression a été faite à l'air. L'impulsion étirée provenant de la chaîne laser entre dans le compresseur sous vide et l'expérience reste ensuite sous vide jusqu'à la caractérisation qui se fait à l'air. Après passage dans le compresseur, l'impulsion a une énergie de 90 mJ et une durée de 40 fs. L'impulsion passe par un iris de 20 mm afin de filtrer les bords du faisceau qui présentent des imperfections. La qualité de la focalisation s'en trouve améliorée, mais l'énergie réduite à 70 mJ (1.75 TW). Le faisceau est ensuite focalisé dans le capillaire par un miroir sphérique de 6 m de rayon ($f = 3$ m) via un miroir de repli. Ces deux miroirs sont motorisés pour permettre un ajustement fin du couplage dans le capillaire sous vide. L'impulsion se propage alors dans le capillaire de diamètre interne de 420 μm (adapté au *waist* de 136 μm) sur une longueur de 40 cm. Le faisceau est guidé

sur $4.5 z_r$ ($z_r = 8.8$ cm), ce qui autorise une grande longueur d'interaction, et permet une homogénéisation de l'élargissement spectral. On injecte le gaz dans le cœur du capillaire par un forage radial de quelques centaines de microns, à 15 cm de la sortie du capillaire. L'impulsion interagit donc avec le gaz lors de la propagation dans le capillaire. À la sortie, elle se propage sur une distance de deux mètres avant de rencontrer une lame prismatique qui nous permettra de prélever une petite fraction du faisceau (4%) pour la caractérisation et la recompression à l'air. L'essentiel de l'énergie (92%, car 4% sont également perdus sur la deuxième face de la lame) passe au travers de la lame puis sort de l'enceinte sous vide. On sélectionne alors le mode central avec un iris de 15 millimètre de diamètre puis on mesure l'énergie avec un puissance-mètre. La fraction de faisceau réfléchi par la première face de la lame est ensuite recollimatée par un miroir argent sphérique de focale 2.5 m. On sort alors le faisceau collimaté de l'enceinte sous vide pour la caractérisation. On dispose de deux bras pour la caractérisation où on peut choisir de faire propager le faisceau : le premier équipé d'un spectromètre, d'un spectromètre imageur, pour vérifier l'homogénéité spatiale de l'élargissement spectral, et d'un analyseur de faisceau pour vérifier la qualité du profil spatial, et permettre d'optimiser le couplage au jour le jour ; et un deuxième bras pour la recompression, via une batterie de miroirs chirpés et des lames de silice, et la caractérisation temporelle de l'impulsion recomprimée (autocorrélateur et FROG).

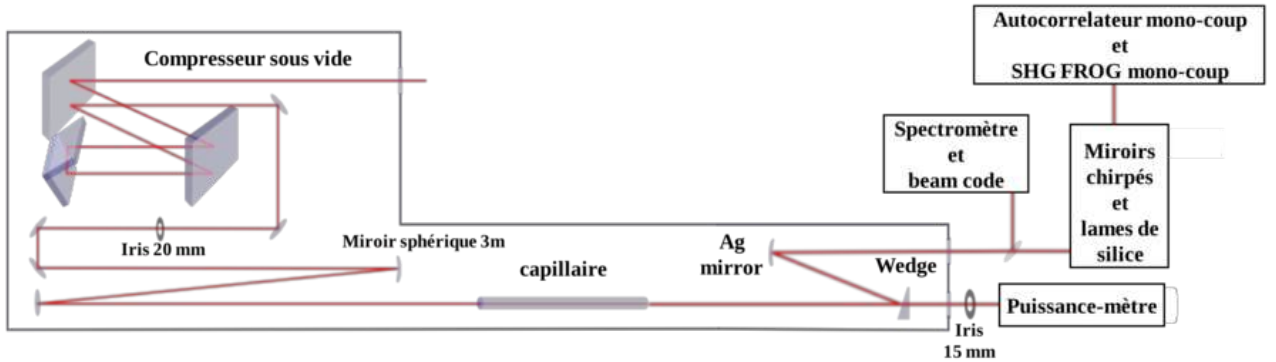


FIGURE 5.3 – Dispositif expérimental pour la post compression haute énergie par ionisation avec recompression de fraction de l'énergie à l'air.



FIGURE 5.4 – Le coeur du dispositif de post compression : le capillaire sur son support avec le circuit d'injection de gaz.

5.2.2 Influence de la pression et de l'intensité

5.2.2.1 Influence sur le couplage

Lors de la première campagne expérimentale, nous avons pu obtenir une efficacité de couplage de 37% sans gaz, dans le mode EH_{11} , quelque soit l'énergie injectée. Donc pour 70 mJ en entrée, on obtient ≈ 26 mJ en sortie. Nous sommes donc loin des 97.4% théoriques annoncés. Cette importante différence est due à la contribution de plusieurs facteurs :

- Le dépointé du faisceau d'un tir sur l'autre qui réduit l'énergie moyenne injectée.
- Le profil d'intensité en champs lointain, qui n'est pas une gaussienne parfaite comme dans la description théorique, mais une super-gaussienne ($M^2 > 1$).
- Au-delà de sa forme, le profil du faisceau présente des défauts, en particulier des fréquences spatiales rapides qui vont nuire à la focalisation, et donc au couplage.
- La qualité du capillaire ; la moindre imperfection de la surface interne du capillaire, ou déviation de l'axe du cœur va réduire le taux de couplage.
- La présence du conduit d'injection de gaz qui est de taille comparable au cœur.
- L'opération de forage peut altérer la qualité du capillaire de différentes façons ; en l'occurrence si les poussières produites lors de l'usinage ne sont pas complètement retirées du cœur, celles-ci provoqueront de la diffraction et de l'énergie sera perdue.

En revanche, la qualité du mode spatial est très bonne (voir figure 5.6(a)). Lorsque l'on injecte le gaz pour l'élargissement spectral, l'efficacité de couplage va drastiquement diminuer. La figure 5.5 montre le diagramme de l'énergie en sortie du capillaire en fonction

de l'énergie en entrée, et de la pression de gaz (hélium). L'énergie transmise pour $E_{in}=70$ mJ, décroît très rapidement au départ, jusqu'à $P = 100$ mbar, puis se stabilise autour de 6 mJ. L'énergie en sortie croît linéairement lorsqu'il n'y a pas de gaz (pente de 0.37). Lorsque la pression augmente, la loi reste linéaire pour les faibles énergies. Mais on assiste, en augmentant E_{in} , à un phénomène de saturation, qui est d'autant plus prononcé, et a lieu d'autant plus tôt que la pression est élevée. Cette figure met donc en évidence la zone d'intérêt de cette technique de post compression : pour obtenir des énergies importantes, il va falloir travailler à des pressions faibles.

Lorsque du gaz est continûment injecté dans le cœur du capillaire, ce dernier fuit par l'entrée et la sortie du capillaire. Il se forme alors un jet de gaz conique à chaque extrémité. Lorsque l'impulsion laser focalisée rencontre ce jet de gaz, elle va interagir avec avant même d'être couplée dans le capillaire. La densité d'électrons créée va induire une défocalisation du faisceau ($n < 1$) et va réduire l'efficacité de couplage. Une fois l'impulsion couplée dans le capillaire, elle va ioniser le milieu gazeux, et une fois encore, la densité électronique va rendre la propagation plus difficile dans le capillaire, des modes d'ordres supérieurs vont être excités diminuant ainsi l'énergie dans le mode EH_{11} . Le gradient radial de l'indice optique, lorsqu'il est suffisamment fort, aura tendance à repousser une partie de l'énergie dans la gaine diélectrique qui sera alors perdue.

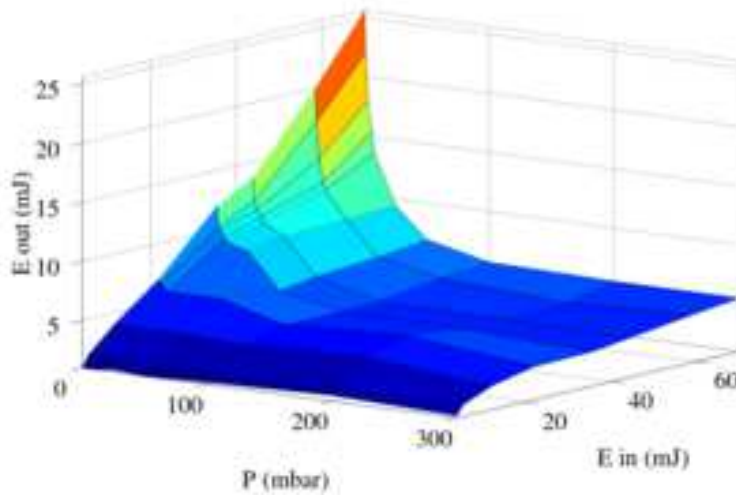
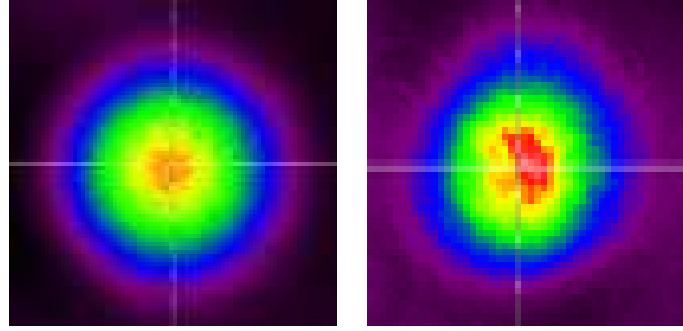


FIGURE 5.5 – Diagramme de l'énergie en sortie de capillaire en fonction de l'énergie incidente, et de la pression de hélium en amont du circuit d'injection de gaz.



(a) sans gaz

(b) avec 8 mbar d'hélium

FIGURE 5.6 – Image du faisceau en sortie du capillaire après 2.5 m de propagation : (a) sans gaz, (b) avec 8 mbar d'hélium

La figure 5.7 correspond à la coupe de la figure 5.5 pour $E_{in} = 70$ mJ, dans la gamme de pression qui nous intéresse (0 - 10 mbar). À 8 mbar d'hélium, on a donc une énergie de 13.7 mJ en sortie et un bon profil spatial (voir figure 5.6(b)). Malgré les fortes intensités injectées dans le capillaire ($6 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$), les faibles pressions utilisées garantissent un bon profil spatial en sortie de capillaire. Tant que nous travaillons à des pressions faibles, nous n'observons pas de filamentation car la puissance crête de l'impulsion incidente est inférieure à la puissance critique d'auto-focalisation :

$$P_{cr} = \frac{\lambda^2}{8 \pi n_0 n_2} \quad (5.14)$$

Pour 8 mbar d'hélium, $P_{cr} = 8.5$ TW, et nous utilisons des impulsions de 1.75 TW (en entrée du capillaire, et 0.64 TW en sortie avant la compensation). Dans ces conditions, nous sommes loin du régime de filamentation, et la propagation de l'impulsion n'est pas perturbée par l'auto-focalisation.

Nous avons également testé d'autres gaz (argon et néon), mais c'est l'hélium qui donne le meilleur résultat en terme d'énergie transmise grâce à son potentiel d'ionisation élevé ($I_p = 24.58$ eV). Pour le néon on passe en dessous de 10 mJ à partir de 4 mbar, et pour l'argon moins d'un millibar.

Avant la seconde campagne expérimentale, nous avons fait un travail de fond sur le compresseur en utilisant des montures plus stables pour les réseaux et le dièdre, et en nettoyant les réseaux avec des lampes UV. Nous avons également fait une étude approfondie du couplage dans le capillaire avec un He-Ne, amélioré la procédure d'alignement, et de nettoyage du capillaire après la phase de forage. Cela nous a permis d'améliorer l'efficacité de couplage. Nous sommes passé de 37% à 54% de transmission dans le capillaire. Ce

qui correspond à une énergie de 35 mJ dans le mode fondamental, contre 26 mJ pour la première campagne. Le couplage étant un critère déterminant pour les techniques de post compression en propagation guidée, cette augmentation du taux de couplage permettra d'améliorer les résultats en terme d'énergie extraite, mais également en terme de largeur spectrale, et de durée d'impulsion.

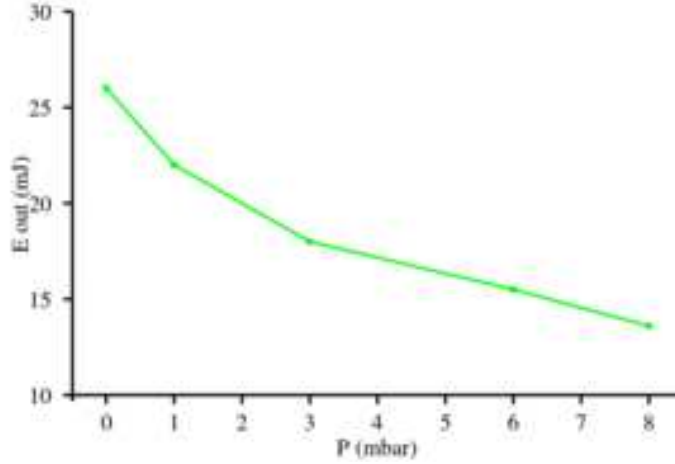


FIGURE 5.7 – Énergie en sortie du capillaire en fonction de la pression de hélium en amont du circuit d'injection de gaz pour une énergie incidente $E_{in} = 70$ mJ.

5.2.2.2 Influence sur l'élargissement spectral

Nous étudions ici l'influence de la pression de gaz, et de l'intensité d'interaction sur l'élargissement spectral, principalement dans l'hélium. Quelques résultats dans le néon sont également présentés. On définit dans cette section la largeur spectrale comme la largeur à mi-hauteur du spectre en intensité.

La figure 5.8 présente des spectres obtenus dans l'hélium avec une énergie en entrée de capillaire $E_{in} = 70$ mJ, pour différentes pressions (1-3-6 et 8 mbar). La courbe noire est le spectre de référence avant élargissement spectral ($\delta\lambda = 27$ nm). On peut remarquer que plus la pression augmente, plus la largeur spectrale est importante, et que l'élargissement se fait uniquement vers les courtes longueurs d'onde ; c'est la signature de l'ionisation. Il n'y a pas du tout d'élargissement spectral du côté rouge (grandes longueurs d'onde) ; l'auto-modulation de phase est donc quasiment inexistante dans ces conditions d'interaction (l'indice non-linéaire n_2 est très faible à ces pressions). On remarque également que plus la pression augmente, plus l'intensité maximale du spectre décroît. Cette observation est le résultat de la combinaison de deux facteurs : l'énergie est répartie sur un plus grand nombre de composantes spectrales ; l'énergie en sortie de capillaire décroît lorsqu'on augmente la pression (voir figure 5.7).

De plus, les spectres obtenus pour 6 et 8 mbar d'hélium sont très larges et présentent peu de structures, la phase spectrale associée ne devrait donc pas être trop compliquée. Lorsque plusieurs composantes spectrales sont générées à différents instants de l'impulsion, celles-ci peuvent interférer, et les spectres présentent alors des structures très marquées (cannelures). Ici comme les spectres sont assez peu structurés, on peut supposer qu'une composante spectrale n'est générée qu'à un seul instant de l'impulsion, ou plutôt que la deuxième contribution de cette composante spectrale a été perdue lors de la propagation dans le capillaire. En effet, si elle est générée plus tard, elle voit une densité électronique plus importante et subit plus de pertes.

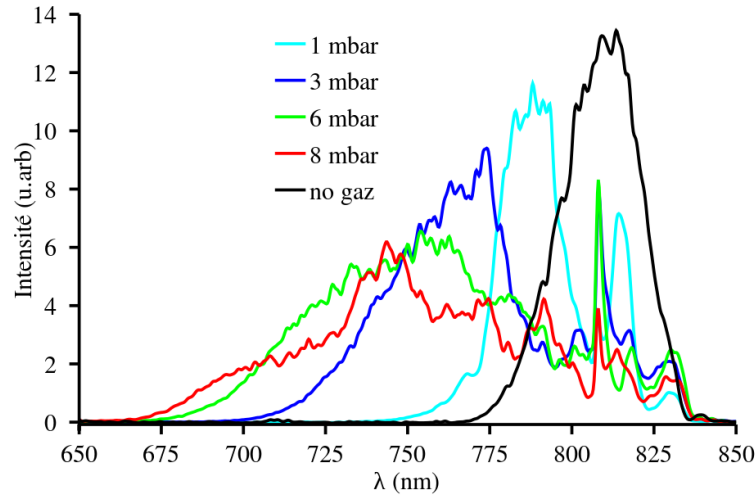


FIGURE 5.8 – Spectres mono-coups en sortie de capillaire pour $E_{in} = 70$ mJ, pour différentes pressions d'hélium en amont du circuit d'injection de gaz : 1 mbar (cyan), 3 mbar (bleu), 6 mbar (vert), 8 mbar (rouge), la courbe noire est le spectre de référence avant l'élargissement spectral.

La figure 5.9 met en évidence l'évolution des largeurs spectrales en fonction de la pression d'hélium, des spectres présentés sur la figure 5.8. Au départ (spectre de référence en noir) la largeur spectrale est de 27 nm. On assiste ensuite à une réduction de la largeur spectrale (spectre en cyan, 1 mbar) à cause de la structure du spectre : malgré le *blue-shift*, le creux conséquent qui s'est formé à 810 nm divise le spectre en deux pics. Le calcul sur le pic principal (centré à 785 nm) donne alors une largeur spectrale de 25 nm. Pour $P = 3$ mbar (courbe bleue), cette structure disparaît, et la largeur spectrale reprend l'évolution attendue. On passe alors de 40 nm ($P = 3$ mbar) à 107 nm pour une pression de 8 mbar d'hélium.

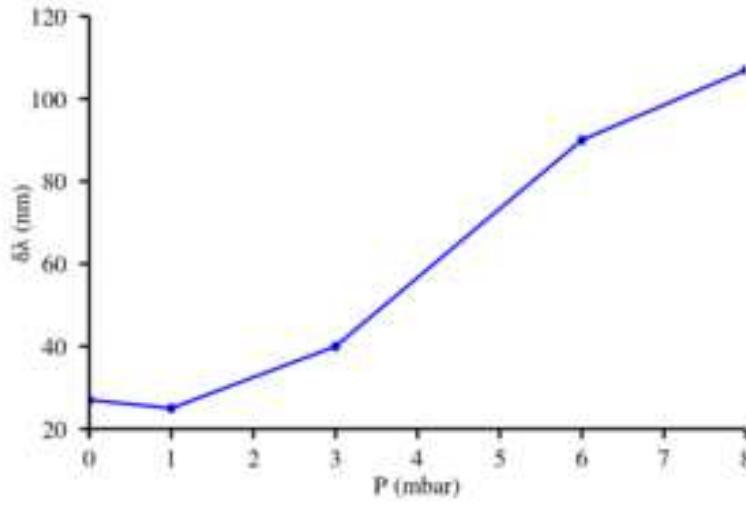


FIGURE 5.9 – Largeur spectrale en sortie de capillaire en fonction de la pression pour $E_{in} = 70$ mJ.

Si les spectres obtenus sont larges et relativement lisses lorsqu'on observe l'intensité spectrale intégrée sur tout l'espace, cela ne suffit pas à affirmer que ce faisceau va être utilisable pour produire une impulsion courte. Nous avons donc vérifié que cet élargissement spectral est uniforme spatialement au moyen d'un spectromètre imageur. La figure 5.10 montre deux spectres en sortie de capillaire résolus spatialement pour une énergie incidente $E_{in} = 70$ mJ, (a) sans gaz, et (b) avec 8 mbar d'hélium (correspond à la courbe rouge de la figure 5.8). On constate donc que le spectre sans gaz est uniforme, et que cette uniformité est bien conservée lors de l'élargissement spectral. C'est un avantage qu'apporte l'utilisation d'une propagation guidée pour l'interaction. L'uniformité des spectres obtenus indique que cette technique pourrait permettre de produire des impulsions courtes et identiques sur l'ensemble du faisceau sélectionné (mode EH_{11}) en sortie de capillaire.

La figure 5.11 montre l'évolution des spectres en fonction de l'énergie injectée pour une pression d'hélium de 8 mbar. On constate que plus on augmente l'énergie incidente, et donc l'intensité d'interaction, plus l'élargissement spectral est important. On observe finalement les mêmes tendances que sur la figure 5.8, même si ce n'est pas le même paramètre qui varie. Néanmoins, c'est compréhensible dans le sens où, que ce soit la pression ou l'intensité d'interaction, ce sont des paramètres qui régissent la dynamique de la densité électronique, qui elle même régit l'élargissement spectral.

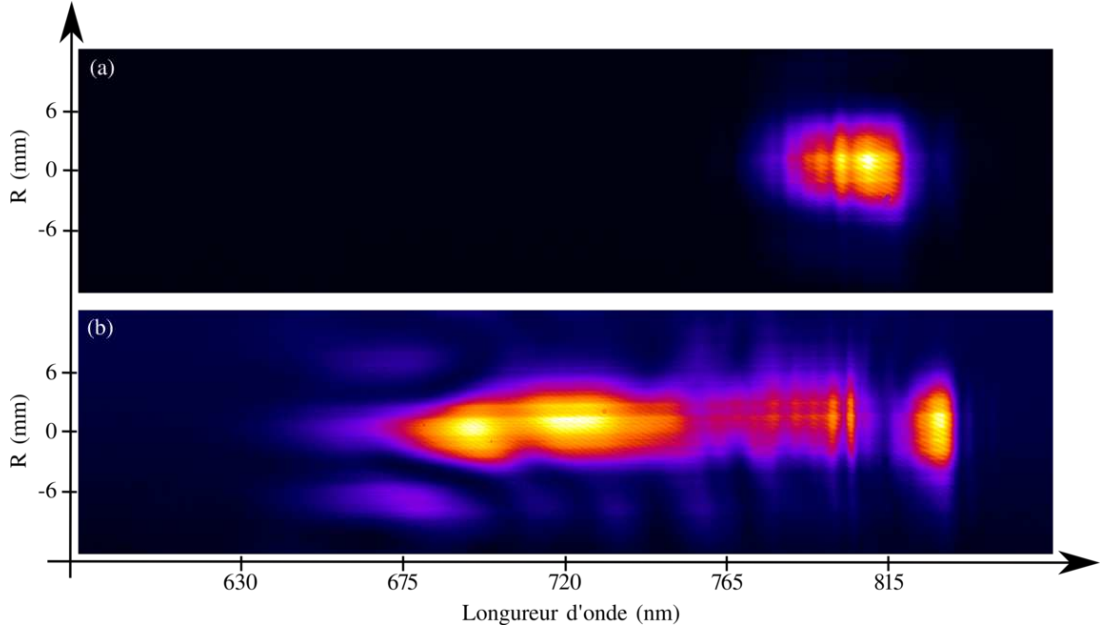


FIGURE 5.10 – Spectres résolus spatialement en sortie de capillaire pour $E_{in} = 70$ mJ, (a) sans gaz, (b) avec 8 mbar d'hélium.

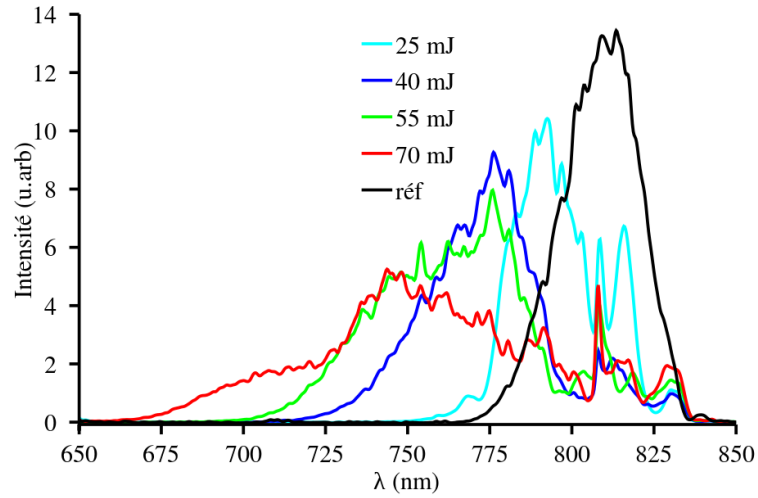


FIGURE 5.11 – Spectre en sortie de capillaire pour $P = 8$ mbar d'hélium, pour différentes énergies incidentes : 25 mJ (cyan), 40 mJ (bleu), 55 mJ (vert), 70 mJ (rouge), la courbe noire est le spectre de référence avant l'élargissement spectral.

Nous avons également testé cette approche en utilisant d'autres gaz (argon, néon) pour l'interaction. Dans le cas de l'argon, on arrive à élargir le spectre efficacement, mais l'ionisation est saturée très rapidement et les spectres sont plus structurés. Lorsqu'on augmente la pression au-delà de 2 mbar, l'énergie en sortie de capillaire est très réduite et le profil spatial se dégrade, l'étude effectuée dans l'argon n'est donc pas présentée ici.

Les résultats dans le néon présentent un intérêt par rapport au compromis énergie-largeur spectrale obtenu ($\delta\lambda \approx 140$ nm, 9 mJ). La figure 5.12 présente les spectres obtenus dans le néon (a) pour $E_{in} = 70$ mJ, pour trois pressions différentes, et l'évolution des largeurs spectrales correspondantes (b). Encore une fois, plus on augmente la pression plus les spectres s'élargissent, mais cette fois on atteint des largeurs très importantes dès 2.5 mbar (≈ 110 nm) et un maximum de 140 nm pour 5 mbar, avec une aile qui va loin dans le bleu (au-delà de 600 nm).

Lors de la deuxième campagne expérimentale, nous avons amélioré l'efficacité de couplage, ce qui permet d'avoir plus d'énergie en sortie du capillaire pour une pression donnée. On s'autorise donc des pertes plus importantes, et des pressions plus élevées peuvent être utilisées, ce qui permet d'obtenir des largeurs spectrales plus importantes. La figure 5.13 montre un spectre obtenu dans l'hélium à une pression de 15 mbar et une énergie incidente de 70 mJ. Ce spectre présente une largeur spectrale de 170 nm, pour une énergie en sortie de capillaire de 20 mJ, et de 15 mJ dans le mode EH_{11} .

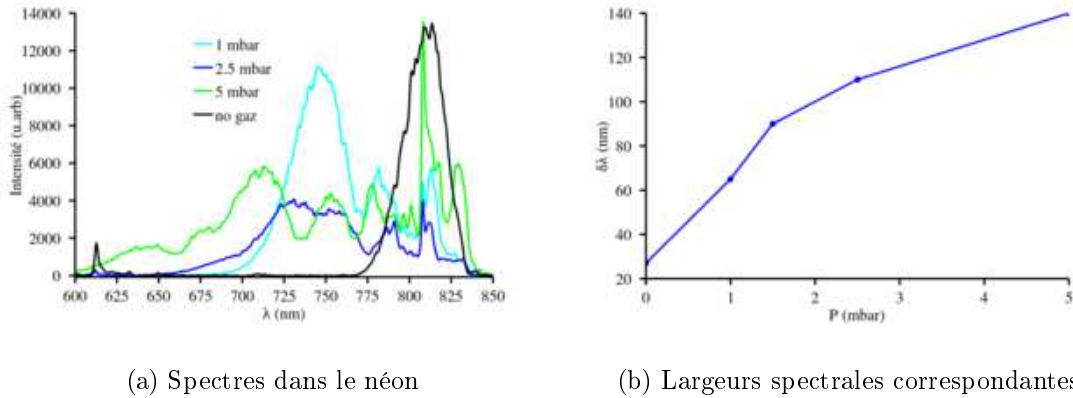


FIGURE 5.12 – (a) Spectre en sortie de capillaire pour $E_{in} = 70$ mJ, pour différentes pressions de néon en amont du circuit d'injection de gaz : 1 mbar (cyan), 2.5 mbar (bleu), 5 mbar (vert), la courbe noire est le spectre de référence avant élargissement spectral. (b) Largeur spectrale en fonction de la pression de néon

Nous avons obtenu expérimentalement des élargissements spectraux importants avec des énergies très élevées en sortie de capillaire en comparaison des autres techniques de post compression. Les spectres générés peuvent supporter des impulsions sub-10 fs, cependant il faut pouvoir recomprimer l'impulsion en sortie de capillaire pour obtenir de telles durées. La prochaine section présente le système de compensation de la phase spectrale, et les durées d'impulsion obtenues.

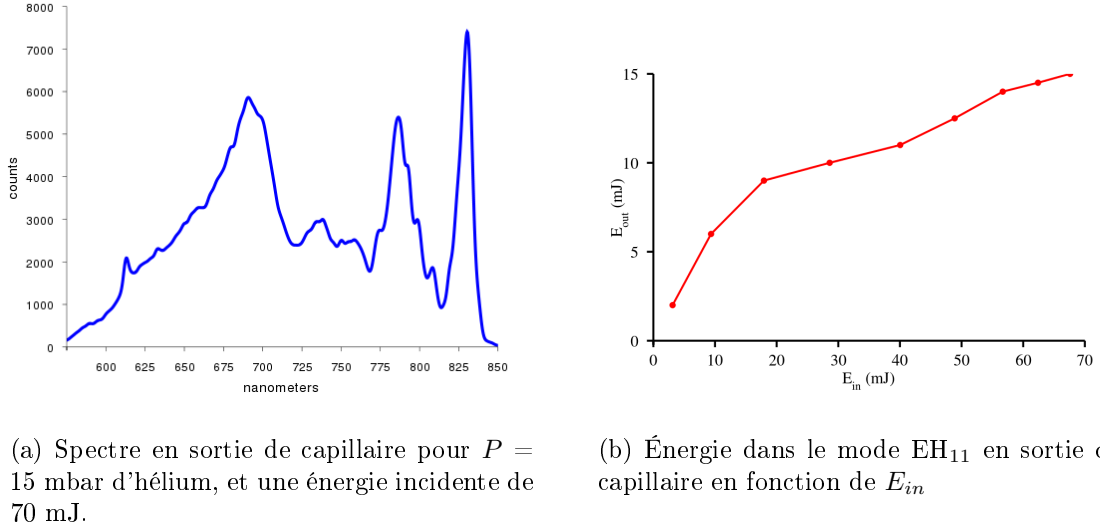


FIGURE 5.13 – (a) Spectre en sortie de capillaire pour $P = 15$ mbar d'hélium, et une énergie incidente de 70 mJ. La largeur spectrale est de 170 nm, et l'énergie en sortie du capillaire dans le mode EH_{11} de 15 mJ. (b) Énergie dans le mode EH_{11} en sortie de capillaire en fonction de l'énergie injectée à une pression de 15 mbar d'hélium.

5.2.3 Les impulsions obtenues

L'annexe A est reliée à cette partie ; elle permet de comprendre comment des impulsions ultra-brèves peuvent être obtenues, et présente les diagnostics utilisés ici pour leur caractérisation.

5.2.3.1 Recompression et chirp accumulé

Un spectre large peut potentiellement produire des impulsions courtes, mais seulement si la phase spectrale n'est pas trop chahutée. Une phase spectrale qui présente des structures trop complexes ne pourra pas être compensée ; ce qui peut être le cas lorsque l'élargissement spectral est produit par des phénomènes très non-linéaires comme ici. Néanmoins, l'allure des spectres (lisses et peu structurés) laisse à penser que l'on va pouvoir recomprimer les impulsions. Nous utilisons ici un système de recompression pour l'ordre 2 de dispersion $\varphi^{(2)}$. On considère que l'ordre 3 ne sera pas un facteur limitant pour des impulsions de l'ordre de 10 fs (le $\varphi^{(3)}$ a dix fois moins d'influence que le $\varphi^{(2)}$).

Dans notre expérience, le faisceau pour sortir de l'enceinte sous vide traverse un hublot en BK7 d'une épaisseur de 3 mm. Il se propage ensuite dans l'air sur une longueur de 2 m. Pour obtenir les impulsions courtes, il va alors falloir compenser, non seulement le chirp induit par l'ionisation, mais aussi la GDD accumulée lors de la traversée du hublot et de

la propagation à l'air. Nous utilisons pour cela, une série de miroirs chirpés (6 paires) qui permettent de compenser la dispersion d'ordre 2, à raison de -40 fs^2 par réflexion (-480 fs^2 pour la ligne de 12 miroirs). Le hublot en BK7 introduit 148 fs^2 (pour une longueur d'onde de 750 nm), l'air 40 fs^2 ; on a donc la capacité de compenser 292 fs^2 pour la dispersion due à l'ionisation. Cela sera largement suffisant pour les pressions auxquelles nous travaillons. On pourra ajuster au mieux la compensation en fonction de la pression de gaz avec des lames de silice calibrées. Pour 3 mbar d'hélium, on doit ajouter 5 mm de silice (182 fs^2) pour obtenir la durée minimale. La dispersion due à l'ionisation est alors 110 fs^2 . Pour 6 et 8 mbar , on ajoute 3 mm de silice (109 fs^2) soit une dispersion induite dans le capillaire de 183 fs^2 .

5.2.3.2 Durée des impulsions

Une fois la recompression optimisée pour chaque pression de gaz, on a pu obtenir des durées d'impulsions très courtes. Toutes les mesures de durée sont des mesures monocoups.

La figure 5.14 présente les traces d'autocorrélation des impulsions les plus courtes obtenues avec chaque gaz ((b) hélium, (c) néon) ainsi que celle de l'impulsion initiale de 40 fs (a) à titre de référence.

Dans le cas de l'hélium (b), la pression est de 8 mbar et la durée de l'impulsion obtenue est de $11,8 \text{ fs}$ en considérant un profil temporel de sécante hyperbolique ($12,8 \text{ fs}$ pour un profil gaussien). La trace d'autocorrélation est relativement bien fittée par une gaussienne (courbe bleue), néanmoins l'extremum de la courbe de fit est inférieur à l'extremum réel. Pour ne pas surestimer la durée, dans toute la suite, on a utilisé le signal brut pour le calcul des largeurs à mi-hauteur. La trace d'autocorrélation présente un léger piédestal qui pourrait être dû à des phases spectrales non compensées. La durée TF du spectre associé est de 10.4 fs (sech); la recompression est donc satisfaisante. En ne considérant que la dispersion d'ordre 2, il faut une GDD de 20 fs^2 pour qu'une impulsion Fourier limite de 10.4 fs s'allonge à 11.8 fs ; ce qui est équivalent à 750 nm à 0.55 mm de silice. Donc, si cet écart de durée était dû à la dispersion d'ordre 2, on aurait en principe pu le compenser en ajoutant une lame d'un demi millimètre de silice. Il semble donc qu'il reste des phases spectrales d'ordres supérieurs que notre dispositif de recompression ne permet pas de compenser, ce qui peut expliquer le piédestal observé sur la trace d'autocorrélation.

Pour le néon (figure 5.14(c)), l'impulsion la plus courte est obtenue à une pression de 5 mbar . La durée est de 10.5 fs (11.5 fs pour un profil gaussien); la trace est encore une fois bien fittée par une gaussienne, présentant quand même un écart avec le signal réel pour l'extremum (mais moins prononcé que dans le cas de l'hélium). Le piédestal est moins

prononcé que dans le cas de l'hélium.

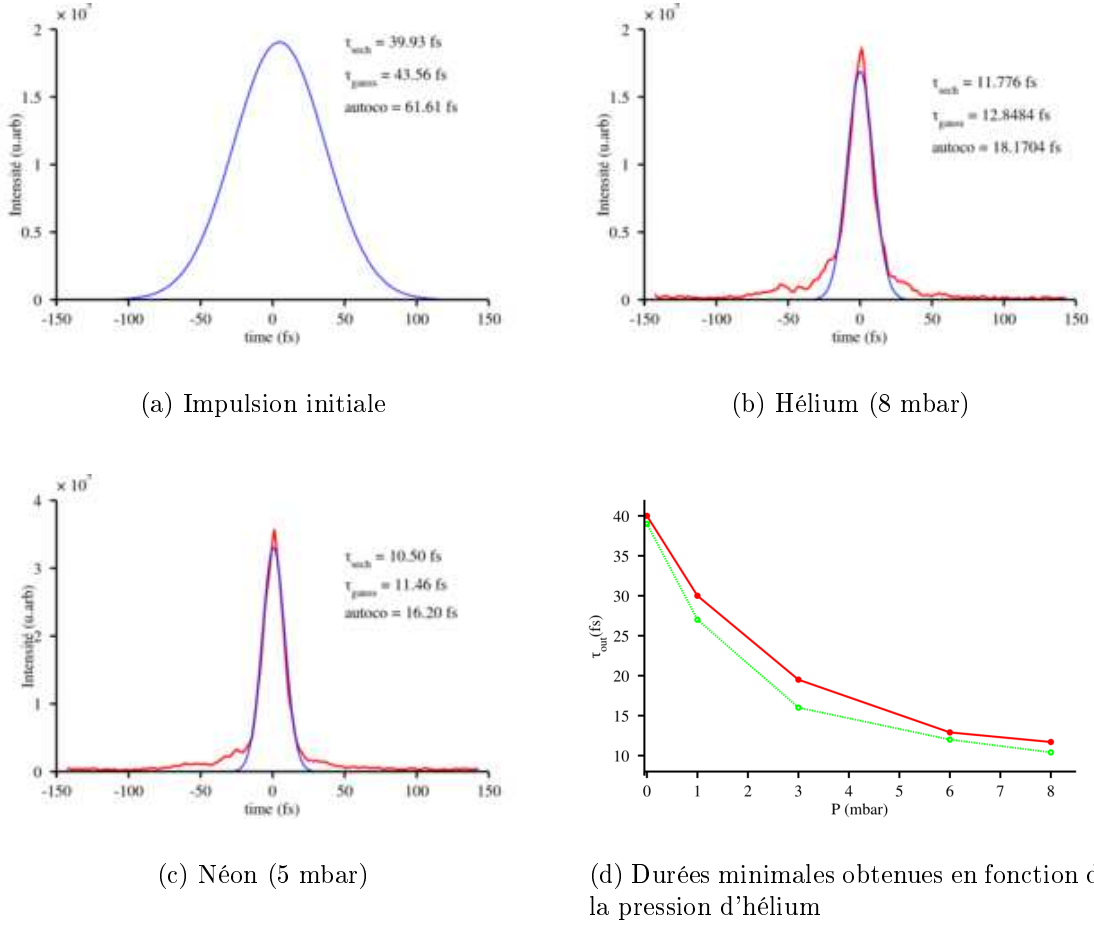


FIGURE 5.14 – Traces d'autocorrélation, (en rouge) traces brutes, (en bleu) fits gaussiens, pour une énergie incidente de 70 mJ, (a) sans gaz, (b) avec 8 mbar d'hélium, (c) avec 5 mbar de néon. (d) évolution de la durée de l'impulsion en sortie de capillaire en fonction de la pression d'hélium (en rouge) et durée donnée par la transformée de Fourier du spectre (en vert).

La figure 5.14(d) présente l'évolution de la durée d'impulsion en fonction de la pression d'hélium (en rouge). La durée minimale (TF) supportée par le spectre expérimental pour chaque pression est également présentée (en vert). La compensation est ajustée au mieux (au moyen des lames de silices calibrées) pour chaque pression comme en témoigne le faible écart entre les deux courbes. La durée décroît rapidement ; dès 1 mbar, elle est réduite à 30 fs puis 20 fs à 3 mbar pour atteindre un minimum de 11.8 fs à 8 mbar qui correspond à la trace d'autocorrélation présentée précédemment (figure 5.14(b)).

Notre but étant de développer une source TW pour des durées d'impulsions de la dizaine de femtosecondes, nous nous focalisons principalement sur les résultats obtenus dans l'hélium qui permettent d'extraire du capillaire des énergies plus élevées. Nous avons

donc caractérisé de façon plus précise les impulsions obtenues dans l'hélium. En particulier, la figure 5.15 montre la trace FROG de l'impulsion la plus courte obtenue dans l'hélium et l'analyse associée. On peut déjà voir sur la trace brute (a) un spot bien défini avec peu de structures autour. Cela laisse à penser que la recompression est très bonne. L'analyse de cette trace avec l'algorithme FROG ([Trebino 00]) permet de reconstruire le spectre de l'impulsion et la phase spectrale (b), ainsi que le profil temporel et la phase temporelle (c). On peut comparer le spectre reconstruit (en rouge) et le spectre expérimental (en gris); ils sont assez proches même si le spectre FROG présente moins de structures. La phase spectrale (en bleu) est relativement plane, sauf aux extrémités du spectre, où l'intensité est faible. Il en est de même avec la phase temporelle qui est quasiment constante sur la largeur du profil temporel. Ceci indique que la recompression est très bonne comme on l'avait supposé en examinant la trace brute. Le profil temporel reconstruit (en rouge) affiche donc une durée de 11.4 fs pour une durée TF de 10.4 fs obtenue avec le spectre expérimental; soit une différence de 9.6% entre la durée FROG et la durée TF.

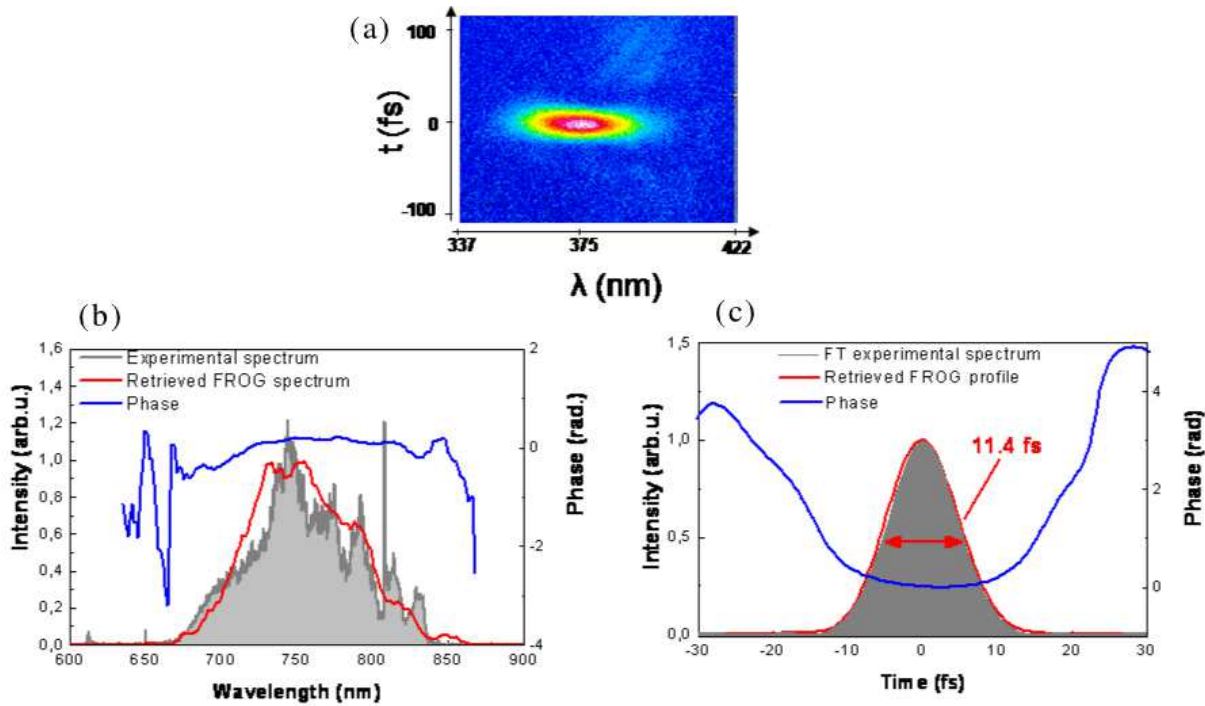


FIGURE 5.15 – Trace FROG SHG mono-coup pour l'impulsion la plus courte obtenue dans l'hélium ($E_{in} = 70$ mJ, $P = 8$ mbar) : (a) trace brute; (b) spectre expérimental (en gris), spectre extrait de la trace FROG (en rouge), phase spectrale (en bleu); (c) profil temporel de la transformée de Fourier du spectre expérimental (en gris), profil temporel extrait de la trace FROG (en rouge), phase temporelle (en bleu).

Lors de la deuxième campagne, nous avons disposé de meilleures conditions d'interaction (meilleur couplage) qui nous ont permis d'améliorer ces résultats.

La figure 5.16 montre les traces d'autocorrélation obtenues dans l'hélium pour 7.5

mbar (a), et 10 mbar (b). On a vu dans la section 5.2.2.2, que le meilleur couplage obtenu a permis d'augmenter l'énergie en sortie de capillaire pour une pression donnée, et parallèlement l'énergie d'interaction et l'élargissement spectral. On obtient donc ici pour une pression de 7.5 mbar une durée d'impulsion de 10 fs pour un profil de sécante hyperbolique, et 10.9 fs pour un profil gaussien. L'impulsion est donc plus courte que celles obtenues lors de la première campagne, cependant la trace d'autocorrélation présente un piédestal plus important. Il est relativement faible (10% de l'intensité maximale), mais s'étend sur une largeur de 400 fs. Le fit gaussien (en rouge) s'ajuste très bien avec la trace réelle mis à part pour le piédestal. Ce dernier pourrait être dû à une impulsion longue copropageante avec l'impulsion courte. Dans ce cas là, on estimerait l'énergie répartie avec un rapport de 40% pour l'impulsion courte, et 60% pour l'impulsion longue. L'énergie totale en sortie étant de 21 mJ, cela correspondrait à une impulsion courte de 8 mJ.

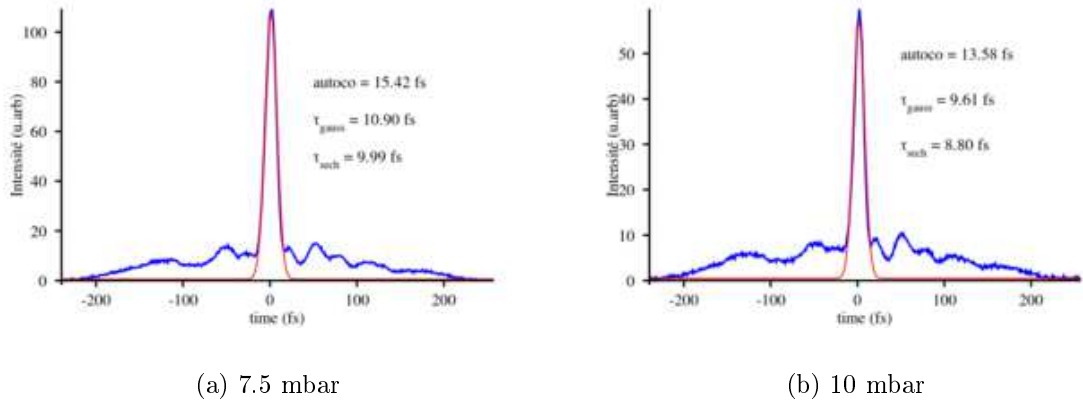


FIGURE 5.16 – Traces d'autocorrélation d'impulsions obtenues dans l'hélium lors de la deuxième campagne expérimentale, pour $E_{in} = 70$ mJ, $P = 7.5$ mbar (a), et $P = 10$ mbar (b). (en bleu) trace brute, (en rouge) fit gaussien.

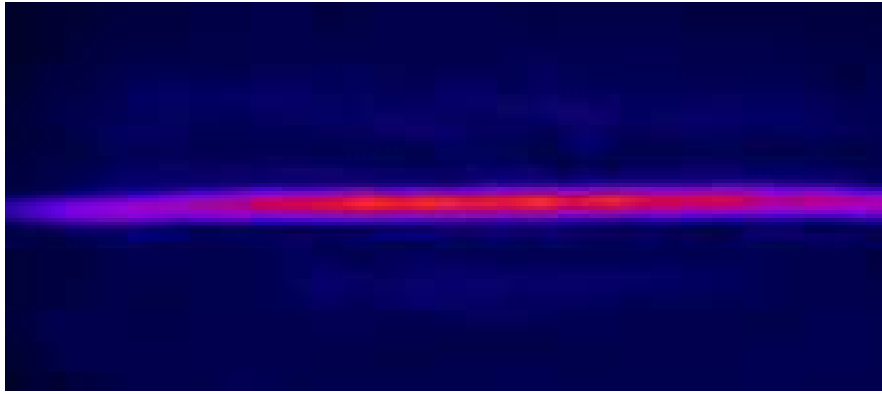
Cependant, ce piédestal peut être également un artefact de la mesure, ou provenir d'une mauvaise sélection spatiale du mode EH_{11} (présence de modes d'ordres supérieurs). D'autant plus qu'on observe exactement le même piédestal sur la figure 5.16(b) qui montre une trace d'autocorrélation pour une pression de 10 mbar d'hélium. La trace présente des caractéristiques tout à fait similaires à celle à 7.5 mbar, exceptée pour la durée qui est plus courte. En effet, l'impulsion a ici une durée de 8.8 fs (9.6 fs pour un profil gaussien) ; on approche alors des limites de l'autocorrélateur. L'énergie totale associée est dans le mode EH_{11} de 15 mJ. Si toute cette énergie est bien contenue dans l'impulsion courte, on a donc le potentiel pour une source de 1.5 TW sub-10 fs !

Lorsqu'on examine la trace d'autocorrélation (pour $P = 7.5$ mbar) en regardant di-

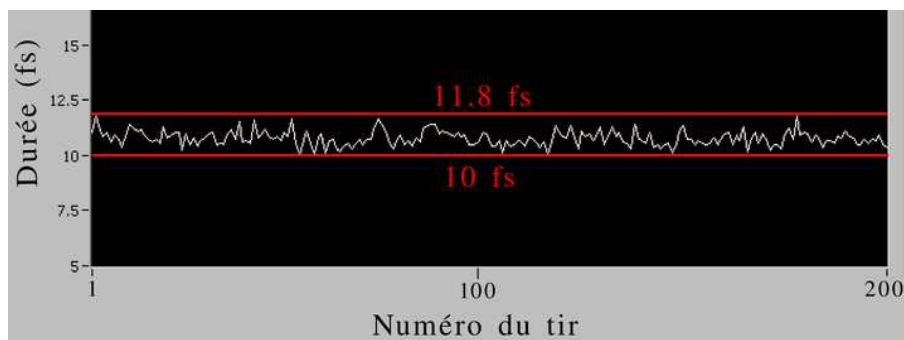
rectement l'image de la caméra CCD (figure 5.17(a)), on peut constater, que la trace est bien uniforme spatialement, ce qui confirme les mesures de profil spatial et les mesures de spectre. Le piédestal n'apparaît pas, mais c'est seulement un effet dû au code de couleur.

Nous avons également vérifié la stabilité de la durée des l'impulsions (mesures monocoups) sur 200 tirs dans ces conditions. Le graphe de la durée pour chaque numéro de tir est présenté sur la figure 5.17(b). On peut constater que la durée est stable, et comprise dans l'intervalle 10 fs - 11.8 fs.

Tous ces critères semblent indiquer que les impulsions post comprimées vont pouvoir être utilisées pour la génération d'harmoniques.



(a) Trace d'autocorrélation brute

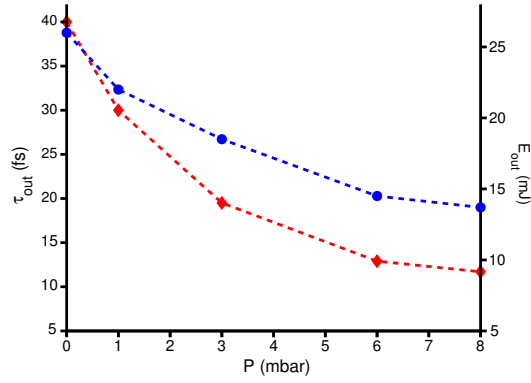


(b) Évolution de la durée d'impulsion sur 200 tirs

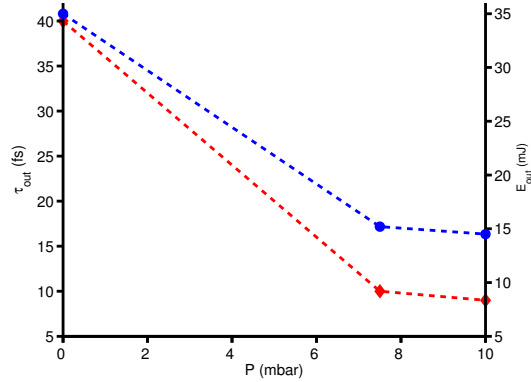
FIGURE 5.17 – Homogénéité spatiale, et stabilité de la durée d'impulsion dans l'hélium pour $E_{in} = 70$ mJ et $P = 7.5$ mbar lors de la deuxième campagne expérimentale : (a) trace d'autocorrélation brute, (b) durées obtenues pour 200 tirs successifs.

5.2.4 Synthèse phase 1

A l'issue de cette première phase, où l'on ne recomprime qu'une petite fraction de l'énergie, nous avons pu développer la technique de post compression par ionisation, et démontrer son potentiel pour produire des impulsions ultra-courtes et énergétiques, et avec des profils de faisceaux de bonne qualité. Les résultats de la première campagne sont publiés dans optics letters ([Dutin 10]). Ils démontrent un potentiel pour des impulsions de 10-12 fs pour une énergie de 15 mJ, soit une puissance crête de plus d'un térawatt. Lors de la deuxième campagne, nous avons amélioré la technique, en la rendant stable, et utilisable au jour le jour ; nous avons également obtenu de meilleurs résultats en terme de durée et d'énergie.



(a) campagne 2009



(b) campagne 2011

FIGURE 5.18 – Énergie dans le mode EH_{11} (en bleu), et durée de l'impulsion (en rouge) en fonction de la pression d'hélium. (a) lors de la première campagne de 2009, (b) lors de la deuxième campagne (2011).

La figure 5.18 résume les résultats obtenus lors des deux campagnes expérimentales en

présentant sur un même graphique les durées obtenues, et l'énergie en sortie de capillaire pour différentes pressions. Les courbes (a) montrent que la post compression par ionisation peut fournir une source terawatt accordable en durée, (et en longueur d'onde, cf section 5.2.2.2). En effet, il est possible de produire des impulsions de 20 fs avec une énergie de 20 mJ, ou encore de 10 fs avec plus de 15 mJ (figure 5.18(b)). Lors de la deuxième campagne, nous avons travaillé sur la stabilité du système dans les conditions qui fournissent les impulsions les plus courtes dans le but d'obtenir une source fiable pour la génération d'harmoniques. Cependant, pour pouvoir utiliser ces impulsions post comprimées, il reste encore une importante étape à franchir, la recompression de toute l'énergie sous vide. Ce travail est présenté dans la prochaine section.

5.3 Étude expérimentale phase 2 : recompression de toute l'énergie

Si nous avons démontré précédemment le potentiel de la technique, nous n'avons pas obtenu d'impulsions post comprimées d'un terawatt, puisque seule une fraction de l'énergie a été recomprimée. Nous présentons dans cette partie le dispositif développé pour obtenir ces impulsions d'un terawatt et les caractériser, ainsi que les résultats obtenus en recomprimant toute l'énergie.

5.3.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental pour recomprimer les impulsions sous vide est présenté sur la figure 5.20. Après la sortie du capillaire, le faisceau se propage librement sur une distance de 3 mètres avant de rencontrer le premier miroir. La première et la deuxième réflexion sont à 45° , ce qui augmente la tenue au flux d'un facteur $\sqrt{2}$. Les miroirs utilisés pour transporter le faisceau sont en argent optimisé pour les impulsions femtosecondes (large bande et faible GDD). Ils présentent une réflectivité de 98.5% entre 600 et 1000 nm et une GDD comprise entre -2 et 2 fs^2 . Leur tenue au flux est de 380 mJ/cm² pour des impulsions de 50 fs.

Après trois réflexions sur des miroirs plans (6 m de propagation), le faisceau est collimaté au moyen d'un miroir sphérique d'une focale de 6 m qui renvoie le faisceau vers le système de compensation. Ce système est constitué de quatre miroirs *chirpés* qui induisent une dispersion de -50 fs^2 par réflexion. Leur réflectivité est de 99% entre 650 et 900 nm, et leur tenue au flux de 100 mJ/cm². Après les miroirs *chirpés*, une réflexion à 45° renvoie le faisceau vers la table de génération d'harmoniques où le banc de caractérisa-

tion est installé. Une lame prismatique amovible permet, soit de laisser passer le faisceau vers la génération d'harmoniques, soit de prélever une fraction du faisceau déjà recomprimé (4%), et de le sortir de l'enceinte sous vide pour la caractérisation. L'impulsion est alors caractérisée en terme de profil spatial, de spectre et de durée avec l'autocorrélateur mono-coup. En retirant la lame prismatique amovible, l'énergie peut être mesurée juste avant la génération d'harmoniques en sortant la totalité du faisceau. Avant la mesure d'autocorrélation, l'impulsion passe par quatre miroirs chirpés de -40 fs^2 par réflexion qui compensent la traversée de la fenêtre en silice d'une épaisseur de 3.5 mm, et la propagation dans l'air. La compression est finalement ajustée de façon fine en fonction de la pression d'hélium avec des lames de silice calibrées.

La figure 5.19 montre une photo d'ensemble du banc expérimental de post compression avec la recompression sous vide.

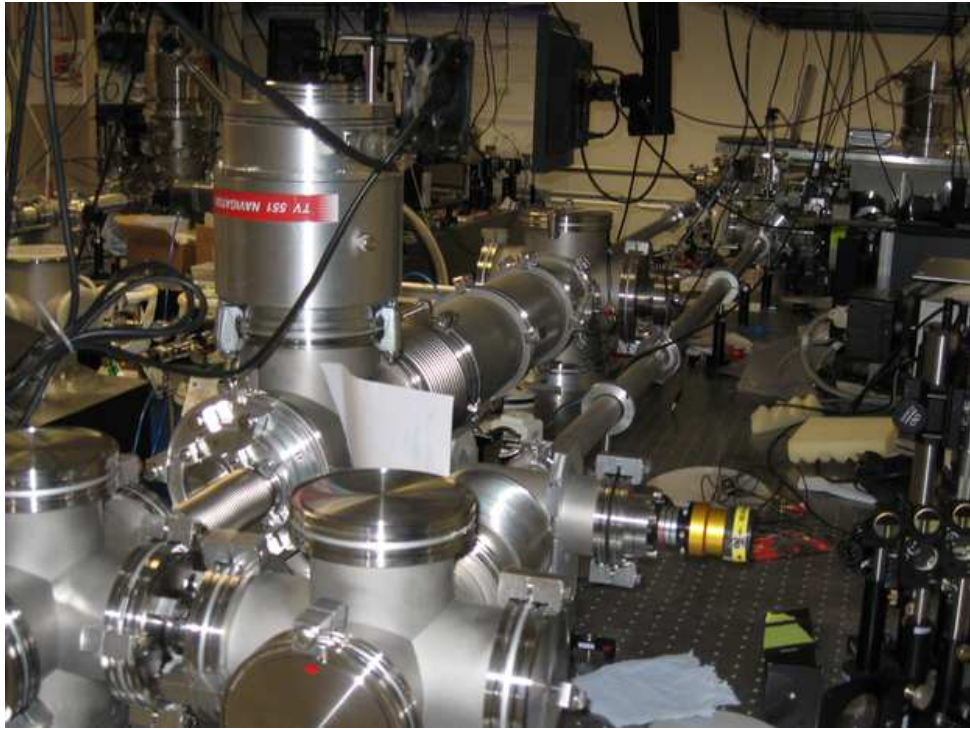


FIGURE 5.19 – Photo de l'installation expérimentale pour la recompression des impulsions sous vide et le transport vers la génération d'harmoniques.

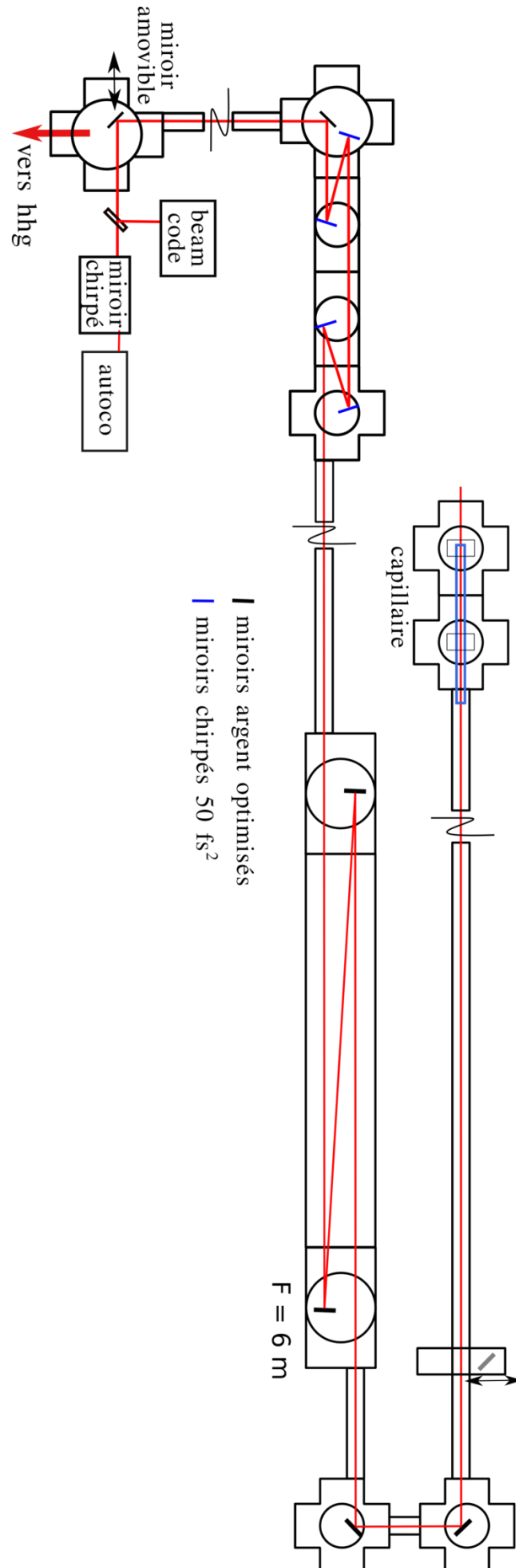


FIGURE 5.20 – Dispositif expérimental pour la post compression par ionisation et la recompression des impulsions sous vide.

5.3.2 Résultats obtenus

Ce dispositif expérimental a permis de recomprimer sous vide la totalité de l'énergie de l'impulsion et nous avons retrouvé des résultats similaires à ceux obtenus en recomprimant seulement une fraction de l'énergie de l'impulsion à l'air.

La figure 5.21 présente le spectre mesuré au bout de la ligne de post compression (après tous les miroirs argent et les quatre miroirs chirpés) pour une pression d'hélium de 8 mbar, et une énergie incidente de 70 mJ. Le spectre est très large, et similaire à ceux obtenus directement en sortie de capillaire, mais il présente un pic bien prononcé centré à 830 nm.

La figure 5.22 montre la trace d'autocorrélation correspondante ($P_{He} = 8$ mbar, et $E_{in} = 70$ mJ). La durée de l'impulsion est alors de 10.4 fs (pour un profil temporel de sécante hyperbolique). Dans ces conditions, l'énergie disponible en bout de ligne est de 13 mJ, soit une puissance crête de 1.3 TW. La trace d'autocorrélation présente néanmoins un piédestal non négligeable. Il pourrait être dû à une compensation non optimale, où à la présence d'une impulsion longue non recompressible. Si tel est le cas, l'énergie serait partagée entre l'impulsion courte et l'impulsion longue, et donc la puissance crête serait diminuée.

La figure 5.23 présente une trace d'autocorrélation, également pour une énergie incidente de 70 mJ, mais pour une pression d'hélium de 13 mbar. La durée (en sech) est alors réduite à 8.25 fs, et 9 fs pour un profil gaussien, et l'énergie disponible est de 12 mJ. Le piédestal a disparu, ce qui suggère une meilleure compensation du chirp.

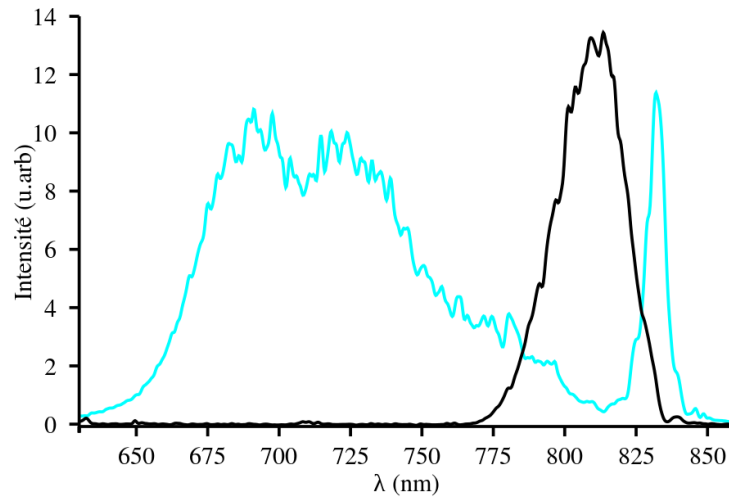


FIGURE 5.21 – Spectre obtenu en bout de ligne de post compression pour $P_{He} = 8$ mbar, et $E_{in} = 70$ mJ (en cyan), et spectre initial de l'impulsion (en noir).

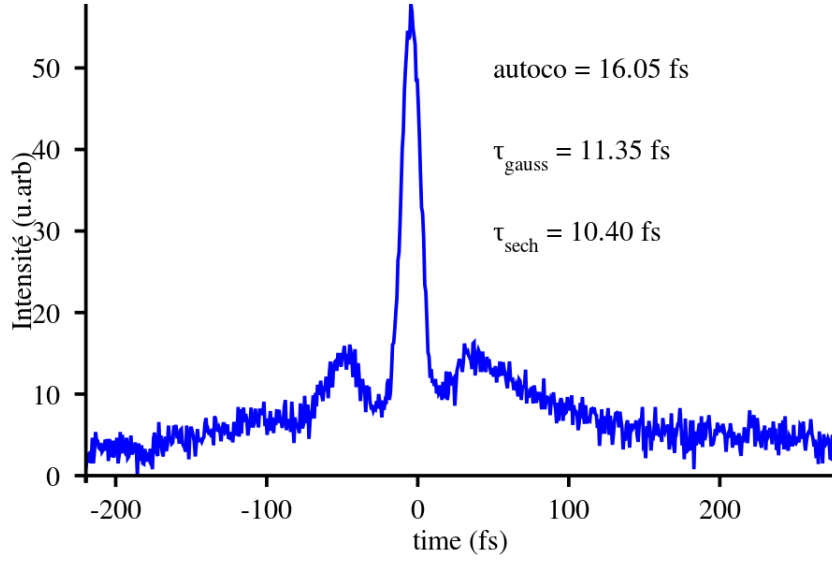


FIGURE 5.22 – Trace d'autocorrélation de l'impulsion post comprimée pour $P_{He} = 8$ mbar, et $E_{in} = 70$ mJ. L'énergie de l'impulsion est de 13 mJ.

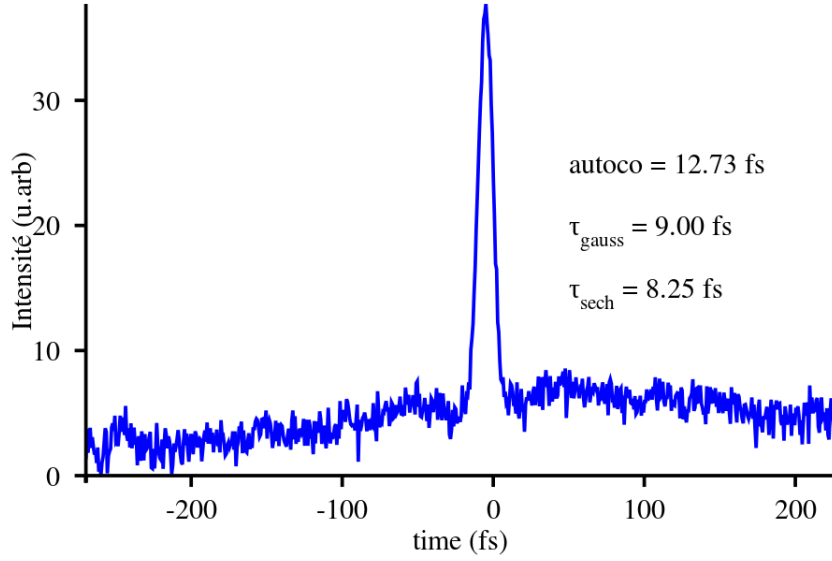


FIGURE 5.23 – Trace d'autocorrélation de l'impulsion post comprimée pour $P_{He} = 13$ mbar, et $E_{in} = 70$ mJ. L'énergie de l'impulsion est de 12 mJ.

Nous obtenons donc ici des impulsions courtes et énergétiques qui vont pouvoir être utilisées par la suite pour générer des harmoniques d'ordre élevé. Cependant, même si la recompression de l'entière du faisceau est faite sous vide, la caractérisation est quand à elle faite à l'air en prélevant une petite fraction du faisceau. Il faut alors traverser une fenêtre de sortie et se propager à l'air. Il est bien sûr possible d'estimer le chirp accumulé lors de

cette propagation, mais la durée de l'impulsion sous vide ne peut pas être déterminée avec précision. De plus, puisque la caractérisation est faite à l'air, il est possible d'ajuster au mieux la compensation du chirp avec des lames de silice, alors que sous vide nous n'avons pas cette possibilité. La compensation est fixée par les quatre miroirs chirpés, cependant, nous avons quand même une possibilité de contrôle sur la dispersion dans le capillaire via la pression de gaz. Cette dernière influence également la largeur spectrale, il ne s'agit donc pas d'un contrôle fin, mais nous devrions pouvoir trouver une pression optimale qui permettra d'obtenir des durées courtes. L'idéal aurait été de caractériser directement l'impulsion sous vide, ce qui sera fait prochainement.

5.4 Génération d'harmoniques avec les impulsions post comprimées

Après un long travail expérimental, qui s'est échelonné sur toute la durée de ma thèse, nous pouvons enfin utiliser les impulsions post comprimées pour générer des harmoniques d'ordre élevé. Les puissances crêtes des impulsions post comprimées (1.3 TW) sont similaires à celles des impulsions fournies par le laser (3.5 TW) ; le même dispositif expérimental peut alors être utilisé pour la génération dans le cas standard, et avec post compression. Les harmoniques sont caractérisées spatialement et spectralement avec le spectromètre à réseau. Des spectres harmoniques obtenus avec les impulsions post comprimées ont pu être observés, ce qui est déjà en soit un résultat important qui valide la technique de post compression haute énergie.

5.4.1 Spectres harmoniques obtenus

Les spectres présentés dans toute cette partie, sont obtenus en générant les harmoniques dans l'argon avec les impulsions post comprimées. L'énergie en entrée du capillaire est de $E_{in} = 70$ mJ, soit 35 mJ en sortie dans le mode EH₁₁ (sans gaz). Les acquisitions sont mono-coups afin de s'affranchir des effets de moyennage et de bien distinguer les structures des spectres. Le milieu gazeux est produit par le jet de gaz de 250 µm de diamètre, avec 4.5 bar de pression en amont. La fenêtre spectrale observée s'étend de 26 à 39 nm.

5.4.1.1 Influence de la pression d'hélium dans le capillaire

La figure 5.24 montre les spectres mono-coups obtenus en générant les harmoniques avec les impulsions post comprimées pour différentes pressions d'hélium (de 0 à 8 mbar) dans le capillaire avec un diamètre d'iris pour la génération de 12 mm. Le spectre 5.24(a) est donné à titre de référence, il correspond au cas de la génération dans des conditions standards (sans gaz dans le capillaire, $\tau = 40$ fs et $E_{iris} = 35$ mJ), les harmoniques observées vont de l'ordre 21 à 29 (26 à 39 nm).

Dès que l'hélium est injecté dans le capillaire (1 mbar, 5.24(a)), le spectre harmonique est clairement modifié : les harmoniques se décalent spectralement vers les courtes longueurs d'onde et s'élargissent en prenant la forme d'arc de cercle du côté bleu. Elles sont donc spectralement plus larges sur l'axe qu'à la périphérie du faisceau XUV. Plus la pression d'hélium augmente, plus ce phénomène s'amplifie. A partir de $P_{He} = 4$ mbar (fig 5.24(d)), les harmoniques sont tellement décalées spectralement, que H29 a disparu du détecteur, et que H19 est apparue du côté des grandes longueurs d'onde. Le rapport de largeur entre le spectre fondamental et le spectre de l'impulsion post comprimée est alors de 3, et le rapport des largeurs spectrales des harmoniques correspondantes est de 4. Cela indique que l'élargissement spectral des harmoniques n'est pas seulement dû à l'élargissement spectral du fondamental ; le terme $\alpha \frac{dI}{dt}$ intervient, et devient de plus en plus significatif lorsque l'impulsion se raccourcit. Des figures d'interférences spectrales commencent également à apparaître et dans ces conditions, l'espace inter-harmonique, est presque inexistant. Même si l'intensité est faible, les harmoniques possèdent une aile du côté bleu qui s'étend jusqu'à l'harmonique suivante. Des interférences spectrales au sein de spectres harmoniques ont déjà été observées ([Mansten 09]), elles indiquent que le train d'impulsion émis est très court (seulement quelques impulsions). Pour $P_{He} = 6$ mbar, le spectre a la même allure que pour 4 mbar mais les interférences sont plus nettes, et sur l'aile du côté bleu s'est formé un spot circulaire pour les harmoniques 19, 21 et 23.

Lorsque la pression d'hélium atteint 8 mbar, le spectre devient quasiment continu entre les harmoniques 21, 23, 25, et les interférences s'étendent sur l'ensemble du spectre. On observe des figures compliquées dues au couplage des interférences dans le domaine spectral (cannelures verticales) et dans le domaine spatial (franges horizontales). Ce couplage rend l'interprétation assez difficile, mais des interférences dans le domaine spectral témoignent de l'émission d'une composante spectrale à différents instants, alors que dans le domaine spatial, cela provient de l'émission d'une composante spectrale depuis différents points sources.

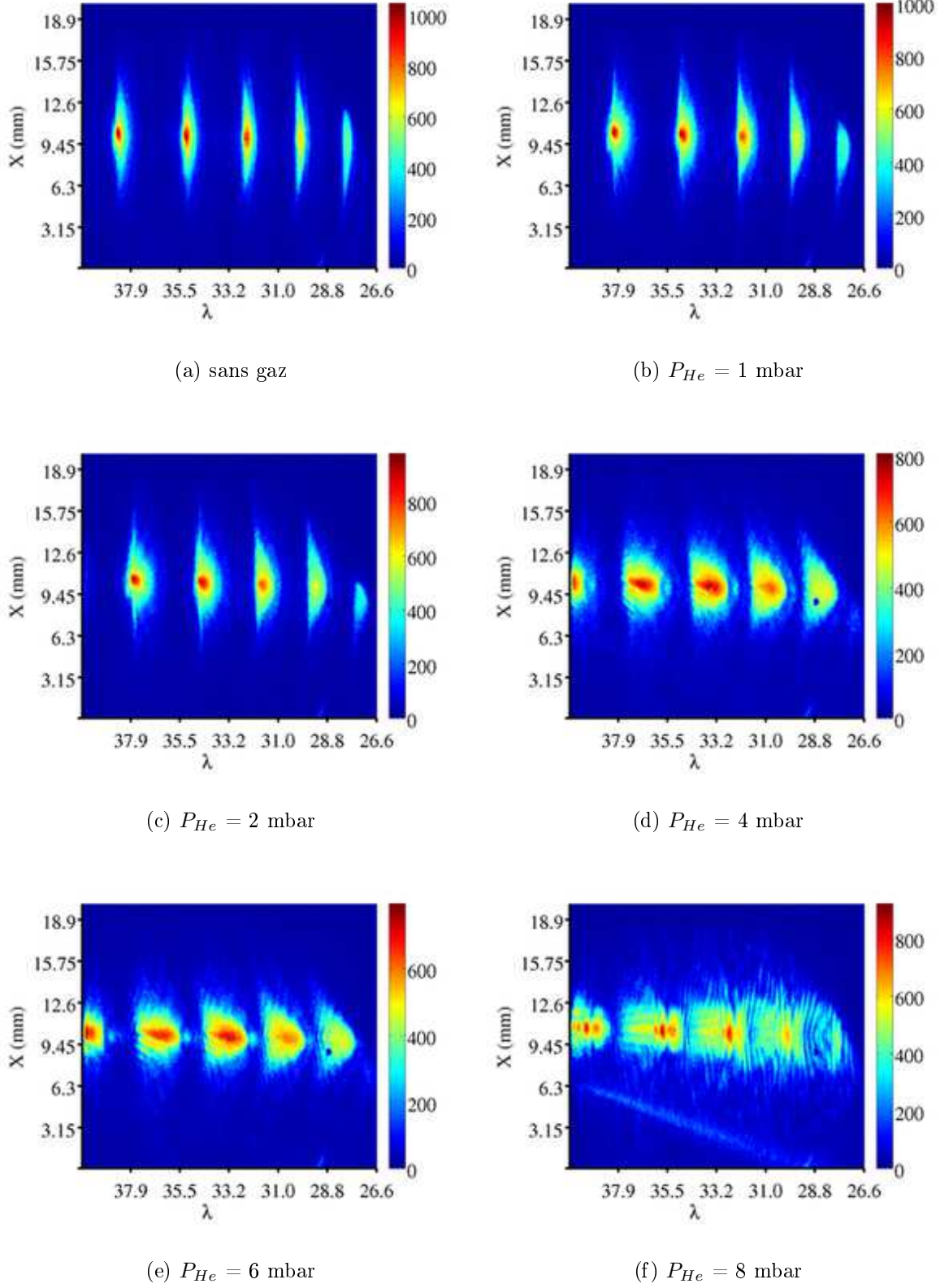
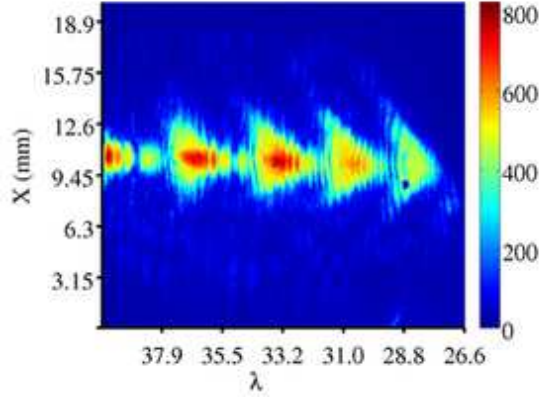
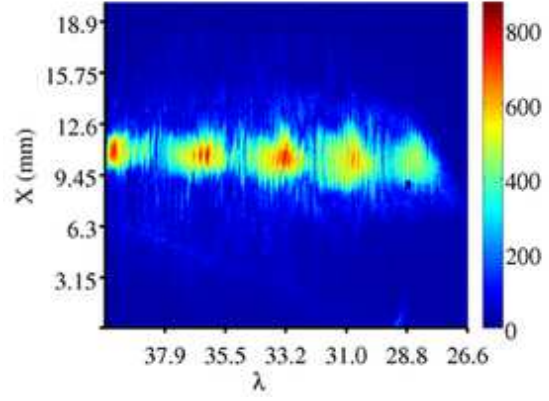


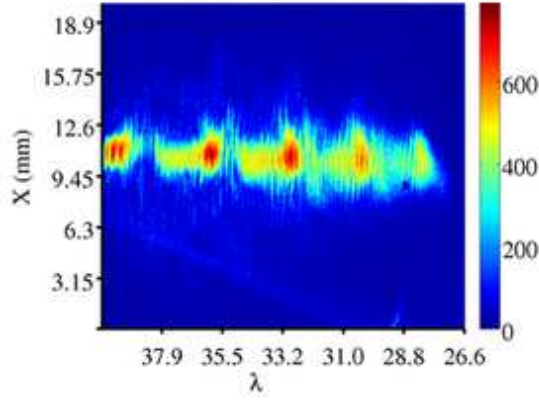
FIGURE 5.24 – Spectres harmoniques mono-coups obtenus avec les impulsions post comprimées pour différentes pressions d'hélium dans le capillaire avec $E_{in} = 70$ mJ. Génération dans l'argon, avec $\phi_{iris} = 12$ mm.



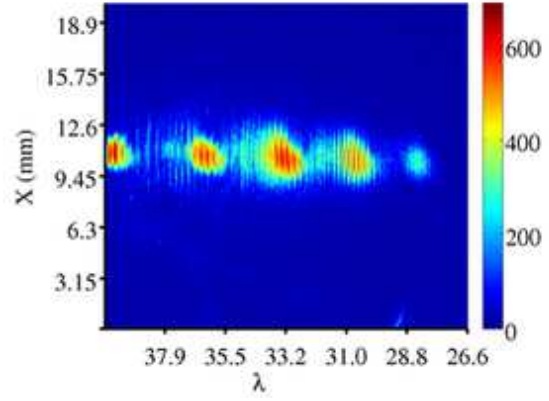
(a) $P_{He} = 10$ mbar



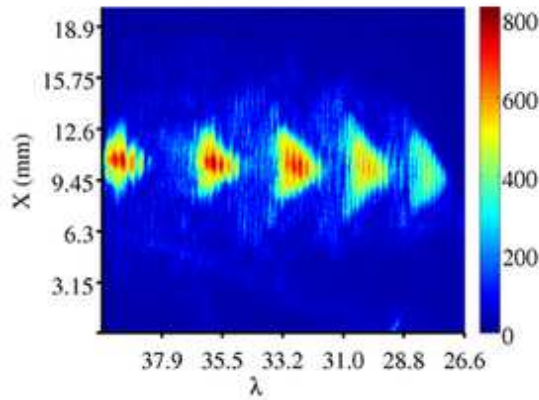
(b) $P_{He} = 12$ mbar



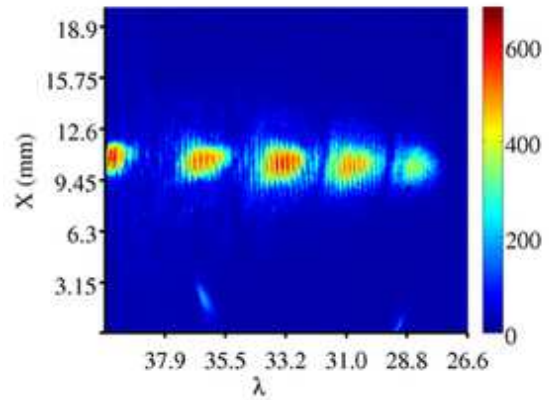
(c) $P_{He} = 14$ mbar



(d) $P_{He} = 16$ mbar



(e) $P_{He} = 20$ mbar



(f) $P_{He} = 50$ mbar

FIGURE 5.25 – Spectres harmoniques mono-coups obtenus avec les impulsions post comprimées pour différentes pressions d'hélium dans le capillaire avec $E_{in} = 70$ mJ. Génération dans l'argon, avec $\phi_{iris} = 12$ mm.

Pour une harmonique donnée, les cannelures sont très fines du côté rouge, puis deviennent de plus en plus larges en allant vers le côté bleu. Ces modulations de la largeur des cannelures indiquent que ces figures d'interférences sont induites par plusieurs contributions, avec des décalages temporels différents. Les cannelures fines correspondent à des grands délais, alors que les plus larges correspondent à des délais courts.

Les figures d'interférences observées pourraient s'expliquer par l'existence d'instantanés d'émission différents au sein du profil temporel de l'impulsion génératrice, associés à des zones différentes du profil spatial. En effet, au centre du faisceau ($r = 0$), où l'intensité est maximale, la génération d'harmonique peut avoir lieu à un instant $t_c < 0$. Alors que plus loin du centre ($r > 0$), il faudra attendre le sommet du profil temporel pour que l'intensité soit suffisante pour générer des harmoniques, et l'émission a lieu autour de $t = 0$. Il y aurait donc l'équivalent d'anneaux de diffraction qui se propagent puis interfèrent sur le détecteur après sélection par la fente. Et cette figure d'interférence serait elle-même modulée par les interférences avec le faisceau émis plus tôt depuis le centre du faisceau.

La figure 5.25 est la suite de la figure 5.24, (génération dans les mêmes conditions) pour des pressions d'hélium allant de 10 à 50 mbar.

Pour des pressions de 10 - 12 mbar, correspondant respectivement aux spectres (a) et (b), la compensation du chirp (200 fs²) est bien adaptée à la dispersion induite lors de la propagation dans le capillaire. On estime alors la durée des impulsions post comprimées à 10 - 12 fs. Pour $P_{He} = 10$ mbar, le spectre obtenu change radicalement de forme, les franges horizontales n'apparaissent plus. Les harmoniques ont une forme triangulaire, modulées par les cannelures. Les harmoniques sont suffisamment larges pour que le sommet d'un triangle soit confondu avec la base du suivant. Sur l'axe, le spectre harmonique est donc continu (mais modulé par les interférences), alors qu'il tend vers un peigne de fréquence (spectre classique) lorsqu'on s'éloigne de l'axe. Ce spectre pourrait être la signature d'une impulsion attoseconde isolée émise seulement sur l'axe qui interfère avec l'émission plus longue de l'ensemble du profil spatial du faisceau. Au centre du faisceau, l'intensité est de l'ordre de $2.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ (pour 10 fs - 13 mJ et $\phi_{iris} = 12$ mm), ce qui est largement au dessus de l'intensité de saturation dans l'argon ($I_{SB} = 2.47 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Dans ces conditions, l'accord de phase peut être très rapidement détruit, et localement une seule impulsion attoseconde est émise ([Strelkov 08, Pfeifer 07, Jullien 08, Abel 09]). À de telles intensités, un confinement temporel peut également être induit par déplétion du milieu générateur ([Ferrari 10]); ce dernier étant ionisé très rapidement, il ne reste plus d'atome dans l'état fondamental pour générer des harmoniques. Les deux phénomènes peuvent contribuer, et leur importance relative dépend des conditions de génération (valeur de $\frac{\Delta k L}{\pi}$).

Pour $P_{He} = 12$ mbar, les formes triangulaires ont complètement disparu laissant place à un spectre continu (toujours modulé par les cannelures). L'ensemble du spectre, de forme longitudinale, est assez uniforme spatialement.

Pour $P_{He} = 14$ mbar, le spectre est toujours continu, mais moins uniforme spatialement.

En augmentant encore la pression, les spectres deviennent discontinus (pour $P_{He} = 16, 20$ et 50 mbar), ce qu'on peut associer à allongement de l'impulsion génératrice (le système de compensation n'est plus adapté). Les cannelures sont toujours présentes ; pour 50 mbar elles ne sont plus modulées, et semblent être d'égale épaisseur sur l'ensemble du spectre.

5.4.1.2 Influence du diamètre de l'iris

Nous avons également étudié l'influence des conditions de génération, avec des paramètres fixés pour la post compression. La figure 5.26 présente l'évolution des spectres en fonction du diamètre de l'iris pour une pression d'hélium de 12 mbar, et une énergie en entrée de capillaire de 70 mJ, soit 12 mJ pour l'impulsion post comprimée. Les conditions de génération sont les mêmes que pour les figures 5.24 et 5.25, sauf pour le diamètre d'iris.

Pour $\phi_{iris} = 10$ mm, le spectre observé présente de belles structures qui suscitent la curiosité. Il n'y a pas de frange horizontale, mais les cannelures sont modulées, et ces modulations sont couplées à des variations de la divergence en fonction de la longueur d'onde.

Pour $\phi_{iris} = 11$ mm, on retrouve un spectre très proche de celui de la figure 5.25(b) (12 mbar, $\phi_{iris} = 12$ mm). Le spectre est presque continu avec des franges d'interférences fines. Les résultats sont donc reproductibles, et les tendances observées robustes.

La figure 5.26(c) correspond à un diamètre d'iris de 14 mm. Le spectre est dans ce cas très singulier : les harmoniques semblables entre elles, ont une forme de “scarabée”, avec des couplages spatio-temporels dans la figure d'interférences. On observe alors des cannelures (modulées), des franges horizontales, et des franges en diagonale (antenne du scarabée).

Pour des diamètres d'iris encore plus grands, le spectre devient plus uniforme, les figures d'interférence s'estompent (surtout les franges horizontales), et une excroissance vers le haut se forme sur les harmoniques.

Pour $\phi_{iris} = 19$ mm, le spectre a une forme très surprenante. Les harmoniques deviennent asymétriques, avec un bord bas qui suit quasiment une sinusoïde, et le bord haut qui comporte des excroissances bien prononcées, et presque en opposition de phase avec la sinusoïde du bord bas. Le spectre est par ailleurs très uniforme en intensité ; modulé

par des interférences, mais avec une faible amplitude de modulation.

La figure 5.27 est la suite de la figure 5.26, pour des diamètres d'iris supérieurs à 20 mm. Dans ce cas, on devrait également avoir un effet de mise en forme spatiale du faisceau (le miroir flat top est installé). Cependant, le diamètre utile du faisceau est ici d'environ 20 mm, car le faisceau est coupé lors de sa propagation de la post compression vers la génération d'harmoniques. L'effet du *TOP mirror* sur les impulsions post comprimées n'est pas connu, et la position du jet par rapport au foyer non plus. La mise en forme spatiale n'est donc pas effective et on ne voit pas vraiment son effet sur les spectres. Néanmoins ces spectres sont donnés à titre indicatif, pour témoigner des structures compliquées que l'on peut observer. On constate que ces structures ne sont pas aléatoires, et qu'elles évoluent régulièrement en fonction du diamètre de l'iris.

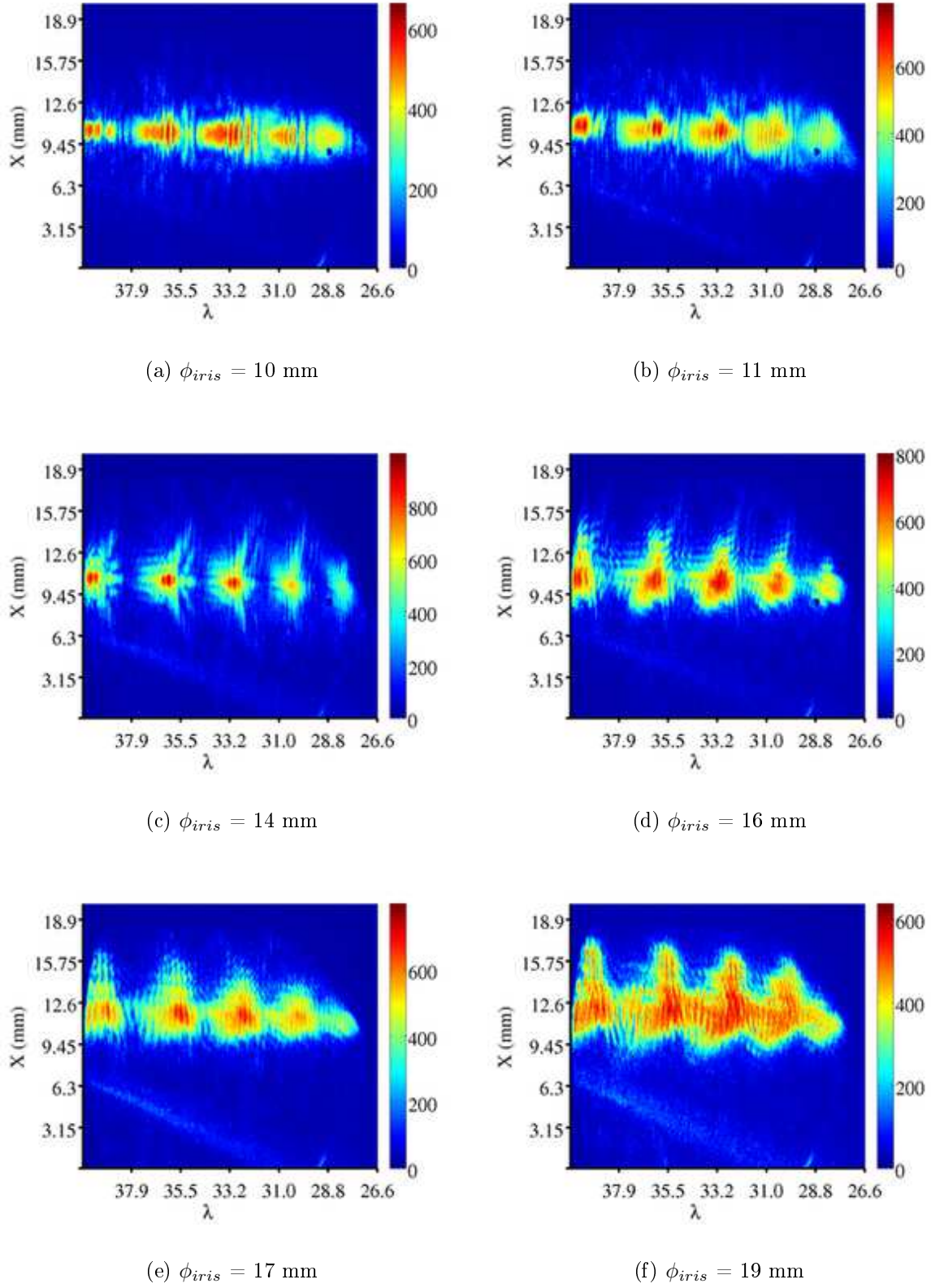


FIGURE 5.26 – Spectres harmoniques mono-coups obtenus dans l'argon avec les impulsions post comprimées ($P_{He} = 12$ mbar ; $E_{in} = 70$ mJ) pour différents diamètres d'iris.

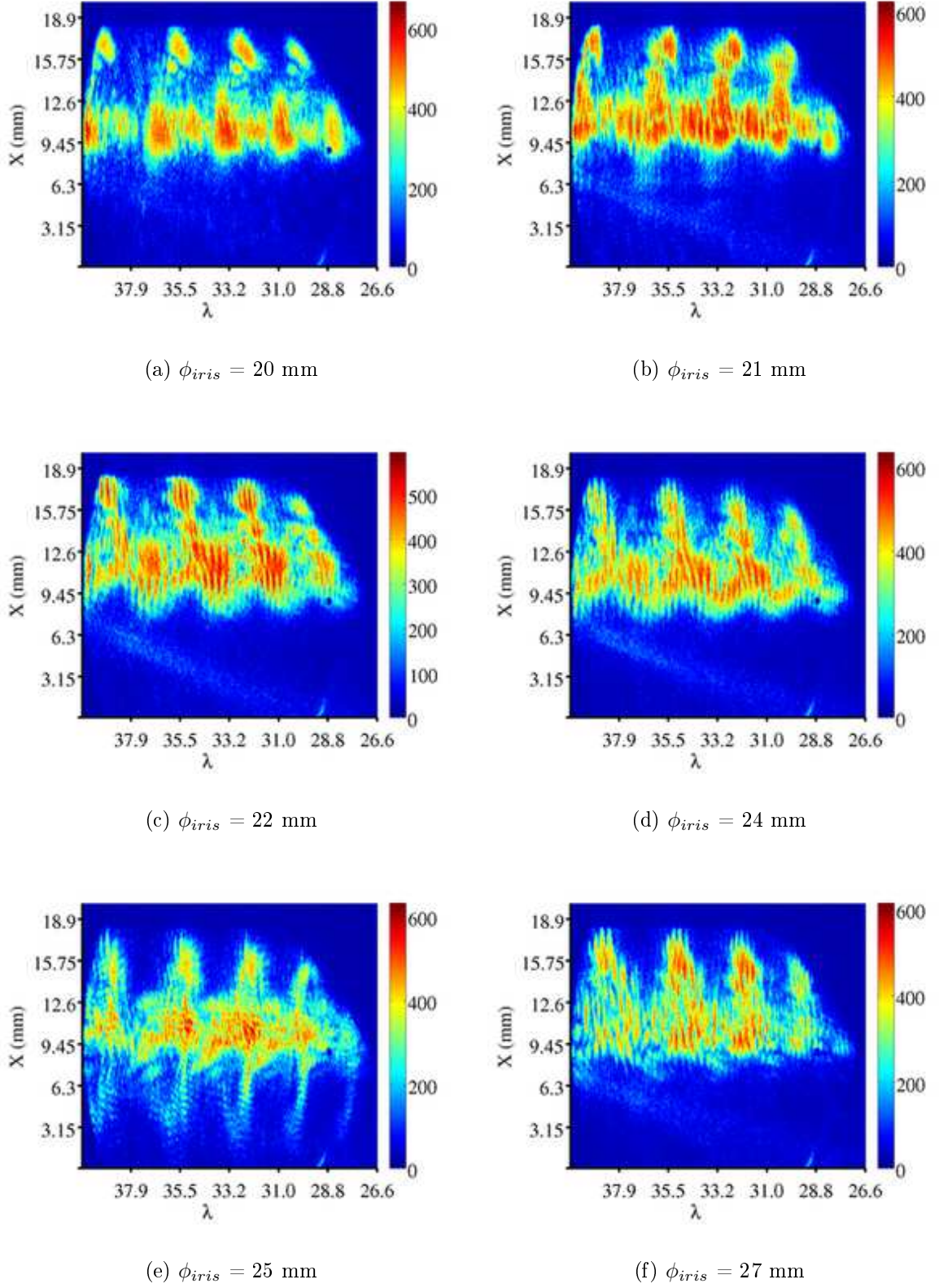


FIGURE 5.27 – Spectres harmoniques mono-coups obtenus dans l'argon avec les impulsions post comprimées ($P_{He} = 12$ mbar ; $E_{in} = 70$ mJ) pour différents diamètres d'iris.

5.4.1.3 Influence de la position du jet de gaz

Nous avons également étudié les spectres harmoniques en fonction de la géométrie du milieu générateur (longueur et densité) en faisant varier la distance entre le faisceau et le jet de gaz (hauteur du jet de gaz par rapport à l'axe de propagation). Les principaux résultats de cette étude sont présentés sur la figure 5.28.

Pour des milieux longs et peu denses ($d_{jet} = 4$ mm), le signal est relativement faible, et le *cut-off* apparent se situe au alentour des harmoniques 23 - 25. Le profil spatial est propre avec des divergences équivalentes pour toutes les composantes spectrales. Le spectre est cependant discontinu, et les harmoniques présentent des cannelures très larges, ce qui correspond à des délais courts.

Lorsqu'on rapproche le jet de gaz du faisceau ($d_{jet} = 2.5$ mm), le signal devient plus intense et le *cut-off* est repoussé en dehors de la fenêtre d'observation. Le spectre est alors presque continu, et modulé par les interférences spectrales. Les parties les plus intenses présentent les cannelures les plus larges, et les parties les moins intenses des cannelures fines.

Pour $d_{jet} = 2.2$ mm, le spectre est globalement plus intense ; le profil spatial est toujours propre et les divergences très similaires pour toutes les composantes spectrales. Le spectre est continu sur presque toute la longueur de la fenêtre d'observation. Par endroit, les interférences ont laissé place à un spectre uniforme.

En rapprochant encore le jet de gaz du faisceau, la divergence de certaines composantes spectrales commence à augmenter. Néanmoins, pour $d_{jet} = 1.7$ mm, le spectre reste assez uniforme et globalement plus intense que pour $d_{jet} = 2.2$ mm.

Pour $d_{jet} = 1.3$ mm, certaines composantes spectrales du côté des courtes longueurs d'onde deviennent plus divergentes que les autres ; ce qui a pour conséquence de réduire l'intensité sur l'axe pour les longueurs d'onde en question, le spectre est alors toujours continu, mais présente des modulations non négligeables d'intensité sur l'axe.

Lorsque le jet se trouve très proche du faisceau ($d_{jet} = 0.5$ mm), cet effet est encore plus prononcé, et s'étend sur toute la fenêtre spectrale. Le signal global et en revanche beaucoup plus intense. La divergence est modulée avec une périodicité de l'ordre de $2\omega_0$, les cannelures sont elles aussi modulées, et courbées par endroit donnant naissance à une figure d'interférence assez singulière. Nonobstant les modulations, le spectre est continu et intense sur l'axe. Cette étude montre qu'il est possible de contrôler la divergence du faisceau XUV, et de produire des spectres quasiment continus et uniformes en jouant sur la géométrie et la densité du milieu. Les conditions de génération pour d_{jet} compris entre 1.3 et 2.2 mm offrent un fort potentiel pour générer des impulsions attosecondes isolées via l'utilisation de la mise en forme spatiale.

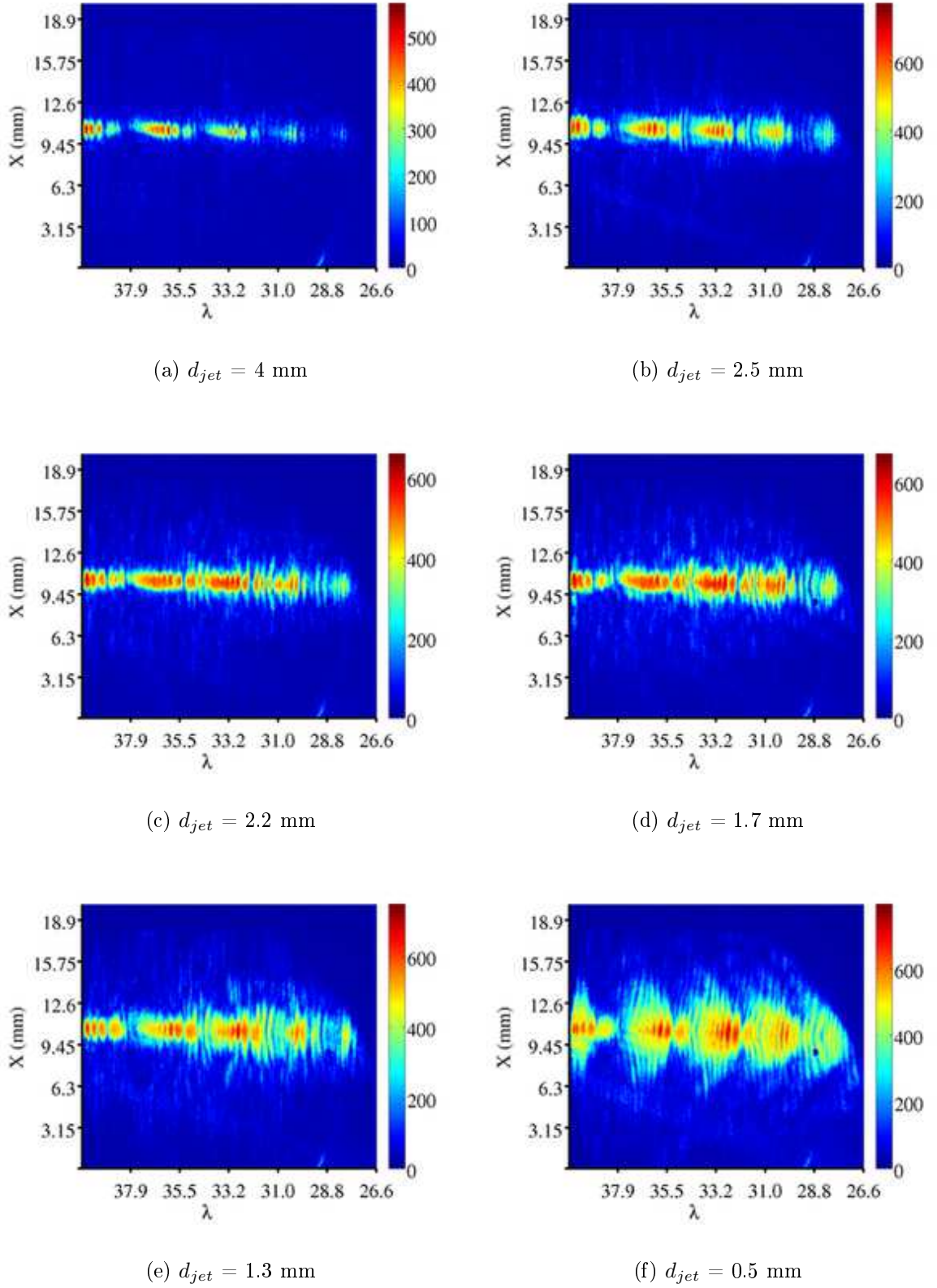


FIGURE 5.28 – Spectres harmoniques mono-coups obtenus dans l'argon avec les impulsions post comprimées ($P_{He} = 12$ mbar ; $E_{in} = 70$ mJ) pour différentes positions du jet de gaz. d_{jet} représente la distance entre la buse du jet et le faisceau laser.

5.4.2 Analyse par transformée de Fourier

Cette analyse permettra de quantifier le potentiel des spectres pour que localement des impulsions attosecondes isolées soient émises. De plus les cannelures sont analysées pour estimer le décalage temporel entre les composantes spectrales qui interfèrent et approfondir la compréhension des interférences observées.

5.4.2.1 Impulsion produite pour des phases spectrales linéaires

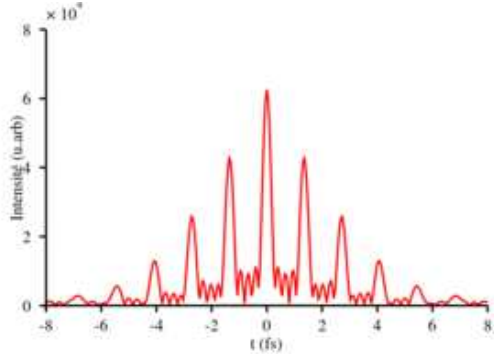
Nous avons donc étudié ces spectres via des analyses par transformée de Fourier pour reconstruire le profil temporel de la limite de Fourier. Cette analyse repose sur l'hypothèse que la phase spectrale est constante, et donc le profil temporel reconstruit ne traduit pas le profil temporel réel des trains d'impulsions attosecondes, néanmoins cela permet de voir les résultats sous un autre angle, et de quantifier le potentiel pour produire des IAP dans chaque condition.

La figure 5.29 montre les transformées de Fourier (TF) de quelques spectres présentés précédemment dans les figures 5.24 et 5.25. Il s'agit donc du profil temporel pour des trains d'impulsions à la limite de Fourier (en supposant que toutes les composantes spectrales sont en phase) en fonction de la pression d'hélium. Les TF sont effectuées en prenant une coupe sur l'axe des spectres résolus spatialement.

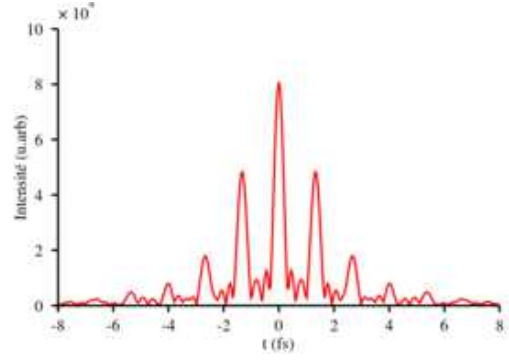
Lorsqu'il n'y a pas de gaz dans le capillaire (5.29(a)), les harmoniques sont générées avec l'impulsion de 40 fs et le spectre harmonique a alors la forme bien connue d'un peigne de fréquences de périodicité $2\omega_0$. La TF donne alors un train d'impulsions attosecondes d'une durée à mi-hauteur de 5.8 fs soit un septième de la durée initiale de l'impulsion. En partant d'une impulsion génératrice de 40 fs la durée réelle du train d'impulsions devrait être plus longue. Ce désaccord s'explique par l'élargissement spectral des harmoniques, qui n'est pas dû uniquement à leur profil temporel mais aussi à la forte contribution du terme $\alpha \frac{dI}{dt}$ pour de telles intensités de génération ($3 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ soit déjà largement au dessus de l'intensité de saturation). Une impulsion du train est relativement longue ($\approx 400 \text{ as}$), car nous ne sélectionnons ici que cinq harmoniques pour effectuer la TF.

Avec seulement 2 mbar d'hélium (5.29(b)), les harmoniques se sont déjà élargies de manière significative, et la TF donne un train d'impulsions plus court, d'une durée de 4.1 fs, avec seulement 5 impulsions significatives (d'amplitude supérieure à 10% de l'intensité maximale).

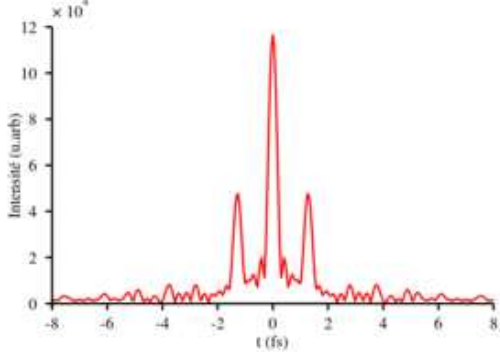
Pour $P_{He} = 4 \text{ mbar}$, la durée du train est encore réduite ($\tau = 1.9 \text{ fs}$), et le train ne comporte plus que trois impulsions (et quelques rebonds négligeables). Le rapport d'intensité entre l'impulsion principale et les deux pics satellites est de 41%.



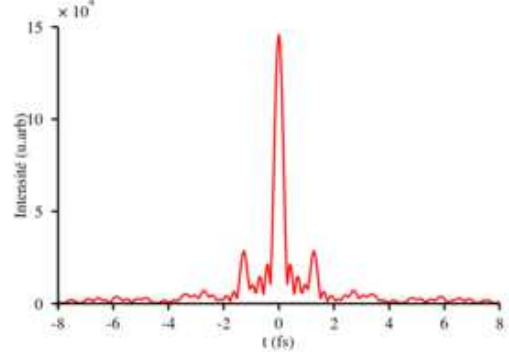
(a) $P_{He} = 0$ mbar



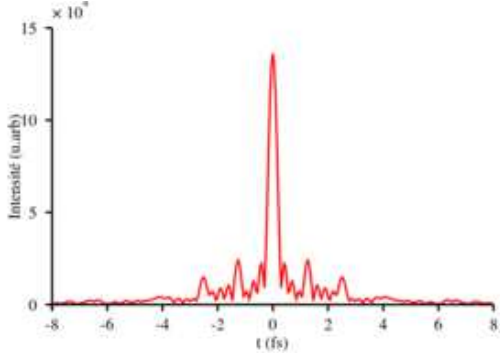
(b) $P_{He} = 2$ mbar



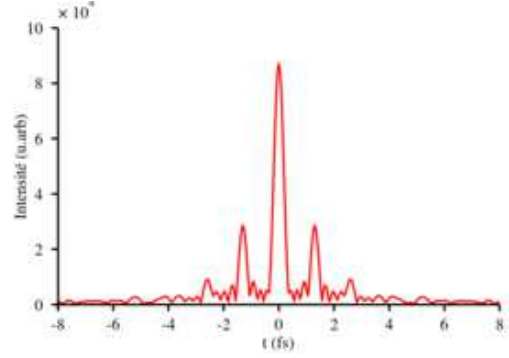
(c) $P_{He} = 4$ mbar



(d) $P_{He} = 10$ mbar



(e) $P_{He} = 14$ mbar



(f) $P_{He} = 16$ mbar

FIGURE 5.29 – Transformée de Fourier des spectres harmoniques mono-coups présentés sur la figure 5.25 : sans gaz (spectre 5.24(a)), pour $P_{He} = 2$ mbar (spectre 5.24(c)), $P_{He} = 4$ mbar (spectre 5.24(d)) $P_{He} = 10$ mbar (spectre 5.25(a)), $P_{He} = 14$ mbar (spectre 5.25(c)), et $P_{He} = 16$ mbar (spectre 5.25(d)).

Pour $P_{He} = 10$ mbar, on obtient une impulsion attoseconde isolée ; il y a quand même deux pics satellites d'amplitude inférieur à 20% de l'intensité maximale.

Lorsqu'on augmente encore la pression ($P_{He} = 14$ mbar), il se produit maintenant le

phénomène inverse : des pics satellites réapparaissent, il y a alors deux paires de pics satellites. Leur amplitude est toutefois très faible (10% du maximum pour les plus éloignés). Pour $P_{He} = 16$ mbar, les pics satellites les plus proches du pic central deviennent plus intenses (28% du maximum).

Le retour des pics satellites à partir d'une certaine pression peut s'expliquer par l'allongement de l'impulsion génératrice. En effet, une fois sous vide, nous n'avons pas de contrôle sur la recompression. Les quatre miroirs *chirpés* installés permettent une compensation du $\varphi^{(2)}$ de 200 fs^2 , qui va correspondre à une durée minimale pour une certaine pression d'hélium dans le capillaire (10 -12 mbar) qui induit le *chirp* positif complémentaire. Et donc passé cette pression optimale, l'impulsion génératrice se rallonge même si son spectre continue de s'élargir.

5.4.2.2 Étude des figures d'interférences

Nous allons maintenant étudier les figures d'interférences afin d'en déduire des informations sur la relation de phase entre les différentes composantes spectrales.

La figure 5.30 montre l'analyse par transformée de Fourier du spectre 5.25(b) ($P_{He} = 12$ mbar). (a) montre le spectre en énergie auquel la composante continue a été retirée ; (b) est la TF correspondante. Ainsi, le pic principal est supprimé, ce qui permet de faire ressortir les pics secondaires. Il en apparaît plusieurs : deux aux temps courts à 1.26 fs ($T_0/2$) et 3.79 fs ($3T_0/2$) qui correspondent aux grandes modulations du spectre (aux harmoniques). Et deux aux temps longs, à 15 fs et 16.4 fs qui correspondent aux modulations rapides. Ces pics sont également visibles sur la TF du spectre brut (d) (le spectre brut est présenté en (c)) même si leur amplitude est très faible. De plus, des études non présentées ici ont permis de révéler que la position de ces pics dépend de la coordonnée radiale où le spectre est étudié. Mais ils se situent toujours dans l'intervalle 15 - 17 fs.

La figure 5.31 présente la même analyse pour le spectre obtenu avec $P_{He} = 16$ mbar. On retrouve des caractéristiques similaires : des pics aux temps courts ($1.26 \text{ fs} \sim T_0/2$ et $2.62 \text{ fs} \sim T_0$), et des pics aux temps longs mais ces derniers ne sont pas bien définis. Pour les étudier plus en détail, nous sélectionnons l'harmonique 25 et nous appliquons la même analyse. La figure 5.32 présente les résultats de cette analyse : on observe très clairement un pic à 17.8 fs sur la TF sans composante continue (b). Ce pic apparaît également avec la composante continue (d) mais l'amplitude est très faible.

Les délais retrouvés pour les cannelures fines semblent compatibles avec la durée des impulsions génératrices (une impulsion gaussienne de 10 fs à mi-hauteur a une durée de 17 fs en $\frac{1}{e^2}$). Étant largement au dessus de l'intensité de saturation ($I \approx 10^{15} \text{ W/cm}^2$), l'intensité à $\frac{1}{e^2}$ ($> 10^{14} \text{ W/cm}^2$) est suffisante pour générer des harmoniques, et donc on

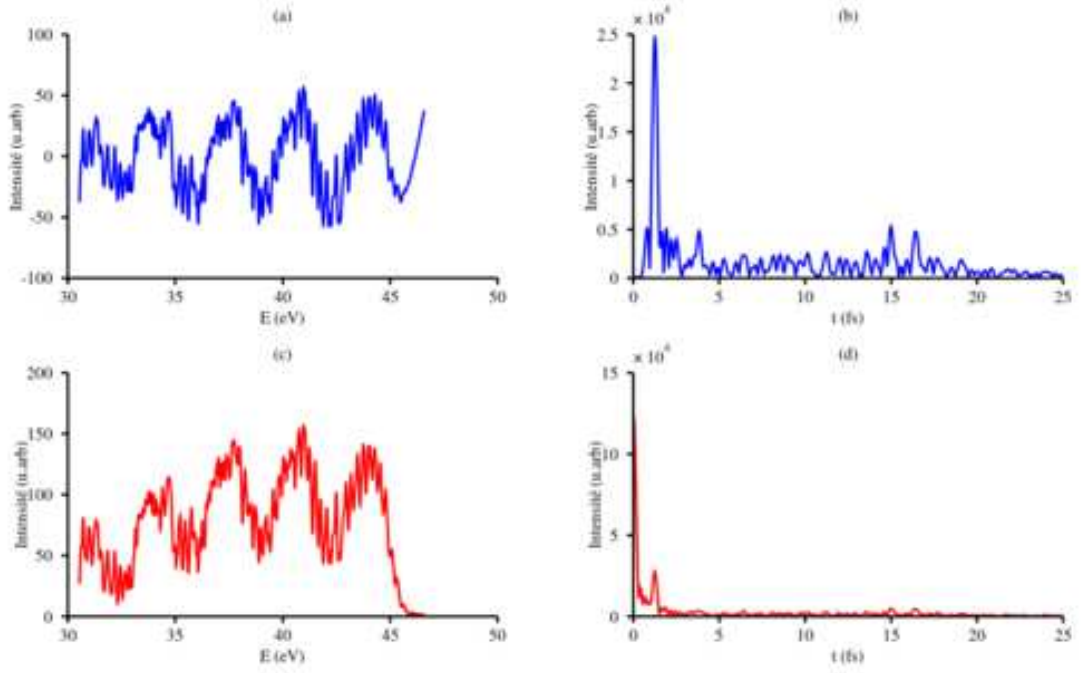


FIGURE 5.30 – Spectres et transformées de Fourier pour $P_{He} = 12$ mbar. (a) spectre sans la composante continue; (b) transformée de Fourier correspondante; (c) spectre brut; (d) transformée de Fourier du spectre brut.

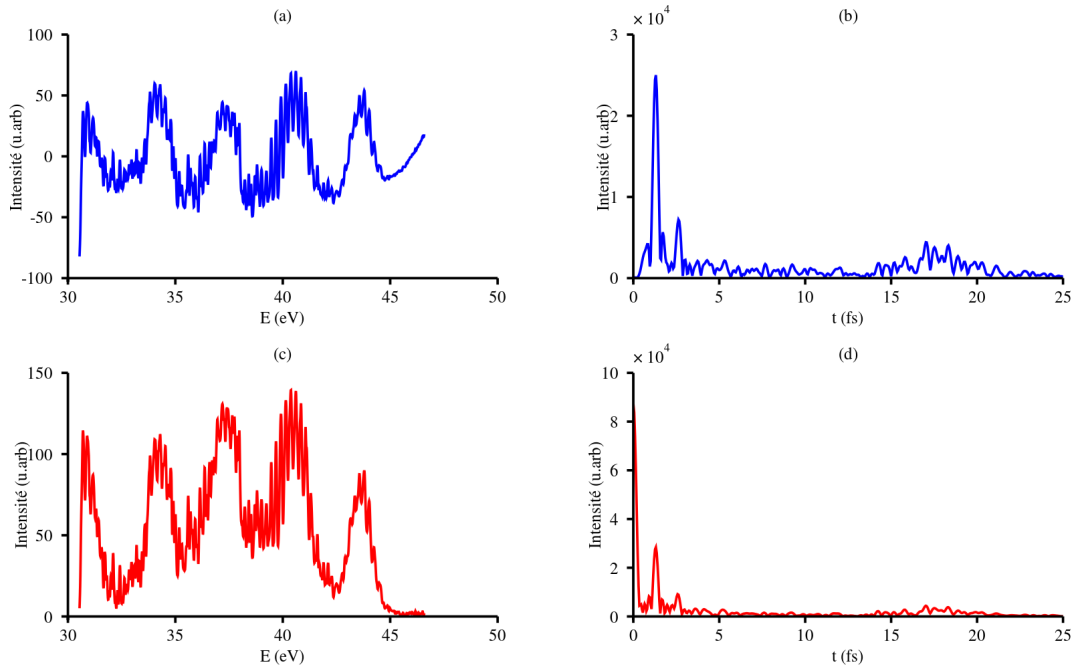


FIGURE 5.31 – Spectres et transformées de Fourier pour $P_{He} = 16$ mbar. (a) spectre sans la composante continue; (b) transformée de Fourier correspondante; (c) spectre brut; (d) transformée de Fourier du spectre brut.

peut supposer que les cannelures fines sont due aux interférences entre le centre et les bords du faisceau qui émettent à des instant différents. Ces cannelures traduisent donc la durée des impulsions génératrices, cependant, le délai retrouvé est influencé par la différence de phase atomique entre les différentes zones d'où les harmoniques sont émises.

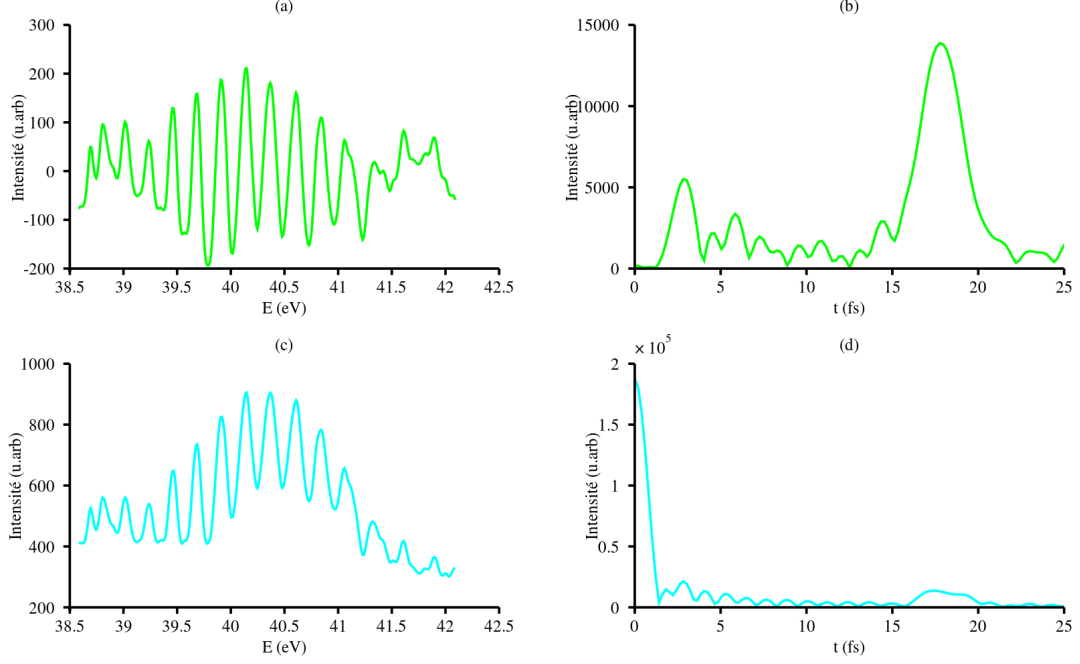


FIGURE 5.32 – Profil spectral de l’harmonique 25 et transformées de Fourier pour $P_{He} = 16$ mbar. (a) spectre sans la composante continue; (b) transformée de Fourier correspondante; (c) spectre brut; (d) transformée de Fourier du spectre brut.

5.5 Conclusion sur la post compression par ionisation

La post compression par ionisation a fait l’objet d’un travail qui s’est échelonné sur toute la durée de ma thèse. La première année, nous avons pu démontrer la faisabilité de cette technique en recompressant une fraction de l’énergie à l’air. Nous avons obtenu des impulsions de 11.4 fs avec une énergie totale en sortie dans le mode EH_{11} de 13.7 mJ. Ces résultats ont été publiés dans Optics Letters ([Dutin 10]). Ces travaux expérimentaux ont ensuite été repris durant ma troisième année de thèse, afin de recomprimer la totalité de l’énergie en sortie de capillaire. Les résultats obtenus lors de la première campagne ont pu être améliorés à cette occasion. Nous avons obtenu des impulsions sub-10 fs pour des énergies en sortie de capillaire de 15 mJ. Ces améliorations ont été possibles grâce à un travail en amont de l’expérience, sur le compresseur sous vide, et une étude approfondie du couplage dans le capillaire. Ceci a également permis d’obtenir de très bonne stabilité

en terme de durée et d'énergie en sortie de capillaire. L'étape de recompression sous vide a ensuite pu être réalisée avec succès : nous avons obtenu des impulsions sub-10 fs avec des énergies de 13 mJ. Ces impulsions ont ensuite été utilisées pour générer des harmoniques, ce qui est déjà un résultat en soi. Les harmoniques obtenues sont très larges spectralement, et même se recouvrent dans certaines conditions ; ce qui produit un spectre continu, avec des figures d'interférences très riches en information, mais difficiles à interpréter. Ces spectres quasi continus semblent néanmoins être la signature de l'émission localement d'une impulsion attoseconde isolée qui interfère avec les émissions plus longues de l'ensemble du faisceau. Les impulsions, grâce à leur durée courte et leur intensité importante, ionisent le milieu très rapidement. L'émission XUV peut alors être confinée localement par déplétion du milieu générateur. De plus les conditions d'accord de phase évoluent alors également très rapidement, et la génération d'harmonique peut alors être confinée (éventuellement plus fortement que par déplétion selon les conditions de génération) dans un laps de temps très court où l'accord de phase est réalisé. On parle alors d'accord de phase transitoire ([Strelkov 08, Mével 00]), ou de *Ionization gating* ([Pfeifer 07, Jullien 08]). La technique de mise en forme spatiale présentée au chapitre 4, devrait alors permettre d'obtenir ces conditions de génération dans un large volume, et ainsi produire une impulsion attoseconde isolée observable sans la contrainte de stabilisation de la phase ([Strelkov 08]).

Il s'agit là des premiers résultats de la génération d'harmoniques avec les impulsions post comprimées, et d'autres études seront nécessaires pour bien comprendre et maîtriser le processus. Notamment, la compensation du *chirp* pourra être améliorée en installant des lames de silice amovibles avant les miroirs *chirpés* (où l'impulsion est étirée, et l'intensité est plus faible). La compensation de la dispersion du troisième ordre pourrait également permettre d'obtenir des impulsions plus courtes et des profils temporels plus propres.

La technique de post compression peut également être améliorée en terme d'énergie en sortie de capillaire et de durée en utilisant des espèces ioniques (I_p plus élevé) pour l'élargissement spectral ou en introduisant un gradient de pression dans le capillaire. Mais les énergies auxquelles cette technique donne accès (≈ 13 mJ pour des durée de 10 fs) sont déjà très élevées par rapport aux standards de la post compression (quelques millijoules). Les impulsions en sortie du capillaire peuvent atteindre 1.3 TW, ce qui est à notre connaissance le record en terme de puissance crête d'une impulsion post comprimée. Nous avons montré que la technique était utilisable pour la génération d'harmoniques, mais elle pourrait servir pour d'autres applications. Elle fournit donc une source alternative aux OPCPA dans le domaine térawatt sub-10 fs. De plus, elle permet d'être accordable en durée, et en longueur d'onde, mais avant tout elle fournit une source unique et fiable pour la génération d'harmoniques, et ouvre ainsi d'intéressantes perspectives.

Chapitre 6

Mesure de la phase spectrale et caractérisation du profil temporel des impulsions attosecondes

Nous avons vu dans le chapitre précédent que l'analyse des spectres harmoniques n'était pas suffisante pour caractériser les impulsions attosecondes obtenues. Il manque l'information sur la phase spectrale qui détermine le profil temporel des impulsions, et permet de retrouver leur durée. Cette phase spectrale peut être déterminée par la méthode RABBITT (*Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions*) implémentée pour la première fois par Paul *et al.* ([Paul 01]). Cette méthode permet de mesurer les phases relatives entre les harmoniques, et ainsi de reconstruire le profil temporel des impulsions attosecondes. Nous avons donc développé un interféromètre IR-XUV dans ce but d'accéder à cette information sur les phases spectrales.

6.1 Dispositif expérimental : Interféromètre IR-XUV

Le schéma de principe de l'interféromètre est présenté sur la figure 6.1. L'originalité de ce montage réside dans l'utilisation de séparatrices dichroïques IR-XUV qui procurent une réflectivité efficace même pour des énergies de photons élevées (~ 100 eV). Ces séparatrices sont des lames de silice fondue revêtues d'un coating en Nb_2O_5 de 50 nm. Elles sont utilisées à un angle de rasance de 20° , ce qui permet pour une polarisation S de réfléchir 45% du faisceau XUV dans une gamme spectrale de 30 à 100 eV.

Le faisceau IR, et le faisceau XUV copropageant arrivent sur la première lame dichroïque. Le faisceau XUV est donc réfléchi, et 50% du faisceau IR est transmis au travers de la

lame. Un filtre métallique est placé sur le trajet du faisceau XUV pour s'affranchir de l'IR résiduel. Un miroir sous un angle d'incidence de 50° est utilisé pour renvoyer le faisceau XUV vers la deuxième lame dichroïque. Ce miroir peut être soit en or, soit un multi-couches selon les énergies de photons utilisées. Une fois séparé du faisceau XUV, le faisceau IR est clippé par un iris réglable sous vide afin d'ajuster son énergie. Il passe ensuite par la ligne à retard qui est contrôlée par un cristal piézoélectrique. Le faisceau XUV et le faisceau IR se recombinaient ensuite sur une deuxième lame dichroïque.

La figure 6.2 montre la photo de l'interféromètre IR-XUV qui est remarquablement compact. Il permet en outre de contrôler finement le délai entre les deux faisceaux qui sont ensuite utilisés pour ioniser un gaz, et l'analyse des photoélectrons est faite au moyen d'un spectromètre à temps de vol.

A l'occasion de la campagne RABBITT, la bouteille magnétique du groupe harmonique a donc été installée dans la salle Eclipse 2 pour détecter les spectres de photoélectrons. La figure 6.3 propose une vue d'ensemble du dispositif expérimental. Après leur recombinaison, les faisceaux XUV et IR sont focalisés par un miroir torique en platine, et redirigés vers la zone sensible de la bouteille magnétique par un miroir plan en or. Les angles d'incidence sur ces deux miroirs sont de 85° , ce qui garanti une bonne réflectivité ($\approx 80\%$) même pour des énergies de photons élevées. Le miroir plan est réglable sous vide, ce qui permet d'optimiser le signal de photoélectrons en ajustant la position du foyer dans la bouteille magnétique.

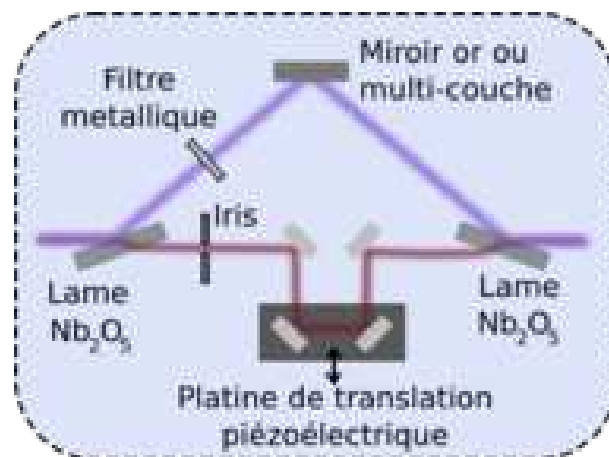


FIGURE 6.1 – Schéma de principe de l'interféromètre IR-XUV pour la caractérisation des phases relatives des harmoniques et du profil temporel des impulsions attosecondes.

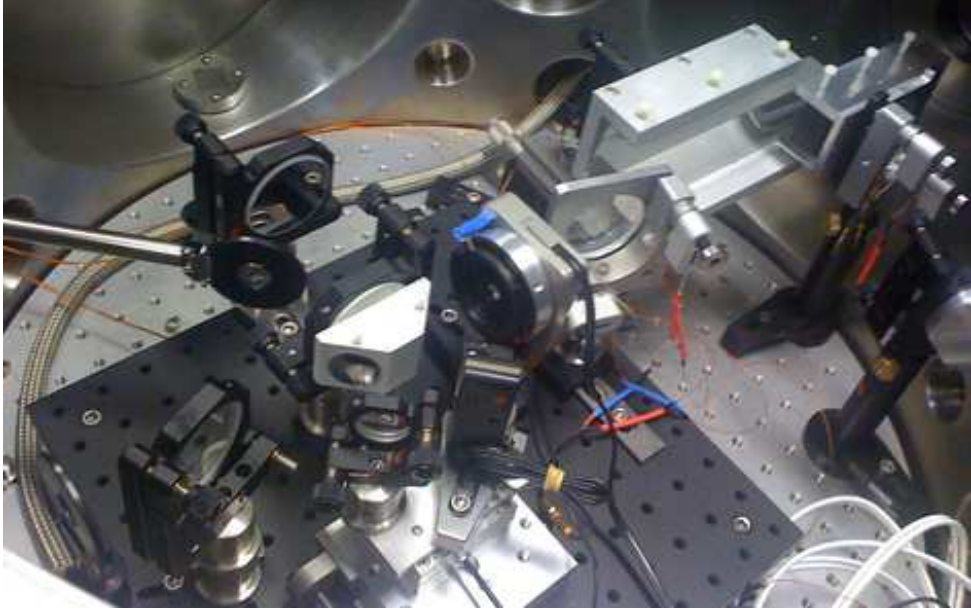


FIGURE 6.2 – Photo de l'interféromètre IR-XUV pour la caractérisation des phases relatives des harmoniques et du profil temporel des impulsions attosecondes.

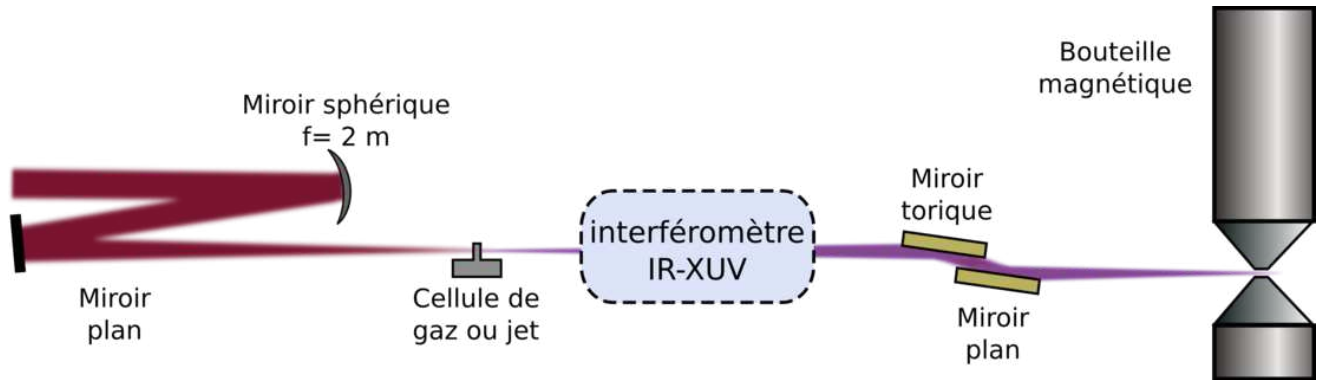


FIGURE 6.3 – Schéma d'ensemble du dispositif expérimental pour les mesures RABBITT.

6.2 Méthode RABBITT : *Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transitions*

6.2.1 Principe

Cette technique est basée sur l'ionisation à 2 photons et 2 couleurs ([Véniard 96]).

Lorsque l'on soumet un atome à un rayonnement XUV de fréquence ν , il peut être ionisé en émettant un électron d'énergie $E = h\nu - I_p$ (I_p potentiel d'ionisation). En faisant

interagir un milieu gazeux atomique avec des harmoniques d'ordre élevé, on doit obtenir des photoélectrons dont le spectre reflète le spectre des harmoniques d'énergies supérieures au potentiel d'ionisation.

Si l'on superpose un faisceau infrarouge au faisceau XUV, il est possible d'obtenir des transitions non linéaires à deux photons et deux couleurs : absorption d'un photon XUV et absorption simultanée d'un photon infrarouge ou absorption d'un photon XUV et émission stimulée simultanée d'un photon infrarouge. Pour des mesures RABBITT, on utilise un faisceau d'habillage de même longueur d'onde que le faisceau de génération, et en phase avec ce dernier. Expérimentalement, ceci est réalisé grâce à l'interféromètre IR-XUV présenté à la section précédente, dans notre cas on prélève une fraction du faisceau IR après le génération. L'éclairement du faisceau d'habillage est choisi (au moyen de l'iris réglable) de telle sorte qu'il n'y ait ni ionisation du milieu par absorption multiple de photons infrarouges, ni transitions d'ordres supérieurs (absorption d'un photon XUV et émission/absorption de plusieurs photons infrarouges). Cette condition est réalisée en choisissant des éclairements IR au foyer inférieurs à $\approx 10^{12} \text{ W/cm}^2$.

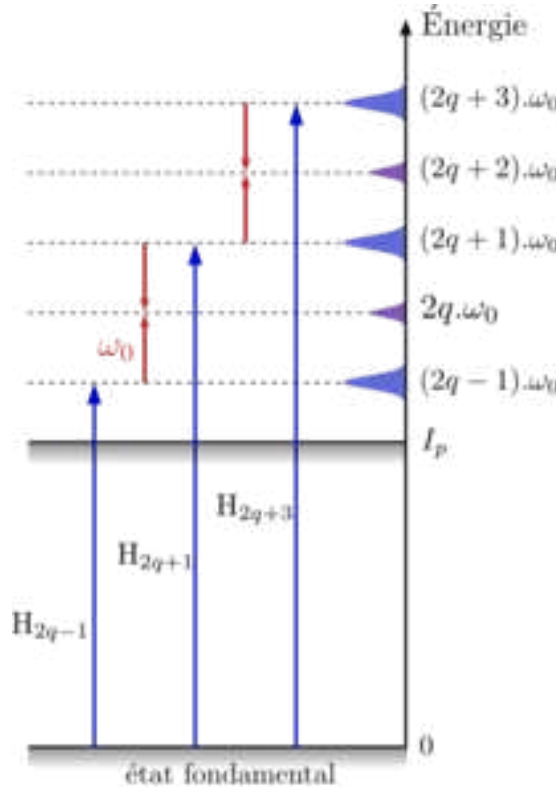


FIGURE 6.4 – Spectre de photoélectrons obtenu en présence d'harmoniques d'ordre élevé et d'un champ d'habillage infrarouge

Le spectre de photoélectrons (voir figure 6.4) présente alors des pics qui reflètent l'absorption des harmoniques impaires (transition à 1 photon, en bleu), entre lesquelles sont intercalés des pics correspondant aux bandes latérales ou *sidebands*. Ces *sidebands* (en mauve sur la figure) proviennent des transitions à deux photons deux couleurs, et ont donc des énergies correspondant aux harmoniques paires du fondamental (absorption d'une harmonique impaire et émission/absorption d'un photon fondamental).

La figure 6.4 montre qu'il y a deux transitions permettant d'obtenir des photoélectrons d'énergie $2q\omega_0$:

- absorption de l'harmonique $2q - 1$ et absorption d'un photon infrarouge
- absorption de l'harmonique $2q + 1$ et émission d'un photon infrarouge

Ces deux chemins quantiques mènent au même état final et vont interférer. On fait l'hypothèse pour cette méthode que la phase individuelle d'une harmonique est constante sur sa largeur spectrale. Une harmonique d'ordre $2q + 1$ est donc caractérisée par sa phase φ_{2q+1} . Véniard *et al.* ([Véniard 96]) ont montré que l'intensité du *sideband* $2q$ pouvait s'écrire sous la forme :

$$I_{2q} = I_{2q}^0 \cos \left(\underbrace{2\varphi_{IR}}_{\text{Habillage}} + \underbrace{\varphi(\omega_{2q+1}) - \varphi(\omega_{2q-1})}_{\text{Harmoniques}} + \underbrace{\theta_{2q+1} - \theta_{2q-1}}_{\text{Détection}} \right) \quad (6.1)$$

Ce terme contient différentes informations :

- un terme relatif au champ d'habillage φ_{IR} correspondant à la phase du rayonnement infrarouge
- un terme relatif au train d'impulsions attosecondes $\varphi(\omega_{2q+1}) - \varphi(\omega_{2q-1}) = \Delta\varphi_{2q}$ correspondant à la différence de phase spectrale entre les harmoniques $2q+1$ et $2q-1$
- un terme relatif au milieu de détection $\theta_{2q+1} - \theta_{2q-1} = \Delta\theta_{2q}^{at}$ correspondant à la différence de phase lors de la photoionisation à deux photons selon les différents chemins quantiques.

Dans les atomes, le terme de phase atomique $\theta_{2q+1}^{at} - \theta_{2q-1}^{at} = \Delta\theta_{2q}^{at}$ est calculé numériquement en résolvant l'équation de Schrödinger dépendante du temps (TDSE, *Time-Dependent Schrödinger Equation*) [Toma 02, Mauritsson 05]. Ce terme est généralement faible et peut souvent être négligé dans les atomes, loin du seuil d'ionisation.

Il est possible de contrôler la phase φ_{IR} en introduisant un délai réglable τ entre l'infrarouge et les harmoniques. On a alors $\varphi_{IR} = \omega_0\tau + \varphi_0$ avec φ_0 une phase de référence qui n'intervient pas dans les conclusions des calculs. Le scan du délai τ via la ligne à retard, fera apparaître les oscillations des *sidebands*, avec une pulsation $2\omega_0$ et une phase $\varphi(\omega_{2q+1}) - \varphi(\omega_{2q-1}) + \Delta\theta_{2q}^{atom}$. La connaissance des termes de phase atomique permet

d'avoir accès à $\Delta\varphi_{2q} = \varphi(\omega_{2q+1}) - \varphi(\omega_{2q-1})$, et donc au temps relatif d'émission entre les harmoniques d'ordre $2q + 1$ et $2q - 1$:

$$t_e(\omega_{2q}) = \frac{d\varphi}{d\omega} \approx \frac{\Delta\varphi_{2q}}{2\omega_0} \quad (6.2)$$

où ω_0 est la pulsation du fondamental

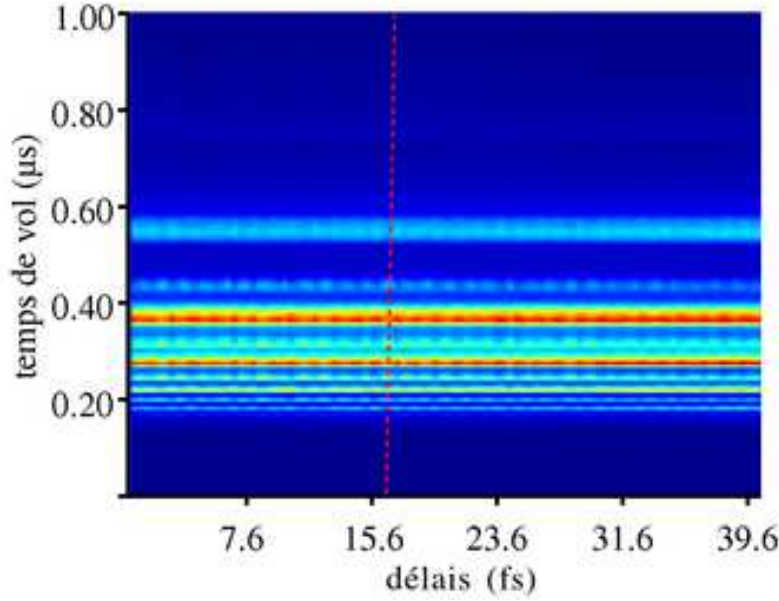


FIGURE 6.5 – Exemple de trace RABBITT obtenue avec notre dispositif (génération et détection dans l'argon). On observe un décalage de la phase des oscillations des *sidebands* (la ligne pointillée rouge repère la position des maxima). Le délai et le temps de vol sont définis à une constante près.

La figure 6.5 montre un exemple de trace RABBITT caractérisant un train d'impulsions attosecondes généré dans l'argon et focalisé dans un autre jet d'argon. Les oscillations des *sidebands* en fonction du délai τ sont clairement visibles, avec une période de $T_0/2 \approx 1.33$ fs. Une ligne rouge est tracée pour repérer la position des maxima de ces oscillations pour chaque ordre de *sidebands*. Cette ligne est oblique, ce qui indique que contrairement au cas d'impulsions limitées par transformée de Fourier ($t_e \propto \Delta\varphi = c^{te}$), les harmoniques, et donc les oscillations des *sidebands* ne sont pas en phase. À partir de la valeur de la pente de cette ligne (ou courbe s'il y a un *chirp* d'ordre 3), on peut remonter à la phase spectrale des différentes composantes, et ainsi reconstruire le profil temporel des impulsions attosecondes. Cependant, cette méthode reconstruit le profil temporel moyen d'une impulsion du train d'impulsions attosecondes, et ne permet pas de connaître l'enveloppe de ce train. La caractérisation complète d'un train d'impulsions attosecondes requiert l'utilisation de méthodes plus puissantes ([Mairesse 05a]).

6.2.2 Mesures expérimentales

6.2.2.1 Influence de la mise en forme spatiale sur la phase spectrale

Nous avons observé précédemment dans le chapitre 4, que le spectre d'une harmonique individuelle était élargi, lorsque la génération a lieu avec le faisceau flat top (cf. 4.3.1). Cependant, cela ne suffit pas à conclure qu'il y a un confinement temporel de l'émission XUV. Pour pouvoir tirer des conclusions, une caractérisation complète du train d'impulsions attosecondes est requise.

Cependant, nous allons d'abord nous intéresser à l'influence de la mise en forme spatiale sur les phases relatives entre les harmoniques qui peut être étudiée en faisant des scans sur des délais plus courts (5 - 7 fs, pour un temps total d'acquisition à 10 Hz de 10 minutes).

Le dispositif expérimental présenté en amont de ce chapitre a pu être couplé avec la technique de mise en forme spatiale afin de retrouver la phase spectrale dans ces conditions de génération. La figure 6.6 montre une trace RABBITT obtenue en générant les harmoniques avec le faisceau flat top ($\phi_{iris} = 26$ mm, $E_{iris} = 40$ mJ). L'argon est utilisé pour la génération d'harmonique et pour la détection. Le milieu gazeux est produit par le jet de gaz de diamètre 250 μ m, comme c'est le cas pour toutes les études sur la mise en forme spatiale.

Obtenir cette trace RABBITT est déjà un résultat en soit, cela confirme que la technique de mise en forme spatiale produit des faisceaux XUV utilisables pour la métrologie attoseconde. On observe clairement les *sidebands* osciller, ainsi que les harmoniques, qui sont en opposition de phase par rapport aux *sidebands*. Les harmoniques sont dépletées par la présence de *sidebands*, et cette dépletion est maximale lorsque l'interférence entre les deux chemins quantiques est constructive. Ceci indique que l'intensité du faisceau d'habillage est un peu trop forte.

La figure 6.7 présente une trace RABBITT obtenue dans les mêmes conditions que 6.6 sauf pour le diamètre d'iris ($\phi_{iris} = 10.5$ mm). Les harmoniques sont donc générées avec le faisceau gaussien tronqué. Les oscillations sont moins claires, probablement à cause d'une intensité du faisceau d'habillage plus faible, mais on peut les distinguer, et une analyse par transformée de Fourier permet de retrouver leurs phases.

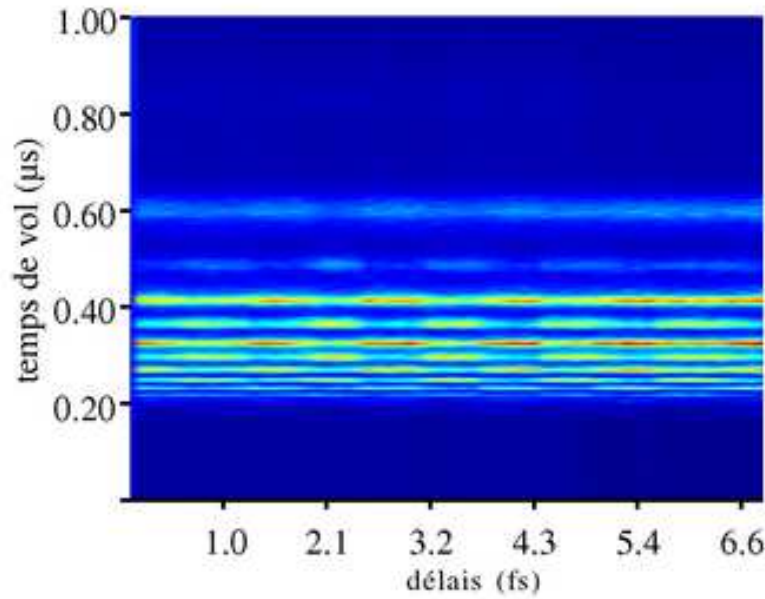


FIGURE 6.6 – Trace RABBITT obtenue en générant les harmoniques dans l’argon, avec le faisceau mis en forme ($\phi_{iris} = 26$ mm, $E_{iris} = 40$ mJ) et détection dans l’argon. Le milieu gazeux est produit par le jet de gaz de diamètre 250 μ m, avec 5 Bar de pression amont. Harmoniques détectées : H13 à H25 ; SB14 à SB24). Chaque spectre de photoélectron est accumulé sur 100 tirs. Le délai scanné est de 6.6 fs avec une résolution de 111 as. Le temps d’acquisition total est de 10 minutes à 10 Hz.

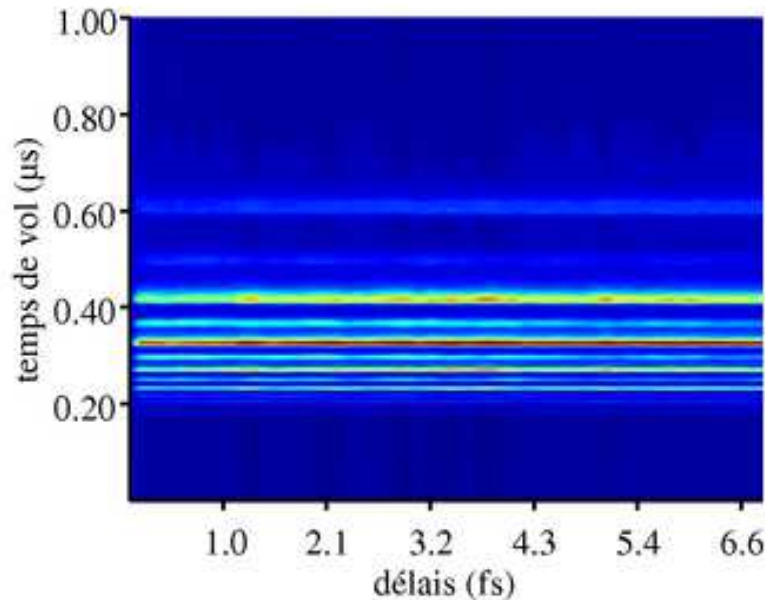


FIGURE 6.7 – Trace RABBITT obtenue en générant les harmoniques dans l’argon, avec le faisceau gaussien tronqué ($\phi_{iris} = 10.5$ mm, $E_{iris} = 40$ mJ) et détection dans l’argon. Les paramètres expérimentaux et les paramètres de détection sont les mêmes que pour la trace 6.6, sauf pour le diamètre d’iris. Harmoniques détectées : H13 à H25 ; SB14 à SB24).

La figure 6.8 montre les temps d'émission obtenus à partir de ces deux traces RABBITT. En bleu, il s'agit du cas où les harmoniques sont générées avec le faisceau flat top, et en rouge avec le faisceau gaussien tronqué. On constate donc que le temps d'émission dans le cas flat top est compris entre 0 et 150 as, et entre 0 et 450 as pour le faisceau gaussien. Les impulsions du train sont donc plus courtes dans le cas de la génération avec le faisceau mis en forme. Ce confinement peut être imputé directement au profil d'intensité, mais également à l'augmentation d'intensité dans le milieu ([Mairesse 03]). En effet, pour $\phi_{iris} = 26$ mm, l'intensité au foyer est de $5 \times 10^{15} W/cm^2$ contre $1.2 \times 10^{15} W/cm^2$ pour $\phi_{iris} = 10.5$ mm (il s'agit d'une estimation au centre du faisceau). Il y a certainement une contribution de chacun des deux phénomènes. En tous cas, l'approximation qui associe une phase constante à chaque harmonique est certainement plus valable avec le faisceau flat top qu'avec le faisceau gaussien. En effet, le phase atomique dépend de l'intensité ($\varphi_{at} = \alpha \frac{dI}{dr}$), et pour un faisceau gaussien la phase constante φ_q de l'harmonique q déterminée par la mesure RABBITT est la valeur moyenne de la phase intégrée sur tout le profil du faisceau. Avec le profil flat top, la phase atomique est constante dans le large volume où l'intensité est constante (et élevée), et la valeur moyenne est plus proche de la réalité physique.

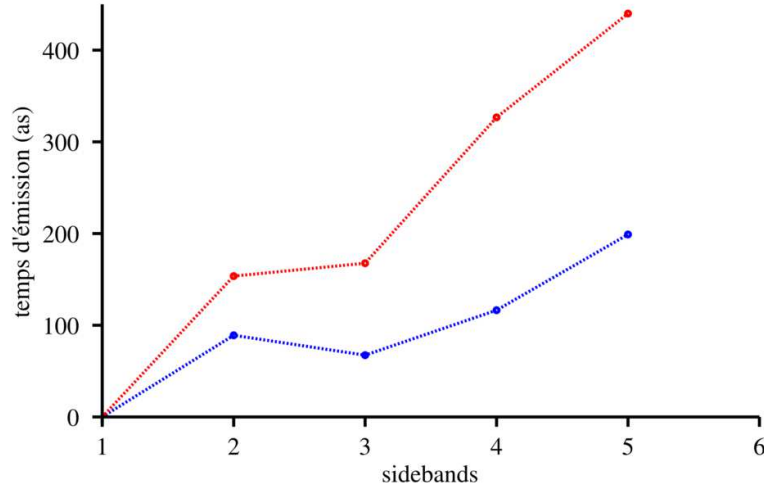


FIGURE 6.8 – Temps d'émission extraits de la trace RABBITT de la figure 6.6 obtenue avec un faisceau Flat top (en bleu), et temps d'émission obtenus avec le faisceau gaussien (trace de la figure 6.7) dans les mêmes conditions de génération et détection (en rouge). Le *sidebands* $n^\circ 1$ correspond à l'ordre 14 et le $n^\circ 5$ à 24.

6.2.2.2 Trace FROG CRAB

Avec ce dispositif, il est également possible de faire des caractérisations plus complètes du train d'impulsions attosecondes. Pour ce faire, il est nécessaire d'effectuer un scan du

délai sur l'ensemble de l'enveloppe d'intercorrélacion de l'IR et de l'XUV avec une résolution attoseconde. À partir de cette trace, l'algorithme itératif PCGPA ([Kane 99]) permet de reconstruire le train d'impulsions attosecondes de façon complète (profil temporel de chaque impulsion du train, et enveloppe). Cette méthode se dénomme FROG CRAB (*Frequency Resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Burst*), et a été développée par Y. Mairesse et F. Quéré ([Mairesse 05a]).

Nous avons obtenu une trace FROG CRAB en générant les harmoniques avec le faisceau mis en forme ($\phi_{iris} = 26$ mm, $E_{iris} = 40$ mJ). Cette dernière est présentée sur la figure 6.9. On distingue bien les oscillations des *sidebands*, ainsi que l'enveloppe de l'intercorrélacion IR-XUV. La durée du scan pour obtenir cette trace est de près de deux heures, sa qualité témoigne de la stabilité globale de l'ensemble du système (interféromètre, laser, source XUV).

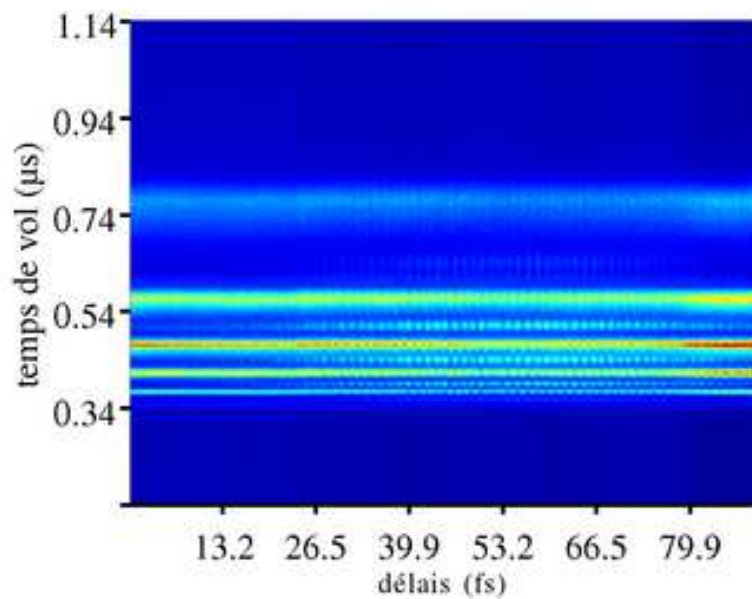


FIGURE 6.9 – Trace FROG CRAB (génération et détection dans l'argon). Les oscillations des *sidebands* sont clairement visibles ainsi que l'enveloppe de l'intercorrélacion entre l'XUV et l'infrarouge. la trace est obtenue en scannant un délai de 90 fs avec des pas de 133 as. Chaque spectre de photoélectrons est accumulé sur 100 tirs. À 10 Hz, il faut donc 1h52 pour acquérir cette trace.

Étant limité par la résolution du spectromètre à temps de vol, nous n'avons pas pu effectuer la reconstruction via l'algorithme. En effet, la largeur des pics de photoélectrons détermine (entre autres) le résultat final de l'algorithme. Si cette largeur est artificiellement augmentée par la résolution en énergie du spectromètre, l'algorithme ne converge pas ou donne des résultats erronés. Pour améliorer la résolution, il est possible d'appliquer un potentiel retard pour ralentir les photoélectrons, et étaler le spectre sur un plus grand

intervalle de temps de vol. Néanmoins, dans ce cas l'efficacité de détection est diminuée, et il est plus difficile d'obtenir un bon rapport signal sur bruit et une trace FROG CRAB bien définie, et il faudrait des temps d'acquisition encore plus longs.

6.3 Application : caractérisation d'optiques XUV

Grâce à ce dispositif expérimental, nous avons pu également caractériser la phase induite par un miroir multi-couches XUV, dans le cadre d'une collaboration Laserlab. Le miroir en question est conçu pour réfléchir efficacement dans une gamme spectrale comprise entre 80 et 93 eV. Il a été fabriqué au *FOM Institute for Plasma Physics Rijnhuizen*. Il est constitué de 7 bi-couches de molybdène-silicium déposées sur un substrat de silicium finement poli (rugosité de la surface < 0.1 nm). Les bi-couches ont une épaisseur de 12.64 nm, avec 5.06 nm pour Mo (0.4), et 7.58 pour Si (0.6). Cette conception permet d'obtenir des performances maximales en polarisation S pour des angles d'environ 50° . La réflectivité est alors élevée, mais seulement entre 80 - 93 eV (sélection spectrale), et la GDD induite est sensée être faible pour garantir des impulsions attosecondes courtes.

Dans l'interféromètre, le miroir en or sur la ligne XUV est remplacé par le miroir multi-couches (ML), l'angle d'incidence est alors de 51° . Pour générer les harmoniques dans la gamme spectrale 80 - 93 eV, on utilise du néon, et le jet de gaz est remplacé par une cellule de 8 mm de long. Les harmoniques sont générées avec un diamètre d'iris de 13 mm, et une énergie sur cible de 21 mJ. La pression de gaz injectée dans la cellule est de 85 mbar. Un filtre de 200 nm de zirconium est installé sur le trajet du faisceau XUV pour s'affranchir de l'infrarouge réfléchi sur la première lame Nb_2O_5 , et pour filtrer les harmoniques d'ordre les plus bas. Le néon est également utilisé pour la détection, et un potentiel retard de 50 V est appliqué afin de distinguer les harmoniques les plus élevées (H49 - H59, SB48 - SB60, 73 à 92 eV).

Nous avons pu réaliser dans ces conditions des traces RABBITT telles que celle qui est présentée sur la figure 6.10. L'analyse de cette trace permet de retrouver la phase des *sidebands* (figure 6.12.a). Les barres d'erreur sont évaluées en comparant trois mesures consécutives dans les mêmes conditions. Le signal était trop bruité pour extraire la phase des *sidebands* d'énergies supérieures à 90 eV. Il aurait fallu pour cela des temps d'acquisition plus longs (les scans ont déjà une durée d'une heure), et un potentiel retard plus élevé.

La phase relative entre les différentes harmoniques est liée au retard de groupe par la relation 6.2, on note ici t_q le temps d'émission relatif entre l'harmonique q et l'harmonique

$q - 2$ (retard de groupe) :

$$t_q \approx \frac{\Delta\varphi_q}{2\omega_0} \quad (6.3)$$

Le retard de groupe peut être décomposé de la façon suivante :

$$t_q = t_q^0 + t_q^{Zr} + t_q^{ML} \quad (6.4)$$

où t_q^0 est le temps d'émission à la sortie du milieu générateur [Mairesse 03] ; t_q^{Zr} est le retard introduit par le filtre en zirconium, qui peut être calculé, et s'élève à quelques dizaines d'attosecondes ; t_q^{ML} est le retard de groupe induit par la réflexion sur le miroir multi-couches que nous cherchons à caractériser.

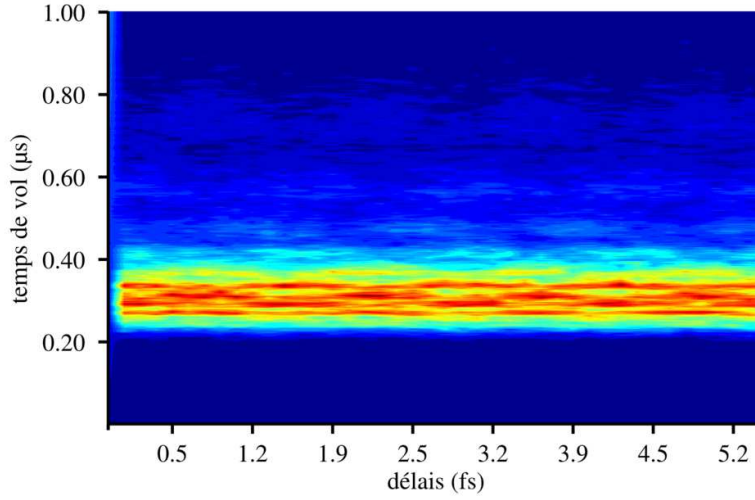


FIGURE 6.10 – Trace RABBITT obtenu en générant les harmoniques dans le néon, avec un faisceau gaussien tronqué ($\phi_{iris} = 13$ mm, $E_{iris} = 40$ mJ, soit 21 mJ sur cible), et le miroir multi-couches. Le milieu gazeux est confiné dans une cellule de 8 mm de long avec une pression en amont de 85 mbar. Le néon est également utilisé pour la détection, et un potentiel retard de 50 V est appliqué afin de distinguer les harmoniques les plus élevées (H49 - H59, SB48 - SB60, 73 à 92 eV). Un filtre de 200 nm de zirconium est installé sur le trajet du faisceau XUV.

Pour pouvoir déterminer ce dernier terme, il est nécessaire de connaître le temps d'émission intrinsèque des harmoniques t_q^0 . Nous avons donc remplacé le miroir multi-couches par le miroir or dont le déphasage introduit lors de la réflexion peut être calculé à partir des indices de réfraction complexes. Cependant, la réflectivité du miroir en or dans la gamme qui nous intéresse est trop faible pour pouvoir conduire nos mesures. Pour pouvoir extrapoler, nous avons considéré le chirp attoseconde linéaire [Mairesse 03]. Nous avons donc remplacé le filtre en zirconium par un filtre en aluminium de 100 nm d'épaisseur, et effectué les mesure RABBITT pour des énergies de photon comprises entre 34 et 50 eV pour les mêmes conditions de génération. La trace RABBITT obtenue est

présentée sur la figure 6.11.

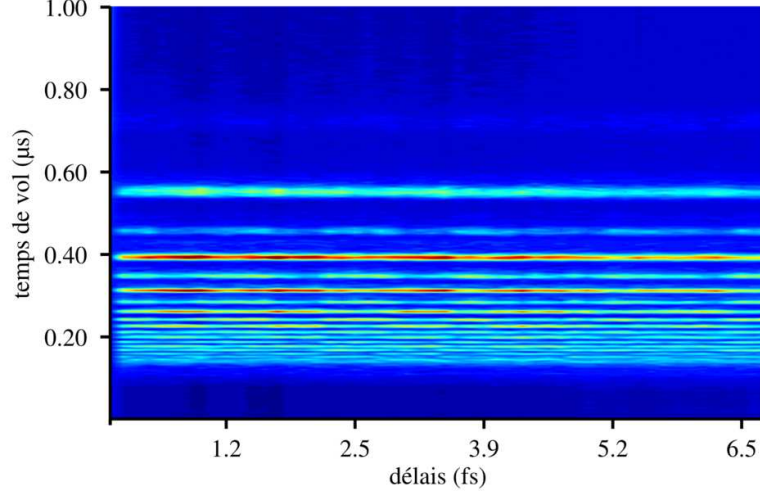


FIGURE 6.11 – Trace RABBITT obtenue en générant les harmoniques dans le néon, avec un faisceau gaussien tronqué ($\phi_{iris} = 13$ mm, $E_{iris} = 40$ mJ, soit 21 mJ sur cible), et le miroir or. Le milieu gazeux est confiné dans une cellule de 8 mm de long avec une pression en amont de 85 mbar. Le néon est également utilisé pour la détection, pas de potentiel retard, les harmoniques observées s'étendent de (H17 - H33, SB16 - SB34, 24.5 à 52 eV). Un filtre de 100 nm de aluminium est installé sur le trajet du faisceau XUV.

Le temps d'émission des harmoniques est alors donné par :

$$t_q^0 = t_q - t_q^{Al} - t_q^{Au} \quad (6.5)$$

où t_q^{Al} est le retard de groupe introduit par la traversée du filtre aluminium, et t_q^{Au} le retard induit par la réflexion sur le miroir en or. Ces deux quantités peuvent être calculées, et sont de l'ordre de la dizaine d'attosecondes.

On obtient alors le temps d'émission des harmoniques pour les énergies de photon entre 34 et 50 eV. Ces temps d'émission sont fittés linéairement et la pente la droite (le chirp attoseconde) est ici de 10.3 ± 0.4 as/eV, ce qui est en bon accord avec les valeurs de la littérature pour ces intensités laser ([Mairesse 03]). Le comportement linéaire des temps d'émission des harmoniques dans le plateau est bien connu et bien caractérisé pour les gammes spectrales considérées ici. Dans nos conditions de génération ($I = 8 \times 10^{14}$ W/cm²), le plateau s'étend au-delà de 92 eV, nous pouvons donc extrapoler les temps d'émission à partir du fit linéaire pour les harmoniques qui nous intéressent. Les temps d'émission et le fit linéaire étendu jusqu'à 90 eV sont représentés sur la figure 6.12(b) .

Une fois que t_q^0 est connu dans la gamme spectrale de fonctionnement du miroir multicouches, la valeur de t_q^{ML} pour chaque harmonique vient directement (cf 6.4). Le retard de

groupe introduit par le miroir multi-couches est représenté sur la figure 6.13. Les étoiles avec les barres d'erreurs correspondent aux mesures RABBITT. La ligne continue rouge est également le retard de groupe induit par le miroir ML, mais mesuré avec la méthode TEY (Total Electron Yield). La courbe rouge est incluse dans les barres d'erreur des points RABBITT. La courbe en pointillés est la réflectivité du miroir ML. La dérive de phase introduite est donc très faible dans la zone de fonctionnement du miroir (± 40 as). Par contre au niveau des rebonds de la courbe de réflectivité (à 77 eV et 96 eV) le retard induit est plus important (≈ 500 as). Ce saut de phase est bien retranscrit par la mesure RABBITT.

La méthode TEY communément utilisée sur les synchrotrons, est basée sur la caractérisation de l'onde stationnaire formée dans la structure périodique des multiples couches du miroir lors de l'excitation par la réflexion d'une onde incidente. Le taux total d'électrons mesuré permet de déduire l'intensité de l'onde stationnaire sur la dernière couche du miroir (qui peut émettre des électrons), elle-même reliée au déphasage entre le faisceau incident et le faisceau réfléchi. Ces deux séries de données sont en très bon accord : cette comparaison entre la métrologie attoseconde, et la mesure d'ondes stationnaires permet aux deux techniques de se valider réciproquement. C'est la première fois qu'une telle étude comparative est menée ; ces résultats ont été publiés dans Optics Letters ([Loch 11]).

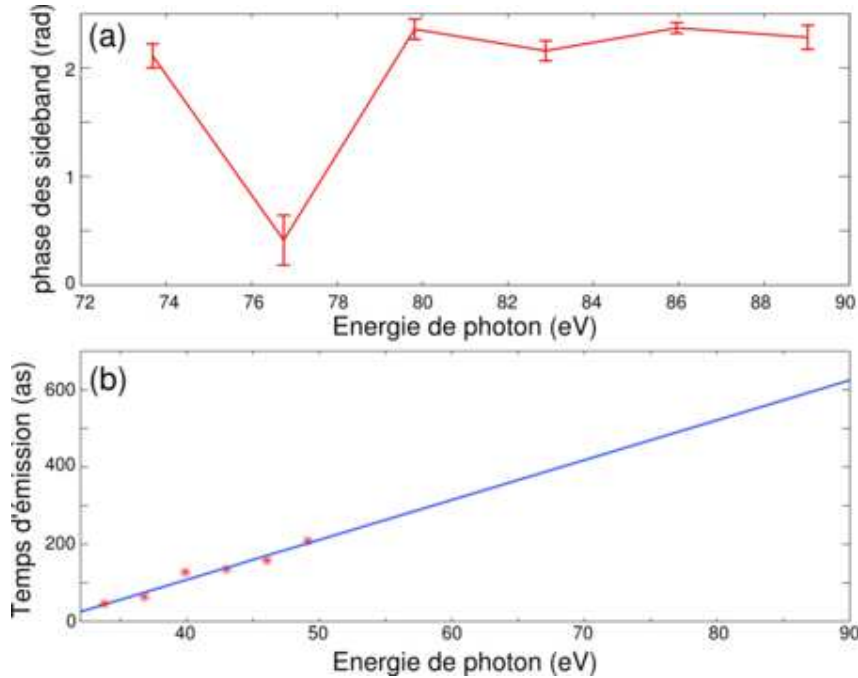


FIGURE 6.12 – Résultats de l'analyse des mesures RABBITT : (a) Phase des *sidebands* mesurée avec le miroir multi-couches et le filtre Zr (trace 6.10). (b) temps d'émission des harmoniques extraits de la mesure de calibration avec le miroir en or, et le filtre Al. La ligne continue bleue est un fit linéaire, qui permet d'extrapoler les temps d'émissions dans la gamme spectrale 70 - 90 eV.

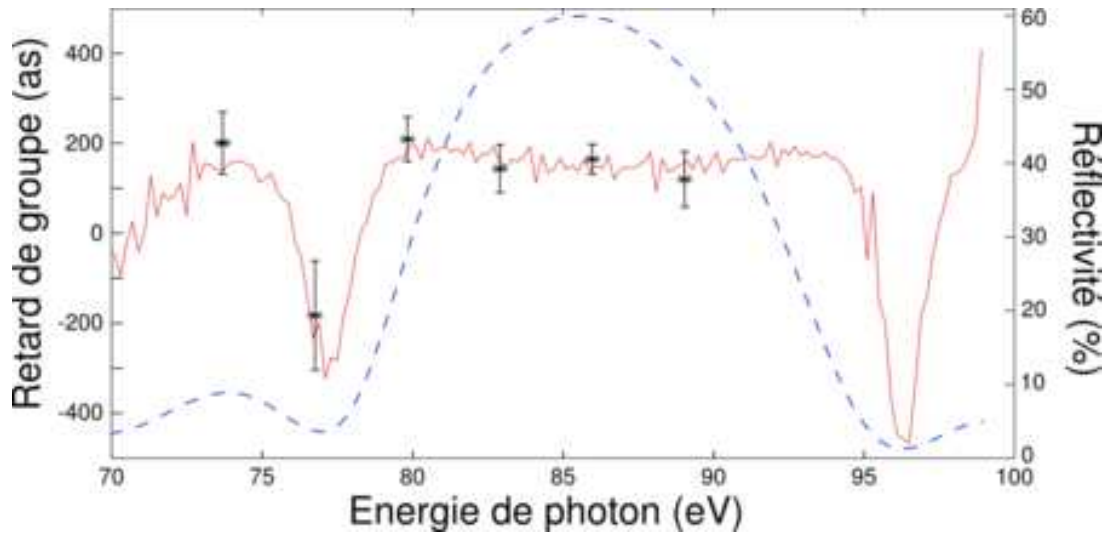


FIGURE 6.13 – Réflectivité du miroir multi-couches (ligne pointillée) et retard de groupe induit par la réflexion sur le miroir, mesurée par la méthode RABBITT (étoiles avec bars d'erreur), et avec la méthode TEY (ligne continue) pour un angle de 51° . Les courbes sont translatées respectivement à gauche, et à droite d'approximativement 1.5 eV pour un angle de 50° , et 52° .

6.4 Conclusion

Le premier aboutissement des campagnes expérimentales sur les mesures RABBITT est avant tout le développement de l'interféromètre, qui présente l'originalité d'utiliser des lames dichroïques IR-XUV en Nb_2O_5 . Cela garantit une bonne réflectivité dans l'XUV même pour les énergies de photon élevées, lorsque le miroir multi-couches est utilisé.

Le dispositif a pu être testé à diverses occasions : nous avons pu obtenir des traces RABBITT avec le faisceau flat top, ce qui à la fois valide la qualité de l'interféromètre, et celle du faisceau XUV produit avec la mise en forme spatiale. Le chirp attoseconde dans le cadre de la génération d'harmonique avec le faisceau mis en forme a donc été caractérisé, et comparé avec un cas de génération classique correspondant. Le chirp attoseconde dans le cas classique est par ailleurs en très bon accord avec les valeurs de la littérature. Cette étude a permis de démontrer que le faisceau flat top produit des impulsions attosecondes plus courtes que dans le cas standard étudié ici. Le dispositif a également été utilisé pour acquérir une trace FROG CRAB dans le cadre de la génération avec le faisceau mis en forme.

Le dispositif ainsi que le flux de photons conséquent de la source harmonique haute énergie, ont permis d'obtenir des traces RABBITT en générant des harmoniques dans le néon ; et la phase des *sidebands* a pu être extraite jusqu'à des énergies de 90 eV. À cette occasion, la source harmonique a pu servir de plate forme d'accueil pour des utilisateurs extérieurs dans le cadre de collaboration Laserlab. Cela confirme que la source, bien que relativement récente (puisque qu'elle a été développée au cours de cette thèse), est suffisamment robuste et fiable pour permettre des expériences sophistiquées. Lors de cette expérience, la source a été utilisée pour l'application à la caractérisation d'optique XUV pour les énergies de photon élevées, et les mesures RABBITT ont été comparées avec la méthode de mesure des ondes stationnaires (TEY). Les excellents résultats obtenus ont fait l'objet d'une publication dans Optics Letters ([[Loch 11](#)]).

PS : La figure [6.14](#) illustre mon sentiment à la fin des deux campagnes expérimentales sur le Rabbitt.



FIGURE 6.14 – Rabbit Don't Come Easy : pochette du 10^{eme} album de l'illustre groupe de heavy metal allemand Helloween.

Conclusion

Avec cette thèse, a débuté au CELIA un nouveau thème de recherche axé sur la génération d’impulsions attosecondes intenses. Et en particulier, le but ultime de ces recherches est de produire des impulsions attosecondes isolées intenses pour accéder à la physique non-linéaire dans l’XUV avec des résolutions attosecondes. Plusieurs étapes doivent être réalisées pour parvenir à ces résultats ambitieux. Au cours de ces trois ans, j’ai pu édifier les trois pierres de base de cette source unique, et démontrer la faisabilité de ce projet. Et ces trois pierres sont : la source harmonique haute énergie, la mise en forme spatiale de faisceaux laser intenses, et la post compression d’impulsions intenses ultra-brèves.

Dans un premier temps, il a donc fallu construire la source harmonique haute énergie et développer les diagnostics pour la caractériser (chapitre 3). Cette source a été développée, utilisée et caractérisée dans des conditions standards (sans mise en forme spatiale, et avec les impulsions de 40 fs). Des flux de photons élevés ont été observés : $> 10^{10}$ photon/tir par harmonique dans l’argon, et environs 5×10^8 photon/tir par harmonique dans le néon. L’effort n’a pas été porté sur l’optimisation de la source dans des conditions standards car le but est de générer le plus de photons XUV possibles dans un laps de temps le plus court possible. Cette optimisation est néanmoins intéressante, et maintenant que la source est fonctionnelle et fiable, elle pourra être réalisée au cours d’une prochaine thèse. Les conditions inhabituelles dans lesquelles nous travaillons (intensité supérieure à l’intensité de saturation) nous ont permis d’observer des phénomènes eux aussi inhabituels. Les harmoniques se dédoublent spatialement et spectralement, ce qui suscite la curiosité. Le dédoublement spatial semble bien s’expliquer (génération à la périphérie du faisceau et accord de phase hors axe ou cohérence spatiale) alors que le dédoublement spectral soulève plus de questions. Si l’apparition de cette “nouvelle famille” d’harmoniques est bien la signature de recollisions multiples, cela signifie que nous avons trouvé des conditions où elles sont observables, et cela présente un intérêt certain pour la physique attoseconde. Mais le principal résultat dans le cadre de cette thèse pour le chapitre 3 est la validation de la source harmonique haute énergie ; c’est la première pierre de l’édifice. Cela permet d’envisager de générer dans des conditions plus complexes, avec un faisceau mis en forme,

ou des impulsions post comprimées.

La deuxième pierre est le développement de la technique de mise en forme spatiale de faisceaux intenses. Cette technique est inspirée des travaux qui ont déjà été mené à Saclay sur la mise en forme spatiale, et du dispositif proposé par V. Strelkov *et al*, [Strelkov 08]. Le principe de la mise en forme est basé sur les interférences entre deux faisceaux déphasés de façon bien définie. Initialement, ce déphasage été introduit par des lames de phases, et contrôlé par la rotation de l'une d'entre elles. Pour adapter la technique à nos conditions d'utilisation (intensité de l'ordre de 10^{12} W/cm^2), et s'affranchir de la contrainte des effets non-linéaires, nous avons développé un dispositif qui s'appuie uniquement sur des réflexions (le *TOP mirror*). Il s'agit donc d'un miroir avec en son centre un disque circulaire d'épaisseur nanométrique qui permet de séparer le faisceau incident en deux faisceaux déphasés de π . Ce dispositif étant statique, nous avons procédé à une série de simulations afin que cette optique soit bien adaptée (taille du disque et déphasage induit) aux caractéristiques de notre laser. L'iris avant le *TOP mirror* permet d'ajuster finement le rapport d'énergie entre les deux faisceaux et ainsi de contrôler la mise en forme spatiale.

Nous avons testé expérimentalement le dispositif sur le faisceau laser Eclipse, et les tests ont été concluants. Nous avons ensuite généré les harmoniques avec le faisceau mis en forme, et obtenus des résultats intéressants, qui ont été publiés dans Optics Letters ([Dubrouil 11]). Le faisceau mis en forme permet d'obtenir des niveaux de signal plus élevés que le cas standard, et peut produire des faisceaux XUV de divergence très faible. La mise en forme spatiale ouvre également des possibilités de contrôle sur le profil des harmoniques, mais avant tout elle est sensée permettre de confiner l'émission XUV. Ce confinement n'a pas été directement observé expérimentalement ; il aurait fallu pour cela une caractérisation complète du train d'impulsions attosecondes (méthode FROG CRAB). Cependant, on a pu vérifier expérimentalement que la technique permet d'uniformiser les conditions de génération (intensité constante dans un large volume) en mesurant la phase moyenne relative entre les harmoniques (voir chapitre 6). Les principaux résultats pour les travaux sur la mise en forme spatiale de faisceaux laser intenses sont le développement du dispositif, et la validation de la technique pour la génération d'harmonique à haute énergie. Elle pourra donc être utilisée ultérieurement avec des impulsions fondamentales ultra-brèves (10 fs) et intenses ($> 1\text{TW}$) pour générer des impulsions attosecondes isolées intenses ($\sim 100 \text{ nJ}$).

C'est là qu'intervient la troisième pierre de l'édifice, la post compression d'impulsions intenses ultra-brèves par ionisation d'un gaz rare. Cette technique originale de post compression utilise l'ionisation pour élargir le spectre de l'impulsion initiale. Elle utilise également la propagation en géométrie guidée dans un capillaire diélectrique creux. Cela

permet à l'impulsion d'interagir avec le gaz sur une longue distance (40 cm) et d'obtenir en sortie des profils spatiaux propres et des élargissements spectraux uniformes. L'impulsion intense (40 fs - 70 mJ) une fois couplée dans le capillaire rempli de gaz (hélium) va le ioniser au cours de sa propagation, et la variation ultra-rapide de l'indice optique au cours du temps (dynamique de la densité électronique) va permettre d'élargir le spectre vers les courtes longueurs d'onde. Ce processus très efficace permet d'obtenir des largeurs spectrales de plus de 150 nm, avec des pressions de l'ordre de la dizaine de millibar. L'utilisation de faibles pressions permet de garder des efficacités de couplage correctes, et des pertes acceptables lors de la propagation dans le capillaire, malgré la présence du gaz. L'énergie dans le mode fondamental en sortie de capillaire est alors de 15 mJ pour des largeurs spectrales supportant des impulsions de 10 fs. Cette valeur est trois fois supérieure au meilleur résultat obtenu jusqu'à maintenant pour des impulsions post comprimées (5 mJ - 5 fs, [Bohman 10]).

Nous avons dans un premier temps recomprimé que 4% de l'impulsion à l'air pour la démonstration de faisabilité, et nous avons obtenu 11.4 fs (mesure FROG) pour une énergie en sortie de capillaire de 13.7 mJ, et ces résultats sont publiés dans Optics Letters ([Dutin 10]). Nous avons ensuite pu améliorer les résultats à l'air (10 fs pour une énergie totale supérieure à 15 mJ) et démontrer une très bonne stabilité de la technique en terme de durée et d'énergie. Puis nous avons recomprimé toute l'énergie sous vide ; nous obtenons alors des impulsions de 1.3 TW (10 fs - 13 mJ), ce qui constitue un record en terme de puissance crête pour une impulsion post comprimée.

Ces impulsions ont ensuite été utilisées pour générer des harmoniques, et des spectres très larges ont été obtenus. Dans certaines conditions (selon la pression d'hélium, la géométrie du milieu générateur et du diamètre de l'iris de génération), un continuum est observé, modulé par des cannelures de faible amplitude (10% du signal maximum). Avec de telles impulsions, l'ionisation peut avoir lieu très rapidement dans le front montant, et l'émission XUV peut être confinée par accord de phase transitoire ([Mével 00, Strelkov 08]), appelé également *ionization gating* ([Pfeifer 07, Jullien 08, Abel 09]). Ces spectres semblent donc indiquer qu'une impulsion attoseconde isolée est émise au centre du faisceau, où l'intensité est supérieure, et que des trains d'impulsions sont émis plus loin du centre. Les contributions du centre et des bords du faisceau interfèrent et ces cannelures apparaissent.

Les deux résultats importants de ce projet sont donc, la démonstration d'impulsions intenses ultra-brèves (1.3 TW pour 10 fs), et la validation de la technique pour la génération d'harmoniques. Cette technique fournit de plus une source accordable en durée, et en longueur d'onde. Seule l'amplification paramétrique optique par dérive de fréquence

(OPCPA) permet d'obtenir de telles puissances crête pour des impulsions de 10 fs. Cependant, les OPCPA sont en général mal adaptés à la génération d'harmoniques à cause de la qualité des profils spatiaux qui n'est pas suffisante. La post compression par ionisation fournit donc une source unique pour la génération d'harmoniques qui ouvre des perspectives intéressantes. Les résultats obtenus en générant les harmoniques avec les impulsions post comprimées sont très prometteurs. Créer un grand volume où l'intensité est constante et élevée, permettra d'uniformiser l'émission XUV, et de s'affranchir des trains d'impulsions émis dans les zones où l'intensité est plus faible. En couplant la technique de post compression avec la technique de mise en forme spatiale pour obtenir une impulsion intense ultra-brève avec un profil spatial flat top, la production d'impulsions attosecondes isolées d'énergies élevées devient possible.

Pour caractériser ces impulsions attosecondes isolées, un interféromètre IR-XUV a été construit (chapitre 6). Cet interféromètre est utilisable sur une large gamme spectrale (jusqu'à 100 eV). Il permet d'implémenter des scans de spectres de photoélectrons en fonction du délai entre l'infrarouge et l'XUV, et donc d'utiliser les méthodes de caractérisation RABBITT ou FROG CRAB. De belles traces RABBITT et FROG CRAB ont de plus été réalisées en générant les harmoniques avec le faisceau mis en forme. Cela valide à la fois la source harmonique, la mise en forme spatiale et l'interféromètre.

La source harmonique haute énergie du CELIA a de plus pu servir à accueillir des utilisateurs extérieurs dans le cadre des collaborations Laserlab. Cela confirme que, bien que relativement récente (puisque développée au cours de cette thèse), la source est fiable et robuste. L'expérience alors menée, visait à caractériser un miroir multi-couches pour l'XUV, par la méthode RABBITT. Le miroir a été conçu pour réfléchir efficacement (60 %) dans une gamme spectrale comprise entre 80 et 93 eV, et ainsi opérer une sélection spectrale des harmoniques. De plus, le miroir ne doit pas induire de chirp lors de la réflexion afin de conserver des impulsions attosecondes courtes. C'est cette caractéristique que nous avons vérifié lors de cette expérience. Ces mesures RABBITT à ~ 90 eV ont pu être réalisées en générant les harmoniques dans le néon. Le délai de groupe induit sur la gamme spectrale intéressée est alors estimé à ± 40 as. Ces mesures ont été vérifiées par une autre méthode TEY (Total Electron Yield) effectuée sur un synchrotron. Un très bon accord entre les deux méthodes a été obtenu. Ces résultats ont permis de publier dans Optics Letters ([Loch 11]).

En résumé, au cours de cette thèse, une source harmonique pour la génération à haute énergie a été construite et validée, une technique de post compression d'impulsions intenses ultra-brèves, et une technique de mise en forme spatiale de faisceaux laser intenses ont été développées et validées. De plus, l'installation expérimentale est versatile, et per-

met facilement de passer d'une configuration à une autre pour générer les harmoniques. La production d'impulsions attosecondes isolée d'énergies élevées est maintenant à portée de main. Les impulsions post comprimées de 13 mJ pourraient produire des impulsions attosecondes isolées de l'ordre de la centaine de nanojoule, soit d'énergie supérieure de deux ordres de grandeur aux meilleurs résultats actuels (~ 2 nJ, [Ferrari 10]). Ces travaux très prometteurs sont donc à continuer dans une future thèse, qui pourra être axée sur la production de ces impulsions attosecondes isolées intenses, et leur utilisation pour des expériences de physique non-linéaire dans l'XUV avec des résolutions attosecondes.

Bibliographie

- [Abel 09] Mark J Abel, Thomas Pfeifer, Phillip M Nagel, Willem Boutu, M Justine Bell, Colby P Steiner, Daniel M Neumark & Stephen R Leone. *Isolated attosecond pulses from ionization gating of high-harmonic emission*. Chemical Physics, vol. **366**, no. 1-3, pages 9–14, 2009. [13](#), [161](#), [197](#)
- [Ammosov 86] M. V. Ammosov, N. B. Delone & V. P. Krainov. *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*. Sov. Phys. JETP, vol. **64**, page 1191, 1986. [133](#)
- [Augst 89] S. Augst, D. Strickland, D. Meyerhofer and S. Chin & J. Eberly. *Tunneling ionization of noble gases in a high intensity laser field*. Phys. Rev. Lett., vol. **63**, page 2212, 1989. [18](#)
- [Balcou 93] Philippe Balcou. *Etude de la génération d'harmoniques d'ordre élevé en champ intense*. PhD thesis, Université de Paris VI, 1993. [58](#)
- [Balcou 97] Ph. Balcou, P. Salieres, A. L'Huillier & M. Lewenstein. *Generalized phase-matching conditions for high harmonics : The role of field-gradient forces*. Phys. Rev. A, vol. **55**, no. 4, pages 3204–3210, 1997. [28](#)
- [Benis 06] E. P. Benis, D. Charalambidis, T. N. Kitsopoulos, G. D. Tsakiris & P. Tzallas. *Two-photon double ionization of rare gases by a superposition of harmonics*. Phys. Rev. A, vol. **74**, no. 5, page 051402, Nov 2006. [34](#)
- [Bohman 10] Samuel Bohman, Akira Suda, Tsuneto Kanai, Shigeru Yamaguchi & Katsumi Midorikawa. *Generation of 5.0 fs, 5.0 mJ pulses at 1 kHz using hollow-fiber pulse compression*. Opt. Lett., vol. **35**, no. 11, pages 1887–1889, Jun 2010. [128](#), [197](#)

- [Born 59] Max Born & Emil Wolf. Principles of optics. Pergamon press, 1959. [28](#)
- [Bourassin-Bouchet 10] Charles Bourassin-Bouchet, Sébastien de Rossi, Franck Delmotte & Pierre Chavel. *Spatiotemporal distortions of attosecond pulses*. J. Opt. Soc. Am. A, vol. **27**, no. 6, pages 1395–1403, Jun 2010. [124](#)
- [Burnett 77] N. H. Burnett, H. A. Baldis, G. D. Enright, M. C. Richardson & P. B. Corkum. *Backscatter and beam refraction in underdense gas breakdown with nanosecond CO₂ laser*. Journal of Applied Physics, vol. **48**, no. 9, pages 3727–3732, 1977. [7](#)
- [Chang 97] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane & H. C. Kapteyn. *Generation of Coherent Soft X Rays at 2.7 nm Using High Harmonics*. Phys. Rev. Lett., vol. **79**, no. 16, pages 2967–2970, 1997. [8](#)
- [Chen 09] Xiaowei Chen, Aurélie Jullien, Arnaud Malvache, Lorenzo Canova, Antonin Borot, Alexandre Trisorio, Charles G. Durfee & Rodrigo Lopez-Martens. *Generation of 4.3 fs, 1 mJ laser pulses via compression of circularly polarized pulses in a gas-filled hollow-core fiber*. Opt. Lett., vol. **34**, no. 10, pages 1588–1590, May 2009. [127](#)
- [Constant 99] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, Ch. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin, P. Agostini & B. Carré. *Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases : Model and Experiment*. Phys. Rev. Lett., vol. **82**, page 1668, 1999. [9](#), [12](#), [31](#)
- [Corkum 93] P. B. Corkum. *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*. Phys. Rev. Lett., vol. **71**, no. 13, page 1994, 1993. [17](#)
- [Courtois 01] C. Courtois, A. Couaïron, B. Cros, J. R. Marques & G. Matthieussent. *Propagation of intense ultrashort laser pulses in a plasma filled capillary tube : Simulations and experiments*. Physics of Plasmas, vol. **8**, no. 7, pages 3445–3456, 2001. [132](#)
- [Descamps 01] D. Descamps, L. Roos, C. Delfin, A. L’Huillier & C.-G. Wahlström. *Two- and three-photon ionization of rare gases using femtosecond harmonic pulses generated in a gas medium*. Phys. Rev. A, vol. **64**, no. 3, page 031404, Aug 2001. [33](#)

-
- [Dorchies 99] F. Dorchies, J. R. Marquès, B. Cros, G. Matthieussent, C. Courtois, T. Vélikorousov, P. Audebert, J. P. Geindre, S. Rebibo, G. Hamoniaux & F. Amiranoff. *Monomode Guiding of 1016W/cm² Laser Pulses over 100 Rayleigh Lengths in Hollow Capillary Dielectric Tubes*. Phys. Rev. Lett., vol. **82**, no. 23, pages 4655–4658, Jun 1999. [128](#), [131](#), [238](#)
- [Dubrouil 11] A. Dubrouil, Y. Mairesse, B. Fabre, D. Descamps, S. Petit, E. Mével & E. Constant. *Controlling high harmonics generation by spatial shaping of high-energy femtosecond beam*. Opt. Lett., vol. **36**, no. 13, pages 2486–2488, Jul 2011. [95](#), [196](#)
- [Dutin 10] C. Fourcade Dutin, A. Dubrouil, S. Petit, E. Mével, E. Constant & D. Descamps. *Post-compression of high-energy femtosecond pulses using gas ionization*. Opt. Lett., vol. **35**, no. 2, pages 253–255, Jan 2010. [151](#), [172](#), [197](#)
- [E. A. J. Marcatili 64] R. A. Schmelzer E. A. J. Marcatili. *Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers*. Bell Syst. Tech. J., vol. **43**, pages 1783–1809, 1964. [129](#)
- [Fang 11] Shaobo Fang, Takashi Tanigawa, Kenichi L. Ishikawa, Naoki Karasawa & Mikio Yamashita. *Isolated attosecond pulse generation by monocycle pumping : the use of a harmonic region with minimum dispersion*. J. Opt. Soc. Am. B, vol. **28**, no. 1, pages 1–9, Jan 2011. [13](#)
- [Ferrari 10] F. Ferrari, F. Calegari, M. Lucchini, C. Vozzi, S. Stagira, G. Sansone & M. Nisoli. *High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields*. Nat Photon, vol. **4**, no. 12, pages 875–879, December 2010. [13](#), [161](#), [199](#)
- [Ferry 88] M. Ferry, A. L’Huillier, X. F. Li, L. A. Lompré, G. Mainfray & C. Manus. *Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases*. J. Phys. B, vol. **21**, page L31, 1988. [7](#)
- [Frumker 09] E. Frumker, G. G. Paulus, H. Niikura, D. M. Villeneuve & P. B. Corkum. *Frequency-resolved high-harmonic wavefront characterization*. Opt. Lett., vol. **34**, no. 19, pages 3026–3028, Oct 2009. [124](#)
- [Gilbertson 10] Steve Gilbertson, Sabih D. Khan, Yi Wu, Michael Chini & Zenghu Chang. *Isolated Attosecond Pulse Generation without the Need*

- to Stabilize the Carrier-Envelope Phase of Driving Lasers. *Phys. Rev. Lett.*, vol. **105**, page 093902, Aug 2010. [13](#)
- [Goulielmakis 08] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V. S. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A. L. Aquila, E. M. Gullikson, D. T. Attwood, R. Kienberger, F. Krausz & U. Kleineberg. *Single-Cycle Nonlinear Optics*. *Science*, vol. **320**, page 1614, 2008. [8](#), [12](#)
- [Hentschel 01] M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher & F. Krausz. *Attosecond metrology*. *Nature*, vol. **414**, page 509, 2001. [12](#)
- [Hergott 02] J.-F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Agostini, B. Carre & P. Salieres. *Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range*. *Phys. Rev. A*, vol. **66**, no. 2, page 021801, 2002. [11](#), [33](#), [73](#)
- [Jullien 08] A. Jullien, T. Pfeifer, M. Abel, P. Nagel, M. Bell, D. Neumark & S. Leone. *Ionization phase-match gating for wavelength-tunable isolated attosecond pulse generation*. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, vol. **93**, pages 433–442, 2008. 10.1007/s00340-008-3187-z. [9](#), [161](#), [173](#), [197](#)
- [Kane 99] D.J. Kane. *IEEE J. Quant. Elec.*, vol. **35**, page 1999, 1999. [186](#), [216](#)
- [Kazamias 03] S. Kazamias, D. Douillet, F. Weihe, C. Valentin, A. Rousse, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin & Ph. Balcou. *Global Optimization of High Harmonic Generation*. *Phys. Rev. Lett.*, vol. **90**, page 193901, 2003. [31](#), [35](#), [72](#)
- [Keldysh 65] L.V. Keldysh. *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*. *Sov. Phys. JETP*, vol. **20**, page 1307, 1965. [19](#), [24](#)
- [Kienberger 04] R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, A. Baltuska, V. Yakovlev, F. Bammer, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher & F. Krausz. *Atomic transient recorder*. *Nature*, vol. **427**, page 817, 2004. [12](#)
- [Kim 04] Hyung Taek Kim, I Jong Kim, Kyung-Han Hong, Dong Gun Lee, Jung-Hoon Kim & Chang Hee Nam. *Chirp analysis of high-order harmonics from atoms driven by intense femtosecond laser pulses*.

-
- Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics, vol. **37**, no. 5, page 1141, 2004. [58](#)
- [Kim 08] I Jong Kim, Gae Hwang Lee, Seung Beom Park, Yong Soo Lee, Tae Keun Kim, Chang Hee Nam, Tomas Mocek & Krzysztof Jakubczak. *Generation of submicrojoule high harmonics using a long gas jet in a two-color laser field*. Applied Physics Letters, vol. **92**, no. 2, page 021125, 2008. [11](#)
- [Kobayashi 98] Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa & S. Watanabe. *27-fs extreme ultraviolet pulse generation by high-order harmonics*. Opt. Lett., vol. **23**, no. 1, pages 64–66, Jan 1998. [33](#)
- [Laplace 74] P. S Laplace. *Memoir on the probability of causes of events*. mémoires de mathématique et de physique, tome sixième. English translation by S. M. Stigler 1986. Statist. Sci., 1(19) :364-378, 1774. [25](#)
- [Lewenstein 94] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, Anne LHuillier & P. B. Corkum. *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*. Phys. Rev. A, vol. **49**, page 2117, 1994. [24](#)
- [L’Huillier 93] A. L’Huillier & Ph. Balcou. *High order harmonic generation with a 1-ps 1053-nm laser*. Phys. Rev. Lett., vol. **70**, page 774, 1993. [8](#)
- [Loch 11] R. A. Loch, A. Dubrouil, R. Sobierajski, D. Descamps, B. Fabre, P. Lidon, R. W. E. van de Kruijs, F. Boekhout, E. Gullikson, J. Gaudin, E. Louis, F. Bijkerk, E. Mével, S. Petit, E. Constant & Y. Mairesse. *Phase characterization of the reflection on an extreme UV multilayer : comparison between attosecond metrology and standing wave measurements*. Opt. Lett., vol. **36**, no. 17, pages 3386–3388, Sep 2011. [190](#), [192](#), [198](#)
- [Macklin 93] J. J. Macklin, J. D. Kmetec & C. L. Gordon III. *High-Order Harmonic Generation Using Intense Femtosecond Pulses*. Phys. Rev. Lett, vol. **70**, page 766, 1993. [8](#)
- [Mairesse 03] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovacev, R. Taïeb, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini & P. Salières. *Attosecond Synchronization of*

- High-Harmonic Soft X-rays*. Science, vol. **302**, page 1540, 2003. [185](#), [188](#), [189](#)
- [Mairesse 05a] Y. Mairesse & F. Quéré. *Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts*. Phys. Rev. A, vol. **71**, no. 1, page 011401, 2005. [182](#), [186](#)
- [Mairesse 05b] Yann Mairesse. *Génération et caractérisation d'impulsions attosecondes*. PhD thesis, Université Paris X1 Orsay, 2005. [27](#)
- [Mansten 09] E. Mansten, J. M. Dahlström, J. Mauritsson, T. Ruchon, A. L'Huillier, J. Tate, M. B. Gaarde, P. Eckle, A. Guandalini, M. Holler, F. Schapper, L. Gallmann & U. Keller. *Spectral Signature of Short Attosecond Pulse Trains*. Phys. Rev. Lett., vol. **102**, page 083002, Feb 2009. [158](#)
- [Mauritsson 05] J. Mauritsson, M. B. Gaarde & K. J. Schafer. *Accessing properties of electron wave packets generated by attosecond pulse trains through time-dependent calculations*. Phys. Rev. A, vol. **72**, page 013401, 2005. [181](#)
- [McPherson 87] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. McIntyre, K. Boyer & C. K. Rhodes. *Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases*. J. Opt. Soc. Am. B, vol. **4**, page 595, 1987. [7](#)
- [Mével 00] E. Mével, E. Constant, D. Garzella, P. Breger, C. Dorrer, C. LeBlanc, F. Salin & P. Agostini. *Optimizing high order harmonic generation in absorbing gases*. In L. F. Dimauro, R. R. Freeman & K. C. Kulander, éditeurs, Multiphoton Processes : ICOMP VIII, 8th International Conference, page 373, 2000. [9](#), [12](#), [31](#), [72](#), [173](#), [197](#)
- [Nabekawa 05] Yasuo Nabekawa, Hirokazu Hasegawa, Eiji J. Takahashi & Katsumi Midorikawa. *Production of Doubly Charged Helium Ions by Two-Photon Absorption of an Intense Sub-10-fs Soft X-Ray Pulse at 42 eV Photon Energy*. Phys. Rev. Lett., vol. **94**, no. 4, page 043001, Jan 2005. [34](#)
- [Nabekawa 06] Yasuo Nabekawa, Toshihiko Shimizu, Tomoya Okino, Kentaro Furusawa, Hirokazu Hasegawa, Kaoru Yamanouchi & Katsumi Midorikawa. *Conclusive Evidence of an Attosecond Pulse Train*

-
- Observed with the Mode-Resolved Autocorrelation Technique.* Phys. Rev. Lett., vol. **96**, no. 8, page 083901, Feb 2006. [34](#)
- [Papadogiannis 03] N. A. Papadogiannis, L. A. A. Nikolopoulos, D. Charalambidis, G. D. Tsakiris, P. Tzallas & K. Witte. *Two-Photon Ionization of He through a Superposition of Higher Harmonics.* Phys. Rev. Lett., vol. **90**, no. 13, page 133902, Apr 2003. [34](#)
- [Paul 01] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, Ph. Balcou, H. G. Muller & P. Agostini. *Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation.* Science, vol. **292**, page 1689, 2001. [177](#)
- [Pfeifer 07] Thomas Pfeifer, Aurélie Jullien, Mark J. Abel, Phillip M. Nagel, Lukas Gallmann, Daniel M. Neumark & Stephen R. Leone. *Generating coherent broadbandcontinuum soft-x-ray radiation by attosecond ionization gating.* Opt. Express, vol. **15**, no. 25, pages 17120–17128, Dec 2007. [9](#), [13](#), [161](#), [173](#), [197](#)
- [Salières 01] P. Salières, B. Carré, L. Le Déroff, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Kopold, W. Becker, D. B. Miloevic, A. Sanpera & M. Lewenstein. *Feynman’s Path-Integral Approach for Intense-Laser-Atom Interactions.* Science, vol. **292**, pages 902–905, 2001. [25](#)
- [Salin, F. 87] Salin, F., Georges, P., Le Saux, G., Roger, G. & Brun, A. *Autocorrelation interférométrique monocoup d’impulsions femtosecondes.* Rev. Phys. Appl. (Paris), vol. **22**, no. 12, pages 1613–1618, 1987. [214](#)
- [Sansone 06] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. De Silvestri & Nisoli M. *Isolated Single-Cycle Attosecond Pulses.* Science, vol. **314**, page 443, 2006. [12](#)
- [Sato 11] Takahiro Sato, Atsushi Iwasaki, Kazuki Ishibashi, Tomoya Okino, Kaoru Yamanouchi, Junichi Adachi, Akira Yagishita, Hiroki Yazawa, Fumihiko Kannari, Makoto Aoyama, Koichi Yamakawa, Katsumi Midorikawa, Hidetoshi Nakano, Makina Yabashi, Mitsuru Nagasono, Atsushi Higashiya & Tetsuya Ishikawa. *Determination of the absolute two-photon ionization cross section of He by an XUV free electron laser.* Journal of Physics B : Atomic,

- Molecular and Optical Physics, vol. **44**, no. 16, page 161001, 2011. [11](#)
- [Schafer 93] K. J. Schafer, Baorui Yang, L. F. DiMauro & K. C. Kulander. *Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff*. Phys. Rev. Lett., vol. **70**, no. 11, pages 1599–1602, 1993. [17](#)
- [Sekikawa 04] T. Sekikawa, A. Kosuge, T. Kanai & S. Watanabe. *Nonlinear optics in the extreme ultraviolet*. Nature, vol. **432**, no. 7017, pages 605–608, 2004. [34](#)
- [Sekikawa 08] Taro Sekikawa, Tatsuya Okamoto, Eisuke Haraguchi, Mikio Yamashita & Takashi Nakajima. *Two-photon resonant excitation of a doubly excited state in He atoms by high-harmonic pulses*. Opt. Express, vol. **16**, no. 26, pages 21922–21929, Dec 2008. [34](#)
- [Seres 05] J. Seres, E. Seres, A. J. Verhoef, G. Tempea, C. Streli, P. Wobrauschek, V. Yakovlev, A. Scrinzi, C. Spielmann & F. Krausz. *Source of coherent kiloelectronvolt X-rays*. Nature, vol. **433**, no. 7026, pages 596–596, 2005. [8](#)
- [Siegman 86] A. E. Siegman. Lasers. University Science Books, 1986. [78](#)
- [Sola 06] I. J. Sola, E. Mevel, L. Elouga, E. Constant, V. Strelkov, L. Poletto, P. Villorresi, E. Benedetti, J.-P. Caumes, S. Stagira, C. Vozzi, G. Sansone & M. Nisoli. *Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating*. Nat Phys, vol. **2**, no. 5, pages 319–322, may 2006. [12](#), [71](#)
- [Strelkov 08] V. V. Strelkov, E. Mével & E. Constant. *Generation of isolated attosecond pulses by spatial shaping of a femtosecond laser beam*. New Jour. Phys., vol. **10**, page 083040, 2008. [9](#), [13](#), [31](#), [71](#), [72](#), [125](#), [161](#), [173](#), [196](#), [197](#)
- [Strelkov 09] V. Strelkov, E. Mével & E. Constant. *Isolated attosecond pulse generated by spatial shaping of femtosecond laser beam*. The European Physical Journal - Special Topics, vol. **175**, pages 15–20, 2009. 10.1140/epjst/e2009-01111-x. [13](#), [71](#), [125](#)
- [Takahashi 02a] Eiji Takahashi, Yasuo Nabekawa & Katsumi Midorikawa. *Generation of 10- μ J coherent extreme-ultraviolet light by use of high-order harmonics*. Opt. Lett., vol. **27**, no. 21, pages 1920–1922, Nov 2002. [11](#), [33](#), [73](#)

-
- [Takahashi 02b] Eiji Takahashi, Yasuo Nabekawa, Tatsuya Otsuka, Minoru Obara & Katsumi Midorikawa. *Generation of highly coherent submicro-joule soft x rays by high-order harmonics*. Phys. Rev. A, vol. **66**, no. 2, page 021802, Aug 2002. [11](#), [33](#), [73](#)
- [Takahashi 03a] Eiji Takahashi, Yasuo Nabekawa & Katsumi Midorikawa. *Development of low-divergence coherent soft x-ray source at 13 nm with high harmonics*. In Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science Conference, page CMS1. Optical Society of America, 2003. [124](#)
- [Takahashi 03b] Eiji Takahashi, Valer Tosa, Yasuo Nabekawa & Katsumi Midorikawa. *Experimental and theoretical analyses of a correlation between pump-pulse propagation and harmonic yield in a long-interaction medium*. Phys. Rev. A, vol. **68**, no. 2, page 023808, Aug 2003. [11](#)
- [Takahashi 04] E.J. Takahashi, Y. Nabekawa, H. Mashiko, H. Hasegawa, A. Suda & K. Midorikawa. *Generation of strong optical field in soft X-ray region by using high-order harmonics*. Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of, vol. **10**, no. 6, pages 1315 – 1328, nov.-dec. 2004. [11](#)
- [Tcherbakoff 03] O. Tcherbakoff, E. Mevel, D. Descamps, J. Plumridge & E. Constant. *Time-gated high-order harmonic generation*. Phys. Rev. A, vol. **68**, no. 4, page 043804, 2003. [12](#)
- [Toma 02] E.S. Toma & H.G. Muller. *Calculation of matrix elements for mixed XUV-IR two photon ATI of argon*. J. Phys. B, vol. **35**, page 3435, 2002. [181](#)
- [Tosa 03] V. Tosa, E. Takahashi, Y. Nabekawa & K. Midorikawa. *Generation of high-order harmonics in a self-guided beam*. Phys. Rev. A, vol. **67**, no. 6, page 063817, Jun 2003. [11](#)
- [Trebino 00] R. Trebino. Frequency-resolved optical gating. Kluwer Academic Publishers, 2000. [148](#), [214](#), [216](#)
- [Véniard 96] V. Véniard, R. Taïeb & A. Maquet. *Phase dependence of $(N+1)$ -color $(N>1)$ IR-UV photoionization of atoms with higher harmonics*. Phys Rev A, vol. **54**, no. 1, pages 721–728, Jul 1996. [179](#), [181](#)

- [Yoshitomi 02] D. Yoshitomi, T. Shimizu, T. Sekikawa & S. Watanabe. *Generation and focusing of submilliwatt-average-power 50-nm pulses by the fifth harmonic of a KrF laser*. Opt. Lett., vol. **27**, no. 24, pages 2170–2172, Dec 2002. [12](#)
- [Zhou 96] J. Zhou, J. Peatross, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn & I. P. Christov. *Enhanced High-Harmonic Generation Using 25 fs Laser Pulses*. Phys. Rev. Lett., vol. **76**, pages 752–755, Jan 1996. [58](#)

Annexe A

Caractérisation d'impulsions laser ultra-brèves

A.1 Éléments de théorie sur les impulsions laser ultra-brèves

Pour bien appréhender la nature des impulsions laser ultra-brèves, il faut introduire la notion de phase spectrale $\varphi(\omega)$. Il s'agit d'un paramètre particulièrement important pour la caractérisation temporelle de ces impulsions.

Le champ électrique d'une impulsion lumineuse polarisée linéairement est caractérisé dans le domaine temporel par un module $|E(t)|$ et une phase temporelle $\varphi(t)$:

$$E(t) = |E(t)|e^{i\varphi(t)} \quad (\text{A.1})$$

Ces grandeurs sont difficiles d'accès expérimentalement, cependant on trouve leur équivalent dans le domaine spectral. La transformée de Fourier complexe permet de passer du domaine temporel au domaine spectral et inversement. Le profil spectral du champ est donc défini par son module spectral $|E(\omega)|$ et sa phase spectrale $\varphi(\omega)$ tels que :

$$E(\omega) = |E(\omega)|e^{i\varphi(\omega)} \quad (\text{A.2})$$

La mesure du spectre de puissance d'une impulsion donne accès à $|E(\omega)|^2$. Cette quantité ne permet pas d'obtenir une véritable information sur les caractéristiques temporelles du champ électrique. Néanmoins, à partir de cette mesure, on peut calculer quelle est la durée minimum qu'il est possible d'obtenir avec un tel spectre. Cette durée d'impulsion est définie comme la largeur à mi-hauteur du profil temporel, et elle est reliée à la largeur

spectrale par la relation d'Heisenberg (pour un profil temporel gaussien) :

$$\delta\omega.\delta\tau \geq 0.882 \pi \quad (\text{A.3})$$

Cette durée minimum est obtenue si toutes les composantes spectrales sont en phase ($\varphi(\omega) = \alpha\omega$). Dans ce cas, la transformée de Fourier $|E(\omega)|$ donne le profil temporel de l'impulsion ; on dit que l'impulsion est à la limite de Fourier : pour une impulsion gaussienne et en définissant τ comme la durée à mi-hauteur, cela se traduit par la réalisation de la condition :

$$\delta\omega.\delta\tau = 0.882 \pi \quad (\text{A.4})$$

Lorsque les composantes spectrales ne sont pas toutes en phase (phase spectrale non linéaire), les variations de $\varphi(\omega)$ induisent un élargissement du profil temporel, voire même des distorsions. Pour mettre en évidence les parties non linéaires de la phase spectrale, on peut la développer en séries de Taylor :

$$\varphi(\omega) = \varphi(\omega_0) + \frac{\varphi'(\omega_0)}{1!}(\omega - \omega_0) + \frac{\varphi^{(2)}(\omega_0)}{2!}(\omega - \omega_0)^2 + \dots + \frac{\varphi^{(n)}(\omega_0)}{n!}(\omega - \omega_0)^n + \dots \quad (\text{A.5})$$

On s'intéresse principalement à l'ordre 2 et à l'ordre 3 :

$$\varphi(\omega) = \varphi(\omega_0) + \varphi'(\omega_0)(\omega - \omega_0) + \underbrace{\frac{\varphi^{(2)}(\omega_0)}{2}}_{\text{ordre 2}}(\omega - \omega_0)^2 + \underbrace{\frac{\varphi^{(3)}(\omega_0)}{6}}_{\text{ordre 3}}(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (\text{A.6})$$

La contribution de l'ordre 1 φ' n'est pas significative dans le sens où une accumulation de phase linéaire se traduit simplement par un retard global de l'impulsion, et ne modifie pas le profil temporel.

Dispersion du second ordre $\varphi^{(2)}$:

Prenons le cas d'une impulsion à la limite de Fourier, et faisons lui traverser un matériau qui présente une GDD (*Group Delay Dispersion*) positive, c'est à dire $\varphi^{(2)} > 0$. Dans ce cas, les différentes composantes spectrales qui étaient initialement en phase vont se disperser d'une façon bien définie, et à la sortie du matériaux, la phase spectrale sera quadratique (la phase temporelle également) : $\varphi(\omega) = \varphi^{(2)}\frac{\omega^2}{2}$. Le profil temporel obtenu est toujours gaussien, mais élargi (étirement symétrique), on dit que l'impulsion présente une dérive de fréquence, ou *chirp* en anglais. C'est-à-dire que les différentes composantes spectrales de l'impulsion ne sont pas synchronisées, mais régulièrement étalées dans le temps. La fréquence instantanée d'une impulsion est donnée par la dérivée de sa phase

temporelle : $\omega(t) = \frac{\partial \varphi}{\partial t}$. Dans le cas d'une phase temporelle quadratique, la phase spectrale est également quadratique et la fréquence instantanée varie linéairement dans le temps, on parle de dérive de fréquence linéaire. Pour une impulsion gaussienne à dérive de fréquence linéaire, la durée τ , définie comme la largeur à mi-hauteur du profil temporel, est donnée par la formule :

$$\tau^2 = \tau_0^2 + (4 \ln 2 \frac{\varphi''}{\tau_0})^2 \quad (\text{A.7})$$

ou encore

$$\tau^2 = \tau_0^2 (1 + (2,77 \frac{\varphi''}{\tau_0^2})^2) \quad (\text{A.8})$$

Lorsque la dérive de fréquence est positive, les fréquences les plus faibles sont dans le front avant de l'impulsion (le rouge arrive avant le bleu, voir figure A.1). Au contraire, si $\varphi^{(2)} < 0$ ce sont les fréquences élevées qui sont dans le front avant (le bleu arrive avant le rouge).

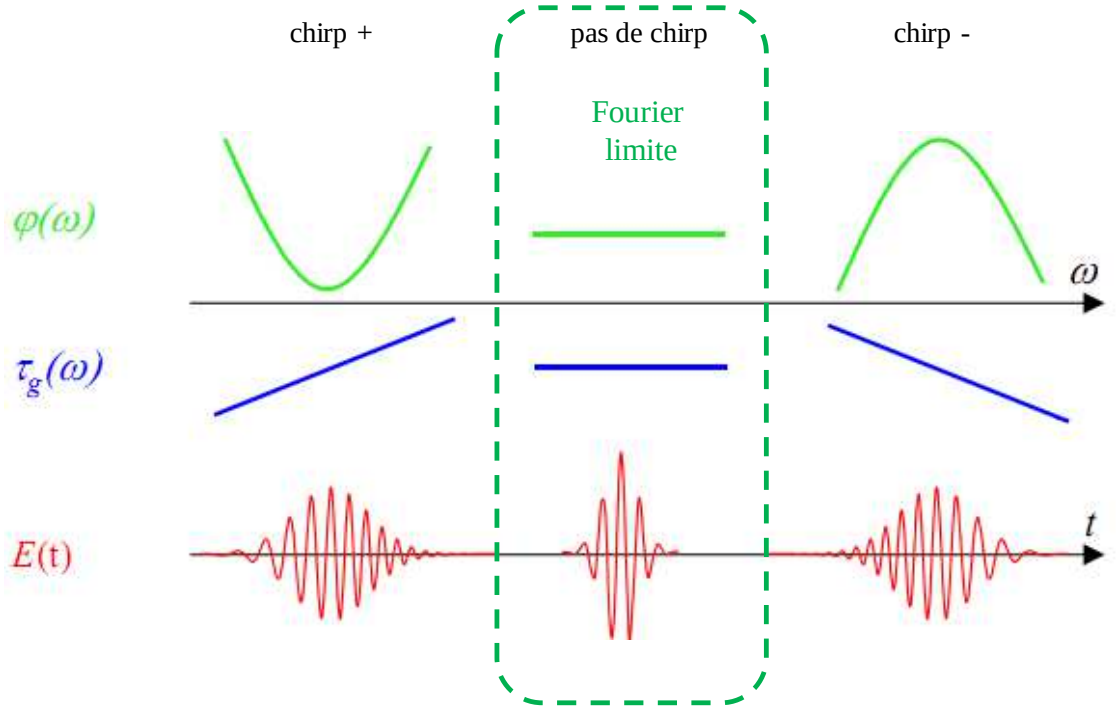


FIGURE A.1 – Trois cas d'impulsions gaussiennes : phase quadratique positive (chirp +), impulsion Fourier limite (pas de chirp), phase quadratique négative (chirp -). Représenté en rouge le champ électrique en fonction du temps $E(t)$, en bleu le délai de groupe qui représente le moment d'arrivée des différentes composantes spectrales (dérive de fréquence) $\tau_g(\omega) = \frac{\partial \varphi}{\partial \omega}$, en vert la phase des différentes composantes spectrales $\varphi(\omega)$.

Dispersion ordre 3 $\varphi^{(3)}$:

Les matériaux présentent en général de la dispersion au troisième ordre qui induit une phase spectrale cubique. Dans ce cas les distorsions induites sur le profil temporel sont dissymétriques (comme pour tous les ordres impairs). Le $\varphi^{(3)}$ a pour effet, de repousser sur le front avant ou le front arrière (selon le signe) les fréquences se situant autour de la fréquence centrale, pouvant même induire des rebonds dans le profil temporel.

A.2 Dispositifs de caractérisation d'impulsions laser ultra-brèves

Nous utilisons ici deux dispositifs de caractérisation d'impulsions : l'autocorrélateur, qui est simple d'utilisation et donne l'information en temps réel, mais ne permet pas une caractérisation complète de l'impulsion ; et le FROG (*Frequency-Resolved Optical Gating*, [Trebino 00]) qui permet de reconstruire le profil temporel et de calculer la phase spectrale mais nécessite un post-traitement important.

A.2.1 Autocorrélateur mono-coup

Le principe de l'autocorrélation mono-coup (présenté sur la figure A.2), est de faire se croiser deux répliques de l'impulsion (avec un angle Ψ) dans un cristal doubleur (en général du BBO), créant ainsi un faisceau doublé (la trace d'autocorrélation) qui se propage selon la bissectrice de Ψ . La largeur de la trace d'autocorrélation D_z traduit l'extension spatiale de l'impulsion $u\tau$, où u est la vitesse de la lumière dans le cristal, et τ la durée de l'impulsion. La mesure de D_z permet alors, en faisant une supposition sur le profil temporel, de retrouver la durée de l'impulsion ([Salin, F. 87]).

En général, c'est le principe d'un interféromètre à division d'amplitude (lame séparatrice 50/50) qui est utilisé pour séparer l'impulsion initiale, et faire se croiser les deux répliques dans le cristal doubleur avec un délai contrôlé. Mais d'autres solutions techniques existent telles que les prismes de Wallaston, ou les bi-miroirs... Nous utilisons ici, un autocorrélateur basé sur le principe de l'interféromètre à lames séparatrices bien adapté aux impulsions ultra-brèves, c'est à dire qui présente une dispersion très faible. La séparatrice a une épaisseur de 300 μm en BK7 ($\text{GDD} \approx 13\text{fs}^2$ à un angle de 45°). Il n'y a pas de compensatrice, et le BBO a une épaisseur de 10 μm (GDD négligeable et grande acceptance spectrale).

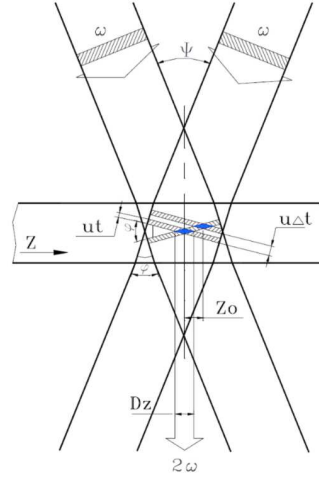


FIGURE A.2 – Principe de l'autocorrélation : les deux faisceaux se croisent dans le cristal doubleur, à l'endroit où les deux impulsions se recouvrent (en bleu), il y a génération de second harmonique. Le profil spatial du faisceau doublé, ou trace d'autocorrélation, permet de retrouver la durée de l'impulsion.

Nonobstant la faible dispersion, la durée des impulsions qu'on va pouvoir mesurer avec cet autocorrélateur va être limitée à cause du déséquilibre entre les deux bras (voir figure A.3). Une impulsion gaussienne initialement à la limite de Fourier, et de durée $\tau_0 = 8$ fs, a une durée de $\tau_1 = 9.2$ fs après avoir accumulé une GDD de 13 fs^2 . L'impulsion se propageant dans le bras correspondant à la réflexion sur la séparatrice va donc avoir une durée τ_0 (en supposant que l'impulsion est pré-compensée pour à la limite de Fourier à l'entrée du cristal doubleur), tandis que l'impulsion se propageant dans le bras en transmission va avoir une durée τ_1 . La largeur de la trace d'autocorrélation mesurée est alors : $\tau_{autoco} = \sqrt{\tau_0^2 + \tau_1^2} = 12.2 \text{ fs}$, et la durée correspondante pour une impulsion gaussienne est : $\tau_{mes} = \sqrt{2} \tau_{autoco} = 8.62 \text{ fs}$. L'erreur sur la mesure est donc de 8%. On considère donc que l'autocorrélateur donne des résultats corrects jusqu'à des durées de 8 fs. Par ailleurs, la résolution temporelle obtenue sur le détecteur de la trace d'autocorrélation ne limite pas la mesure (0.7 fs/pixel soit 16 pixels pour une trace de 11.3 fs correspondant à une impulsion gaussienne de 8 fs).

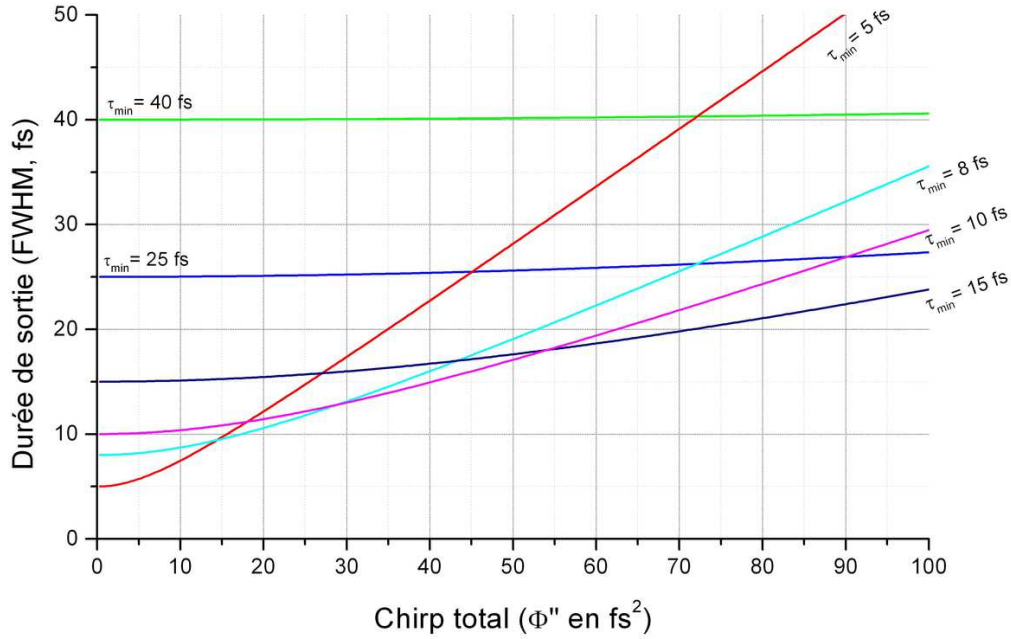


FIGURE A.3 – Durée de l'impulsion en fonction du chirp d'ordre 2 pour des impulsions initialement de 5 fs (en rouge), 8 fs (en cyan), 10 fs (en magenta), 15 fs (en noir), 25 fs (en bleu) et 40 fs (en vert). Les impulsions sont supposées gaussiennes, la durée à mi-hauteur est calculée avec la formule A.8.

A.2.2 Frequency-Resolved Optical Gating : FROG

Il est possible d'obtenir un FROG ([Trebino 00]) en accouplant un autocorrélateur à un spectromètre imageur. Ce dernier donne alors la trace d'autocorrélation résolue spectralement. Le dispositif va donc donner une image 2D (voir figure A.4) dont l'axe vertical correspond au domaine temporel et l'axe horizontal au domaine spectral.

Après débruitage de l'image et traitement par un puissant algorithme itératif (développé par Kane *et al*, on peut retrouver le profil temporel, et la phase spectrale de l'impulsion initiale. L'algorithme en question est le PCGPA (*Principal Component Generalized Projection Algorithm*) ([Kane 99]). Il est basé sur des produits de matrices, des réarrangements de vecteurs et des transformées de Fourier rapides. Pour que l'algorithme converge, il est souvent nécessaire de lui donner le spectre de l'impulsion comme paramètre initial.

Il s'agit d'une méthode lourde mais puissante pour caractériser les impulsions ultra-brèves. Nous utilisons donc l'autocorrélateur pendant toutes les phases d'optimisation, puis lorsque nous obtenons les impulsions les plus courtes possibles nous les caractérisons avec le FROG. Ce dispositif est obtenu à partir de l'autocorrélateur mono-coup, il est donc

soumis aux mêmes limitations, et ne permet pas de caractériser des impulsions inférieures à 8 fs.

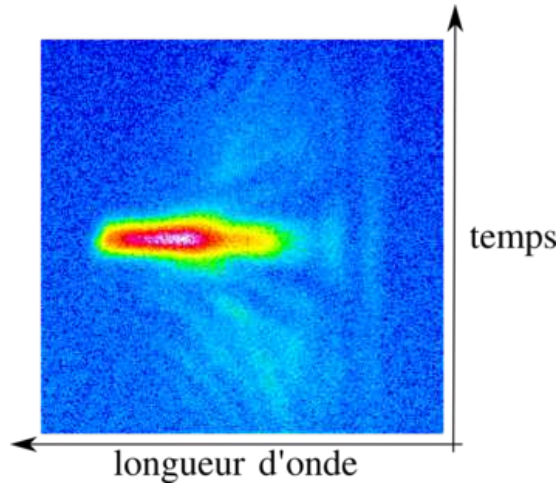


FIGURE A.4 – Exemple de trace FROG mono-coup brute d'une impulsion de 13 fs. Les structures observées indiquent que l'impulsion comporte des phases non-linéaires (pas Fourier limite).

Annexe B

Calcul du nombre de photons

Calculs effectués pour les conditions optimales de génération de juillet 2010 :

- Génération dans un jet de gaz général valve, pression en amont 3.5 bar d'argon.
- 100 mJ en entrée soit 50 mJ avant l'iris.
- Impulsion de 50 fs.
- À 18 mm après le foyer.

B.1 Estimation nombre d'ions

Paramètre de détection du spectromètre à temps de vol :

- 1×10^{-5} mbar (pour le néon et l'argon)
- $E_{ac} = + 1000$ V
- discriminateur à 2 mV
- $V_{mcp} = - 2300$ V

Rapport entre les nombres d'ions du spectre intégré et le nombre d'ions affiché par le programme :

Ce rapport est estimé en utilisant les mesures de mai 2010. Le nombre d'ions par tir est estimé en comparant l'intégration du spectre de l'argon et l'intégration du signal mono-événement. Toutes les mesures sont moyennées sur 2000 tirs.

- Lames silice $\rightarrow$ 10 ions/tir (24 ions/tir) rapport : 0.42
- Lames silice + filtre Al 250 nm $\rightarrow$ 1 ions/tir (2.5 ions/tir) rapport : 0.4
- En direct $\rightarrow$ 110 ions/tir (280 ions/tir) rapport : 0.39
- Filtre Al 250 nm $\rightarrow$ 2.5 ions/tir (8 ions/tir) rapport : 0.31

Remarque : la valeur indiquée entre parenthèses est le nombre d'ions instantanés moyen affiché par le logiciel. On choisit comme rapport 0.4.

Nombre d'ions réel estimé pour les mesures de juillet :

Argon :

classique ($\phi = 10.5$ mm) : 600 ions/tir $\rightarrow$ 240 ions/tir

flat top ($\phi = 26$ mm) : 1000 ions/tir $\rightarrow$ 400 ions/tir

Neon :

classique ($\phi = 10$ mm) : 40 ions/tir $\rightarrow$ 16 ions/tir

flat top ($\phi = 26$ mm) : 45 ions/tir $\rightarrow$ 18 ions/tir

B.2 Calcul du nombre de photons

Avec la formule :

$$N_{ph} = \frac{N_{ion}}{\rho \sigma l \eta} \quad (\text{B.1})$$

ρ est la densité d'atomes d'argon (en atomes/m³)

σ est la section efficace d'absorption pour l'argon (en m²)

l est la longueur d'interaction (en m)

η est l'efficacité de détection

Densité d'atomes :

Pression = 1.10^{-5} mbar d'argon

$P_{eff} = K.P_{jauge}$ avec $K = 0.8$ pour l'argon

$P_{eff} = 8.10^{-6}$ mbar

En Pascal : (conversion 1 bar = 10^5 Pascal)

$P_{eff} = 8.10^{-4}$ Pa

Temperature salle d'experience : 22°C – 295°K

$$pV = N k_B T$$

$$p = \rho k_B T \quad (\text{B.2})$$

p est la pression du gaz (en Pascal)

V est le volume occupé par le gaz (en mètre cube)

N est le nombre de particules

k_B est la constante de Boltzmann ($1,38 \times 10^{-23}$ J/K)

T est la température absolue (en Kelvin)

$$\begin{aligned} \rho &= \frac{8.10 - 4}{1,38.10^{-23} \times 295} \\ \rho &= 1,96.10^{17} \text{ atomes}/\text{m}^3 \end{aligned} \quad (\text{B.3})$$

Section efficace d'ionisation moyenne :

Cette estimation est faite à partir de la base de données (G. V. Marr and J. B. West, 1976, Atomic Data Nucl. Data Tables, 18, 497) et de la formule D.5. On calcule une section efficace d'ionisation totale moyenne :

Entre les harmoniques 13 et 29 (20 – 45 eV) pour l'argon

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{moy}} &= 17,43 \text{ Mb} \\ (1 \text{ Mbarn} &= 10^{-18} \text{ cm}^2 = 10^{-22} \text{ m}^2) \\ \sigma_{\text{moy}} &= 1,74.10^{-21} \text{ m}^2 \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Entre les harmoniques 15 et 69 (23 – 105 eV) pour le néon.

$$\begin{aligned} \sigma_{\text{moy}} &= 6,48 \text{ Mb} \\ \sigma_{\text{moy}} &= 6,48.10^{-22} \text{ m}^2 \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

Longueur d'interaction :

Le spectromètre à temps de vols que nous avons utilisé présentait un défaut de conception. Les lignes de champs électrostatiques sont courbées, ce qui crée une lentille électrostatique (voir figure 3.4). Dans le cas standard, la longueur d'interaction correspond à la largeur de la fente. Dans notre cas la lentille électrostatique fait diverger le faisceau d'ions et donc

la longueur effective d'interaction s'en trouve réduite. Les simulations sous SIMION ont permis de déterminer une longueur d'interaction de 250 μm pour une fente de largeur 1 mm (facteur 4).

$$l = 2,5 \times 10^{-4} m \quad (\text{B.6})$$

Remarque : Le même phénomène se produit pour la hauteur de la fente. La hauteur effective d'interaction est réduite à 2.6 mm contre 10 mm.

Efficacité de détection :

Le dernier paramètre qui intervient dans le calcul du nombre de photons est l'efficacité de détection. Les ions produits par le faisceau XUV, après être passés au travers de la fente, traverse une grille située sur la dernière électrode (T 50%), puis viennent percuter les galettes de microcanaux (MCP). Les MCP ont une efficacité intrinsèque de détection pour les ions d'argon dans cette gamme d'énergie de 5% (données constructeur : Technical information Hamamatsu MCP assembly). On prend pour l'efficacité totale de détection 2.5%.

$$\eta = 0.025 \quad (\text{B.7})$$

Nombre de photons :

Ar classique $\rightarrow 1.13 \times 10^{11}$ ph/tir

Ar flat top $\rightarrow 1.88 \times 10^{11}$ ph/tir

Ne classique $\rightarrow 2 \times 10^{10}$ ph/tir

Ne flat top $\rightarrow 2.3 \times 10^{10}$ ph/tir

Energie des impulsions :

pour l'argon, on considère des photons de 31.5 eV (H21)

pour le neon, on considère des photons de 61.5 eV (H41)

calculé avec la formule [D.6](#) :

Ar classique $\rightarrow 0.57 \mu\text{J}/\text{pulse}$

Ar flat top $\rightarrow 0.95 \mu\text{J}/\text{pulse}$

Ne classique $\rightarrow 0.2 \mu\text{J}/\text{pulse}$

Ne flat top $\rightarrow 0.22 \mu\text{J}/\text{pulse}$

Remarque : Ces estimations correspondent à la fraction du faisceau qui passe dans la zone sensible du TOF.

B.3 Cross-calibration avec la photodiode XUV

Pour 2.5 ions par tir dans l'argon, soit 1.17×10^9 photons, on a 3×10^8 photons sur la photodiode. On applique donc une correction d'un facteur 0.256 pour recalibrer les estimations avec le TOF :

Nombre de photon final :

Ar classique $\rightarrow 2.9 \times 10^{10}$ ph/tir

Ar flat top $\rightarrow 4.8 \times 10^{10}$ ph/tir

Ne classique $\rightarrow 5.1 \times 10^9$ ph/tir

Ne flat top $\rightarrow 5.9 \times 10^9$ ph/tir

Energie des impulsions :

Ar classique $\rightarrow 0.15$ $\mu\text{J/pulse}$

Ar flat top $\rightarrow 0.24$ $\mu\text{J/pulse}$

Ne classique $\rightarrow 0.05$ $\mu\text{J/pulse}$

Ne flat top $\rightarrow 0.06$ $\mu\text{J/pulse}$

Puisque nous avons pondéré les mesures par rapport au détecteur qui donne l'estimation la plus basse, il s'agit ici de la limite basse de la barre d'erreur. Nous sommes donc sûrs d'avoir des énergies d'impulsion XUV égales ou supérieures aux valeurs annoncées ici.

Annexe C

Formulaire du chapitre 2

C.1 modèle semi-classique

Expression du potentiel $V(x)$ subi par un électron d'un atome soumis à un champ électrique intense $\vec{E} = E.\vec{e}_x$ d'une impulsion laser polarisée linéairement selon x (en unité atomique) :

$$V(x) = V_0 - E.x = \frac{1}{|x|} - E.x \quad (\text{C.1})$$

Soit x_0 la position pour laquelle le champ électrique est maximum :

$$V'(x_0) = 0 \quad \Longrightarrow \quad x_0 = \frac{1}{\sqrt{E}} \quad (\text{C.2})$$

$$V(x_0) = -2\sqrt{E} = V_B \quad (\text{C.3})$$

La barrière de potentiel sera complètement abaissée lorsque :

$$V_B = -I_p \quad \Longrightarrow \quad E_{SB} = \frac{I_p^2}{4} \quad (\text{C.4})$$

$$I_{SB} = \frac{c}{8\pi} E_{SB}^2 \quad \Longrightarrow \quad I_{SB} [\text{W}/\text{cm}^2] = 4.10^9 \times I_p^4 [\text{eV}] \quad (\text{C.5})$$

Gaz	I_p (eV)	I_{SB} (10^{14} W/cm 2)
He	24,58	14,62
Ne	21,56	8,65
Ar	15,76	2,47
Kr	14,00	1,54
Xe	12,13	0,87
H $_2$	15,42	2,26
N $_2$	15,58	2,36
CO $_2$	13,77	1,44
O $_2$	12,07	0,85

TABLE C.1 – Potentiel d’ionisation et éclaïrement de suppression de barrière pour différentes espèces en phase gazeuse.

Temps de traversée de la barrière et paramètre de Keldysh γ :

$$\tau = \frac{I_p}{E\sqrt{2I_p}} \quad \Rightarrow \quad \gamma = 4\pi \cdot \frac{\tau}{T_0} = 4\pi \cdot \frac{\omega_0}{2\pi} \frac{I_p}{E\sqrt{2I_p}} = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (\text{C.6})$$

Potentiel pondéromoteur U_p :

$$U_p = \frac{E^2}{4\omega_0^2} \quad \text{en unités atomiques} \quad \left(U_p = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega_0^2} \quad \text{en unité S.I.} \right) \quad (\text{C.7})$$

$$U_p[\text{eV}] = 9.33 \times I [10^{14} \text{ W/cm}^2] \times \lambda^2 [\mu\text{m}^2] \quad (\text{C.8})$$

m_e étant la masse de l’électron, e sa charge.

Champ laser oscillant polarisé linéairement :

$$\mathbf{E}(t) = E_0 \cos \omega t \mathbf{u}_x \quad (\text{C.9})$$

Équation du mouvement dans le potentiel accélérateur du champ laser :

$$m\ddot{x} = -e.E_0 \cos \omega t \quad (\text{C.10})$$

$$\dot{x}(\varphi) = \frac{\alpha}{\omega} [\sin(\varphi) - \sin(\varphi_i)] \quad (\text{C.11})$$

$$x(\varphi) = \frac{\alpha}{\omega^2} [\cos(\varphi_i) - \cos(\varphi) + (\varphi_i - \varphi) \sin(\varphi_i)] \quad (\text{C.12})$$

Énergie du photon émis lors de la recombinaison :

$$h\nu = I_p + E_k \quad (\text{C.13})$$

où E_k est l'énergie cinétique accumulée lors de la propagation dans le continuum.

Loi de coupure :

$$(h\nu)_{max} = I_p + 3,17 U_p \quad (\text{C.14})$$

C.2 Modélisation quantique de la génération d'harmoniques d'ordre élevé

Équation de Schrödinger dépendante du temps (TDSE) :

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi = \hat{H} \Psi \quad (\text{C.15})$$

Hamiltonien pour un atome soumis à un champ laser $E(t)$, polarisé linéairement :

$$\hat{H} = -\frac{1}{2} \nabla^2 + V(\mathbf{r} + z E(t)) \quad (\text{C.16})$$

$V(\mathbf{r})$ est le potentiel atomique.

Modèle de Lewenstein :

On se place dans le cadre de l'approximation du *Single Active Electron* (S.A.E) ou électron actif unique et du *Strong Field Approximation* (S.F.A ou approximation du champ fort) :

Moment dipolaire :

$$\mathbf{x}(t) = \langle \psi(t) | \hat{\mathbf{x}} | \psi(t) \rangle \quad (\text{C.17})$$

$$\mathbf{x}(t) = -i \int_0^t dt_i \int d^3\mathbf{p} \underbrace{(\mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)})^*}_{\text{recombinaison}} \cdot \underbrace{e^{iS(\mathbf{p},t,t_i)}}_{\text{propagation}} \cdot \underbrace{\mathbf{E}(t_i)\mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_i)}}_{\text{ionisation}} \quad (\text{C.18})$$

avec $\mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$ ($\mathbf{A}$ potentiel vecteur).

Probabilité de cette transition de l'état fondamental $|\psi_0\rangle$ vers un état du continuum de moment canonique $\mathbf{p}(t_i)$ (ou d'impulsion $\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_i)$) :

$$\mathbf{E}(t_i)\mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_i)} \quad \text{avec} \quad \mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_i)} = \langle \mathbf{p} + \mathbf{A}(t_i) | \hat{\mathbf{x}} | \psi_0 \rangle \quad (\text{C.19})$$

Phase accumulée par l'électron qui se propage librement dans le champ :

$$S(\mathbf{p}, t, t_i) = - \int_{t_i}^t \left[\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t'))^2}{2} + I_p \right] dt' \quad (\text{C.20})$$

Le spectre harmonique s'obtient en effectuant la transformée de Fourier du moment dipolaire (pour l'harmonique q) :

$$\mathbf{x}(\omega_q) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt_r \mathbf{x}(t_r) e^{i\omega_q t_r} = \int_{-\infty}^{+\infty} dt_r \int_0^{t_r} dt_i \int d^3\mathbf{p} \mathbf{B}(t_r, t_i, \mathbf{p}) \cdot e^{i\varphi(t_r, t_i, \mathbf{p})} \quad (\text{C.21})$$

avec $\mathbf{B}$ l'amplitude de l'intégrande dans l'intégrale (2.15) et φ définie par :

$$\varphi(t_r, t_i, \mathbf{p}) = \omega_q t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left[\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t'))^2}{2} + I_p \right] dt' \quad (\text{C.22})$$

Équations du point selle (*saddle point*) :

$$\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_i))^2}{2} + I_p = 0 \quad (\text{C.23})$$

$$\int_{t_i}^{t_r} dt (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)) = 0 \quad (\text{C.24})$$

$$\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_r))^2}{2} + I_p = \omega_q \quad (\text{C.25})$$

$\int_{t_i}^{t_r} dt (\mathbf{p} + \mathbf{A}(t)) = \int_{t_i}^{t_r} dt \mathbf{v} = 0$, avec $\mathbf{v}$ le vecteur vitesse de l'électron.

L'équation C.25 traduit la conservation de l'énergie : l'énergie du photon émis est égale à la somme de l'énergie cinétique accumulée par l'électron lors de la propagation et du potentiel d'ionisation.

Loi de la coupure quantique :

$$(h\nu)_{max} = F(I_p/U_p).I_p + 3,17 U_p \quad (\text{C.26})$$

avec F un facteur variant entre 1.32 et 1.2 pour I_p/U_p entre 0 et 4.

Expression de la phase harmonique en fonction de l'éclairement de génération (pour des éclairements supérieurs à $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$) :

$$\varphi_{at,q}^{[k]} = -\alpha_{at,q}^{[k]}.I + \varphi_0(q, [k]) \quad (\text{C.27})$$

avec $[k]$ indiquant les trajectoires courtes ($[c]$) ou longues ($[l]$), et $\varphi_0(q, [k])$ une constante.

C.3 Réponse macroscopique du milieu

Le champ macroscopique E_q est la somme cohérente des champs individuels $A_q \exp(i\varphi_{at,q})$ de la zone d'interaction :

$$E_q \propto \int A_q(r, z) \exp(i\varphi_{at,q}(r, z)) \exp(-i(\mathbf{k}_q - q\mathbf{k}_1)\mathbf{r}) d\mathbf{r} \quad (\text{C.28})$$

avec $\mathbf{k}_q$ le vecteur d'onde associé au champ harmonique d'ordre q et $\mathbf{k}_1$ celui associé au champ fondamental, et $\varphi_{at,q}$ la phase atomique du rayonnement harmonique (voir équation C.27).

Condition d'accord de phase :

$$\mathbf{k}_q = q\mathbf{k}_1 + \mathbf{K} \quad (\text{C.29})$$

Avec $\mathbf{K}(r, z) = \nabla\varphi_{at,q} = -\alpha_{at,q}^{[k]} \nabla I(r, z)$.

Vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$:

$$\mathbf{k}_1(r, z) = \mathbf{k}_1^0 + \mathbf{k}_{geo}(r, z) = \frac{n_1\omega}{c}\mathbf{u}_z + \nabla\varphi_{Gouy}(r, z) \quad (\text{C.30})$$

avec $\varphi_{Gouy}(r, z)$ la phase de Gouy associée à la focalisation du faisceau :

$$\varphi_{Gouy}(r, z) = \arg \left[\frac{1}{b + 2iz} \exp \left(-\frac{k_1^0 r^2}{b + 2iz} \right) \right] \quad (\text{C.31})$$

où b est le paramètre confocal, et $k_1^0 = \frac{n_1\omega}{c}$.

Longueur de cohérence :

$$L_{coh} = \left| \frac{\pi}{\Delta\mathbf{k}} \right| \quad (\text{C.32})$$

Désaccord de phase introduit par l'indice du milieu générateur pour l'harmonique q :

$$\Delta\mathbf{k}_q^{at} = \mathbf{k}_q^{at} - q\mathbf{k}_1^{at} = \frac{q\omega_0\rho}{2c}(\kappa_q^{at} - \kappa_1^{at})\mathbf{u}_z \quad (\text{C.33})$$

avec κ^{at} la polarisabilité statique du milieu et ρ sa densité (en atomes/cm³).

Désaccord de phase introduit par la densité électronique du milieu :

$$\Delta\mathbf{k}_q^{elec} = \mathbf{k}_q^{elec} - q\mathbf{k}_1^{elec} = \frac{\omega_p^2}{2cq\omega}(q^2 - 1)\mathbf{u}_z \quad (\text{C.34})$$

où la fréquence plasma ω_p est définie par :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{e^2\rho_e}{m_e\varepsilon_0}} \quad (\text{C.35})$$

avec ρ_e la densité d'électron libre, m_e et e la masse et charge de l'électron et ε_0 la permittivité du vide.

Longueur d'absorption L_{abs} : (longueur au bout de laquelle l'amplitude du rayonnement est atténuée d'un facteur $1/e$)

$$L_{abs}(\lambda) = \frac{1}{\rho \sigma_{abs}(\lambda)} \quad (\text{C.36})$$

avec σ_{abs} la section efficace d'absorption.

Conditions de conversion pour obtenir 50% de la valeur asymptotique pour un milieu générateur de longueur L :

$$\begin{cases} L > 3L_{abs} \\ L_{coh} > 5L_{abs} \end{cases} \quad (\text{C.37})$$

Annexe D

Formulaire du chapitre 3

Intégrale B :

$$B = \frac{2\pi}{\lambda} \int n_2 I(z) dz \quad (\text{D.1})$$

où n_2 l'indice non-linéaire du milieu de propagation et λ la longueur d'onde du laser.

Formule des réseaux :

elle permet de calculer la position des harmoniques sur le détecteur et de calibrer les spectres en longueur d'onde.

$$n \sin r = -n \sin i + m \frac{\lambda}{a} \quad (\text{D.2})$$

où n l'indice du milieu de propagation de l'onde incidente (de longueur d'onde λ), i l'angle d'incidence, r l'angle de réflexion correspondant à une interférence constructive, a le pas du réseau et m l'ordre de diffraction.

Temps de vol :

$$\tau_{vol} = 2L \sqrt{\frac{m}{qV}} \quad (\text{D.3})$$

avec L la longueur d'une région, m la masse de l'ion, et $q = Ze$ sa charge.

Calcul du nombre de photons avec le TOF :

$$N_{ph} = \frac{N_{ion}}{\rho \sigma l \eta} \quad (\text{D.4})$$

où ρ est la densité du gaz, σ la section efficace d'ionisation, l la longueur de la zone sensible, et η l'efficacité de détection globale du TOF.

Valeur moyenne de la section efficace d'ionisation :

$$\sigma_{moy} = \frac{1}{E_2 - E_1} \int_{E_1}^{E_2} \sigma dE \quad (D.5)$$

Energie de l'impulsion XUV en fonction du nombre de photons :

$$E_{pulse} [\mu J] = N_{ph} e E_{ph} [eV] \times 10^6 \quad (D.6)$$

Nombre d'électrons produit par la photodiode XUV :

$$N_e = \frac{Q}{e} = \frac{1}{Re} \int U dt \quad (D.7)$$

Le nombre de photons N_{ph} correspondant pour une harmonique q :

$$N_{ph} = \frac{3.63 N_e}{h\nu_q} \quad (D.8)$$

Récapitulatif des caractéristiques de la source :

gaz	ϕ_{opt} mm	$H_{cut-off}$	$E_{cut-off}$ eV	Nb_{ph} /tir	E_{XUV} nJ
Ar	8	33	50	1.1×10^{11}	570
Ne	10	69	105	2×10^{10}	200
Kr	9.5	29	45	-	-

TABLE D.1 – Récapitulatif des caractéristiques de la source dans des conditions standards avec des impulsions génératrices de 50 mJ et 40 fs. Harmoniques générées dans un jet de gaz de diamètre 250 μ m avec 3.5 bar de pression en amont placé 18 mm après le foyer. Mesures du nombre de photons effectuées avec le spectromètre à temps de vol de H11 à H31 pour l'argon et de H15 à H69 pour le néon.

Annexe E

Formulaire du chapitre 4

Waist d'un faisceau gaussien focalisé avec une lentille de focale f :

$$W_0 \approx \frac{\lambda f}{\pi W_1} \quad (\text{E.1})$$

où W_1 est la largeur du faisceau avant focalisation. L'approximation est valable lorsque $\frac{f}{W_1} \gg 1$.

Front d'onde d'un faisceau gaussien après la traversée d'une lentille de focale f pour un front d'onde initialement plan :

$$\phi(r) = \frac{\pi r^2}{\lambda f} \quad (\text{E.2})$$

Champ électrique du faisceau externe après réflexion sur le *TOP mirror* :

$$E(r) = E_0 e^{-i \frac{\pi r^2}{\lambda f}} e^{-\frac{r^2}{W_1^2}} \quad (\text{E.3})$$

Champ électrique du faisceau interne après réflexion sur le *TOP mirror* :

$$E_{int}(r) = E_0 e^{-i \frac{\pi r^2}{\lambda f}} e^{-\frac{r^2}{W_1^2}} e^{-i\delta\phi} \quad (\text{E.4})$$

Champ électrique dans la région focale :

$$E(r_0, z) = \frac{2\pi i}{\lambda(f+z)} \int_0^\infty r E(r, z_m) e^{-i \frac{\pi(r^2 + r_0^2)}{\lambda(f+z)}} J_0\left(\frac{2\pi r r_0}{\lambda(f+z)}\right) dr \quad (\text{E.5})$$

Fonction de Bessel d'ordre zéro :

$$J_0(x) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{(p!)^2} \left(\frac{x}{2}\right)^{2n} \quad (\text{E.6})$$

Annexe F

Formulaire du chapitre 5

F.1 Couplage d'impulsions intenses dans des capillaires creux

Expression du champ électrique des modes EH_{nm} d'un capillaire creux dans un repère cylindrique où l'impulsion se propage selon l'axe z :

$$\begin{cases} E_{r,nm}(r, \theta) = J_{n-1}\left(\alpha_{nm} \frac{r}{a}\right) \sin(n\theta + \varphi) \\ E_{\theta,nm}(r, \theta) = J_{n-1}\left(\alpha_{nm} \frac{r}{a}\right) \cos(n\theta + \varphi) \end{cases} \quad (\text{F.1})$$

où J_{n-1} est la fonction de Bessel d'ordre $n - 1$ (voir annexe F), α_{nm} est la racine m-ème de l'équation $J_{n-1}(\alpha_{nm}) = 0$, φ est une constante de phase, et a le rayon du capillaire.

Profil d'intensité du mode EH_{nm} :

$$I_{nm}(r) = I_0 J_{n-1}^2\left(\alpha_{nm} \frac{r}{a}\right) \quad (\text{F.2})$$

Profil d'intensité du mode EH_{11} :

$$I_{11}(r) = I_0 J_0^2\left(\alpha_{11} \frac{r}{a}\right) \quad (\text{F.3})$$

avec $J_0(x) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{(n!)^2} \left(\frac{x}{2}\right)^{2n}$ et $\alpha_{11} = 2.4048$.

k	$J_0(x)$	$J_1(x)$	$J_2(x)$	$J_3(x)$	$J_4(x)$	$J_5(x)$
1	2.4048	3.8317	5.1356	6.3802	7.5883	8.7715
2	5.5201	7.0156	8.4172	9.7610	11.0647	12.3386
3	8.6537	10.1735	11.6198	13.0152	14.3725	15.7002
4	11.7915	13.3237	14.7960	16.2235	17.6160	18.9801
5	14.9309	16.4706	17.9598	19.4094	20.8269	22.2178

TABLE F.1 – Racine des fonction de Bessel.

Taux de couplage C_{1m} d'un faisceau laser gaussien dans les modes de propagation EH_{1m} en fonction du rapport $\frac{w_0}{a}$ (a est le rayon interne du capillaire et w_0 le waist du faisceau) :

$$C_{1m} = \frac{\left(\int_0^a e^{-\frac{r^2}{w_0^2}} J_0\left(\alpha_{1m} \frac{r}{a}\right) r dr \right)^2}{\int_0^{+\infty} e^{-2\frac{r^2}{w_0^2}} r dr \int_0^a J_0^2\left(\alpha_{1m} \frac{r}{a}\right) r dr} \quad (\text{F.4})$$

Amortissement :

L'énergie transmise dans le mode EH_{1m} en fonction de la longueur L du capillaire et transmission énergétique :

$$\begin{cases} E_{out} = T_{1m} E_{in} \\ T_{1m} = e^{-\eta_{1m} L} \end{cases} \quad (\text{F.5})$$

où E_{in} est l'énergie à l'entrée du capillaire, E_{out} l'énergie en sortie, et η_{1m} le taux d'amortissement défini par ([Dorchies 99]) :

$$\eta_{1m} = \text{Im} \left(\frac{\alpha_{1m}^2 \lambda^2 (\varepsilon_v + \varepsilon_w)}{8 \pi^2 a^3 (\varepsilon_v - \varepsilon_w)^{\frac{1}{2}}} \right) \quad (\text{F.6})$$

où $\varepsilon_w = 2.25$ est la permittivité relative du diélectrique, et ε_v la permittivité relative du vide égale à 1.

Vitesse de groupe :

Vitesse de groupe d'une impulsion laser qui se propage dans un modes EH_{1m} d'un capillaire creux :

$$\nu_{1m}^g = c \sqrt{1 - \left(\frac{\alpha_{1m} \lambda}{2 \pi a} \right)^2} \quad (\text{F.7})$$

Dispersion de vitesse de groupe pour un mode EH_{1m} :

$$GVD_{1m} \approx -\frac{\alpha_{1m}^2 \lambda^3}{8 \pi^3 a^2 c^2} \quad (\text{F.8})$$

F.2 Élargissement spectrale

Effet Kerr :

$$n(t) = n_0 + n_2 I(t) \quad (\text{F.9})$$

Élargissement spectral par variation temporelle de l'indice optique :

$$\omega(t) = \frac{d\phi}{dt} = \omega_0 - \frac{\omega_0}{c} \int_0^l \frac{dn(t, z)}{dt} dz \quad (\text{F.10})$$

Élargissement spectral par auto-modulation de phase : eq. F.9 donne :

$$\frac{\partial n(t)}{\partial t} = n_2 \frac{\partial I(t)}{\partial t} \quad (\text{F.11})$$

eq. F.10 donne :

$$\omega(t) = \frac{d\phi}{dt} = \omega_0 - \frac{\omega_0 n_2}{c} \int_0^l \frac{\partial I(t, z)}{\partial t} dz \quad (\text{F.12})$$

Gaz	$I_p(I)$ (eV)	$I_p(II)$ (eV)
He	24,58	54,42
Ne	21,56	41,1
Ar	15,76	27,6
Kr	14,00	24,36
Xe	12,13	20,97

TABLE F.2 – Potentiel d'ionisation de première et deuxième ionisation des gaz rares.

Élargissement spectral par ionisation : l'indice du milieu ionisé s'écrit :

$$n(t, z) = \left(1 - \frac{n_e(t, z)}{n_c}\right)^{1/2} \quad (\text{F.13})$$

$n_e(t, z)$ est la densité électronique

n_c est la densité critique : $1.7 \times 10^{21} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ à 800 nm

au première ordre :

$$\frac{\partial n(t)}{\partial t} = -\frac{1}{2n_c} \frac{\partial n_e(t)}{\partial t} \quad (\text{F.14})$$

La pulsation instantanée s'écrit :

$$\omega(t) = \frac{d\phi}{dt} = \omega_0 + \frac{\omega_0}{c} \int_0^l \frac{\partial n_e(t, z)/\partial t}{2(1 - n_e(t, z)/n_c)^{1/2}} dz \quad (\text{F.15})$$

au première ordre :

$$\omega(t) = \omega_0 - \frac{\omega_0}{2cn_c} \int_0^l \frac{\partial n_e(t, z)}{\partial t} dz \quad (\text{F.16})$$

Durée d'une impulsion gaussienne à dérive de fréquence quadratique :

$$\tau^2 = \tau_0^2 + (4 \ln 2 \frac{\phi''}{\tau_0})^2 \quad (\text{F.17})$$

ou

$$\tau^2 = \tau_0^2 (1 + (2,77 \frac{\phi''}{\tau_0^2})^2) \quad (\text{F.18})$$

Annexe G

Liste de publications

1. C. Fourcade-Dutin, A. Dubrouil, S. Petit, E. Mével, E. Constant and D. Descamps. *"Post-compression of high-energy femtosecond pulses using gas ionization"*. Opt. Lett., vol. **35**, no. 2, pages 253 - 255, Jan 2010.
2. A. Dubrouil, Y. Mairesse, B. Fabre, D. Descamps, S. Petit, E. Mével and E. Constant. *"Controlling high harmonics generation by spatial shaping of high-energy femtosecond beam"*. Opt. Lett., vol. **36**, no. 13, pages 2486 - 2488, Jul 2011.
3. R. A. Loch, A. Dubrouil, R. Sobierajski, D. Descamps, B. Fabre, P. Lidon, R. W. E. van de Kruijs, F. Boekhout, E. Gullikson, J. Gaudin, E. Louis, F. Bijkerk, E. Mével, S. Petit, E. Constant and Y. Mairesse. *"Phase characterization of the reflection on an extreme UV multilayer : comparison between attosecond metrology and standing wave measurements"*. Opt. Lett., vol. **36**, no. 17, pages 3386 - 3388, Sep 2011.
4. H. J. Wörner, J. B. Bertrand, B. Fabre, J. Higuët, H. Ruf, A. Dubrouil, S. Patchkovskii, M. Spanner, Y. Mairesse, V. Blanchet, . Mével, E. Constant, P. B. Corkum and D. M. Villeneuve. *"Conical intersection dynamics in NO₂ probed by homodyne high-harmonic spectroscopy"*. Science, vol. **334**, no. 6053, pages 208 - 212, Oct 2011.
5. E. Constant, A. Dubrouil, O. Hort, S. Petit, D. Descamps and E. Mével. *"Spatial shaping of intense femtosecond beams for the generation of high energy attosecond pulses"*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **44** (submitted).
6. T. Auguste, O. Gobert, C. Fourcade Dutin, A. Dubrouil, Y. Mairesse, E. Mével, S. Petit, E. Constant, and D. Descamps, *"Application of optical-field-ionization-induced spectral broadening to the postcompression of high-energy femtosecond laser pulses"*, J. Opt. Soc. Am. B (submitted).