N°d'ordre : 3893

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE DE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par **Marion HARMAND**

pour obtenir le grade de

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : ASTROPHYSIQUE, PLASMA, CORPUSCULES

****

SPECTROSCOPIE D'ABSORPTION X RÉSOLUE EN TEMPS POUR L'ÉTUDE DE LA MATIÈRE DENSE ET TIÈDE.

****

Soutenue le : 27 Novembre 2009

Après avis de :

M.	**P. Monot**	***Rapporteur***
M.	**A. Rousse**	***Rapporteur***

Devant la commission d'examen formée de :

M.	**F. DORCHIES**	*Directeur de thèse*
M.	**F. GOBET**	*Président du Jury*
M.	**P. MONOT**	*Rapporteur du Manuscrit*
M.	**O. PEYRUSSE**	*Directeur de thèse*
M.	**P. RENAUDIN**	*Rapporteur du Jury*
M.	**A. ROUSSE**	*Rapporteur du Manuscrit*
M.	**T. TSCHENTSCHER**	*Membre du Jury*

à Lulu

Remerciements

Je remercie tout d'abord Jean-Claude Gauthier pour avoir soutenu ma candidature à un financement de thèse CNRS-Région et m'avoir ainsi permis d'effectuer ma thèse au sein de laboratoire CELIA. Je remercie aussi Philippe Balcou, directeur du CELIA pendant ma thèse.

Je remercie également Antoine Rousse et Pascal Monot, pour avoir été les rapporteurs de cette thèse, ainsi que l'ensemble des membres du jury, Franck Gobet, Patrick Renaudin et Thomas Tschentscher. Leur bienveillance et leurs remarques ont été particulièrement appréciées et constructives.

Je remercie très chaleureusement mes deux directeurs de thèse Olivier Peyrusse et Fabien Dorchies. Je retiendrais parmi tant d'autres bonnes choses, leur rigueur, leur patience, leurs explications claires et pédagogiques, très complémentaires. En plus de m'avoir appris tant de choses... ils ont été tout deux, dans des styles très différents, de véritables soutiens scientifiques et humains. Merci encore !

Ce travail a été réalisé au sein de l'équipe SXPI, où bonne humeur et blagues de tous genres, riment avec travail (excellent par ailleurs...). Je citerais donc parmi les champions Claude Fourment, Joao Santos, Sébastien Hulin et d'autres jamais en reste, Benjamin Vauzour, Anna Levy, Pierre Botheron (dont la "calmitude" m'a été plus que souvent "salvatrice"...), Bernard Pons et Hervé Jouin (merci pour tous ces conseils avisés). Un grand merci aussi aux laseristes, mécanos et secrétaires... sans eux le monde (enfin au moins celui du CELIA) ne tournerait pas.

Ce travail de thèse a été l'objet de collaborations avec le LULI, l'INRS et le CEA. De nombreuses expériences ont été réalisées au LULI, menées par Séréna Bastiani, Julien Fuchs, Patrick Renaudin et Patrick Audebert. Ce sont d'excellents souvenirs (et oui même ces longues soirées pendant les manips de Julien, accompagnées des fameuses pâtes de la cuisine du 100TW), des amitiés et beaucoup de découvertes qui m'ont été offerts. Merci encore et toujours aux techniciens et laseristes. Je remercie aussi fortement François Amiranoff qui m'a permis de venir travailler de nombreuses fois dans son laboratoire et qui a toujours été disponible et chaleureux.

J'ai eu aussi le plaisir d'aller travailler et de maniper au Canada au début de ma thèse, avec Jean Claude Kieffer, Sylvain Fourmaux, Ludovic Lecherbourg que je remercie, ainsi que les équipes techniques, pour leur accueil et pour ces fameux repas poutine - tarte au sucre.

Enfin, je tiens à remercier toutes celles et ceux qui ont été particulièrement présents pendant ces années :
- ceux du CELIA, collègues et amis, Dominique, Yann, Baptiste, Gamiiin, Samy, Thomas, Julien, Christophe (non je te rassure, je ne crois pas avoir épuisé Fabien... pas faute d'avoir essayé... il a des ressources le bougre !!), les thésards et stagiaires et puis l'intégralité des membres du CELIA, pour savoir faire vivre la cafétéria, centre névralgique du laboratoire, comme il se doit dans le travail et la bonne humeur.
- ceux du LULI, auxquels s'ajoutent à ceux déjà cités Jean Raph (dont les blagues m'ont permis de m'esclaffer de rire même dans les jours les plus longs...), Ana, Moto, Jean Marc... cela aura été un grand plaisir de venir travailler avec vous.
- ceux du CENBG et affiliés : Fred, Jean Steph, Medhi, Jérome Junior, Pauline, Fazia pour son soutien... Avec une mention spéciale pour Mathias, mentor spirituel du militantisme et Jérôme (ah !! le "vieux" de la CGT) qui m'ont tellement appris... !!
Et puis merci aussi à Clothilde pour avoir été si sage pendant ces longues heures de correction...

Sans oublier les compagnons de tous les jours Yann, Béata et Ephrem, Marco et Amy, Aurélie, Bastien et Mathys, Cécile, Bab (encore merci Colloc), Michou (chapeau le cuisto et surtout merci) qui s'ajoutent aussi aux "camarades des barricades" (certains déjà cités...), je pense à Guillaume et Delphine, Marie et tous les autres... on dirait le Sud...

Et puis évidemment les poètes, ceux qui écoutent inlassablement le frottement des pieds sur le sol, le bruit de la peau qui s'étire ou encore le bruit du sang qui circule, Nina, Camille, Jean, Grégoire (de leurs petits noms, Paul, Robert, Agnes et Jennifer)... et tous les autres...sans oublier ce cher Rachid qui m'a donné beaucoup de détermination et de courage en cette fin de thèse... !

Et puis je voudrais aussi en profiter pour remercier le fameux "service public", celui de l'Université et de la Recherche, peut être dernier lieu où subsiste encore un peu les notions de liberté intellectuelle, d'émancipation et d'expression, qualités indéniables à l'épanouissement de l'étudiant, du jeune thésard, de l'enseignant et du chercheur. Je lui souhaite bonne chance...

Et finalement il y a ceux de la vie de tous les jours, ceux qui ont été là à toutes heures : Joao et ma famille... peut être que les mots ne conviennent plus... alors peut être juste un immense MERCI...

Table des matières

Résumé **iii**
Bibliographie vii

Introduction **1**
Bibliographie 13

1 Spectroscopie X des plasmas denses **17**
1.1 Mécanismes d'émission X de plasmas chauds créés par lasers 18
1.1.1 Interaction laser - matière : profils de densité et de température . . 18
1.1.2 Processus atomiques mis en jeu dans l'émission X 19
1.1.3 Émission de couche M de plasmas de Z élevé 22
1.1.4 Codes de physique atomique et calcul de l'émission X de plasmas chauds et denses 24
1.2 Spectroscopie d'absorption X de la matière dense et tiède 27
1.2.1 Spectroscopie fine d'absorption X près des seuils 29
1.2.2 Pré-requis expérimentaux 33
1.2.3 Calculs d'un spectre d'absorption XANES 35
1.3 Conclusion 39
Bibliographie 40

2 Dispositif expérimental pour la caractérisation spectrale et temporelle d'une source X créée par laser **43**
2.1 Dispositif expérimental 43
2.1.1 Le laser Aurore du CELIA 43
2.1.2 Spectroscopie X intégrée en temps 50
2.1.3 Spectroscopie X résolue en temps 56
2.2 Analyse et méthodologie 59
2.2.1 Calibration spectrale 60
2.2.2 Soustraction du bruit de fond 62
2.2.3 Conversion en nombre absolu de photons 62
2.2.4 Correction des ordres supérieurs du cristal MICA 65
2.2.5 Correction des défauts des cristaux KAP 67
2.2.6 Analyse des spectres résolus en temps 71
Bibliographie 74

3 Caractérisation et optimisation d'une source X ultra-brève et de large bande spectrale 75
3.1 Etude spectrale : spectres intégrés en temps 76
3.1.1 Eléments de Z léger : exemple de l'aluminium 76
3.1.2 Eléments de Z élevé 84
3.1.3 Bilan de l'optimisation spectrale de l'émission X 96
3.2 Etudes temporelles : spectres résolus en temps 97
3.2.1 Cas de l'aluminium 98
3.2.2 Cas des éléments de Z élevé 101
3.2.3 Simulation de la durée d'émission : calcul hydrodynamique simplifié associé au code Averroès - Transpec 104
3.3 Conclusion 113
Bibliographie 115

4 Spectroscopie d'absorption X près du seuil K de l'aluminium 117
4.1 Dispositif expérimental adapté à la spectroscopie d'absorption X 118
4.1.1 Premier dispositif expérimental à un cristal 120
4.1.2 Dispositif expérimental à deux cristaux 124
4.1.3 Origine du bruit et optimisation 128
4.1.4 Analyse du spectre d'absorption X près du flanc K de l'aluminium froid 133
4.2 Aluminium dense et tiède : chauffage par protons 140
4.2.1 Expérience de chauffage par protons 140
4.2.2 Qualité des spectres XANES « froids » (discussion sur le bruit lié aux protons) 143
4.2.3 Spectres XANES de l'aluminium chauffé 145
4.3 Conclusion 155
Bibliographie 157

Conclusion et perspectives 159
Bibliographie 163

Annexe 165

Liste de publications 167

Résumé

L'étude des plasmas denses et tièdes est un domaine qui suscite aujourd'hui l'intérêt de nombreux groupes de recherche de part son large spectre d'applications. Ce régime de la matière, qui recouvre une densité proche de celle du solide et une température allant de 0.1 à une dizaine d'eV, est encore mal connu et présente une grande complexité de part son caractère partiellement dégénéré (électrons) et partiellement corrélé (ions). Afin d'explorer ce régime, nous proposons de le sonder par spectroscopie d'absorption X près des seuils grâce à une source X ultra-rapide (ps), intense, produite par laser. La spectroscopie d'absorption X près des seuils (XANES, EXAFS) est un diagnostic qui permet l'étude de la structure atomique locale de milieux éventuellement non-cristallins (solides, liquides, plasmas denses et tièdes). Elle nécessite l'utilisation de sources X de large bande spectrale ajustée au seuil d'absorption de l'élément étudié.

Ma thèse s'est déroulée en plusieurs étapes. Dans un premier temps, nous nous sommes attachés à développer une source X ultra-brève (quelques picosecondes) créées par laser et adaptée à la spectroscopie d'absorption X de l'aluminium. Nous avons réalisé une telle source X en utilisant le rayonnement de couche M de plasmas d'éléments de Z élevé, produits par une impulsion laser femtoseconde focalisée sur une cible solide : plus particulièrement issu du faisceau de transition $4f - 3d$. Le spectre d'émission de cette source a été étudié autour du flanc K de l'aluminium, c'est-à-dire dans la gamme de 1.50 à 1.75 keV. Une série d'expériences, consistant en des mesures spectrales et temporelles de l'émission X, a été effectuée avec un laser kHz (5 mJ, 30 fs), focalisé sur différentes cibles solides : Sm, Gd, Dy, Er et Yb. Les résultats ont été comparés avec des simulations Averroès - Transpec (code collisionnel - radiatif hors équilibre thermodynamique local, couplé à un traitement de la physique atomique en superconfigurations [1]). Après optimisation, le rayonnement X étudié présente un spectre large-bande dans la gamme énergétique souhaitée et une durée d'émission de $\sim$ 4 ps. Les intensités X atteintes sont de l'ordre de quelques 10^7 photons par tir, par eV et par sr [2], soit un rendement de 1‰ de l'énergie laser émis dans la gamme 1.50 - 1.75 keV.

Dans un second temps, nous avons développé un spectromètre d'absorption X adapté aux caractéristiques des sources X créées par laser. Ce dispositif consiste en la mesure simultanée du spectre transmis par un échantillon d'aluminium et du spectre dit de référence qui consiste à mesurer directement le rayonnement X émis par la source à chaque tir laser. Cette mesure permet ensuite de calculer la transmission et donc l'absorption corrigée des fluctuations tir à tir de la source X. Des spectres d'absorption ont été enregistrés près du seuil K d'un échantillon froid d'aluminium (20°C), en accumulant quelques milliers de tirs laser (soit quelques secondes seulement à 1 kHz). Les structures XANES sont clairement identifiées et résolues avec un niveau de bruit inférieur à 1 % [3, 4]. De tels spectres

XANES, obtenus sur des installations laser de hautes cadences, ouvrent des perspectives pour la réalisation d'expériences pompe - sonde sur de « petites » installations.

Enfin, nous avons réalisé une expérience en collaboration avec le LULI, afin de caractériser un échantillon d'aluminium préalablement chauffé de façon isochore par un faisceau de protons issus de l'interaction entre une impulsion laser ultra-intense ($\sim 10^{19}$ W/cm^2), ultra-courte (fs) et une cible solide d'or. Grâce à cette méthode, l'échantillon est très rapidement porté à de relativement hautes températures (jusqu'à une dizaine d'eV). Dans ces conditions, la détente du plasma n'intervenant qu'après quelques dizaines de picosecondes, il est possible de sonder le plasma tiède lorsque sa température est homogène et que sa densité est proche de celle du solide [5]. En accord avec des travaux théoriques [6, 7], les résultats expérimentaux montrent une disparition des structures XANES lorsque l'aluminium atteint une température de l'ordre de 1 eV. On attribue cette disparition à une perte de corrélation ion - ion [8, 9].

En perspective de cette étude, nous nous proposons d'étendre ce travail à l'analyse des plasmas denses et tièdes grâce à des techniques de chauffage diverses comme par exemple le chauffage par laser (fs), par propagation de chocs générés par laser (ns), ou encore par chauffage par rayonnement X ou XUV de type FEL (fs). Il est aussi envisagé d'étendre cette étude à d'autres éléments tels que le Fer.

Summary

The possibility of producing, in a controlled way, matter at solid density (1-10 g/cm3) while maintaining it at temperatures ranging from 0.1 to 100 eV has been for a long time a desired goal. At the boundary between condensed matter and plasma physics, the study of matter in the Warm Dense Matter (WDM) regime involves, nowadays, many laboratories worldwide. This state is still poorly understood and presents a very complex character, being partly degenerated (electrons) and partly correlated (ions). To explore this regime, we proposed to probe WDM by X-ray absorption fine spectroscopy with an ultra-fast X-ray source (ps), produced by ultra intense lasers. X-ray absorption fine spectroscopy, specifically XANES and EXAFS spectroscopy, is a diagnostic tool that allows the study of local atomic structures, even in non-crystalline states (solid, liquid, WDM, plasmas). It requires the use of broadband X-ray sources adjusted on the x-ray absorption edge of studied element.

Several steps were necessary for the completion of this work. First, we had to develop an ultra-short X-ray source (a few picoseconds) created by laser and adapted to the X-ray absorption spectroscopy of aluminum. We developed such X-ray source by using the plasma M-shell emission of high Z elements, irradiated by a femtosecond laser. More precisely we used the broad and intense $4f - 3d$ transition arrays. The emission spectrum of this source has been studied around the aluminum K-edge which corresponds to the energetic range 1.50 - 1.75 keV. A series of experiments, consisting of temporal and spectral measurements of the X-ray emission was performed with a kHz laser (5 mJ, 30 fs) focused on different solid targets : Sm, Gd, Dy, Er and Yb. The results were compared with Averroes - Transpec simulations (collisional - radiative code with non local thermodynamic equilibrium, coupled with a superconfiguration treatment of atomic physics [1]). After optimization, the X-ray emission presents a broadband spectrum in the energetic range of interest and a duration of $\sim 3 - 4$ ps. The X-ray intensities are of the order of 10^7 photons per shot per eV per sr [2], representing a conversion rate of 1 ‰ of the laser energy emitted in the energy range 1.50 - 1.75 keV.

In a second step, we developed a spectrometer adapted to X-ray absorption measurements with X-ray sources created by laser. This diagnostic involves the simultaneous measurement of the spectrum transmitted through an aluminum sample and the reference spectrum directly from the source, for each laser shot. This then allows us to calculate the transmission and therefore the absorption, corrected for X-ray source fluctuations. A specific effort has been made to minimize fluctuations and to obtain high quality spectra corrected for laser shot to shot variations and for spurious detector responses. X-ray absorption spectra were recorded for a cold aluminum sample (20 °C) by accumulation of data from a few thousand laser shots (i.e. a few seconds at 1 kHz). XANES structures

are clearly identified and resolved with a noise level below 1 % [3, 4]. These high quality XANES spectra obtained with high repetition rate lasers provide opportunities to conduct pump - probe experiments on tabletop facilities.

Finally, we performed an experiment in collaboration with the LULI laboratory (Ecole Polytechnique), the CEA and the INRS (Canada) to characterize a sample of aluminium isochoricaly heated by a laser accelerated proton beam. The ultra-intense (10^{19} W/cm^2), ultra-short (fs) laser pulse of the LULI 100TW facility was focused on a gold solid target to accelerate protons while a synchronised secondary laser beam is used to create the ultra-short X-ray backlighter, previously described. With this proton heating method, the sample is rapidly raised to relatively high temperatures (up to ten eV). Under these conditions, the expension of plasma becomes relevant only after a few tens of picoseconds and it is possible to probe the aluminum warm dense plasma when its temperature is uniform and its density is close to the solid one [5]. In agreement with theoretical work [6, 7], experimental results show a loss of XANES structures when the aluminum reaches a temperature of about 1 eV. We attributed this XANES structure vanishing to a loss of ion - ion correlation [8, 9].

In perspectives of this study, we propose to extend this work to the analysis of dense and warm plasmas by using different heating techniques such as laser heating (fs), laser shock propagation generated by laser (ns), or by X-ray or XUV FEL heating (fs). It is also planned to extend this study to other elements such as iron.

Bibliographie

[1] O.Peyrusse, J. Phys. B **33**, 4303 (2000) ; ibid J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **71**, 571 (2001).

[2] M. Harmand, F. Dorchies, O. Peyrusse, D. Descamps, C. Fourment, S. Hulin, S. Petit et J. J. Santos, Phys. of Plasmas **16**, 063301 (2009).

[3] F. Dorchies, M. Harmand, D. Descamps, C. Fourment, S. Hulin, S. Petit, O. Peyrusse et J. J. Santos, Appl. Phys. Lett. **93**, 121113 (2008).

[4] A. Levy, F. Dorchies, O. Peyrusse, M. Harmand, D. Descamps, C. Fourment, S. Hulin, S. Petit et J. J. Santos. Soumis à Rev. of Sci. Instrum. (2010).

[5] A. Mancic, J. Robiche, P. Antici, P. Audebert, C. Blancard, P. Combis, F. Dorchies, G. Faussurier, S. Fourmaux, M. Harmand, R. Kodama, L. Lancia, S. Mazevet, M. Nakatsutsumi, O. Peyrusse, V. Recoules, P. Renaudin, R. Sheperd et J. Fuchs, High Energy Density Phys. **6**, 21 (2010).

[6] V. Recoules et S. Mazevet, Phys. Rev. B **80**, 604110 (2009).

[7] O. Peyrusse, J. Phys. Condens. Matter **20**, 195211 (2008).

[8] A. Mancic, A. Levy, M. Harmand, M. Nakatsutsumi, P. Antici, P. Audebert, P. Combis, S. Fourmaux, S. Mazevet, O. Peyrusse, V. Recoules, P. Renaudin, J. Robiche, F. Dorchies et J. Fuchs, Phys. Rev. Lett. **104**, 035002 (2010).

[9] A. Lévy, F. Dorchies, M. Harmand, C. Fourment, S. Hulin, O. Peyrusse, J.J. Santos, P. Antici, P. Audebert, J. Fuchs, L. Lancia, A. Mancic, M. Nakatsutsumi, S. Mazevet, V. Recoules, P. Renaudin, S. Fourmaux, Plasma Phys. Control. Fusion **51**,124021 (2009).

Introduction

Contexte et enjeux des études sur la matière dense et tiède

L'intérêt pour la matière dense et tiède (ou WDM pour Warm Dense Matter) s'explique par sa présence récurrente dans de nombreux systèmes physiques. Le régime WDM intervient dans des domaines aussi variés que l'astrophysique [1], la planétologie [2, 3], la fusion par confinement inertiel [4, 5] ou encore les processus d'ablation et d'usinage par laser à plus petite échelle. C'est en effet ce régime de la matière qui est rencontré dans les naines brunes, les planètes géantes ou au coeur de planètes comme la Terre. C'est encore la WDM que l'on retrouve dans la plupart des transitions solide - plasma. Dans le contexte de la fusion par confinement inertiel, pouvoir modéliser ce régime de la matière qui est un passage obligé devient essentiel. Mesurer et comprendre l'articulation entre la densité, la température, l'organisation globale et locale de la matière dans ce régime permettrait de valider et d'améliorer les modèles actuels. En effet, la matière dense et tiède est un état de la matière à la frontière de l'état solide et du plasma. Il est trop dense pour être décrit comme un plasma quasi - idéal (à faible couplage), pour lequel les modèles cinétiques et fluides sont adaptés. Il est aussi trop chaud pour être décrit par les modèles de la matière condensée [6, 7].

Le diagramme de phase de l'aluminium est représenté sur la figure 1 où le régime de la matière dense et tiède correspond à la zone centrale, situé à la frontière entre différentes approches [6]. Les températures caractéristiques de la WDM s'étendent de 0.1 à 100 eV et les densités sont de 0.1 à 10 fois celle du solide. Comparativement aux plasmas, ce régime est caractérisé par de fortes corrélations entre les ions et une dégénérescence partielle des électrons.

Ainsi, pour un tel état, l'énergie potentielle E_p d'interaction (électrons, ions) et l'énergie thermique E_{th} sont environ du même ordre de grandeur voire $E_p \gtrsim E_{th}$. On définit alors le paramètre de corrélation entre deux particules :

$$\Gamma \propto \frac{E_p}{E_{th}} \tag{1}$$

Dans le cas de corrélations ion - ion, E_p est l'énergie potentielle d'interaction ion - ion et l'énergie thermique est égale à $k_B T_i$ (à l'équilibre la température électronique T_e est égale à la température ionique T_i). Le paramètre de corrélation ion - ion Γ_{ii} s'écrit :

$$\Gamma_{ii} = \frac{Z^2 e^2}{r_0 k_B T_i} \tag{2}$$

avec Z la charge des ions et r_0 la distance interatomique définie par

$$r_0 = \left(\frac{3Z}{4\pi N_i}\right)^{1/3} \tag{3}$$

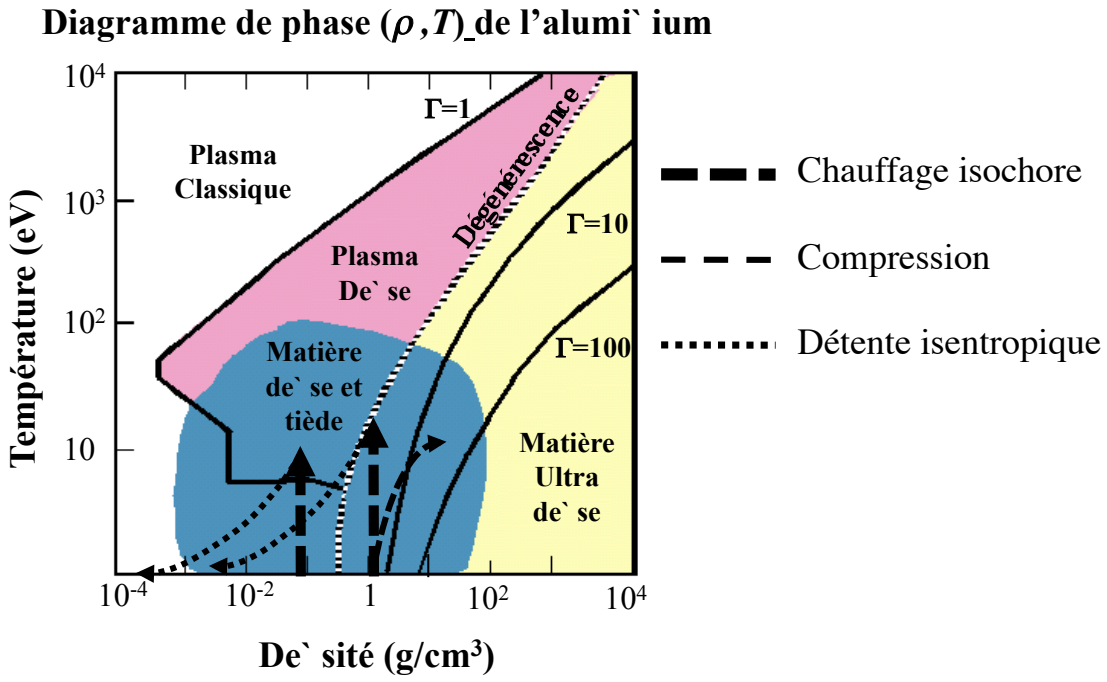


FIGURE 1 – Diagramme de phase (ρ, T) de l'aluminium [6].

avec N_i la densité ionique.
Si $\Gamma \ll 1$, il s'agit d'un plasma faiblement corrélé. Dans le cas de la WDM, le paramètre de couplage Γ varie entre un et quelques centaines (cf. diagramme 1). Dans cette condition, les effets de corrélation à longue et courte portée ne peuvent plus être négligés. Il devient impossible de considérer cet état comme un gaz parfait ionisé. Par rapport à la physique des solides, les températures atteintes sont trop élevées et la matière est désordonnée (mais un ordre à courte portée subsiste).

Nous constatons aussi que ce système de densité élevée est un système où les électrons sont dégénérés. Pour le régime de la matière dense et tiède, on a $k_B T_e \sim E_{Fermi}$, avec E_{Fermi} l'énergie de Fermi. L'hypothèse $k_B T_e \ll E_{Fermi}$, souvent utilisée pour simplifier les modèles, n'est plus valable.

Actuellement, aucune approche théorique ne couvre l'ensemble du domaine (ρ, T) que recouvre le régime WDM, sans compter la dimension supplémentaire apportée par la spécificité de l'élément étudié (métal simple, de transition...), ni même les problèmes de mélanges ou de matériau composites. L'intérêt actuel pour l'étude de la WDM est bel et bien réel et demande une forte implication expérimentale afin de valider les modèles existants, de les améliorer et de les étendre. Se pose alors la difficulté de porter la matière dans ce régime de façon contrôlée et de la sonder en laboratoire.

Création de la matière dense et tiède en laboratoire

Afin d'étudier les caractéristiques de la matière dense et tiède (densité, température, corrélations, dynamique d'évolution...), l'enjeu est d'amener la matière dans ce régime et de pouvoir l'observer. Cela nécessite de porter la matière solide à une température de quelques eV voire quelques dizaines d'eV, éventuellement de la comprimer et de la sonder

avant son expansion (ou d'en suivre l'évolution). Nous discutons ici de deux catégories de possibilités pour des installations lasers : comprimer ou chauffer de façon isochore la matière.

Compression par choc laser

La compression par choc laser est basée sur la propagation d'une onde de choc, générée lors de l'interaction d'un laser intense ($I > 10^{12}$ W/cm^2), de forte énergie (100 J - 1 kJ) et de durée d'impulsion longue (plusieurs centaines de picosecondes à quelques nanosecondes) avec une cible solide. L'absorption de l'énergie laser entraîne la création d'un plasma en face avant de la cible. En réaction de la détente de ce plasma, une force de pression dirigée vers l'intérieur de la cible se développe. Cette pression est à l'origine d'un front de choc qui se propage vers l'intérieur. Pour des études de la matière dense et tiède, les chocs doivent être de très bonne qualité et produire une compression homogène en épaisseur. [8].

La matière obtenue est soumise à de très hautes pressions, jusqu'à 100 Mbar. Nous pouvons atteindre des états, représentés sur le diagramme de phase de l'aluminium (cf. figure 1), dont la densité est supérieure à celle du solide (typiquement jusqu'à environ trois fois). Des expériences, consistant à étudier la matière dense et tiède créée par chocs laser ont déjà été réalisées [2, 9]. Les températures peuvent atteindre la dizaine d'eV. Les temps caractéristiques de compression étant relativement longs ($\geqslant$ 100 ps), on peut considérer que la matière est à l'équilibre thermodynamique, i.e. la température électronique T_e est égale à la température ionique T_i.

Chauffage isochore

Une autre possibilité est de chauffer la matière de façon isochore (i.e. à densité constante), comme indiqué sur le diagramme de phase de l'aluminium présenté figure 1. Plusieurs densités, inférieures ou égales à celle du solide, sont accessibles en choisissant des matériaux de composition identique mais de densité variable (solides, mousses..., cf. figure 1).

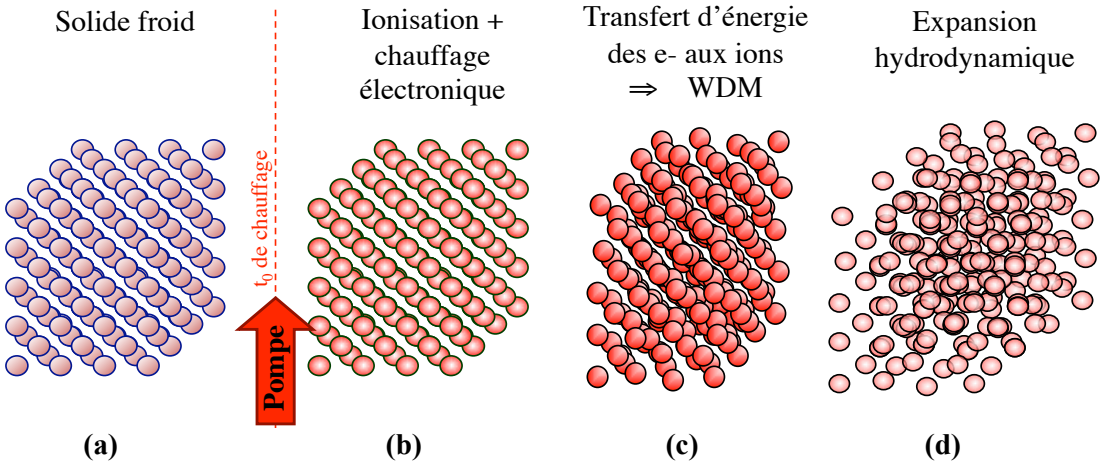


FIGURE 2 – Schéma des étapes successives d'une expérience de chauffage isochore.

Dans le cas d'une étude de la matière dense et tiède obtenue par chauffage isochore, la dynamique de changement de régime de la matière est très différente de celle observée avec les méthodes de compression. Sur la figure 2, nous avons représenté le schéma d'une expérience de chauffage isochore. Un faisceau vient chauffer un échantillon froid au temps t_0 (étape (a)). Dans un premier temps, le chauffage se traduit essentiellement par un transfert d'une partie de l'énergie laser aux électrons et par éventuellement une ionisation de la matière (étape (b)). Dans un deuxième temps, l'énergie des électrons est transférée aux ions pour arriver à un état à l'équilibre $T_e = T_i$ (étape (c)). L'objectif est de venir sonder la matière avant son expansion (étape (d)). L'ensemble des temps caractéristiques dépend du mode de chauffage et des conditions expérimentales choisies, ce que nous détaillerons plus loin. Nous pouvons néanmoins donner quelques ordres de grandeurs : le chauffage électronique est considéré comme quasi instantané (quelques dizaines de fs) à l'échelle de l'expérience et le temps nécessaire pour obtenir l'équilibre électron - ion est estimé en général à la dizaine de picoseconde à densité solide. Le temps caractéristique de l'expansion est évalué par la formule suivante :

$$\tau_{caract.} \sim \ d/c_s \tag{4}$$

avec d l'épaisseur de l'échantillon chauffé et c_s la vitesse d'expansion de l'échantillon chauffé, définie par la formule

$$c_s^2 = \frac{Z^* k_B T_e}{m_i} \tag{5}$$

avec Z^*, le degré d'ionisation moyen , et m_i la masse des ions. Typiquement, pour un échantillon d'aluminium de 0.1 μm d'épaisseur, chauffé uniformément à 1 eV, l'échelle de temps caractéristique de l'expansion est de l'ordre de ~ 30 ps. Pour un chauffage isochore, nous devons être capable de créer et sonder la matière chauffée en un temps plus court que ce temps caractéristique. Selon le type d'impulsion de chauffage choisie, le temps de chauffage et l'épaisseur d qu'il est possible de chauffer varient et limitent les températures accessibles.

Plusieurs options expérimentales sont considérées pour atteindre cet état dense et tiède par chauffage isochore : le chauffage direct par laser, le chauffage par impulsion ultra-brève de particules (protons, électrons...), le chauffage par laser à électrons libres... Nous ne développerons ici que ces quelques exemples. Nous verrons que selon les méthodes de chauffage choisies, la principale difficulté consiste à s'assurer de l'homogénéité, au moins au niveau de la zone étudiée, de la matière dense et tiède.

- *Chauffage par laser*

Les impulsions laser ultra-brèves (sub-picosecondes) permettent de chauffer la matière avant qu'elle ne se détende. En effet, la durée caractéristique du dépôt d'énergie laser dans le solide est du même ordre que la durée de l'impulsion laser (quelques dizaines de femtosecondes). Elle est bien inférieure au temps caractéristique de l'expansion hydrodynamique qui est de quelques picosecondes à quelques dizaines de picosecondes selon les températures atteintes. Cependant, certaines précautions peuvent être prises pour assurer un chauffage isochore. Il est possible d'utiliser des cibles adaptées (multi-couches) pour limiter l'expansion de la matière chauffée et la considérer comme homogène. Dans le cas

d'impulsions laser de contraste élevé, l'interaction avec un plasma sous dense est minimisée, ce qui permet de considérer un plasma plus homogène en densité et d'envisager un chauffage isochore. Cependant, nous ne pouvons considérer comme homogène que la zone dite de l'épaisseur de peau. Cela limite les épaisseurs utilisables à seulement quelques centaines d'angström. Dès lors, la température maximale s'en retrouve aussi limitée. En effet, pour un échantillon d'épaisseur d'environ 300 Å, chauffé à environ 10 eV, l'expansion est très rapide et intervient après moins de 3 ps après le chauffage (cf. équation 4 et 5), ce qui rend difficiles toutes observations de la dynamique de changement de régime. Le chauffage peut aussi se faire par conduction thermique sur des épaisseurs pouvant aller jusqu'à $\sim$ 1000 Å [10]. Le volume chauffé par laser étant réduit, l'énergie laser peut être relativement faible : environ quelques μJ, voire mJ suffisent.

Des expériences basées sur le chauffage par laser ont déjà été réalisées dans ces conditions : une impulsion laser (300 fs, $\sim 10^{15}$ W/cm^2) est focalisée sur une feuille d'aluminium de 45 nm recouverte d'un substrat Si_3N_4 de 25 nm pour limiter les gradients longitudinaux [11]. En comparant les mesures avec des simulations, la matière sondée correspondait à des densités allant jusqu'à $\sim$ 0.3 g/cm^{-3} et des températures allant de $\sim$ 12 à 25 eV. Dans ce cas, la température était relativement homogène et élevée mais la détente, déjà amorcée pendant le chauffage, n'a pas permis ce considérer ce chauffage comme isochore.

- *Chauffage par protons*

La profondeur de pénétration des protons dans la matière est plus importante que celle d'un laser ce qui permet de chauffer la matière en volume. Elle est par exemple d'environ 5 μm pour un proton de 0.5 MeV pénétrant dans de l'aluminium solide. Des faisceaux de protons, intenses et d'énergie élevée, peuvent être produits en face arrière en focalisant une impulsion laser ultra intense ($> 10^{18}$ W/cm^2) sur une feuille solide. L'ensemble de ce phénomène de production et d'accélération a été décrit et modélisé [12]. Les faisceaux de protons créés sont caractérisés par une forte intensité ($\sim 10^{13}$ protons [12]) et une gamme d'énergie très large (de quelques centaines d'eV à plusieurs MeV [13, 14]). Ils sont directionnels (des protons de 20 MeV ont été observés émis dans une demi-angle de 30° [15]) et ils se comportent comme s'ils venaient d'une même « source ponctuelle » (quasi-laminarité [16]). La divergence d'un faisceau de proton peut être ajustable en utilisant des cibles planes ou courbes [12, 17] La durée de l'impulsion de protons est de l'ordre de la picoseconde juste au niveau de la face arrière de la cible de génération [17]. Par la suite, les protons d'énergies différentes se dispersent en temps : après un déplacement de 300 μm, la dispersion temporelle entre des protons de 0.5 MeV et 5 MeV est de $\sim$ 20 ps. De tels faisceaux de protons peuvent être utilisés pour chauffer un échantillon. Le dépôt d'énergie des protons est caractérisé par un plateau suivi d'un pic de Bragg où toute l'énergie résiduelle du proton est déposée localement. Les protons ont la particularité de déposer leur énergie en profondeur dans la matière ce qui permet en théorie d'atteindre des températures de chauffage plus importantes avant que la matière ne se détende trop : la température d'un échantillon de 2 μm d'épaisseur, associé à un temps de chauffage de $\sim$ 30 ps (limité par une impulsion de protons de $\sim$ 20 ps), permet d'envisager des températures allant jusqu'à $\sim$ 100 eV pour pouvoir considérer ce chauffage comme isochore (cf. équation 4 et 5).

Expérimentalement, il a été montré que ce type de faisceau de protons peut chauffer

la matière solide de façon isochore à des températures pouvant aller jusqu'à $\sim$ 20 eV [17, 18, 19]. Dans des expériences récentes [19, 20], un faisceau de protons a été utilisé pour chauffer la matière de façon isochore pendant $\sim$ 25 ps à quelques eV et l'expansion a été considérée significative seulement $\sim$ 60 ps après le début du chauffage.

- *Chauffage par photons issus d'un laser à électron libre*

Plusieurs publications ont démontré l'intérêt des sources X ultra-brèves, de type laser à électrons libres (FEL pour Free Electron Laser), pour des études sur la matière dense et tiède ou encore pour l'étude de plasmas denses [6, 21, 22]. Les installations X-FEL sont en cours de construction mais semblent très prometteuses pour ce genre d'expérimentation. Nous verrons par la suite les caractéristiques détaillées et les performances attendues de ce type d'installation.
L'intérêt de ce type d'installation est double : la durée d'impulsion est attendue à $\sim 30 - 200$ fs ce qui permet un chauffage très rapide et isochore, équivalent au chauffage par laser décrit plus haut ; l'utilisation de rayonnement X permet de chauffer la matière en volume, comme c'est le cas pour un faisceau de protons. Par exemple, la profondeur de pénétration d'un rayonnement X de 3 keV dans de l'aluminium est d'environ 5 μm.

Des premières expériences de chauffage avec un faisceau XUV-FEL ont été réalisées [21]. Une impulsion X de longueur d'onde 13.5 nm (soit 91.8 eV), de durée $\sim$ 15 fs et d'intensité sur cible de 2×10^{14} W/cm^2, a été focalisée sur un cible d'aluminium. L'analyse du spectre d'émission propre UV de la matière dense et tiède a permis de remonter à une température d'environ 38 eV. Des simulations associées à ces expériences ont permis de démontrer que le chauffage est homogène. Les températures attendues avec ce type de chauffage peuvent à priori monter jusqu'à plus de 100 eV [22]. Les durées d'impulsions ultra brèves nous permettent d'envisager de chauffer un solide très rapidement, de façon isochore et en volume.

Diagnostics X pour l'étude de la structure de la WDM

Plusieurs diagnostics ont été développés pour sonder la matière dense et tiède. Souvent issus de diagnostics utilisés pour l'étude des plasmas chauds, ils ont été adaptés aux spécificités de la WDM. Entre autre, nous pouvons considérer deux types de techniques : celles utilisant l'émission propre, de type « passive », du plasma étudié (émission de particules, de photons visibles et UV, ...) ; et celles de type « active », utilisant des sources secondaires (laser UV, IR, sources de particules, sources X...) pour venir sonder un plasma créé par un faisceau pompe.

La première, l'émission propre est limitée dans le cas de la WDM puisque sa température reste très faible en comparaison des plasmas chauds. Schématiquement, l'émission propre de rayonnement X n'est possible que pour un plasma chaud. La température de la WDM ne permet pas d'envisager ce type d'analyse. Il est cependant possible de détecter l'émission propre UV-Visible [23, 21]. A cet effet, des spectromètres ont été développés afin d'obtenir des informations spectrales et temporelles : des diagnostics d'imagerie ultra-rapide (caméra à balayage de fente et Streak Optical Pyrometer SOP [24] et le spectromètre HISAC (pour HIgh speed UV SAmpling Camera) [25].

On peut citer parmi les diagnostics actifs les méthodes suivantes : la mesure de la

phase et de la réflectivité d'un faisceau sonde (diagnostic FDI [26]) ou l'utilisation de sources secondaires de protons [27, 28], d'électrons (EBSD pour Electron Back Scatterring Diffraction [29]) ou de rayonnements X pour la radiographie et la diffusion.

Beaucoup de ces diagnostics donnent accès à des grandeurs caractéristiques de surface de l'échantillon ou à des grandeurs comme la densité et la température. Ils ne permettent pas de sonder l'organisation de la matière (structure, corrélations...). Des diagnostics basés sur l'utilisation du rayonnement X permettent d'apporter des informations structurelles. Nous recensons brièvement quelques uns de ces diagnostics : la diffraction X [30, 31, 32, 33], la diffusion X [34, 9], la diffusion Thomson X [35, 36] et (c) l'absorption X [37, 38].

La diffraction X permet de sonder un milieu structuré globalement, i.e. sur de grandes échelles (cristaux...). Cette technique est connue pour permettre de remonter aux positions atomiques de milieux très structurés tels que les cristaux. Son utilisation est particulièrement bien adaptée aux transitions solide - solide. Elle a permis néanmoins d'étudier la dynamique de transition d'un milieu ordonné vers un milieu désordonné [33, 31]. Associée avec des sources X issues de plasmas créés par un laser femtoseconde, les résolutions temporelles accessibles sont de quelques centaines de femtosecondes [32]. La diffraction X est limitée pour des études sur la WDM puisque très rapidement, ce milieu devient désordonné et le signal de diffraction disparaît.

La diffusion X, variante de la diffraction X, permet de sonder un milieu désordonné (aux grandes échelles de longueur). Dans le cas de matériaux amorphes, la figure de diffraction composée d'anneaux de diffraction, est liée à l'organisation atomique sur de courtes distances. La mesure de l'intensité diffusée pour des angles de diffusion différents permet de remonter directement à la structure du matériau étudié et aux corrélations sur de courtes distances [34, 9]. Cette méthode nécessite un grand nombre de photons X.

La diffusion Thomson X correspond à la mesure de l'émission X diffusée pour un angle donné mais résolue spectralement. Elle permet de remonter à la densité, aux températures ionique et électronique [35] et au couplage des ions d'un matériau désordonné, moyennant un modèle [39].

La spectroscopie d'absorption X près des seuils (XAFS, X-ray Absorption Fine Spectroscopy) est une technique expérimentale permettant de sonder un ordre local dans le volume d'un matériau. Elle a été particulièrement développée au début des années 70 sur des installations synchrotrons [40, 41]. Les techniques XAFS sont aussi particulièrement adaptées pour l'étude de milieux non cristallins, comme la matière dense et tiède. En effet, cette technique permet une mesure de grandeurs locales et est sélective en élément. En choisissant de mesurer un seuil d'absorption particulier, on ne considère qu'un seul type d'atome et l'ordre local autour de cet atome. Nous verrons plus tard (au chapitre 1) que la spectroscopie d'absorption X peut donner accès à des informations comme les densités d'états électroniques et les corrélations ion - ion et les distances interatomiques [40, 42]. La position des flancs d'absorption est liée à la densité ρ et à la température électronique T_e du milieu. On distingue deux types de spectroscopie fine d'absorption X près des seuils : la spectroscopie XANES (X-ray Absorption Near Edge Spectroscopy) qui correspond à la gamme d'énergie très proche du seuil d'absorption jusqu'à quelques dizaines d'eV (en géneral 50 eV) ; et la spectroscopie EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Structure) qui s'étend de $\sim$ 50 eV au delà du seuil d'absorption jusqu'à $\sim$ 700 eV. Ces structures spectrales XANES et EXAFS s'expliquent par un phénomène physique que nous détaillerons aux chapitres 1 et 4 de ce manuscrit. Elles peuvent être très faibles

et leur mesure demande un rapport signal sur bruit élevé (de l'ordre de 1% à 1‰). Ces techniques ont déjà permis, sur des installations lasers très énergétiques, d'approfondir les études sur la matière dense et tiède et de venir compléter des mesures obtenues avec d'autres diagnostics [43]. La position du flanc d'absorption, mesurée lors d'un choc laser, a aussi été mesurée. Son interprétation est encore sujette à controverse [44, 45].

Nous avons choisi de développer un diagnostic de spectroscopie d'absorption X pour accéder à l'organisation locale de la matière, donnée complémentaire des diagnostics existant et ainsi pouvoir éprouver les modèles actuels de la matière dense et tiède. Cela requiert une source X intense et de large bande spectrale autour du flanc d'absorption étudié.

Développement de sources X ultra-rapides

L'étude de la dynamique de la matière portée à un état WDM, en utilisant une source X, revient à mettre en place une expérience de type pompe - sonde. Un faisceau pompe porte la matière dans un état tiède et dense tandis qu'une sonde courte vient sonder la matière à des délais variables par rapport à la pompe. Le faisceau pompe et le faisceau sonde doivent être synchronisés afin de fixer un temps initial d'observation pertinent. Cette méthode permet de résoudre temporellement l'évolution de la matière dense et tiède.
Nous avons vu que, quel que soit le type de chauffage choisi, son temps caractéristique est très court. Pour sonder l'échantillon chauffé avant son expansion hydrodynamique (dans le cas d'un chauffage isochore), ou pendant qu'il est traversé par un choc (dans le cas d'un choc laser), ou voire pour sonder toute la dynamique de la transition de l'état solide à la WDM, la sonde doit alors elle aussi être très courte, i.e. de l'ordre de quelques picosecondes voire sub-picoseconde. Plusieurs types de sources X sont envisageables. Nous ne détaillerons ici que quelques-unes d'entre elles.

Sur la figure 3, nous avons représenté les ordres de grandeurs de l'intensité d'impulsions X, par 0.1% de bande spectrale (BW pour BandWith), i.e. par eV pour un rayonnement X d'énergie de $\sim$ 1 keV pour ces différentes sources. Les taux de répétition, la gamme spectrale accessible, la collimation et la durée d'émission ne sont pas pris en compte pour calculer cette intensité. On constate que les résolutions temporelles s'étendent de la centaine d'attosecondes à la centaine de picosecondes. Cependant, il est important de situer les caractéristiques de chaque type de source, comme l'intensité et les gammes spectrales accessibles, qui sont évidemment critiques pour la spectroscopie d'absorption X près des seuils.

Sources synchrotron

La faisabilité d'expériences de types pompe - sonde avec des sources X très intenses de type synchrotron a déjà été démontrée pour des domaines aussi divers que la biologie, la chimie, la physique [42]. La durée d'impulsion de ce type de source est limitée à environ 50-100 ps [46]. La technique dite de «slicing» offre une durée d'impulsion sub-picoseconde au prix d'un nombre de photons X utiles fortement réduit [47, 48]). Ce type de source X est souvent limitée par la synchronisation avec des faisceaux pompes, en général de type laser. En effet, ces deux faisceaux proviennent d'installations différentes et n'ont souvent pas, par exemple, les mêmes taux de répétition.

Récemment, le développement de nouvelles installations de type laser à électrons libres (FEL pour Free Electron Laser) semble très prometteur pour l'étude dynamique du so-

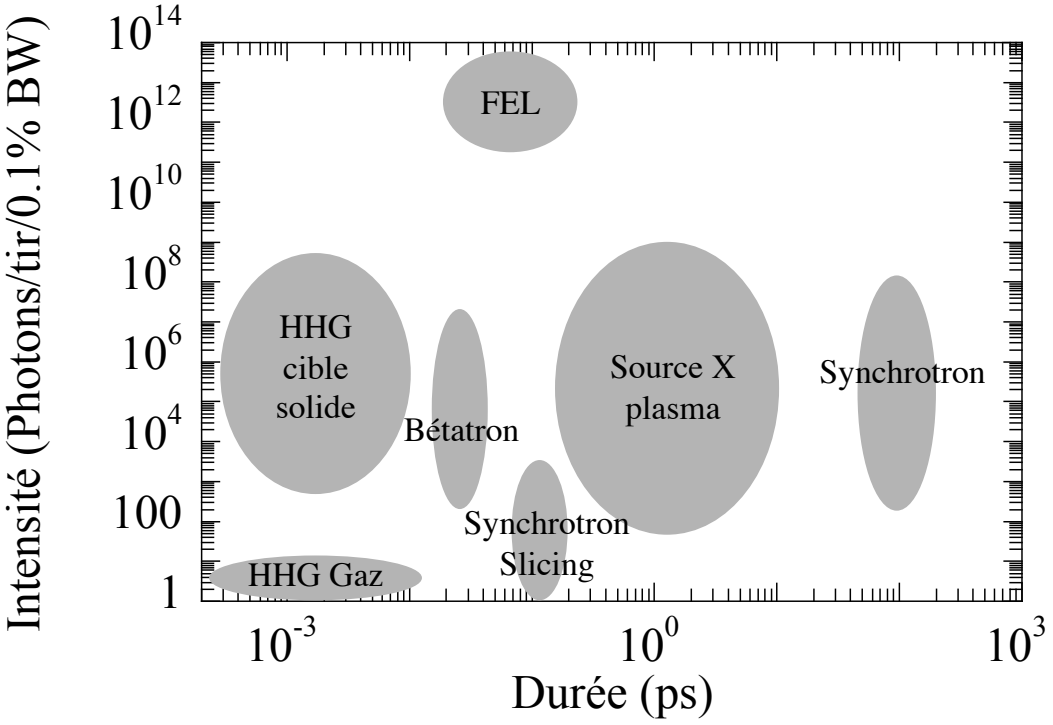


FIGURE 3 – Comparaison des ordre de grandeur des intensités des impulsions X et des résolutions temporelles accessibles. Il s'agit d'un nombre de photons, proches du keV, par impulsion par 0.1% BandWith (BW).

lide porté au régime de la matière dense et tiède. Dans ce cas, un accélérateur linéaire est couplé à des onduleurs qui permettent de faire osciller les électrons accélérés. Ceux-ci émettent alors un rayonnement allant des IR aux rayonnements X de façon synchrone et cohérente (basé sur le processus SASE pour Self-Amplified Spontaneous Emission [49]). Ce phénomène dans sa globalité nécessite des onduleurs de plus de 100 m de long. Ces installations présenteraient des intensités élevées, quelques 10^{16} W/cm^2 après focalisation, un nombre de photons de $\sim 10^{12-13}$ photons par paquet et des durées d'impulsion d'environ 30 à 200 fs [22]. Les gammes énergétiques attendues s'étendent de 0.8 à 3 keV et de 8 à 12 keV. Cependant, lors d'une expérience, la gamme d'énergie de l'émission X est réglée sur une gamme spectrale réduite (rayonnement quasi-monochromatique) [50]. Ce type de source est peu adapté à la spectroscopie d'absorption X mais présente de nombreux avantages pour le chauffage ou pour des diagnostics de diffusion X.

Sources harmoniques

La génération d'harmoniques d'ordres élevés (High Harmonic Generation HHG) est basée sur l'interaction non linéaire d'un laser avec un milieu gazeux [51] ou à la surface d'un solide [52]. Le rayonnement laser ultra bref (quelques dizaines de femtosecondes) est converti en une émission dont les fréquences sont des multiples entiers de la fréquence laser. La gamme d'énergie de cette émission s'étend des UV aux X mous [53]. Cependant, des développements expérimentaux récents permettent d'envisager d'étendre le spectre

des harmoniques jusqu'à 700 eV et voire même jusqu'au keV [54]. Ce type d'impulsion forme un train d'impulsions attosecondes et dont l'enveloppe dure quelques femtosecondes (inférieure à la durée laser). Si on isole une seule de ces impulsions, on peut mesurer une durée inférieure à cent attosecondes [51]. Cependant, l'intensité de cette émission reste très faible lorsqu'elles sont générées dans des gaz : elle a été mesurée en absolue à $\sim 10^{9-10}$ ph/harmonique pour des harmoniques de ~ 50 eV [55] et à quelques 10^{2-3} ph/s, avec une cadence de 1 kHz, intégrés sur ~ 40 eV, pour des harmoniques de 700 eV [56]. Dans le cas des harmoniques créées dans les gaz, la gamme spectrale et l'intensité de ce type d'émission sont donc très limitées. Ces deux points sont aujourd'hui amenés à être améliorés. Dans le cas des harmoniques générées sur cible solide, il a été fait état récemment d'intensités allant jusqu'à $\sim 7\ 10^{12}$ ph/tir pour des harmoniques de 1.5 keV [57]. Ces résultats semblent prometteurs pour le développement d'une source X attoseconde et intense dans le domaine du keV.

Sources bétatron

Les sources X bétatron [58, 59], sont issues de l'interaction d'un laser intense et ultrabref (~ 30 fs) avec un jet de gaz. Un plasma est formé et est à l'origine de l'accélération d'électrons par sillage laser. Un canal d'ion se forme et induit un champ électrostatique dans lequel les électrons vont osciller. C'est ce mouvement oscillatoire qui produit un rayonnement X collimaté, équivalent à l'émission synchrotron. Ce phénomène a lieu sur des distances très petites (quelques mm) par rapport aux synchrotrons. L'émission X émise est caractérisée par une durée approximativement égale à celle du laser, i.e. quelques dizaines de fs, par une taille de source d'environ 20×20 μm. Le nombre de photon moyen obtenu est de $\sim 10^6$ ph/tir/0.1% BW [58]. La difficulté de cette technique réside dans l'accélération des électrons à des énergies suffisamment élevées pour créer un rayonnement X le plus énergétique possible. Actuellement, des électrons d'énergie allant jusqu'à $\sim$ 200 MeV induisent une émission X qui s'étend sur plusieurs keV avec approximativement 10^3 photons de 3 keV par eV [60].

Sources X laser - plasma

Une autre solution consiste à produire une source X ultra brève issue de plasmas chauds et denses créés par une impulsion laser ultra-courte (cf. chapitre 1 de ce manuscrit). Ces sources X sont isotropes et présentent des raies plus ou moins nombreuses, jusqu'à former (pour les atomes de Z élevé) des structures de larges bandes spectrales, superposées à des composantes spectrales continues (émission bremsstralhung et recombinaison radiative). L'intensité de ces sources X est très variable selon la composante discrète ou continue observée, selon la gamme spectrale d'étude et selon les caractéristiques des plasmas émetteurs (i.e. selon les paramètres de l'interaction laser-matière). L'intensité des raies quasi-monochromatiques de type K_α a été mesurée à quelques 10^7 photons, par tir et par stéradian [61]. Ces raies ont d'ailleurs été utilisées, avec les raies He_α, comme sonde X sur des expériences de diffusion Thomson X ou de radiographie X, parfois même lors d'études de la matière dense et tiède [33, 30, 39]. L'émission bremsstralhung, présentant une spectre plat et continu, a déjà été utilisée pour des expériences de spectroscopie d'absorption X [62]. Elle est néanmoins limitée par une trop faible efficacité de conversion et donc un nombre restreint de photons. Les durées de l'émission K_α et bremsstralhung,

liées aux électrons chauds, sont de quelques picosecondes voire sub-picosecondes [65]. Pour palier le problème du nombre de photons et conserver une émission X de large bande spectrale, il est possible d'utiliser l'émission X issue du rayonnement thermique de couche M d'éléments de Z élevés [63, 64]. La durée de ce type d'émission X est inférieure à la dizaine de picoseconde [65].

Méthodologie

Comme nous l'avons vu, la plupart des diagnostics, capables d'apporter des informations sur la WDM sont souvent limités par une profondeur très faible de pénétration dans la matière. Ils ne permettent pas de sonder la matière dans son volume ni d'accéder à des informations structurelles. L'utilisation de rayonnements X a alors été envisagée. Des diagnostics basés sur la diffusion X ont déjà démontré leur fiabilité et les possibilités qui s'en dégagent. La spectroscopie d'absorption X près des seuils se pose comme une technique complémentaire, en permettant de mesurer une structure locale tout en sélectionnant l'élément étudié. Ceci permet d'envisager de suivre un type d'atome donné et d'étudier son voisinage. Ces techniques XAFS sont directement liées à des grandeurs caractéristiques telles que la température, la densité, la densité d'état électronique ou encore les corrélations ion - ion.

Il s'avère que ce type de diagnostic requiert une source X intense, de large bande spectrale dans la gamme du flanc étudié et de durée d'émission ultra-brève (quelques picosecondes voire sub-picoseconde). En réalisant une expérience pompe - sonde, où un faisceau pompe vient porter un échanillon dans un état tiède et dense, tandis qu'un faisceau sonde nous permet de mesurer les spectres XANES et EXAFS, nous pouvons remonter à l'évolution de la structure locale de la WDM. Afin de réaliser ce type d'expérience, les problèmes de synchronisation peuvent devenir critiques. C'est dans cet objectif et dans ce contexte que nous proposons de réaliser une expérience utilisant dans son intégralité un faisceau laser : comme faisceau pompe directement (chauffage laser, chocs) ou indirectement (chauffage par protons...) et pour créer la sonde X. La stratégie adoptée s'est faite en deux temps : le premier temps a consisté à développer une source X adaptée à la spectroscopie d'absorption X, issue de l'interaction d'un laser ultra-intense avec une cible solide ; le deuxième temps a consisté à développer un spectromètre d'absorption X, d'en étudier les limites et possibilités et de l'insérer dans une expérience pompe - sonde.

Pour des raisons, expliquées au chapitre 1 de ce manuscrit, nous avons choisi d'utiliser l'émission X issue de transitions de couche M d'éléments de Z élevé. Le dispositif expérimental pour l'étude de l'émission X d'un plasma chaud et dense, ainsi que les méthodes d'analyse et d'extraction des spectres, sont présentés au chapitre 2. La haute cadence (1 kHz) du laser du laboratoire CELIA a permis une étude systématique et reproductible de la source X en fonction des paramètres lasers. Les résultats concernant l'optimisation de la source X sont regroupés dans le chapitre 3 de ce manuscrit. Nous avons tout d'abord choisi d'étudier l'émission X d'un plasma de Z léger comme l'aluminium et nous avons ensuite procédé à l'étude de l'émission de couche M d'éléments de Z élevé irradiés par laser. Les études ont consisté en une étude temporelle et une étude spectrale de la source X et ont ensuite été comparés à des simulations collisionnelles - radiatives.

En ce qui concerne le spectromètre d'absorption X, nous avons testé deux types de configuration qui seront détaillées au chapitre 4. L'obtention des spectres d'absorption y

est aussi expliquée. Nous avons aussi analysé les spectres d'absorption XANES et EXAFS obtenus : les spectres EXAFS ont été traités par transformée de Fourier et les spectres XANES ont été comparés à deux types de simulations différentes. Pour finir, ce diagnostic après avoir été testé au laboratoire CELIA, a été implanté sur une expérience d'étude de la matière dense et tiède, créée par chauffage isochore par protons, au laboratoire LULI.

Bibliographie

[1] T. Guillot, Science **286**, 72 (1999).

[2] G. Huser, M. Koenig, A. Benuzzi-Mounaix, E. Henry, T. Vinci, B. Faral, M. Tomasini, B. Telaro et D. Batani, Phys. of Plasmas **12**, 060701 (2005).

[3] M. Koenig, A. Benuzzi-Mounaix, A. Ravasio, T. Vinci, N. Ozaki, S. Lepape, D. Batani, G. Huser, T. Hall, D. Hicks, A. MacKinnon, P. Patel, H. S. Park, T. Boehly, M. Borghesi, S. Kar et L. Romagnani, Plasma Phys. Control. Fusion **47**, B441 (2005).

[4] J. D. Lindl, P. Amendt, R. L. Berger, S. G. Glendinning, S. H. Glenzer, S. W. Haan, R. L. Kauffman, O. L. Landen et L. J. Suter, Phys. Plasmas **11**, 339 (2004).

[5] M. Koenig, A. Benuzzi, B. Faral, J. Krishnan, J. M. Boudenne, T. Jalinaud, C. Rémond, A. Decoster, D. Batani, D. Beretta et T. A. Hall, Appl. Phys. Lett. **72**, 1033 (1998).

[6] R. W. Lee, S. J. Moon, H.-K. Chung, W. Rozmus, H. A. Baldis, G. Gregori, R. C. Cauble, O. L. Landen, J. S. Wark, A. Ng, S. J. Rose, C. L. Lewis, D. Riley, J.-C. Gauthier et P. Audebert, J. Opt. Soc. Am. B **20**, 770 (2003).

[7] S. Ichimaru, Rev. Mod. Phys. **54**, 1017 (1982).

[8] M. Koenig, B. Faral, J. M. Boudenne, D. Batani, A. Benuzzi, S. Bossi, Phys. Rev. E **50**, R3314 (1994).

[9] B. Barbrel, M. Koenig, A. Benuzzi-Mounaix, E. Brambrink, C. R. D. Brown, D. O. Gericke, B. Nagler, M. Rabec le Gloahec, D. Riley, C. Spindloe, S. M. Vinko, J. Vorberger, J. Wark, K. W¨ünsch, and G. Gregori, Phys. Rev. Lett. **102**, 165004 (2009).

[10] A. Saemann, K. Eidmann, I. E. Golovkin, R. C. Mancini, E. Andersson, E. Förster et K. Witte, Phys. Rev. Lett. **82**, 4843 (1999).

[11] L. Lecherbourg, P. Renaudin, S. Bastiani-Ceccotti, J.-P. Geindre, C. Blancard, P. Cosse, G. Faussurier, R. Shepherd, P. Audebert, High Energy Density Phys. **3**, 175 (2007).

[12] S. C. Wilks, A.B. Langdon, T. E. Cowan, M. Roth, M. Singh, S. Hatchett, M. H. Key, D. Pennington, A. MacKinnon et R. A. Snavely, Phys. of Plasmas **8**, 542 (2001).

[13] J. Fuchs, Y. Sentoku, S. Karsch, J. Cobble, P. Audebert, A. Kemp, A. Nikroo, P. Antici, E. Brambrink, A. Blazevic, E. M. Campbell, J. C. Fernandez, J.-C. Gauthier, M. Geissel, M. Hegelich, H. Pépin, H. Popescu, N. Renard-LeGalloudec, M. Roth, J. Schreiber, R. Stephens et T. E. Cowan, Phys. Rev. Lett. **94**, 045004 (2005).

[14] M. Allen, P. K. Patel, A. Mackinnon, D. Price, S. Wilks et E. Morse, Phys. Rev. Lett. **93**, 265004 (2004).

[15] A. J. Mackinnon, M. Borghesi, S. Hatchett, M. H. Key, P. K. Patel, H. Campbell, A. Schiavi, R. Snavely, S. C. Wilks et O. Willi, Phys. Rev. Lett. **86**, 1769 (2001).

[16] M. Borghesi, A. J. Mackinnon, D. H. Campbell, D.G. Hicks, S. Kar, P. K. Patel, D. Price, L. Romagnani, A. Schiavi et O.Willi, Phys. Rev. Lett. **92**, 055003 (2004).

[17] P. Antici, J. Fuchs, S. Atzeni, A. Benuzzi, E. Brambrink, M. Esposito, M. Koenig, A. Ravasio, J. Schreiber, A. Schiavi et P. Audebert, J. Phys. IV **133**, 1077 (2006).

[18] P.K. Patel, A.J. MacKinnon, M.H. Key, T.E. Cowan, M.E. Foord, M. Allen, D.F. Price, H. Ruhl, P.T. Springer et R. Stephens, Phys. Rev. Lett. **91**, 125004 (2003).

[19] A. Mancic, J. Robiche, P. Antici, P. Audebert, C. Blancard, P. Combis, F. Dorchies, G. Faussurier, S. Fourmaux, M. Harmand, R. Kodama, L. Lancia, S. Mazevet, M. Nakatsutsumi, O. Peyrusse, V. Recoules, P. Renaudin, R. Sheperd et J. Fuchs, High Energy Density Phys., in press (2009).

[20] A. Mancic, A. Levy, M. Harmand, M. Nakatsutsumi, P. Antici, P. Audebert, P. Combis, S. Fourmaux, S. Mazevet, O. Peyrusse, V. Recoules, P. Renaudin, J. Robiche, F. Dorchies et J. Fuchs, Phys. Rev. Lett. **104**, 035002 (2010).

[21] U. Zastrau, C. Fortmann, R. R. Fäustlin, L. F. Cao, T. Döppner, S. Düsterer, S. H. Glenzer, G. Gregori, T. Laarmann, H. J. Lee, A. Przystawik, P. Radcliffe, H. Reinholz, G. Röpke, R. Thiele, J. Tiggesbäumker, N. X. Truong, S. Toleikis, I. Uschmann, A. Wierling, T. Tschentscher, E. Förster et R. Redmer, Phys. Rev. E **78**, 066406 (2008).

[22] T. Tschentscher et S. Toleikis, Eur. Phys. J. D **36**, 193 (2005).

[23] P. A. Ni, F. M. Bieniosek, M. Leitner, C. Weber, W. L. Waldron, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A **606**, 169 (2009).

[24] J. E. Miller, T. R. Boehly, A. Melchior, D. D. Meyerhofera, P. M. Celliers, J. H. Eggert, D. G. Hicks, C. M. Sorce, J. A. Oertel et P. M. Emmel, Rev. Sci. Instr. **78**, 034903 (2007).

[25] R. Kodama, K. Okada et Y. Kato, Rev. Sci. Instrum. **70**, 625 (1999).

[26] J.-P. Geindre, P. Audebert, S. Rebibo et J.-C. Gauthier, Opt. Lett. **26**, 1612 (2001).

[27] A. Ravasio, *Novel Diagnostics for Warm Dense Matter : Apllication to shock compressed target.*, Thèse de l'école Polytechnique (2007).

[28] D. West et A. C. Sherwood, Nature **239**, 157 (1972).

[29] T. Sano, H. Mori, O. Sakata, E. Ohmura, I. Miyamoto, A. Hirose, K. F. Kobayashi, Appl. Surf. Sci. **247**, 571 (2005).

[30] C. Rose-Petruck, R. Jimenez, T. Guo, A. Cavalleri, C. W. Siders, F. Ráksi, J. A. Squier, B. C. Walker, K. R. Wilson et C. P. J. Barty, Nature **398**, 310 (1999).

[31] A. Rousse, C. Rischel, S. Fourmaux, I. Uschmann, S. Sebban, G. Grillon, Ph. Balcou, E. Foérster, J.P. Geindre, P. Audebert, J.C. Gauthier et D. Hulin, Nature **410**, 65 (2001).

[32] A. Rousse, C. Rischel, J.C. Gauthier, Rev. Mod. Phys. **73**, 17 (2001).

[33] K. Sokolowski-Tinten, C. Blome, C. Dietrich, A. Tarasevitch, M. Horn von Hoegen, D. von der Linde, A. Cavalleri, J. Squier et M. Kammler, Phys. Rev. Lett. **87**, 225701 (2001).

[34] A. M. Lindenberg, S. Engemann, K. J. Gaffney, K. Sokolowski-Tinten, J. Larsson, P. B. Hillyard, D. A. Reis, D. M. Fritz, J. Arthur, R. A. Akre, M. J. George, A. Deb, P. H. Bucksbaum, J. Hajdu, D. A. Meyer, M. Nicoul, C. Blome, Th. Tschentscher, A. L. Cavalieri, R.W. Falcone, S. H. Lee, R. Pahl, J. Rudati, P. H. Fuoss, A. J. Nelson, P. Krejcik, D. P. Siddons, P. Lorazo et J. B. Hastings, Phys. Rev. Lett. **100**, 135502 (2008).

[35] A. Höll, T. Bornath, L. Cao, T. Döppner, S. Düsterer, E. Förster, C. Fortmann, S.H. Glenzer, G. Gregori, T. Laarmann, K. H. Meiwes-Broer, A. Przystawik, P. Radcliffe, R. Redmer, H. Reinholz, G. Röpke, R. Thiele, J. Tiggesbäumker, S. Toleikis, N.X. Truong, T. Tschentscher, I. Uschmann et U. Zastrau, High Energy Density Physics **3**, 120 (2007).

[36] O. L. Landen, S. H. Glenzer, M. J. Edwards, R. W. Lee, G. W. Collins, R. C. Cauble, W. W. Hsing, B. A. Hammel, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **71**, 465 (2001)

[37] S. Tzortzakis, P. Audebert, P. Renaudin, S. Bastiani-Ceccotti, J. P. Geindre, C. Chenais-Popovics, V. Nagels, S. Gary, R. Shepherd, F. Girard, I. Matsushima, O. Peyrusse and J. C. Gauthier, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **99**, 614 (2006).

[38] T. S. Perry, P. T. Springer, D. F. Fields, D. R. Bach, F. J. D. Serduke, C. A. Iglesias, F. J. Rogers, J. K. Nash, M. H. Chen, B. G. Wilson, W. H. Goldstein, B. Rozsynai, R. A. Ward, J. D. Kilkenny, R. Doyas, L. B. Da Silva, C. A. Back, R. Cauble, S. J. Davidson, J. M. Foster, C. C. Smith, A. Bar-Shalom, R. W. Lee, Phys. Rev. E **54**, 5617 (1996).

[39] A. Ravasio, G. Gregori, A. Benuzzi-Mounaix, J. Daligault, A. Delserieys, A.Ya. Faenov, B. Loupias, N. Ozaki, M. Rabec le Gloahec, T. A. Pikuz, D. Riley et M. Koenig, Phys. Rev. Lett. **99**, 135006 (2007).

[40] X-ray Absorption, Principles, Applications, Techniques of EXAFS, SEXAFS and XANES, ed. by D. C. Koningsberger and R. Prins (1988).

[41] D. E. Sayers, E. A. Stern et F. W. Lytle, Phys. Rev. Lett. **27**, 1204 (1971).

[42] C. Bressler, and M. Chergui, Chem. Rev. **104**, 1781 (2004).

[43] B. Yaakobi, T. R. Boehly, T. C. Sangster, D. D. Meyerhofer, B. A. Remington, P. G. Allen, S. M. Pollaine, H. E. Lorenzana, K. T. Lorenz et J. A. Hawreliak, Phys. Rev. Lett. **15**, 062703 (2008).

[44] D.K. Bradley, J. Kilkenny, S. J. Rose et J. D. Hares, Phys. Rev. Lett. **59**, 2995 (1987).

[45] S. Mazevet and G. Zérah, Phys. Rev. Lett. **101**, 155001 (2008).

[46] M. Saes, F. van Mourik, W. Gawelda, M. Kaiser, M. Chergui, C. Bressler, D. Grolimund, R. Abela, Rev. Sci. Instrum. 75, 24 (2004).

[47] R. W. Schoenlein, S. Chattopadhyay, H. H. W. Chong, T. E. Glover, P. A. Heimann, C. V. Shank, A. A. Zholents et M. S. Zolotorev, Science **287**, 2237 (2000).

[48] A. Cavalleri, M. Rini, H. H. W. Chong, S. Fourmaux, T. E. Glover, P. A. Heimann, J. C. Kieffer et R. W. Schoenlein, Phys. Rev. Lett **95**, 0637405 (2005).

[49] P. Emma, K. Bane, M. Cornacchia, Z. Huang, H. Schlarb, G. Stupakov et D. Walz, Phys. Rev. Lett. **92**, 074801 (2004).

[50] K.J. Kim, Y. Shvydko et S. Reiche, Phys. Rev. Lett. **100**, 244802 (2008).

[51] F. Krausz et M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. **81**, 163 (2009).

[52] C. Thaury, H. George, F. Quéré, R. Loch, J. P. Geindre, P. Monot et P.Martin, Nature **4**, 631 (2008).

[53] C. Winterfeldt, C. Spielmann et G. Gerber, Rev. Mod. Phys. **80**, 117 (2008).

[54] J. Seres, E. Seres, A. J. Verhoef, G. Tempea, C. Streli, P. Wobrauschek, V. Yakovlev, A. Scrinzi, C. Spielmann et F. Krausz, Nature **433**, 596 (2005).

[55] J. F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Agostini, B. Carré et P. Salières, Phys. Rev. A **66**, 021801 (2002).

[56] E. Seres, J. Seres, F. Krausz et C. Spielmann, Phys. Rev. Lett. **92**, 163002 (2004).

[57] B. Dromey, D. Adams, S. Kar, C. Bellei, D.C. Carroll, R.J. Clarke, J.S. Green, S. Kneip, K. Markey, S.R. Nagel, P.T. Simpson, L. Willingale, P. McKenna, D. Neely, Z. Najmudin, K. Krushelnick, P.A. Norreys et M. Zepf, Eur. Phys. J. Special Topics **175**, 57 (2009).

[58] A. Rousse, K. Ta Phuoc, R. Shah, A. Pukhov, E. Lefebvre, V. Malka, S. Kiselev, F. Burgy, J. P. Rousseau, D. Umstadter et D. Hulin, Phys. Rev. Lett. **93**, 135005 (2004).

[59] K. Ta Phuoc, E. Esarey, V. Laurent, E. Cormier-Michel, C. G. R. Geddes, C. B. Schroeder, A. Rousse et W. P. Leemans, Phys. Plasmas, **15**, 063102 (2008).

[60] F. Albert, R. Shah, K. Ta Phuoc, R. Fitour, F. Burgy, J. P. Rousseau, A. Tafzi, D. Douillet, T. Lefrou et A. Rousse, Phys. Rev. E **77**, 056402 (2008).

[61] A. Rousse, P. Audebert, J.P. Geindre, F. Falliès, J. C. Gauthier, A. Mysyrowicz, G. Grillon et A. Antonetti, Phys. Rev. E **50**, 2200 (1994).

[62] T. Lee, F. Benesch, Y. Jiang et C. G. Rose-Petruck, Chem. Phys. **299**, 233 (2004).

[63] C. Chenais-Popovic, H. Merdji, T. Missalla, F. Gilleron, J. C. Gauthier, T. Blenski, F. Perrot, M. Klapisch, C. Bauche-Arnoult, J. Bauche, A. Bachelier et K. Eidmann, The Ast. Journal Supp. Series **127**, 275 (2000).

[64] P. Forget, F. Dorchies, J.C. Kieffer, and O. Peyrusse, Chem. Phys. **299**, 259 (2004).

[65] C. Chenais-Popovic, F. Dorchies, P. Audebert, V. Nagels, J. P. Geindre, J. C. Gauthier, O. Peyrusse, S. Gary et F. Girard, J. Phys. IV, **108**, 137 (2003).

Chapitre 1

Spectroscopie X des plasmas denses

Sommaire

1.1 Mécanismes d'émission X de plasmas chauds créés par lasers 18

1.1.1 Interaction laser - matière : profils de densité et de température 18

1.1.2 Processus atomiques mis en jeu dans l'émission X 19

1.1.3 Émission de couche M de plasmas de Z élevé 22

1.1.4 Codes de physique atomique et calcul de l'émission X de plasmas chauds et denses 24

1.2 Spectroscopie d'absorption X de la matière dense et tiède . . 27

1.2.1 Spectroscopie fine d'absorption X près des seuils 29

1.2.2 Pré-requis expérimentaux 33

1.2.3 Calculs d'un spectre d'absorption XANES 35

1.3 Conclusion 39

Bibliographie 40

Afin d'étudier la structure de l'aluminium dense et tiède, nous avons choisi de réaliser une expérience de type pompe - sonde, basée intégralement sur l'utilisation de lasers intenses et ultra-brefs. Le principe est donc de porter la matière à une température de quelques eV et à une densité proche de celle du solide et de la sonder simultanément par spectroscopie d'absorption X. Comme nous l'avons vu en introduction, le chauffage laser peut être induit directement par une impulsion laser ou alors indirectement par un faisceau de particules créé par laser. La source X envisagée est issue de l'interaction d'un laser intense avec une cible solide. Notre approche a consisté à développer une source X adaptée à la spectroscopie d'absorption X et un spectromètre répondant aux spécificités d'une telle source. Afin de mieux appréhender l'étude que nous avons réalisé au laboratoire CELIA puis en collaboration avec le LULI, nous allons commencer par présenter les processus d'émission de rayonnement X d'un plasma chaud et dense créé par laser. Puis nous aborderons la physique liée à la spectroscopie fine d'absorption X près des seuils, appliquée au problème spécifique de la matière dense et tiède.

1.1 Mécanismes d'émission X de plasmas chauds créés par lasers

1.1.1 Interaction laser - matière : profils de densité et de température

Lors de l'interaction d'une impulsion intense et ultra-brève (fs, ps) avec une cible solide, il y a création d'un plasma chaud et dense en face avant de la cible. Les différents phénomènes physiques mis en jeu entraînent une organisation du plasma en plusieurs zones, montrées sur la figure 1.1.

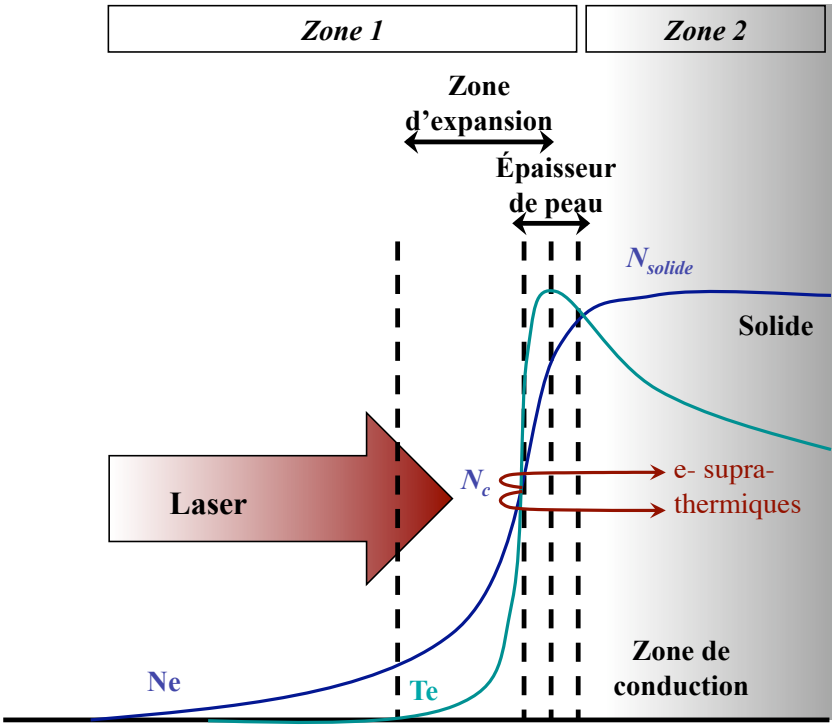


FIGURE 1.1 – Profils de densité et de température d'un plasma obtenu par la focalisation d'un laser sub-picoseconde sur une cible solide.

L'essentiel de l'énergie laser est déposée en face avant de la cible solide. Le plasma créé dès le début de l'impulsion laser se détend. Il apparaît alors un gradient de densité électronique N_e. Pour une impulsion ultra brève (sub-ps), le gradient de densité est très raide. Il est caractérisé par la longueur de gradient qui dans ce cas est particulièrement petite comparée à la longueur d'onde du laser. L'énergie de l'impulsion laser est absorbée jusqu'à la densité critique N_c (cf. formule 1.1). Au delà de N_c, le faisceau laser ne peut plus se propager. N_c s'écrit en fonction de λ_0 la longueur d'onde du laser incident :

$$N_c = \frac{m\epsilon_0\omega_0^2}{e^2} = \frac{1.1 \times 10^{21}}{\lambda_0[\mu m]^2} cm^{-3} \tag{1.1}$$

avec $\omega_0 = 2\pi c/\lambda_0$.

Différents processus tels que l'absorption collisionnelle et non collisionnelle interviennent lors de l'interaction laser avec la matière [1]. On distinguera deux zones principales (notées zone 1 et 2 sur la figure 1.1) : un plasma chaud et dense à l'avant de la cible, d'une épaisseur d'environ 100 à 1000 Å et une zone tiède à froide et dense plus en profondeur, d'une épaisseur d'au moins quelques μm environ.
Pour la première zone, les différents processus mis en jeu interviennent à différentes densités :

- Pour toute densité $N_e \leq N_c$, l'énergie laser est absorbée par absorption collisionnelle ou Bremsstralhung inverse. L'énergie d'oscillation des électrons dans le champ laser est transférée en énergie thermique par les collisions électrons - ions. La fréquence de collision ν_{ei} est proportionnelle à la densité et à la température : $\nu_{ei} \propto N_e Z^* T_e^{-3/2}$. Des densités N_e importantes et des éléments de Z élevés sont plus favorables à l'absorption laser. Par contre celle-ci diminue lorsque la température T_e augmente. Pour des impulsions laser de plusieurs ps, une couronne sous-critique à le temps de se former et d'être directement chauffée par le laser. Les températures atteintes peuvent être très élevées.
- Pour $N_e = N_c$, apparaît l'absorption résonnante (uniquement pour une polarisation laser P). Pour des intensités lasers élevées, ce processus est à l'origine d'une importante création d'électrons supra-thermiques. Ces derniers peuvent pénétrer en profondeur dans la cible.
- Pour $N_e > N_c$, l'onde laser est amortie sur une longueur typique $\lambda_{peau} = c/\omega_{pe}$ avec c, la vitesse de la lumière et ω_{pe} la fréquence plasma électronique. Cette longueur λ_{peau}, dite épaisseur de peau, vaut en général quelques centaines d'angström. Pour une impulsion laser sub-picoseconde, c'est dans cette épaisseur de peau que la température électronique T_e du plasma est la plus élevée (cf. figure 1.1).

Pour la deuxième zone, dite zone de conduction, située plus en profondeur de la cible, au delà de l'épaisseur de peau, la matière est chauffée essentiellement par conduction thermique. L'énergie est transportée par des électrons légèrement supra-thermiques (quelques $k_B T$) vers les régions plus profondes de la cible [1]. La température électronique, élevée au niveau de l'épaisseur de peau, décroît alors jusqu'à la température ambiante, dans l'arrière de la cible froide.
Enfin, nous pouvons signaler l'existence d'électrons très rapide, créés par divers mécanismes non linéaires au niveau du plasma sous-critique. Ces électrons peuvent traverser l'ensemble des zones 1 et 2 pour venir interagir avec les atomes composant l'arrière de la cible solide froide.

On discerne donc deux zones principales, un plasma chaud et dense en expansion, à l'avant de la cible et une zone tiède voire froide, dans laquelle se propage les électrons supra-thermiques. Les propriétés radiatives observées lors de l'interaction laser matière vont être intimement liée avec cette structuration (N_e, T_e) du plasma.

1.1.2 Processus atomiques mis en jeu dans l'émission X

Les processus atomiques radiatifs (les transitions liées-liées, libres-liées ou libres-libres) sont sensibles aux caractéristiques locales du plasma (densité N_e et température T_e). Nous allons distinguer l'émission thermique issue du plasma chaud et dense créé en face avant

et celle créée par les électrons supra-thermiques plus en profondeur de la cible. Sur la figure 1.2, les différentes zones d'émission X sont représentées schématiquement.

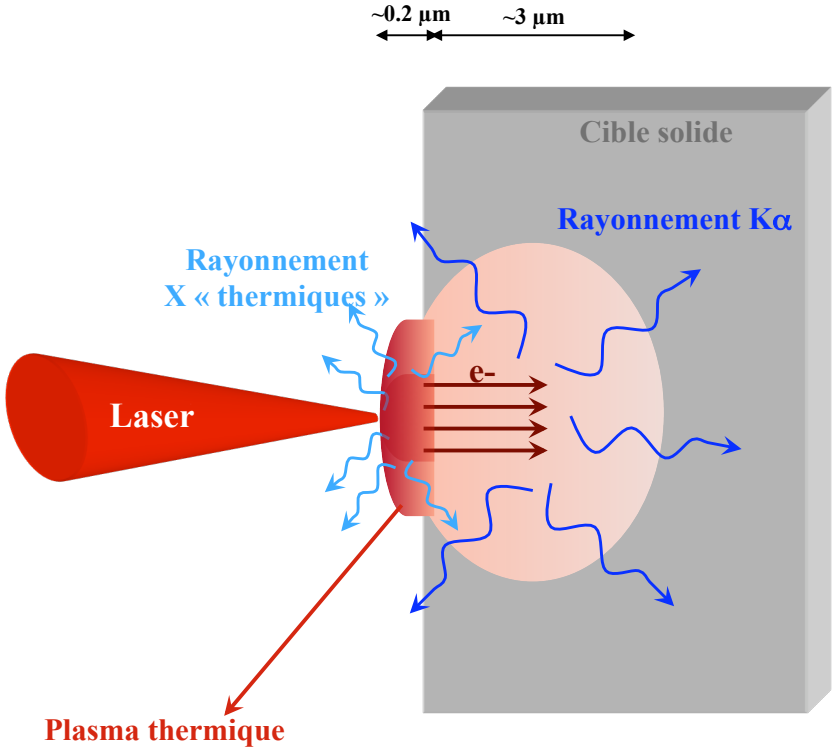


FIGURE 1.2 – Structure d'une cible solide irradiée par laser fs et émission X.

Emission induite par les électrons supra-thermiques

Des électrons supra-thermiques sont créés lors de l'interaction laser - matière par un ensemble varié de processus d'accélération tels que l'accélération pondéromotrice, l'absorption résonnante... La fraction d'énergie laser convertie en électrons supra-thermiques est proportionnelle à $(I\lambda^2)^{3/4}$ [2]. Une intensité laser intense favorise la création d'électrons supra-thermiques et donc l'émission X associée. Comme nous l'avons vu, les électrons supra-thermiques traversent la cible dans sa profondeur pour arriver dans l'arrière de la cible froide. Ils sont donc responsables d'un rayonnement X émis en dehors de la zone thermique.
Par exemple, ils créent des lacunes en couche interne qui sont comblées par réarrangement du cortège électronique et par désexcitation radiative. Il peut s'agir de l'émission des raies K_α froides et tièdes. L'émission X K_α froide résulte de la transition d'un électron 2p vers une lacune en couche 1s. Les raies K_α tièdes résultent de la même transition mais pour un état d'ionisation plus élevé (quelques électrons ont été arrachés au préalable). Comme les raies K_α sont étroitement liées à la présence d'électrons supra-thermiques, leur intensité est directement corrélée au nombre d'électrons supra-thermiques. Elles proviennent donc de zones en profondeur de la cible et de température variable (zone de conduction, arrière

cible froide..., cf. figure 1.1) et la durée de cette émission est inférieure à la picoseconde [3, 4] ou de l'ordre de quelques picosecondes dans certains cas [5].
Les électrons peuvent aussi être à l'origine de transitions libres - libres : un électron libre dans le champ d'un ion peut passer d'une énergie cinétique E_c à une énergie inférieure E'_c. Cela se traduit par l'émission d'un fond continu, appelé émission Bremsstralhung, dont la pente du spectre d'émission correspondant est liée à la distribution énergétique des électrons supra-thermiques $N = N_0\ e^{-E/k_B T_{hot}}$, avec T_{hot} la température des électrons. La pente de ce fond continu peut permettre de déduire la température T_{hot} des électrons supra-thermiques [6]. De part son origine physique, liée aux électrons rapides, la durée de l'émission Bremsstralhung peut être très brève (sub ps).

Emission thermique

Au niveau du plasma chaud et dense créé en face avant de la cible, l'ensemble des processus atomiques radiatifs sont possibles. Certains sont néanmoins majoritaires. Le niveau d'émission correspondant aux transitions liées - liées est prépondérant. Ce type d'émission, associé à des transitions entre configurations électroniques particulières, est relié à la température électronique du plasma et à son état d'ionisation. Les caractéristiques des raies d'émissions, telles que leur intensité relative, leur largeur, leur position.... sont particulièrement riches en informations. On peut en déduire entre-autre la densité et la température moyenne de la zone thermique du plasma émetteur [7, 8].

Un spectre d'émission typique d'un élément de numéro atomique Z faible tel que l'aluminium est représenté sur la figure 1.3. Il s'agit d'un spectre obtenu par une simulation Averroès-Transpec pour les conditions T_e= 250 eV, $N_e = N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}. La figure 1.3 (b) est un agrandissement de la gamme spectrale 1.45 - 1.75 keV. Nous y avons aussi schématisé les positions des raies K_α et K_β, issues de l'émission induite par les électrons supra-thermiques.

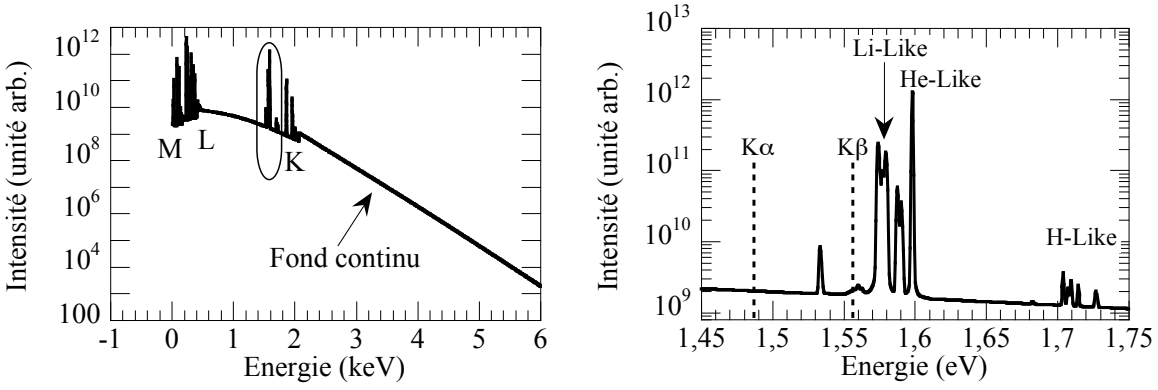


FIGURE 1.3 – Spectre d'émission de l'aluminium, calculé avec le code Averroès - Transpec [23] pour $T_e = 250$ eV, $N_e = N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}. La figure (a) est le spectre d'émission large bande, la figure (b) correspond à la gamme énergétique 1.45 - 1.75 keV.

On constate que le spectre d'émission d'un plasma chaud et dense, créé par l'interaction d'un laser ultra-bref (sub-ps) avec une cible solide, est la superposition des contributions

suivantes :
- un fond continu d'émission Bremsstralhung ici lié aux électrons thermiques du plasma chaud et dense créé en face avant de la cible.
- des raies d'émission. Ces raies sont des transitions liées - liées et elles sont regroupées par couches K, L, M..., selon le niveau final d'énergie de la transition. Sur la figure 1.3 (b), on distingue les héliumoïdes (He_α et intercombinaison IC), les hydrogénoïdes et les lithiumoïdes. Toutes ces raies correspondent à des états d'ionisation et à des configurations électroniques différentes (cf. figure 1.4). On constate aussi sur la figure 1.3, que les raies d'émission des couches L et M sont beaucoup plus nombreuses et resserrées. En effet, de par la configuration énergétique de ces couches électroniques, les transitions correspondant à ces niveaux d'énergies sont plus nombreuses et plus proches en énergie. Dans le cas de l'aluminium les durées d'émission sont très variables d'une raie à l'autre. Dans le cas de l'émission thermique d'éléments de Z élevé, la durée d'émission a été mesurée à plusieurs picoseconde. Dans tous les cas, elle est inférieure à ~ 10 ps [9].

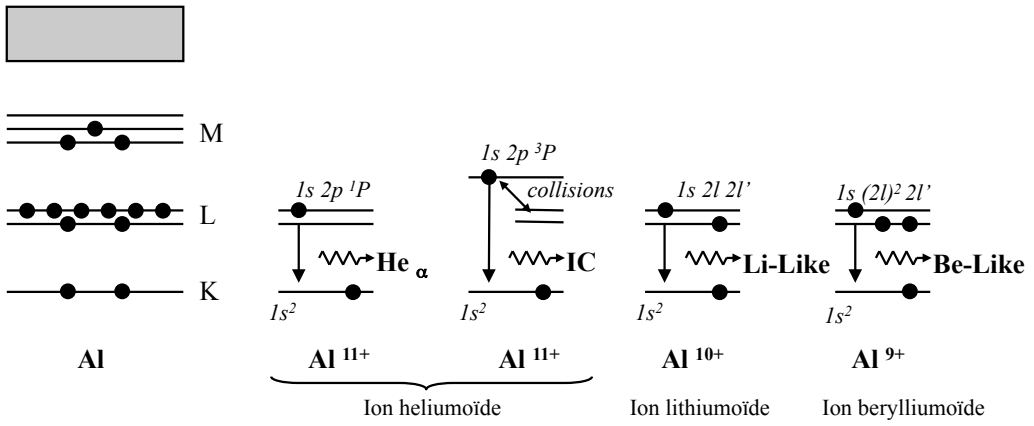


FIGURE 1.4 – Quelques configurations électroniques caractéristiques des états d'ionisation de l'aluminium.

Une expérience de spectroscopie d'absorption X nécessite une source X de large bande spectrale (~ 200 eV) et très intense. Une émission telle que celle présentée sur la figure 1.3 ne convient pas. En effet, le spectre est essentiellement composé de raies d'émission, trop fines, ou d'un fond Bremsstralhung, trop peu intense. Nous avons cependant remarqué que les raies d'émissions thermiques des couches L et M sont plus resserrées que celles issues des couches K. C'est sur cette constatation que repose la proposition d'utiliser l'émission X thermique, issue des couches M de plasmas d'éléments de Z élevé, comme source X pour la spectroscopie d'absorption [10].

1.1.3 Émission de couche M de plasmas de Z élevé

La figure 1.5 montre un spectre théorique, calculé avec le code Averroes - Transpec [23], pour un élément léger, l'aluminium ($Z = 13$) et un élément lourd, l'erbium ($Z = 62$) avec des paramètres identiques : une température électronique $T_e = 400$ eV, une densité $N_e = N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}. L'une des conséquence directe du numéro atomique Z de l'élément mis en jeu est la position spectrale de ses structures d'émission des couches K,

L, M... Ainsi, sur la figure 1.5, on constate que l'aluminium (Al) présente une émission de couche K dans la gamme du keV alors que pour un élément de Z élevé comme l'erbium (Er), c'est l'émission de couche M qui correspond à cette gamme. L'émission de couche K se situe, pour l'Er, aux environs de 50 keV. On constate aussi que l'émission de couche M de l'Er comporte des structures beaucoup plus larges que les raies fines d'émission de la couche K de l'Al. Comme nous allons le voir, ceci sera observé expérimentalement et nous permettra d'utiliser ce type d'émission, large-bande et multi-keV, comme source pour la spectroscopie d'absorption X [10].

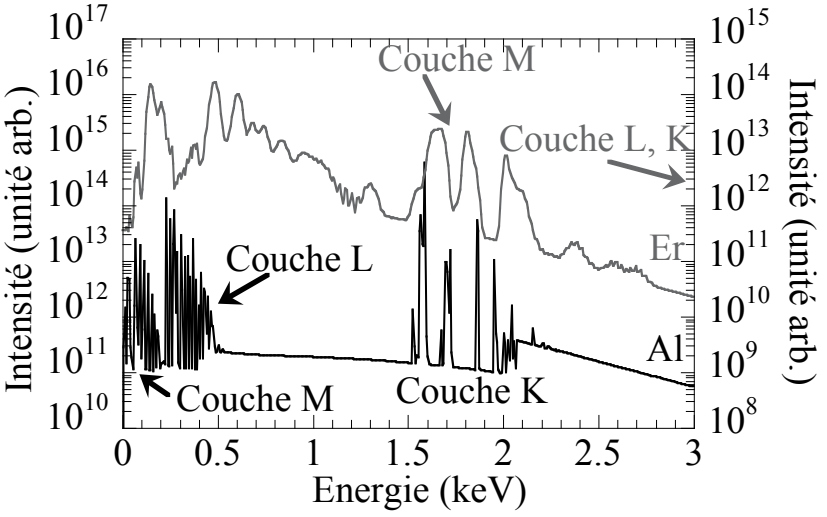


FIGURE 1.5 – Spectres d'émission de plasmas d'Al et d'Er, obtenus avec le code Averroes - Transpec, pour $T_e = 400$ eV et $N_e = N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}.

Des études expérimentales de l'émission X issue d'éléments de Z élevé ont déjà été réalisées. Plusieurs constatations ont été faites.

L'intensité de l'émission X issue des couches L, M, N, O, P... augmente globalement avec le numéro atomique Z. Ceci a été observé par Mochizuki *et al.* [11], pour une émission X et XUV intégrée sur la gamme d'énergie 0.1 - 1.6 keV avec un laser ns et une intensité sur cible de $10^{13\ -\ 15}$ W/cm^2. Il a été noté que le taux de conversion de l'énergie laser en rayonnement X, issu d'un plasma d'or, augmente avec la durée d'impulsion laser. Ceci est interprété par l'augmentation de l'absorption laser et de la dimension du plasma (longueur de gradient plus grande avec des impulsions laser plus longues).

Plusieurs études spectrales détaillées, de l'émission X de couche M d'éléments de Z élevé ont déjà été réalisées. Cette émission présente de larges structures d'émission appelées faisceaux de transitions (voir plus loin) qui regroupent la totalité des transitions radiatives entre les niveaux de deux configurations électroniques. Ainsi des spectres d'émission de couche M des éléments Au, Ta, Pb, Sm, Gd et Dy ont été mesurés en régime nanoseconde sur de larges gammes spectrales [12, 13, 14]. Il a été observé la présence de plusieurs types de structures spectrales dont une (la superposition d'un très grand nombre de transitions de type $4f - 3d$) est particulièrement intense. De manière générale, ces spectres présentent des structures d'émission très larges mais auxquelles peuvent se superposer des raies d'émission plus fines. Des études similaires ont aussi été effectuées avec des ins-

tallations laser femtoseconde sur le Ba, La, Ce et Pr [15, 16]. La gamme spectrale de ces mesures, un peu plus petite, s'étendait de 0.9 à 1.5 keV mais a permis d'observer les faisceaux de transition $4d-3p$, $4f-3d$ et $4s-3p$.

1.1.4 Codes de physique atomique et calcul de l'émission X de plasmas chauds et denses

Plasma Hors Equilibre Thermodynamique Local : modèle collisionnel - radiatif

Pour simuler l'émission X d'un plasma, les principaux processus atomiques doivent être pris en compte dans les équations de population des niveaux atomiques. On écrit les taux de peuplement et de dépeuplement en considérant les processus physiques suivants [8, 17] :

- ionisation collisionnelle et recombinaison collisionnelle,
- photoionisation, recombinaison radiative et recombinaison stimulée,
- excitation et désexcitation collisionnelle,
- photoexcitation, émission spontanée et émission stimulée,
- autoionisation et capture électronique.

Un système d'équations bilan décrivant les densités de populations des niveaux atomiques est résolu pour obtenir les distributions des niveaux excités et ionisés. Ces populations permettent de calculer plusieurs grandeurs nécessaires à la caractérisation d'un plasma comme les coefficients d'absorption et d'émission du rayonnement, les états moyens d'ionisation et l'énergie interne.
Dans le cas d'un plasma à l'équilibre thermodynamique, chaque processus collisionnel ou radiatif est exactement contrebalancé par son inverse [8]. On peut alors utiliser les hypothèses suivantes :

- Les électrons libres suivent une distribution maxwellienne $f(v)$ dépendant de la densité N_e et de la température T_e :

$$f(v) = N_e\ 4\pi\ v^2\ \left(\frac{m}{2\pi\ k_B T_e}\right)^{3/2}\ e^{-\frac{mv^2}{2k_B T_e}} \tag{1.2}$$

- La population relative des états liés est régie par la loi de Boltzmann (cf. éq. 1.3). Cette loi donne le rapport des populations de deux niveaux m et n. Pour un plasma ETL, en étudiant les rapports de raies, nous pouvons alors remonter à la température électronique T_e.

$$\frac{N_m}{N_n} = \frac{g_m}{g_n} e^{-(E_m - E_n)/k_B T_e} \tag{1.3}$$

  avec $N_{m,n}$, la population des niveaux m et n ; $g_{m,n}$ leur poids statistique (dégénerescence des niveaux) ; et -$E_{m,n}$ leur énergie respective.
- La population relative des ions ionisés r et r+1 fois est décrite par la loi de Saha :

$$\frac{N_{r+1}}{N_r} = \frac{1}{N_e}\ \frac{U_{r+1}}{U_r}\ \frac{2}{h^3}(2\pi m k_B T_e)^{3/2}\ e^{-\chi/k_B T_e} \tag{1.4}$$

avec χ le potentiel d'ionisation de l'ion r ; $N_{r,\ r+1}$, la population totale des ions ionisés r et $r+1$ fois ; et $U_{r,\ r+1}$ leur fonction de partition.

$$U_r = \sum_{i \in r} e^{-E_i/k_B T_e} \tag{1.5}$$

– Le champ de rayonnement est Planckien avec une température T_e.

Généralement, les plasmas chauds créés en laboratoire sont Hors Equilibre Thermodynamique Local (HETL). Les photons émis par les divers processus radiatifs du plasma peuvent s'échapper (même partiellement), conduisant alors à un système hors équilibre. Leurs durées de vie, souvent très brèves ne permettent même pas toujours d'arriver à l'équilibre stationnaire. Ceci affecte les distributions des états excités et ionisés qui interviennent directement dans les calculs des états d'ionisation, des coefficients d'absorption et d'excitation, grandeurs nécessaires à la modélisation des plasmas chauds.
Dans certains cas, le problème peut se simplifier. Pour un plasma très dense, les distributions des états d'ionisation sont déterminées majoritairement par les processus collisionnels. On peut alors considérer que les processus radiatifs sont négligeables devant les collisions. Le plasma est alors traité à l'Equilibre Thermodynamique Local (ETL) régit par les équations 1.2 à 1.5 sauf que le champs radiatif n'est plus Planckien. Pour un plasma de densité plus faible, les transitions radiatives doivent être prises en compte. Dans la plupart des cas, il est donc nécessaire d'utiliser des codes HETL (qui en principe assurent la continuité entre l'ETL et l'HETL). Ceci est encore plus critique pour des plasmas d'éléments de Z élevé dont les pertes radiatives sont très importantes.

Les modélisations classiques HETL consistent à prendre en compte le plus grand nombre possible de niveaux atomiques et à les relier entre eux par des taux collisionnels et radiatifs. Ces modèles doivent converger vers les modèles ETL pour des densités très élevées ou dans les cas d'une réabsorption totale du rayonnement émis. Pour des éléments de Z élevé, cela peut impliquer plusieurs millions de niveaux de structure fine (caractérisés par le moment cinétique totale J) couplés par des milliards de taux collisionnels ou radiatifs. On comprend aisément que de tels calculs sont difficilement réalisables. Il est nécessaire de simplifier le problème. Les niveaux proches en énergie ont tendance à se thermaliser sous l'effet des collisions ou de la réabsorption du rayonnement. La statistique de Boltzmann est alors applicable à ces niveaux mis à l'équilibre entre eux. On parle d'ETL partiel. Cet effet permet de regrouper statistiquement ces niveaux en « super-niveaux ».

On résout ensuite le système homogène d'équations linéaires, appelé système collisionnel - radiatif, pour obtenir l'évolution des populations des niveaux (ou des super-niveaux) atomiques N_i en fonction du temps :

$$\frac{dN_i}{dt} = -N_i \sum_{j \neq i} T_{i \to j} + \sum_{j \neq i} N_j T_{j \to i} \tag{1.6}$$

avec N_i la population du (super-) niveau atomique i et $T_{i \to j}$ le taux total relatif au transfert d'ions du (super-) niveau i vers le (super-) niveau j. Ce dernier est la somme des taux de tous les processus mis en jeu entre les (super-) niveaux i et j.

Au final, les émissivités et opacités sont calculées en utilisant ces populations N_i. Par exemple, le coefficient d'émission associé à la transition entre les (super-) niveaux i et j

s'écrit :

$$j_\nu = \frac{h\nu_{ij}}{4\pi} N_i A_{ij} \phi_{ij}(\nu) \tag{1.7}$$

avec N_i la population du (super-) niveau supérieur i, A_{ij} le taux de transition radiative et ϕ_{ij} est le profil réel (ou statistique s'il s'agit d'une transition entre deux super-niveaux).

Faisceaux de transition et supraconfigurations

Comme précisé auparavant, il est possible dans certaines conditions de regrouper des niveaux J en configurations et même en supraconfigurations. Leur construction est résumé sur la figure 1.6. Plus précisement, les niveaux internes thermalisés, dont l'énergie est proche comparée à $k_B T_e$, sont regroupés d'abord en configurations puis éventuellement en supraconfigurations. Les taux collisionels et radiatifs entre deux supraconfigurations sont calculés statistiquement [18]. Ceci a été développé pour un système ETL [18] et étendu aux cas HETL [19, 20].

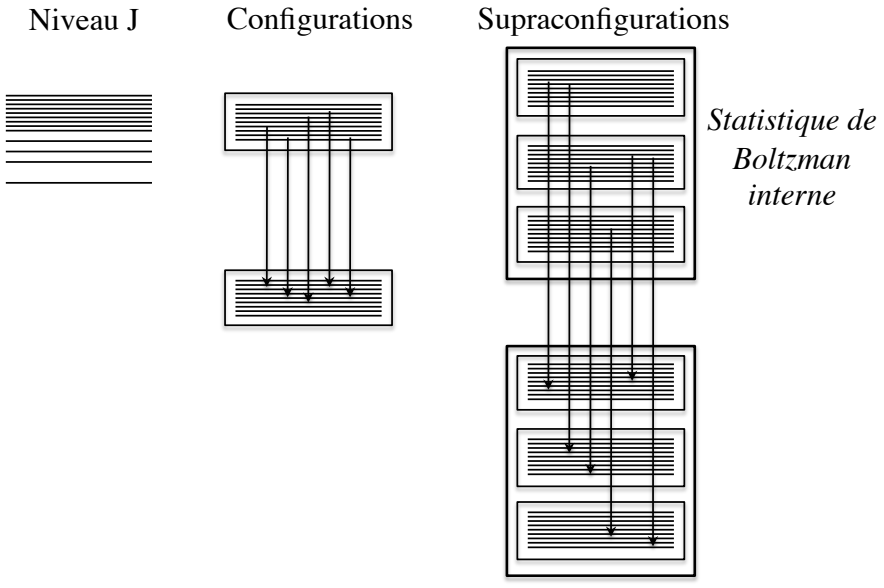


FIGURE 1.6 – Schéma représentant les regroupements possibles en configurations puis en supraconfigurations pour réduire le nombre de niveaux et de transitions radiatives mis en jeu dans les codes collisionnels - radiatifs.

Expérimentalement, la densité des niveaux d'énergie d'un élément de Z élevé ionisé en couche M se traduit par des structures d'émission très larges, composées de nombreuses raies non résolues, les faisceaux de transitions. Plusieurs faisceaux de transition peuvent se superposer. Ce sont ces structures qui ont été observées sur les spectres d'émission de couche M d'éléments de Z élevés (cf. chapitre 1.1.3). En effet, les raies sont tellement resserrées qu'on ne peut plus les distinguer spectralement. La description de telles structure d'émission a nécessité un formalisme particulier. Ce formalisme a été développé par Bauche, Bauche Arnoult et Klapisch [21]. Il consiste à modéliser la contribution des raies par des enveloppes gaussiennes caractérisées par leurs amplitudes, leurs positions et leurs

largeurs (trois premiers moments statistiques) [22]. La description statistique des transitions entre des configurations non relativistes conduit à des faisceaux de transitions appellés UTA (Unresolved Transition Array). Pour une description relativiste, les faisceaux de transitions sont appellés SOSA (Spin Orbit Split Array). Dans les deux cas les faisceaux de transitions SOSA et UTA correspondent à des transitions entre deux configurations.

Dans le cas d'un regroupement en supraconfigurations, les transitions sont appelées STA (Super Transition Array). Par définition, un STA est l'ensemble des transitions associées à un saut électronique particulier (par exemple $4f \rightarrow 3d$) entre deux supraconfigurations. Les STA sont modélisées de la même manière que les UTA et SOSA, par une gaussienne calculée à partir des trois premiers moments statistiques (amplitude, position et largeur). La théorie STA permet d'attribuer une position moyenne, une énergie moyenne et une variance spectrale pour tout saut électronique entre deux supraconfigurations.

Code Averroès - Transpec

Le code Averroès - Transpec [20, 23], utilisé dans ce travail, est un code collisionnel - radiatif HETL basé, pour les corps lourds, sur le formalisme des supraconfigurations. Un calcul se déroule en 2 temps :
- Dans une première partie, le code Averroès calcule les énergies moyennes, et la largeur des supraconfigurations , les moments STA, et les taux moyens collisionnels radiatifs mis en jeu.
- Dans un deuxième temps, le code Transpec calcule les populations ioniques hors équilibre thermodynamique local HETL en utilisant les données calculées précédemment par le code Averroès. Ce calcul consiste à résoudre le système d'équations collisionnel - radiatif simplifié par le formalisme des supraconfigurations. Le code Transpec permet aussi de générer le spectre d'émission ou de transmission.

1.2 Spectroscopie d'absorption X de la matière dense et tiède

Lorsqu'un photon X est absorbé par un atome, un électron passe d'un niveau interne initial d'énergie E_i à un état final d'énergie E_f, avec $E_f > E_i$. En considérant l'état initial connu, l'absorption d'un photon permet de sonder l'état final de l'électron. Selon l'état de la matière étudiée (structure, densité, température...) et selon l'énergie du photon absorbé, l'état final varie considérablement. Il peut s'agir d'un état final lié, d'un état du continuum, d'un état complexe influencé par des atomes voisins, voire par l'organisation plus globale de la matière... Les caractéristiques des spectres d'absorption se retrouvent par conséquent fortement modifiées. Le principe de la spectroscopie d'absorption X pour trois types de milieux différents est schématisé sur la figure 1.7. Pour un solide, le spectre d'absorption X est composé de flancs d'absorption alors que pour un plasma, nous observons des raies d'absorption en plus des flancs. Pour la matière dense et tiède, état intermédiaire entre le solide et le plasma chaud, les caractéristiques du spectre d'absorption restent à être explorées.

Le cas d'un plasma chaud est représenté sur la figure 1.8 : la transmission d'un échantillon d'aluminium est calculée avec le code Averroès - Transpec entre 1.5 et 1.8 keV, pour

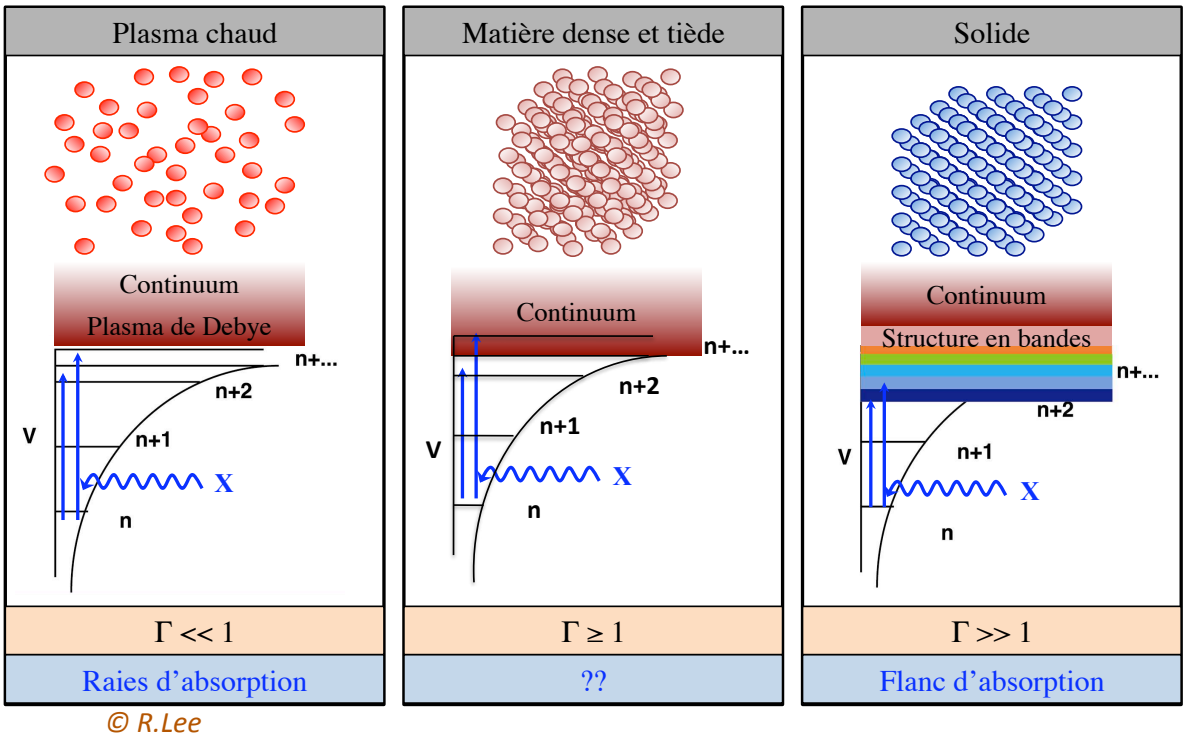


FIGURE 1.7 – Spectroscopie d'absorption X pour différents états de la matière, du solide au plasma. Γ est le paramètre de corrélation défini en introduction.

$N_e = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^3 et $T_e = 250$ eV. On constate la présence de raies d'absorption, qui comme pour les raies d'émission, témoignent de l'état d'ionisation donc de la température du plasma. On retrouve d'ailleurs des structures spectrales équivalentes à celles de la figure 1.3 mais correspondant aux processus atomiques inverses (absorption versus émission).

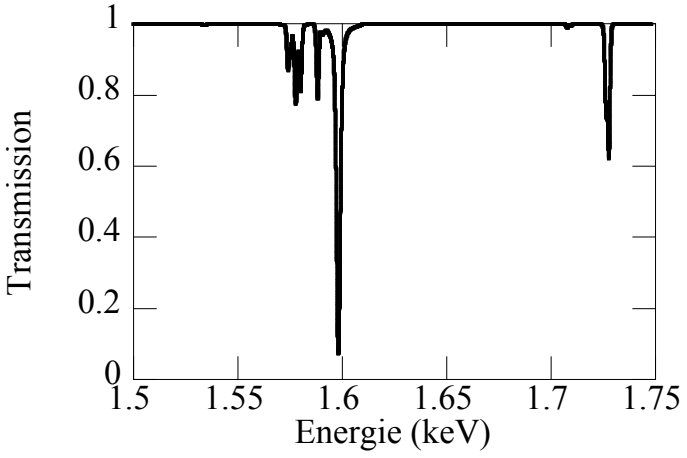


FIGURE 1.8 – Transmission d'un plasma d'aluminium calculée pour $N_e = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^3 et $T_e = 250$ eV.

On peut citer diverses expériences de spectroscopie d'absorption X [24, 25] qui ont consisté à mesurer les caractéristiques de raies ou regroupement de raies d'absorption. Comme pour les spectres d'émission, ce sont les intensités, les rapports de raies et les largeurs de raies qui contiennent les informations les plus pertinentes sur le plasma sondé. Les données expérimentales, comparées à des codes d'opacités [25], des codes collisionnels - radiatifs et à des simulations hydrodynamiques [26], permettent de déduire la température, la densité et l'état d'ionisation du plasma sondé. Des études résolues en temps permettent aussi de suivre la dynamique d'ionisation et de recombinaison du plasma [26]. Ce type d'expérience permettent également de valider des codes d'opacités, cruciaux pour la physique de la fusion par confinement inertiel ou encore pour l'astrophysique.

Pour un solide, la densité élevée du milieu a pour conséquence la dégénérescence des électrons libres. Ceci fait apparaître une structure en bande au lieu de niveaux atomiques discrets. Dans le domaine des rayonnements X, nous n'observons alors plus des raies mais des flancs d'absorption correspondant au processus de photoionisation, suivis d'un spectre continu décroissant avec l'énergie. A partir d'énergies seuil, des électrons liés peuvent être éjectés lors de l'absorption d'un photon X. On distingue ainsi les seuils (ou flancs) K, L, M, ... d'absorption. Ils correspondent à un électron issu des couches atomiques K, L, M... qui est éjecté dans le continuum. Comme nous le verrons plus tard, le spectre d'absorption près des seuils permet d'étudier, via la fonction d'onde du photoélectron éjecté, l'organisation atomique du milieu, sa température... En effet, la signature de cette fonction d'onde finale se retrouve dans des structures spectrales spécifiques dites XANES et EXAFS. Leur mesure résolue en temps doit permettre d'obtenir des informations sur la dynamique des structures électronique et atomique au sein de cristaux, de molécules... [27, 28],

Pour la matière dense et tiède, état à la frontière du solide et du plasma chaud, la densité est suffisamment importante pour que les corrélations ion - ion restent élevées et que les électrons libres soient fortement dégénérés (comparé à un plasma). Il est possible d'observer des raies d'absorption mais aussi des flancs d'absorption [29]. La seule exploitation des raies d'absorption n'apporte qu'une information restreinte et ne peut pas suffire pour étudier l'ordre structurel de cet état. La température peut être aussi trop élevée pour conserver des structures cristallines ou ordonnées à longue portée. On peut néanmoins se pencher, comme pour les solides, sur l'exploitation détaillée des flancs d'absorption pour obtenir des informations sur l'ordre local.

1.2.1 Spectroscopie fine d'absorption X près des seuils

En plus des raies d'absorption correspondant à des transitions entre deux niveaux atomiques, s'ajoutent les flancs d'absorption correspondant aux transitions entre un niveau discret et le continuum. Le seuil d'absorption en lui-même contient déjà de nombreuses informations sur le milieu. En effet, tant que les électrons peuvent être considérés comme dégénérés, l'analyse de la position et de la pente d'un flanc d'absorption, comparées à un modèle de Fermi simple, peut être une manière de mesurer la température et la densité du milieu sondé [26, 30]. Les détails spectraux près d'un flanc d'absorption contiennent aussi de très nombreuses informations. Ce sont les techniques de spectroscopie fine d'absorption (X-ray Absorption Fine Spectroscopy, XAFS) qui regroupent les spectroscopies XANES (X-ray Absorption Near Edge Spectroscopy) et EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine

Structure) [31, 32].

Pour un atome seul, l'absorption d'un photon X incident via le processus de photoionisation, a lieu si l'énergie de ce dernier $h\nu$ est supérieure à un seuil d'ionisation E_0. C'est ce que l'on appelle un seuil de photoionisation. Le flanc d'absorption d'un « atome isolé » de fer [32], est représenté schématiquement sur la figure 1.9. L'absorption d'un photon X est accompagnée de l'émission d'un photoélectron, éjecté dans le continuum (dit état libre). La section efficace de ce phénomène $\sigma_{i,f}(\nu)$ relie l'état lié initial $|\phi_i\rangle$ à l'état libre final $|\phi_f\rangle$. Elle s'exprime selon la règle d'or de Fermi :

$$\sigma_{i,f}(\nu) = a \;\; h\nu \; |\langle\phi_f|\mathbf{R}|\phi_i\rangle|^2 \tag{1.8}$$

avec $\phi_{i,f}$, les fonctions d'ondes des états final f et initial i ($|\phi_f\rangle = |\phi_{libre}\rangle$ et $|\phi_i\rangle = |\phi_{lié}\rangle$). La fonction d'onde de l'état initial est une fonction d'onde atomique de « coeur ». La fonction d'onde de l'état final correspond à la fonction d'onde du photoélectron. $\mathbf{R}$ est l'opérateur dipolaire électrique de l'atome, a est une simple constante numérique et $h\nu$ est l'énergie du photon absorbé. Il existe des règles de sélection pour les transitions entre les niveaux $|\phi_i\rangle$ et $|\phi_f\rangle$ n'autorisant pas toutes les transitons possibles. Par exemple, pour un état initial $1s$ ($l = 0$), on ne sonde que les états p ($l = \pm 1$).

On définit μ_0, l'absorption associée à un « atome isolé » : $\mu_0 = \sigma_{i,f}(\nu)$.

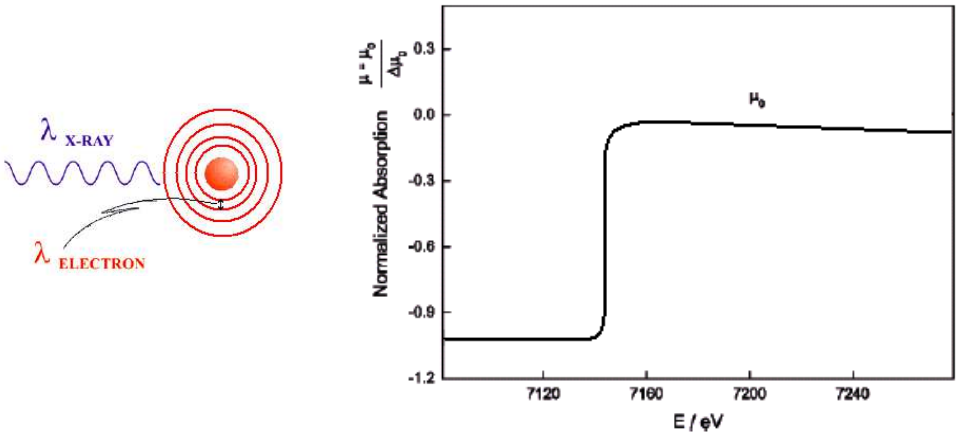


FIGURE 1.9 – Seuil K d'absorption d'un « atome isolé » de fer [32].

De manière plus générale, un ion est entouré d'ions voisins dans un bain d'électrons libres. Si les électrons libres sont dégénérés (fortes densités, basses températures), la section efficace globale de photoionisation s'exprime de la façon suivante :

$$\sigma_{i,f}(\nu) = a \;\; h\nu \; |\langle\phi_f|\mathbf{R}|\phi_i\rangle|^2 \; (1 - f(E)) \tag{1.9}$$

avec $f(E)$ la fonction statistique d'occupation de Fermi-Dirac.

$$f(E) = \frac{1}{1 + e^{(E-\mu(T_e))/k_B T_e}} \tag{1.10}$$

avec $\mu(T_e)$ le potentiel chimique tel que $\mu(0) = E_{Fermi}$ et T_e la température électronique de la matière sondée. Dans cette expression, l'origine des énergies E correspond au bas de

la bande de valence $E - E_{Fermi} = h\nu - E_K$ avec E_K l'énergie du flanc K ($E_K = 1.559$ keV pour l'aluminium) La fonction $1-f(E)$, qui représente la place disponible pour un électron photoionisé, est tracée sur le graphe 1.10 dans le cas où $T_e = 0.025\ eV \ll 1$ (cas de l'aluminium froid, solide) et pour $T_e = 1$ eV. Le terme $(1 - f(E))$ de l'équation 1.9 est l'expression mathématique permettant de reproduire le flanc d'absorption. On remarque que la pente du flanc dépend directement de la température.

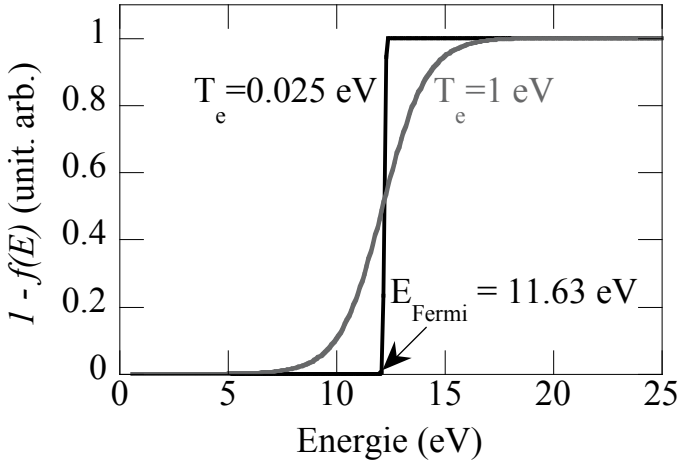


FIGURE 1.10 – Fonction statistique de Fermi-Dirac des états vacants $1-f(E)$ pour une température électronique $T_e = 0.025$ eV et pour $T_e = 1$ eV dans le cas de l'aluminium à densité solide.

Par ailleurs, la fonction d'onde de l'état final est la superposition de la fonction d'onde du photoélectron libre, éjecté dans le continuum et de la fonction d'onde du photoélectron diffusé sur les atomes voisins (cf. formule 1.11 et figure 1.11).

$$|\phi_f\rangle = |\phi_{libre}\rangle + |\phi_{diffusé}\rangle \tag{1.11}$$

L'absorption, pour un nombre de n atomes par unité de volume, est déduite de la section efficace de photoionization par la formule suivante :

$$\mu(\nu) = n\ \sigma_{i,f}(\nu) \tag{1.12}$$

Comme le soulignent la formule 1.11, la fonction d'onde finale $|\phi_f\rangle$ contient les fonctions d'ondes diffusées sur les atomes voisins $|\phi_{diffusé}\rangle$. Celle-ci dépend directement de l'ordre local, des distances inter-atomiques. Les oscillations XAFS sont interprétées par les diffusions multiples ou simples de la fonction d'onde du photoélectron émis par l'atome absorbant (cf. figure 1.11) [32].

Si le photoélectron est émis avec une faible énergie, l'interaction de l'électron avec les atomes voisins est très importante. Les phénomènes de diffusions multiples sont prépondérents. Pour la zone du spectre d'absorption très proche du flanc d'absorption, on parle alors d'oscillations XANES (cf. figure 1.11, cas a)).

Dans le cas d'un photoélectron d'énergie plus élevée, i.e. une gamme spectrale plus loin du seuil d'absorption, les amplitudes de diffusion présentent un maximum prononcé pour l'angle $\theta = \pi$ de telle sorte que la seule contribution significative est la rétro-diffusion, ou

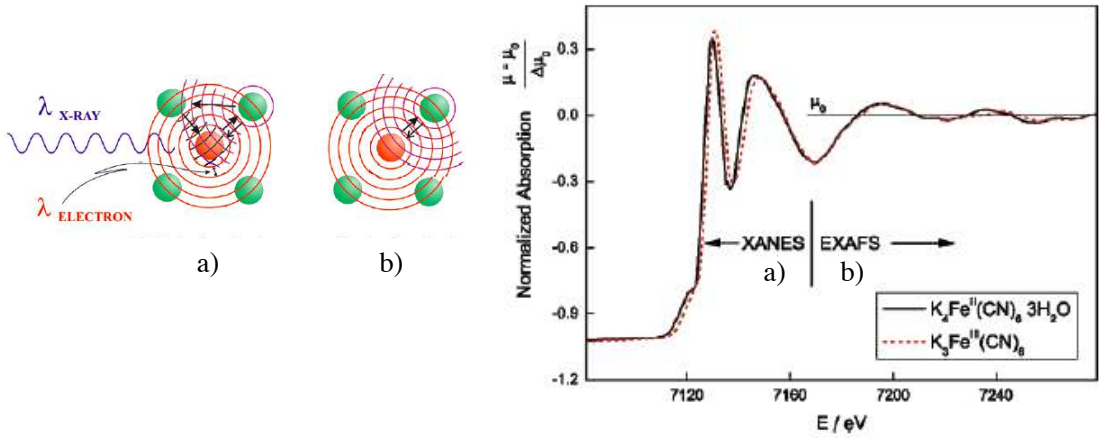


FIGURE 1.11 – Seuil d'absorption et oscillations XAFS (XANES (a) et EXAFS (b)) du Fer [32].

diffusion simple sur les atomes voisins. On parle alors de l'EXAFS, zone spectrale commençant environ 50 eV après le flanc d'absorption (cf. figure 1.11, cas b)).
La formule 1.9 s'exprime différemment selon ces deux cas. Dans le cas des diffusions simples, les équations précédentes se simplifient énormément pour permettre de remonter directement aux distances inter-atomiques via une analyse par transformées de Fourier [32]. On peut effectivement faciliter l'analyse en définissant une absorption normalisée, $\chi(E)$, de la façon suivante :

$$\chi(E) = \frac{\mu(E) \ - \ \mu_0(E)}{\Delta\mu_0(E)} \tag{1.13}$$

avec $\Delta\mu_0(E)$, le facteur de normalisation qui intègre l'amplitude du saut du flanc d'absorption. Dans le cas de l'EXAFS cette équation s'écrit alors :

$$\chi(E) = \sum_j S_0^2 N_j \ \frac{|f_j(k)|}{kR_j^2} \ sin(2kR_j + 2\delta + \phi_j) \ e^{-2R_j/\lambda(k)} \ e^{-2\Delta_j^2 k^2} \tag{1.14}$$

avec S_0 un facteur d'amplitude, N_j le nombre de coordination des atomes voisins diffuseurs (soit le nombre de diffuseurs de type j), f_j l'amplitude diffusée, k l'impulsion, R_j la distance interatomique, δ la phase de l'atome absorbant dans son état final, ϕ_j la phase induite par la rétrodiffusion, $\lambda(k)$ le libre parcours moyen du photoélectron et Δ_j les fluctuations statistiques sur la distance R_j. Avec une analyse par transformée de Fourier on peut déduire les distances interatomiques R_j. Cependant, les modulations spectrales EXAFS sont très faibles et nécessitent des conditions expérimentales excellentes. Il faut entre autre une source X très intense pour obtenir un rapport signal sur bruit très élevé ($\sim 1‰$) et une large gamme spectrale s'étendant sur plus de 200 eV après le seuil.

Pour la partie XANES, les modulations spectrales sont beaucoup plus importantes et donc beaucoup plus faciles à mesurer que l'EXAFS. Cependant la simplification mathématique de la section efficace d'absorption n'est plus possible (diffusions multiples) et l'analyse des spectres XANES devient plus complexe. Elle ne se fait pas directement, comme pour l'EXAFS, mais en comparant les oscillations XANES à des spectres calculés avec des modèles plus ou moins sophistiqués (les plus simples sont basés sur la méthode des diffusions multiples).

1.2.2 Pré-requis expérimentaux

En pratique, on mesure la transmission $T(E)$ qui est reliée à l'absorption linéique μ par la formule de Beer-Lambert $T(E) = e^{-\mu d}$, avec d l'épaisseur du milieu sondé.

Les dispositifs expérimentaux pour mesurer la transmission et remonter au spectre d'absorption, sont adaptés aux caractéristiques des sources X utilisées [32]. Dans tous les cas, il est nécessaire de mesurer un spectre de référence et un spectre transmis pour calculer la transmission $T(E)$ et remonter à la valeur de l'absorption linéique $\mu(E)$:

$$\mu(E) = -\frac{1}{d} \times ln\left(T(E)\right) = -\frac{1}{d} \times \ln\left(\frac{I_{trans}(E)}{I_{inc}(E)}\right) \tag{1.15}$$

avec $\mu(E)$ l'absorption linéique en μm^{-1}, d, l'épaisseur de l'échantillon sondé en μm, $I_{trans}(E)$, l'intensité transmise par l'échantillon pour chaque énergie E du spectre et $I_{inc}(E)$, l'intensité incidente sur l'échantillon pour chaque énergie E du spectre d'émission. On appelle aussi cette intensité $I_{inc}(E)$, la référence.

Le dispositif expérimental mis en place est adapté aux caractéristiques de la source (collimation, taille, intensité...) [32]. Historiquement, les techniques XANES et EXAFS ont été essentiellement développées sur des installations synchrotrons. Les premiers dispositifs expérimentaux y ont été développés et sont aujourd'hui les plus aboutis et les plus communément utilisés. Généralement, le spectromètre est composé d'un monochromateur, permettant de sélectionner une énergie de photon E_i (cf. figure 1.12). L'ensemble du spectre d'absorption est mesuré point par point, pour chaque énergie E_i de la gamme spectrale étudiée. L'intensité incidente $I_{inc}(E_i)$ est généralement mesurée après le monochromateur grâce à une chambre d'ionisation, placée avant l'échantillon et perturbant très peu le faisceau X. L'intensité transmise $I_{trans}(E_i)$ est détectée après l'échantillon. C'est de ces deux mesures simultanées qu'on déduit l'absorption $\mu(E_i)$. Le spectre d'absorption est obtenu à la suite d'un balayage en énergie E_i. Ce type de mesure est adaptée à des installations d'intensité de photons X élevée.

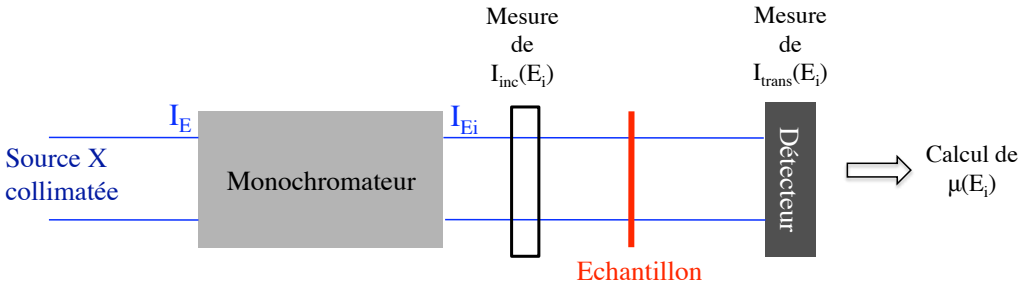


FIGURE 1.12 – Schéma synoptique d'un spectromètre sélectif en énergie, pour mesurer un spectre d'absorption X.

Il est aussi possible de mesurer le spectre d'absorption en une seule fois, en utilisant un élément dispersif (cristal, réseau...). Cette méthode (XANES/EXAFS dispersif) nécessite une intensité de photons X importante et est plus rapide. Sur la figure 1.13, est présenté un dispositif dispersif adapté à des sources X collimatées telles que les sources synchrotrons. L'échantillon est placé en aval du système dispersif (cristal pour les X durs et réseau pour le VUV) et l'émission X peut être focalisée sur l'échantillon. La mesure de l'intensité

référence $I_{inc}(E)$ et de l'intensité transmise $I_{trans}(E)$ se fait en deux temps. Pour cela, la source doit être suffisamment stable d'une impulsion X à l'autre.

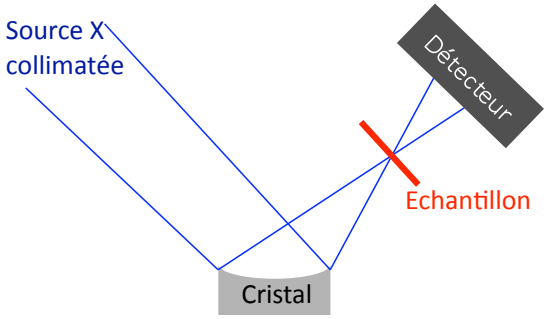


FIGURE 1.13 – Schéma synoptique de spectromètres dispersifs en énergie, adaptés à une source X collimatée pour mesurer un spectre d'absorption.

Le schéma utilisé pour des sources X non collimatées, quasi-isotropes, telles que les sources X quasi ponctuelles issues de plasmas, est représenté sur la figure 1.14. L'échantillon est placé près de la source. Ce n'est qu'après qu'intervient l'élément dispersif. La source étant isotrope, un cache doit être installé le long de l'axe entre la source et la détecteur afin de minimiser l'émission directe. Ce type de montage a été utilisé par C.Chenais Popovic et P.Audebert avec des sources X créées par interaction laser - matière [25, 29].

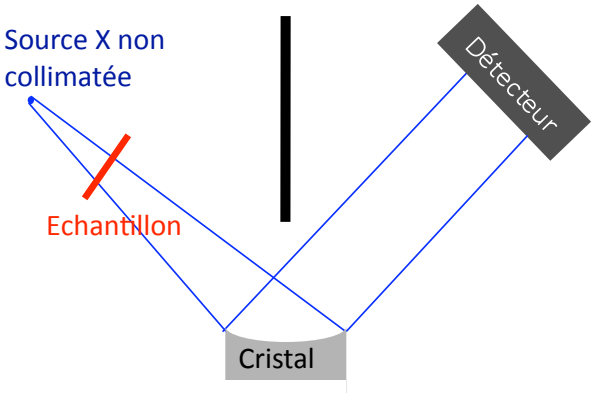


FIGURE 1.14 – Schéma synoptique de spectromètres dispersifs en énergie, adaptés à une source non collimatée pour mesurer un spectre d'absorption.

Dans tous les cas, pour mesurer des spectres XANES et EXAFS, certaines conditions expérimentales sont nécessaires. La source X doit être intense afin de pouvoir résoudre les fluctuations XANES et EXAFS. On évalue un nombre de photon minimum en fonction du matériau sondé, de son épaisseur et du flanc d'absorption choisi pour avoir un bon rapport signal sur bruit [31]. La source X doit aussi couvrir une large bande spectrale s'étendant du flanc étudié jusqu'à plusieurs centaines d'eV au delà du flanc. Le spectromètre doit avoir une résolution spectrale suffisamment fine (quelques eV). Il doit être conçu de manière à mesurer, si possible simultanément, le spectre de référence et le spectre transmis.

1.2.3 Calculs d'un spectre d'absorption XANES

Afin d'interpréter et d'extraire les informations pertinentes d'un spectre XANES d'un échantillon à l'état de matière dense et tiède, il est nécessaire de comparer les résultats expérimentaux avec des calculs de spectres d'absorption X près des seuils qui incluent de fait une certaine modélisation de la matière dense. Nous avons utilisé deux types de simulations de spectres XANES très différentes : un modèle de la matière dense et tiède associé à un calcul de diffusion multiple ou de différences finies et un code de Dynamique Moléculaire Quantique DMQ.

Dynamique Moléculaire Quantique

Le calcul du spectre XANES via un code DMQ a été développé par S. Mazevet, V. Recoules et G. Zerah [33, 34], à partir du code ABINIT [35] dans lequel a été implanté un calcul du coefficient d'absorption X. ABINIT combine la théorie de la fonctionnelle densité pour la structure électronique, couplée à une approche de dynamique moléculaire classique pour les ions. Ainsi la structure électronique est décrite quantiquement tandis que les ions suivent les équations de la dynamique moléculaire classique (équations de mouvement de Newton).

A chaque pas de temps, le calcul de la structure électronique est basé sur la théorie de la fonctionnelle de densité (Density Functional Theory, DFT) pour le traitement des électrons de valence.

Elle est appliquée ici à un système désordonné de N atomes dans une boîte avec des conditions aux limites périodiques. Ce calcul est effectué à volume constant et à température constante. Comme le montre le schéma 1.15, l'ensemble du calcul est auto-cohérent. A un instant donné du calcul, où le système est stabilisé, il est possible de calculer l'absorption $\mu(\nu)$. Comme le seuil K d'absorption correspond à un électron issu de la couche 1s qui est éjecté dans le continuum, la fonction d'onde finale nécessaire pour le calcul de $\mu(\nu)$ est obtenue en générant un trou dans la couche 1s. Le calcul de l'absorption est effectué en utilisant la partie réelle de la conductivité, donnée par la formule de Kubo-Greenwood [33] dans laquelle on considère la transition d'un électron de coeur vers les états vides ou partiellement occupés. Le déroulement du calcul itératif est résumé sur la figure 1.15.

Modèle de plasma dense et calcul de spectres XANES

Le code DMQ est un code *ab initio* dans lequel on ne rentre que les conditions initiales. Certaines approximations sont inhérentes à ce type de calcul (le choix d'un pseudo-potentiel par exemple). Ce code étant très complexe et les simulations très longues, il est difficile de remonter à l'influence des différentes hypothèses en détail. Un autre type de calcul complémentaire, aux paramètres et hypothèses plus ajustables, permettrait de comprendre le comportement et le profil des spectres XANES plus en détails. Une telle approche a été développée par Olivier Peyrusse au laboratoire CELIA [37]. Une chaîne de calcul a été conçue pour calculer les spectres XANES de la matière dense et tiède. Elle est composée de deux parties : un modèle pour simuler la matière dense et tiède suivi d'un calcul en diffusions multiples ou en différences finies pour obtenir le spectre XANES. Le cas d'un matériau froid est alors un cas particulier où l'on n'utilise que la seconde partie

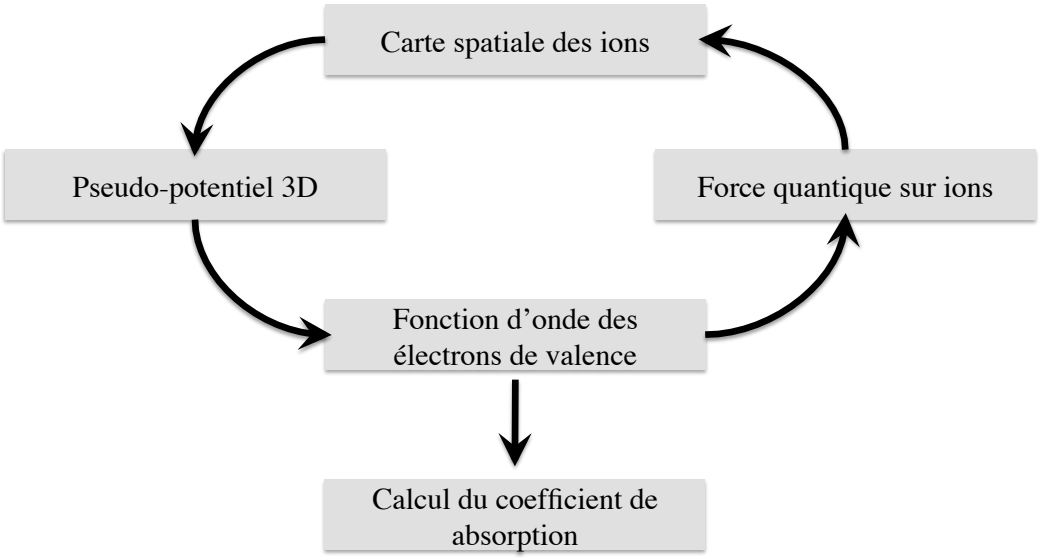


FIGURE 1.15 – Représentation schématique du code de dynamique moléculaire quantique adapté au calcul de spectres d'absorption.

du code en entrant les distances interatomiques du matériau (position des atomes).

- *Modèle de la matière dense et tiède*

Le modèle de matière dense et tiède repose sur une approche de la fonctionnelle densité couplée à l'approximation du pseudo-atome neutre. L'entité de base de ce modèle est le pseudo-atome neutre (NPA, Neutral PseudoAtom = noyau + électrons de coeur + nuage électronique) (cf. figure 1.16). La résolution de l'équation de Schrödinger à une particule, dans un potentiel d'un ion central, permet d'accéder à la distribution de densité des électrons d'un NPA particulier. Cette densité électronique se compose d'un coeur d'électrons ioniques écranté par un nuage d'électrons (de valence) qui est du au fait que les coeur ioniques sont insérés dans un gaz d'électron. Ce nuage « écran » peut être utilisé pour définir une interaction de paire effective entre les coeurs ioniques. Les équations HNC (pour HyperNetted Chain) sont ensuite utilisées pour déterminer la fonction de distribution radiale $g(r)$ ion - ion. La fonction $g(r)$ est aussi appelée fonction de corrélation. $4\pi r^2 g(r)dr$ correspond à la probabilité de trouver un atome à une distance comprise ente r et $r + dr$.

Les calculs du spectre XANES fonctionnent à partir d'une configuration spatiale des atomes. Par exemple, pour le cas de l'aluminium froid, les positions relatives des atomes sont données par les paramètres de maille (maille cubique face centrée cfc pour l'aluminium). Dans le cas de la matière dense et tiède, il faut pouvoir estimer ces distances au préalable. Pour cela, il faut échantillonner la fonction de distribution radiale ion - ion $g(r)$. Pour chaque échantillonage, i.e. chaque distribution spatiale des N atomes considérés, le calcul de la fonction d'onde finale ϕ_f est effectué soit par diffusion multiple soit par méthode de la différence finie.

- *Code de diffusion multiple (MS) / différences finies (FD) :*

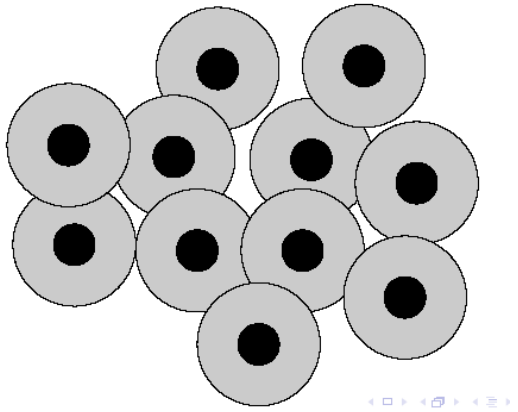


FIGURE 1.16 – Représentation schématique de la WDM comme un agrégat de pseudo-atomes neutres.

Le calcul peut utiliser la méthode des diffusions multiples, « multiple-scattering theory » (MST) avec des potentiels atomiques superposés dans l'approche « Muffin-Tin »(MT) ou, la méthode des différences finies. Pour calculer le section efficace de photoionisation, il est nécessaire de calculer la fonction d'onde finale du photoélectron éjecté ϕ_f (cf. équation 1.9). ϕ_f dépend de la position des atomes voisins de l'atome absorbant. Elle peut être séparée en deux parties : la fonction d'onde libre de l'électron éjecté ϕ_{libre} et la somme de toutes les fonctions d'onde diffusées sur les atomes voisins $\phi_{diffusé}$ (cf. équation 1.11). La méthode MST permet de calculer la fonction d'onde ϕ_f en prenant en compte l'ensemble des processus de diffusions. Elle consiste à résoudre l'équation de Schrödinger dans l'espace réel, (configuration réelle des atomes voisins) avec un potentiel de type « Muffin-Tin ». Sur la figure 1.17 (a), un schéma simplifié permet de s'en faire une idée. Ce potentiel est radial dans chaque sphère atomique et est constant au delà d'un certain rayon, entre les sphères atomiques.

Dans l'approche des « différences finies » (Finite Differences, FD) la fonction d'onde du photoélectron est directement calculée sur une grille 3D par la méthode des différences finies (cf. figure 1.17 (b)). Des conditions limites internes et externes sont fixées aux bords des ions et aux bords des agrégats respectivement. Dans cette approche l'approximation MT n'est pas nécessaire ni pertinente. En effet, pour des milieux assez désordonnés, l'approximation par un potentiel constant entre les sphères atomiques peut être douteuse et la méthode MST plus difficilement applicable.

La dernière étape moyenne les sections efficaces obtenues pour chacune des configurations spatiales des ions, pour en extraire le spectre XANES. L'ensemble des étapes successives du calcul est résumé sur le schéma 1.18.

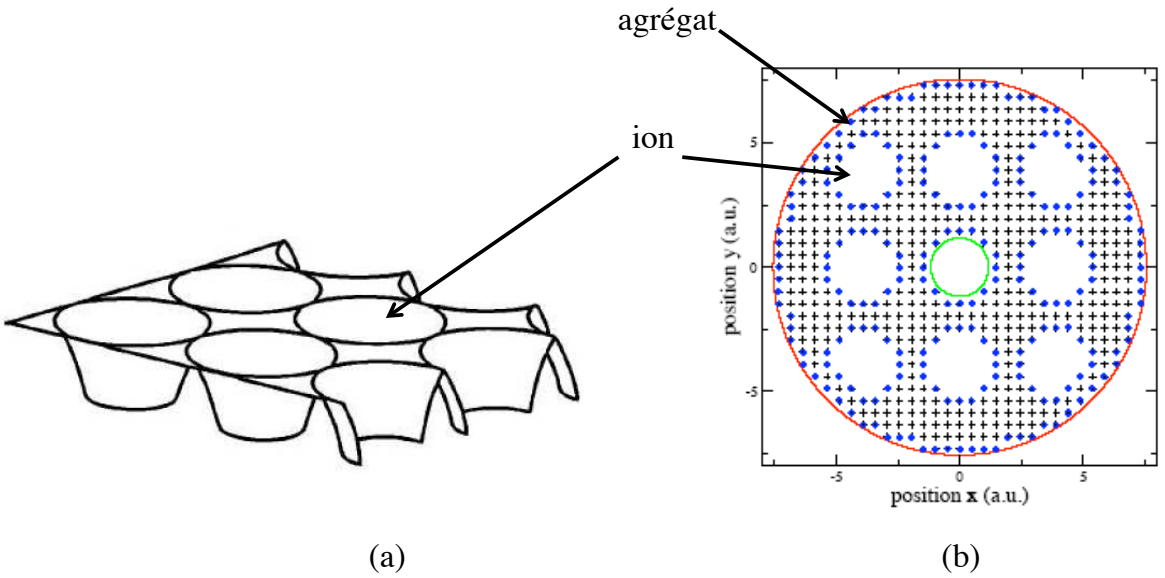


FIGURE 1.17 – (a) Représentation schématique d'un potentiel Muffin-Tin. (b) Grille 3D pour le calcul par différences finies.

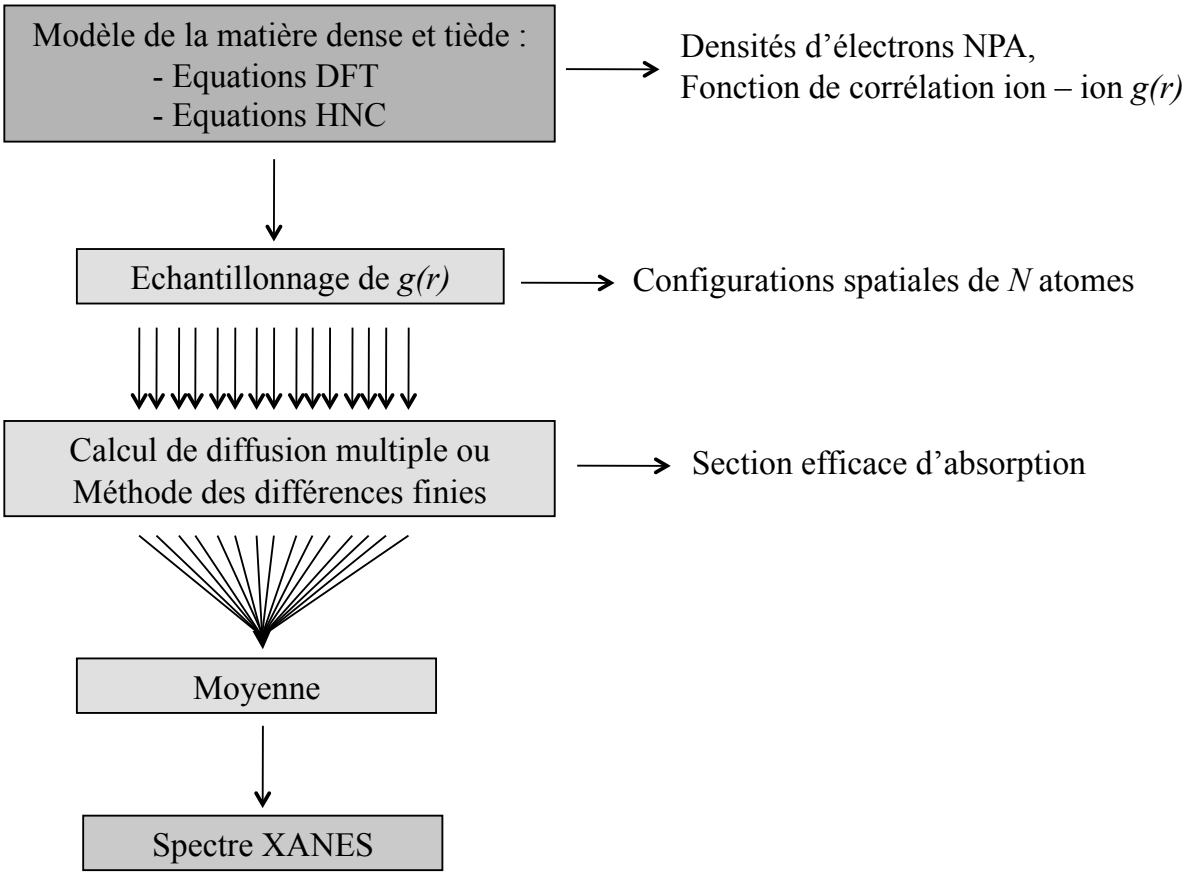


FIGURE 1.18 – Représentation schématique du calcul de spectre XANES à partir d'un modèle de matière dense et tiède.

1.3 Conclusion

La spectroscopie d'absorption X permet d'obtenir des informations physiques sur la matière dans le régime tiède et dense telles que son ordre local (corrélations ion - ion) et la densité d'états électroniques. La spectroscopie d'absorption X requiert le développement d'une source X et d'un spectromètre X adaptés. La source X doit être intense et de large bande spectrale. Le spectromètre d'absorption doit permettre une mesure simultanée de spectre incident et du spectre transmis. La stratégie choisie pendant cette thèse est la suivante :

- optimiser une source X de large bande spectrale issue de l'émission de couche M de plasmas de Z élevé, créés par un laser
- développer un spectromètre d'absorption X adapté aux caractéristiques de cette source X.

Les outils théoriques qui ont été présentés dans ce premier chapitre seront utilisés pour l'analyse et la compréhension de la source X dans un premier temps puis pour interpréter les spectres d'absorption X dans un second temps.

Bibliographie

[1] W.L. Kruer, The physics of laser plasma interaction, series *Frontiers in Physics*, éd. D.Pines (Addison-Wesley), Reading, MA, 1987.

[2] J. Yu, Z. Jiang, J. C. Kieffer et A. Krol, Phys. of Plasmas **6**, 1318 (1999).

[3] C. Rischel, A. Rousse, I. Uschmann, P. A. Albouy, J. P. Geindre, P. Audebert, J. C. Gauthier, E. Förster, J. L. Martin et A. Antonetti, Nature, **390**, 490 (1997).

[4] T. Feurer, A. Morak, I. Uschmann, Ch. Ziener, H. Schwoerer, Ch. Reich, P. Gibbon, E. Förster, R. Sauerbrey, K. Ortner et C. R. Becker, Phys. Rev. E **65**, 016412 (2001).

[5] J. C. Kieffer, Z. Jiang, A. Ikhlef et C. Y Côté, J. Opt. Soc. Am. B **13**, 132 (1996).

[6] C. Fourment, N. Arrazam, C. Bonté, T. Caillaud, D. Descamps, F. Dorchies, M. Harmand, S. Hulin, S. Petit, and J.J. Santos, Rev. Sci. Instr. **80**, 083505 (2009).

[7] H. R. Griem, Principles of Plasma Spectroscopy, Cambridge University Press (1997).

[8] C. Pecker-Wimel, Introduction à la spectroscopie des plasmas, séries *Gordon and Breach*, éd. Dunod (1967).

[9] C. Chenais-Popovic, F. Dorchies, P. Audebert, V. Nagels, J. P. Geindre, J. C. Gauthier, O. Peyrusse, S. Gary et F. Girard, J. Phys. IV, **108**, 137 (2003).

[10] P. Forget, F. Dorchies, J.C. Kieffer, and O. Peyrusse, Chem. Phys. **299**, 259 (2004).

[11] T. Mochizuki, T.Yabe, K.Okada, M.Hamada, N.Ikeda, S. Kiyokawa, et C. Yamanaka, Phys. Rev. A **33**, 525 (1986).

[12] J.C. Gauthier, P. Monier, P. Audebert, C. Chenais-Popovics, and J.P. Geindre, Laser and Part. Beams **4**, 421 (1986).

[13] P.G. Burkhalter, D.J. Nagel, and R.R. Whitlock, Phys. Rev. A **9**, 2331 (1974).

[14] C. Bauche-Arnoult, J. Bauche, E. Luc-Koenig, J.F. Wyart, R.M. More, C. Chenais-Popovics, J.C. Gauthier, J.P. Geindre, and N. Tragin, Phys. Rev. A **39**, 1053 (1989).

[15] R. Doron, E. Behar, M. Fraenkel, P. Mandelbaum, J.L. Schwob, A. Zigler, A.Y. Faenov, and T.A. Pikuz, Phys. Scripta **63**, 22 (2001).

[16] R. Doron, M. Fraenkel, P. Mandelbaum, A. Zigler, and J.L. Schwob, Phys. Scripta **58**, 19 (1998).

[17] O. Peyrusse, Cinétique des plasmas hors-équilibre et supraconfigurations, Chocs **36**, 22 (2008) ;

[18] A. Bar-Shalom, J. Oreg, W. H. Goldstein, D. Shvarts et A. Zigler, Phys. Rev. A **40**, 3183 (1989).

[19] A. Bar-Shalom, J. Oreg, W. H. Goldstein, D. Shvarts et A. Zigler, Phys. Rev. E **56**, (1997).

[20] O. Peyrusse, J. Phys. B **33**, 4303 (2000) ;

[21] J. Bauche, C. Bauche-Arnoult, et M. Klapisch, Adv. At. Mol. Phys. **23**, 131 (1987).

[22] T. Blenski et J. C. Pain, Application du modèle des supraconfigurations aux plasmas d'ions multichargés à l'ETL, Chocs **36**, 13 (2008) ;

[23] O. Peyrusse, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **71**, 571 (2001).

[24] T. S. Perry, P. T. Springer, D. F. Fields, D. R. Bach, F. J. D. Serduke, C. A. Iglesias, F. J. Rogers, J. K. Nash, M. H. Chen, B. G. Wilson, W. H. Goldstein, B. Rozsynai, R. A. Ward, J. D. Kilkenny, R. Doyas, L. B. Da Silva, C. A. Back, R. Cauble, S. J. Davidson, J. M. Foster, C. C. Smith, A. Bar-Shalom, R. W. Lee, Phys. Rev. E **54**, 5617 (1996).

[25] C. Chenais-Popovic, H. Merdji, T. Missalla, F. Gilleron, J. C. Gauthier, T. Blenski, F. Perrot, M. Klapisch, C. Bauche-Arnoult, J. Bauche, A. Bachelier et K. Eidmann, The Ast. Journal Supp. Series **127**, 275 (2000).

[26] S. Tzortzakis, P. Audebert, P. Renaudin, S. Bastiani-Ceccotti, J. P. Geindre, C. Chenais-Popovics, V. Nagels, S. Gary, R. Shepherd, F. Girard, I. Matsushima, O. Peyrusse and J. C. Gauthier, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **99**, 614 (2006).

[27] W. Gawelda, V. T. Pham, M. Benfatto, Y. Zaushitsyn, M. Kaiser, D. Grolimund, S. L. Johnson, R. Abela, A.Hauser, C. Bressler et M. Chergui, Phys. Rev. Lett. **98**, 057401 (2007).

[28] A. Cavalleri,C. Tóth, C. W. Siders, J. A. Squier, F. Ráksi, P. Forget et J. C. Kieffer, Phys. Rev. Lett. **87**, 237401 (2001).

[29] P. Audebert, P. Renaudin, S. Bastiani-Ceccotti, J.-P. Geindre, C. Chenais-Popovics, S. Tzortzakis, V. Nagels-Silvert, R. Shepherd, I. Matsushima, S. Gary, F. Girard, O. Peyrusse et J.-C. Gauthier, Phys. Rev. Lett. **94**, 025004 (2005).

[30] W. Schwanda, K. Eidmann, Phys. Rev. Lett. **69**, 3507 (1992)

[31] C. Bressler, and M. Chergui, Chem. Rev. **104**, 1781 (2004).

[32] X-ray Absorption, Principles, Applications, Techniques of EXAFS, SEXAFS and XANES, ed. by D. C. Koningsberger and R. Prins (1988).

[33] V. Recoules et S. Mazevet, Phys. Rev. B **80**, 604110 (2009)

[34] S. Mazevet et G. Zérah, Phys. Rev. Letter **101**, 155001 (2008) ;

[35] X. Gonze, Comput. Mater. Sci. **25**, 478 (2002) ;

[36] J. Clérouin, De la matière condensée au plasma : un challenge pour la simulation, Chocs **36**, 43 (2008) ;

[37] O. Peyrusse, J. Phys. Condens. Matter **20**, 195211 (2008) ;

Chapitre 2

Dispositif expérimental pour la caractérisation spectrale et temporelle d'une source X créée par laser

Sommaire

2.1 Dispositif expérimental 43
2.1.1 Le laser Aurore du CELIA 43
2.1.2 Spectroscopie X intégrée en temps 50
2.1.3 Spectroscopie X résolue en temps 56
2.2 Analyse et méthodologie 59
2.2.1 Calibration spectrale 60
2.2.2 Soustraction du bruit de fond 62
2.2.3 Conversion en nombre absolu de photons 62
2.2.4 Correction des ordres supérieurs du cristal MICA 65
2.2.5 Correction des défauts des cristaux KAP 67
2.2.6 Analyse des spectres résolus en temps 71
Bibliographie 74

Afin de caractériser et d'optimiser une source X issue de l'émission d'un plasma créé par une impulsion laser, nous avons mené diverses campagnes expérimentales sur les installations laser du CELIA. Les dispositifs expérimentaux présentés ici ont permis l'étude spectrale et temporelle de l'émission X en fonction des paramètres du laser et de la nature de la cible. Nous présentons donc ici les diagnostics utilisés pour la caractérisation et le contrôle de l'impulsion laser ainsi que les détecteurs servant à étudier l'émission X (spectromètres et caméra à balayage de fente).

2.1 Dispositif expérimental

2.1.1 Le laser Aurore du CELIA

La majorité des résultats concernant les sources X ont été réalisés sur la chaîne laser Aurore du CELIA. L'ensemble du dispositif laser, depuis la création et la mise en forme

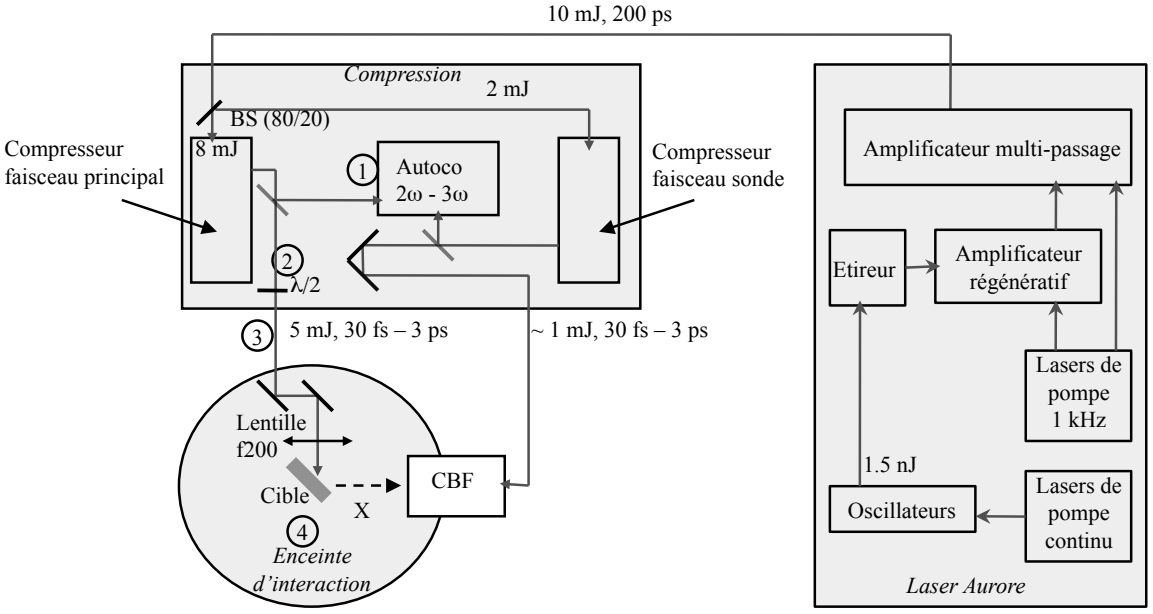


FIGURE 2.1 – Schéma global du dispositif laser Aurore, dans la configuration de détection ultra-rapide nécessitant un faisceau secondaire dit "faisceau sonde" pour déclencher la Caméra à Balayage de Fente (CBF).

de l'impulsion laser jusqu'à l'enceinte d'interaction, sont représentés sur la figure 2.1.

La chaîne laser est basée sur la technique dite « d'amplification à dérive de fréquence » ou « Chirp Pulse Amplification » (CPA). Une impulsion laser issue d'un oscillateur (1.5 nJ) est étirée temporellement pour être amplifiée via des cristaux Saphir dopés au Titane. L'énergie laser atteint 10 mJ après une série d'amplificateurs. L'impulsion est ensuite comprimée temporellement au moyen de deux réseaux pour atteindre une durée d'impulsion d'environ 30 fs. Le taux de répétition de ce système est de 1 kHz (limité par la cadence des lasers de pompe des amplificateurs). L'ensemble de ces étapes est résumé sur la figure 2.1.

Le laser avant compression est caractérisé par les paramètres suivants :

- Energie laser $E_{las} \simeq 10\ mJ$
- Durée d'impulsion laser $\tau_{las} \simeq 200\ ps$
- Taux de répétition = 1 kHz
- Profil spectral gaussien : la longueur d'onde centrale est $\lambda_0 \simeq 812\ \pm\ 5\ nm$ et la largeur à mi-hauteur vaut $\Delta\lambda \simeq 27\ \pm\ 4\ nm$

Le faisceau laser est ensuite transporté en salle d'expérience où a lieu la compression temporelle puis la focalisation sur cible dans l'enceinte expérimentale sous vide. Le faisceau est divisé en 2 partie par une lame séparatrice 80%/20%. Le faisceau « sonde » permet de déclencher la Caméra à Balayage de Fente (CBF), utilisée pour la mesure de la durée des sources X. Le faisceau principal, après compression, est focalisé sur cible par une lentille de focale de 200 mm. La caractérisation des différents paramètres lasers se fait tout au long de la chaîne et à différents points, représentés et numérotés sur la figure 2.1.

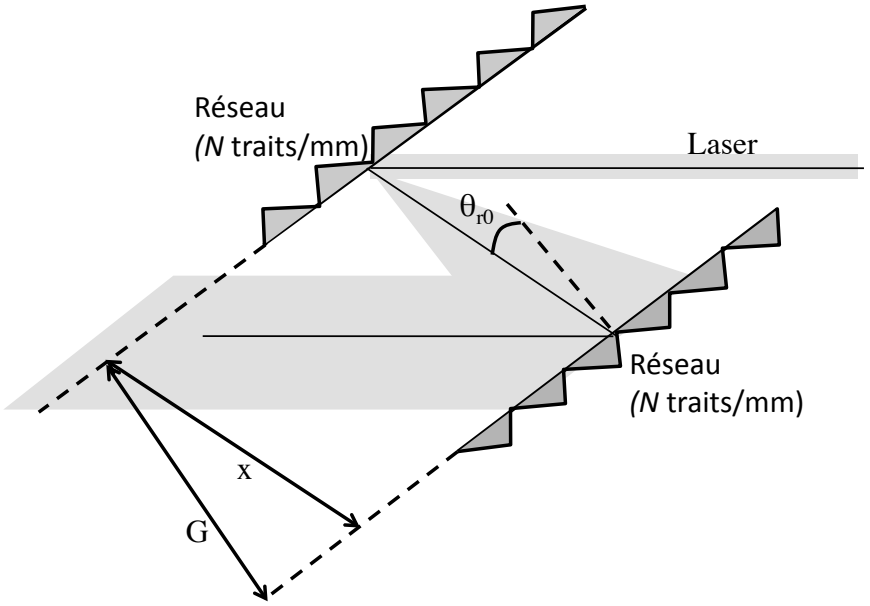


FIGURE 2.2 – Schéma donnant les grandeurs caractéristiques du compresseur temporel.

Mesure de la durée d'impulsion laser

Un paramètre clé pour la génération de rayonnement X, issu d'un plasma chaud et dense créé par laser, est la durée de l'impulsion laser. Nous avons cherché à la contrôler et à la faire varier de 30 fs à quelques ps à mi hauteur. La durée de l'impulsion laser après compression est directement liée à la distance x entre les réseaux du compresseur. La position optimale x_0 de réglage des réseaux correspond à la durée d'impulsion la plus courte. Elle a été mesurée à $\tau_0 = (30 \pm 5)$ fs à mi-hauteur. Pour augmenter la durée d'impulsion il suffit de translater un des réseaux. La durée d'impulsion τ est alors donnée par la formule suivante :

$$\tau_{[fs]} = \tau_{0\ [fs]} \cdot \sqrt{1 + \left[\frac{\rho_{[fs/mm]} . (x - x_0)_{[mm]}}{\tau_{0\ [fs]}} \right]^2} \tag{2.1}$$

ρ est une pente exprimée en fs/mm. Elle traduit le comportement linéaire entre la durée du laser et l'écart entre les réseaux loin de la compression optimale. L'expression de la phase spectrale de l'impulsion laser peut se développer de la manière suivante [1] :

$$\phi(\omega) = \phi_0 + \phi_1(\omega - \omega_0) + \frac{\phi_2}{2}(\omega - \omega_0)^2 + ... \tag{2.2}$$

Dans le cas d'une impulsion laser en sortie d'un compresseur, la durée laser en 1/e s'exprime ainsi :

$$\tau = \tau_0 \sqrt{1 + \left[\frac{2\phi_2}{\tau_0^2} \right]^2} \tag{2.3}$$

avec

$$\phi_2 = -4\pi^2\ (x - x_0)\ \frac{N^2 c}{\omega_0^3 \cos^2(\theta_{r_0})} \tag{2.4}$$

avec $G = x\cos(\theta_{r_0})$ la distance entre les deux réseaux ; x est la longueur du chemin optique parcouru ente les deux réseaux ; $N = 1480$ traits/mm, le nombre de traits/mm du réseau ; $\omega_0 = \frac{2\pi c}{\lambda_0}$, fréquence associée à $\lambda_0 = 810$ nm la longueur d'onde centrale ; $\theta_{r_0} = 28°$, l'angle de diffraction sur le 1^{er} réseau de la longueur d'onde centrale λ_0. L'ensemble de ces grandeurs sont représentées sur la figure 2.2.

Si on considère des durées à mi-hauteur dans la formule 2.1, la pente ρ s'exprime donc de la manière suivante :

$$\rho = (2\sqrt{ln2})^2 \frac{N^2\ \lambda_0^3}{cos^2(\theta_{r_0})\ \pi\tau_0\ c^2} \tag{2.5}$$

Après calcul on obtient ρ=(490 ± 80) fs/mm. L'incertitude est donnée principalement par l'incertitude sur la mesure de la durée d'impulsion optimale τ_0.

Nous avons comparé cette valeur théorique avec la valeur mesurée expérimentalement. L'évolution de la durée de l'impulsion en fonction de l'espacement entre les réseaux a été mesurée systématiquement à chaque début de campagne expérimentale et régulièrement vérifiée durant les expériences. Pour mesurer la durée des impulsions laser, nous avons utilisé un auto-corrélateur 2ω (position 1 sur la figure 2.1). Nous avons déterminé la valeur de ρ expérimentalement en considérant un écart entre les réseaux grand devant l'écart optimal. La pente mesurée est de 470 ± 50 fs/mm. Nous avons obtenu un accord raisonnable avec la pente théorique donnée par le formule 2.5.

Ces mesures de durées sont effectuées à l'air en sortie de compresseur avec l'autocorrélateur 2ω. L'impulsion laser doit par la suite traverser le hublot d'entrée de l'enceinte d'interaction et la lentille de focalisation sur cible. Ceci induit une dérive de fréquence qui peut se pré-compenser au 1^{er} ordre en ajustant l'écart entre les réseaux de compression.

Nous avons régulièrement vérifié notre optimum de compression sur cible, dans l'enceinte d'interaction, via plusieurs méthodes :
- avec un cristal doubleur placé sur le faisceau juste avant la cible sous vide et en optimisant l'intensité lumineuse de l'impulsion laser doublée (2ω),
- en optimisant le rayonnement d'X durs détecté par un compteur Geiger,
- ou encore dans le cas d'une cible d'aluminium en optimisant l'intensité du rayonnement Kα détecté sur nos spectromètres.

En effet l'émission de rayonnement X dur, comme les raies Kα, est fortement corrélée à l'émission d'électrons supra-thermiques. Ceux-ci sont particulièrement sensibles à l'intensité sur cible et donc à la durée d'impulsion laser (loi en $(I\lambda^2)^n$ [2, 3]). Leur émission est donc maximale pour une durée d'impulsion laser minimale. Toutes ces méthodes convergent pour déterminer la durée d'impulsion minimale sur cible. Cependant, la traversée d'une lentille apporte des aberrations temporelles, significatives pour des durées d'impulsion laser très brèves. Ceci est dû à la différence de temps du trajet de la lumière entre le bord et le centre du faisceau laser. L'erreur sur la durée d'impulsion laser, induite par cet effet, est estimé inférieure à $\sim$ 15 - 20 fs. Elle contribue à la barre d'erreur essentiellement sur les durées d'impulsion laser les plus courtes. Nous considérons une erreur maximale sur les durées d'impulsion les plus longues de $\sim$ 10%.

Contraste temporel picoseconde : autocorrélation 3ω

Un autre paramètre temporel très critique pour la génération d'X et pour l'interaction laser - cible solide en général, est le contraste temporel. Le contraste à l'échelle ps est mesuré par un autocorrélateur 3ω "SEQUOIA" (société Amplitude Technologie), placé

sur le faisceau principal ou sur le faisceau sonde après compression (position 1 sur la figure 2.1). Sur la figure 2.3, on constate que l'impulsion principale comporte un piédestal dont le contraste C_{ps-ASE} varie de $\sim 10^{-6}$ à 10^{-8} et un épaulement de contraste $C_{ps-Epaulement}$ variant de $\sim\ 10^{-4}$ à 10^{-5}, suivant les réglages du laser. Cet épaulement s'étend environ 3 ps avant le pic principal et a pour origine des défauts de compression (effet de correction imparfaite des ordres 3 et 4 de la phase spectrale), et/ou des effets d'intégrale B et/ou de légers défauts de coupure du faisceau sur des optiques [1]. Le piédestal est attribué à l'amplification de l'émission spontanée des cristaux amplificateurs du laser. On parle d'ASE pour «Amplified Spontaneous Emission». La mesure du seuil de détection se fait en coupant pendant un cours instant le trajet optique de l'impulsion laser.

Pendant les différentes campagnes expérimentales, le contraste de l'épaulement a pu varier suffisamment pour induire la création d'un pré-plasma et modifier la physique de l'interaction (cf. figure 2.3). Nous avons donc suivi ces variations quotidiennement pour étudier l'influence de cet épaulement dans l'interaction laser - cible solide.

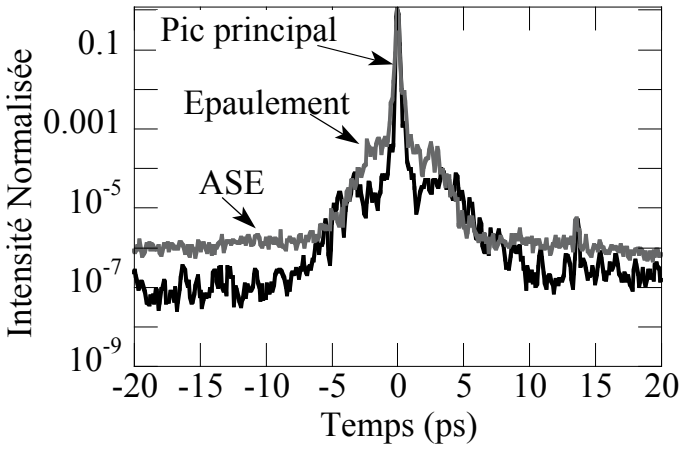


FIGURE 2.3 – Profils temporels de résolution ps et de grande dynamique, réalisés avec un autocorrélateur 3ω pour différentes campagnes expérimentales (Juin et Janvier 2007).

Contraste nanoseconde

La mesure du contraste temporel par autocorrélateur 3ω est limitée à une plage de $\pm$ 100 ps. L'oscillateur et la cavité de l'amplificateur régénératif engendrent des trains d'impulsions séparées d'une dizaine de ns, parmi lesquelles une seule impulsion est sélectionnée par des obturateurs optiques ultra-rapides (cellules de pockels). Ces derniers peuvent laisser passer une toute petite partie des autres impulsions, induisant en particulier des pré-impulsions une dizaine de ns avant le pic principal. Pour mesurer le contraste à l'échelle nanoseconde on place une photodiode sur le trajet optique du laser, reliée à un oscilloscope rapide. Une série de densités optiques calibrées est utilisée pour mesurer l'intensité maximale des impulsions. On observe l'existence d'une pré-impulsion, ~ 8 ns avant l'impulsion principale et de contraste C_{ns} pouvant aller de $\sim\ 10^{-6}$, en cas de mauvais réglages, à $\sim\ 10^{-9}$ en optimisant le réglage des cellules de pockels.

Tache focale

L'intensité sur cible est un autre facteur déterminant pour les caractéristiques du rayonnement X issu de plasmas chauds créés par laser. Nous avons mesuré la tâche focale du laser focalisé en champ lointain (position 4, figure 2.1). Pour cela, on effectue une reprise d'image du plan de focalisation par un objectif de microscope sur une caméra CCD. L'image présentée figure 2.4 est un exemple d'acquisition d'une tâche focale optimisée. Cette optimisation se fait directement, en ajustant les axes de translation et de rotation de la lentille afin de limiter les aberrations de focalisation. Sa coupe dans les dimensions horizontale x et verticale y donne les rayons en $1/e$ de la tâche focale σ_{0x} et σ_{0y}. Un exemple d'une coupe dans la dimension horizontale x est montré sur la figure 2.4. On relève un rayon de 19.27 ± 0.06 px soit 5.4 ± 0.5 μm (le grandissement utilisé est de $\gamma_X = 0.28 \pm 0.03$ μm/px)

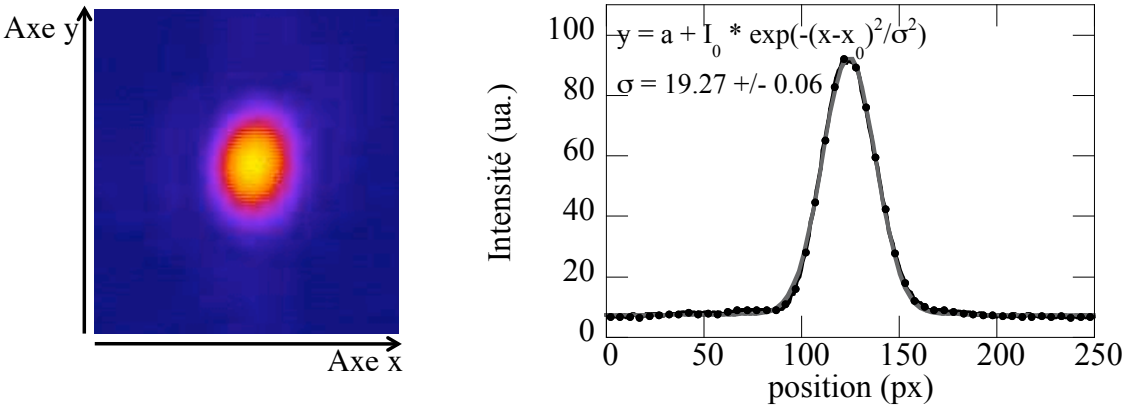


FIGURE 2.4 – Image d'une tâche focale et de sa soupe transversale (selon l'axe x) approximée par une courbe de tendance gaussienne.

L'écart par rapport à la théorie des faisceaux gaussiens est évalué via le paramètre M^2 (valable pour de petits écarts à la théorie) :

$$M^2 = \frac{\sigma_{exp}}{\sigma_{th}} \tag{2.6}$$

σ_{exp} est mesuré sur la tâche focale en I_0/e avec I_0 l'intensité maximale de l'approximation gaussienne de la coupe transverse de la tâche focale.

Le rayon théorique σ_{th} du faisceau est calculé avec la formule suivante :

$$\sqrt{2}.\sigma_{th} = \frac{\lambda}{\pi} \frac{f}{\sqrt{2}\ \sigma_{Champ\ Proche}} \tag{2.7}$$

$\sigma_{Champ\ Proche}$ est obtenu en mesurant l'énergie pour différents diamètres de diaphragme placé sur le faisceau laser en champ proche. On a mesuré $\sigma_{Champ\ Proche} = 6.2 \pm 0.1$ mm. La distance focale de la lentille est de 200 mm. On obtient alors $\sigma_{th} = 4.15 \pm 0.05$ μm ce qui donne un paramètre M^2 variant autour de 1.3 ± 0.1. Plus cette valeur s'éloigne de 1, moins le faisceau étudié peut être considéré comme gaussien.

Eclairement sur cible

L'intensité sur cible s'exprime de la manière suivante :

$$I = \frac{E_{cible}.(cos\theta_{inc})}{(\sqrt{\pi}.\tau_{las\ [1/e]}).(\pi.\sigma_{0y}.\sigma_{0x})}.\kappa \tag{2.8}$$

avec E_{cible} : l'énergie laser mesurée dans le plan de la cible,
$\tau_{las\ [1/e]}$: la demi durée de l'impulsion laser en I_0/e,
$\sigma_{0x,y}$: les rayons en I_0/e de la tache focale dans les deux axes X et Y,
θ_{inc} : l'angle d'incidence du laser par rapport à la normale à la cible,
et κ : la proportion d'énergie, contenue dans l'ellipse de rayons σ_{0x} et σ_{0y}, par rapport à un faisceau gaussien qui en contient 63%.

Durant les diverses campagnes expérimentales, nous avons travaillé en moyenne avec des taches focales de rayons $\sigma_{0x} = (7.4 \pm 0.9)\ \mu$m et $\sigma_{0y} = (7.0 \pm 0.9)\mu$m et avec un paramètre κ de 0.83. L'énergie du laser était mesurée avec un calorimètre après compression (position 3, figure 2.1), à l'entrée de l'enceinte d'interaction. Les pertes jusqu'à la cible (hublot d'entrée de l'enceinte, miroirs et lentille de focalisation) ont été mesurées et sont de 7%.

L'étude et l'optimisation de l'émission X a été réalisée en faisant varier entre autre, les paramètres lasers définis ci dessus. Dans le tableau 2.1, les valeurs de l'éclairement sur cible sont référencées pour les principales durées d'impulsion laser utilisées pour cette étude, pour une énergie sur cible de 5 mJ et un angle d'incidence laser θ_{inc} de 20°.

Durée impulsion laser $\tau_{las\ [1/2]}$	Eclairement sur cible (W/cm^2)
40 ± 15 fs	$(5.6 \pm 3.5) \times 10^{16}$
900 ± 90 fs	$(2.5 \pm 0.9) \times 10^{15}$
1.8 ± 0.2 ps	$(1.3 \pm 0.5) \times 10^{15}$
2.7 ± 0.3 ps	$(8.3 \pm 3.0) \times 10^{14}$
5.0 ± 0.5 ps	$(4.5 \pm 1.6) \times 10^{14}$

TABLE 2.1 – Eclairement sur cible pour différentes durées d'impulsion laser et pour $E_{/cible} = 5\ mJ$ et θ_{inc}=20°. Les barres d'erreurs son calculées à partir des incertitudes sur les grandeurs τ_{las}, $\sigma_{0x,y}$.

Estimation de l'effet du contraste temporel

Comme nous l'avons vu, l'émission X est directement liée à la qualité de l'interaction du laser avec la cible solide et est particulièrement sensible aux effets de pré-chauffage de la cible. Il est important de contrôler que les pré-impulsions et les piédestaux n'auront pas d'effets sur l'interaction laser - cible solide. On peut distinguer deux régimes différents :

– pour des pré-impulsions dont la durée est égale à celle du laser, une intensité trop importante peut détériorer la cible avant le pic principal de l'impulsion laser ;

– dans le cas d'un piédestal s'étendant sur plusieurs ns, il faut considérer la fluence, c'est à dire l'intensité intégrée pendant tout le piedestal.

Pour une durée d'impulsion de $\sim$ 40 fs et une énergie maximale de $\sim$ 5 mJ, l'intensité maximale sur cible est de $\sim$ 5.6 $\times 10^{16}$ W/cm^2.
Les pré-impulsions ns, de durée $\sim$ 40 fs, ont alors une intensité qui varie de $\sim$ 6 $\times 10^{10}$ à 6 $\times 10^{7}$ W/cm^2 après optimisation. Pour un métal, on considère en général que le seuil pour la création d'un pré-plasma est autour de $\sim$ 10^{11} W/cm^2. Le premier cas est limite alors que le deuxième (optimisé) ne pose aucun problème.
Le contraste de l'ASE varie de $\sim$ 10^{-6} à 10^{-8} et l'ASE dure $\sim$ 1 ns. Dans ce cas les fluences respectives sont de l'ordre de 60 et 0.6 J/cm^2. L'ordre de grandeur du seuil d'ablation de l'aluminium est évalué à $\sim$ 0.2 J/cm^2 [4]. Dans le cas d'une ASE de fluence 60 J/cm^2, nous devons considérer que l'impulsion principale du laser interagit avec un plasma détendu.
Pour l'épaulement de 3 ps du pic principal, l'intensité varie de $\sim 6\times 10^{11}$ à 6×10^{12} W/cm^2. Le premier cas se rapproche du seuil de création d'un pré-plasma pour un métal qui est de $\sim 10^{11}$ W/cm^2. Le second cas est clairement au dessus et devient problématique. Pour une impulsion de $\sim$ 40 fs, l'épaulement commence à ioniser et amorcer la détente de la cible. L'impulsion principale interagit avec un pré-plasma légèrement détendu, créé quelques ps avant. Cela pourra modifier les caractéristiques de l'émission X.

2.1.2 Spectroscopie X intégrée en temps

Schéma expérimental

Nous avons cherché à optimiser l'émission X, issue d'un plasma chaud et dense créé par interaction laser matière, pour réaliser des expériences de spectroscopie d'absorption fine proche du flanc K de l'aluminium et observer les oscillations XANES et EXAFS. Nous avons donc caractérisé spectralement l'émission X dans la gamme d'énergie allant de 1.5 à 1.8 keV. Le dispositif expérimental, utilisé sous vide, est représenté en figure 2.5.

Le faisceau laser, décrit précédemment, est focalisé avec une lentille de focale de 200 mm, sur une cible rafraîchie à chaque impulsion laser. Pour cela, un support de cible motorisé a été développé : un disque tourne sur son axe horizontal ce qui permet, avec un faisceau laser fixe, de décrire des cercles d'impacts dont le rayon est modifié en changeant la hauteur de la cible. La hauteur de l'impact sur la cible, l'angle d'incidence laser et la vitesse de rotation de la cible, donc l'espace entre les impacts, sont contrôlables et modifiables directement durant une série de tirs laser. Concrètement, la vitesse de rotation de la cible est calculée en fonction de la hauteur de la cible, pour avoir une distance optimale entre les impacts. Une série d'impacts sur une cible est présentée sur l'image 2.6. Cette image a été réalisée avec un microscope en collaboration avec la PALA (Plate-forme d'Application des Lasers en Aquitaine). On constate que les impacts d'une série de tirs sont parfaitement espacés et réguliers. Leur profondeur et leur diamètre ont été mesurés à l'aide d'un profilomètre à environ 30 μm et 50 μm respectivement pour l'aluminium.

L'ensemble des paramètres modifiables de l'interaction laser - matière sont alors les suivants :

– le type de cible solide utilisée (matériau, état de surface...)
– l'énergie laser (jusqu'à $\sim$ 5 mJ sur cible),
– la durée d'impulsion laser (de 30 fs à 5 ps)

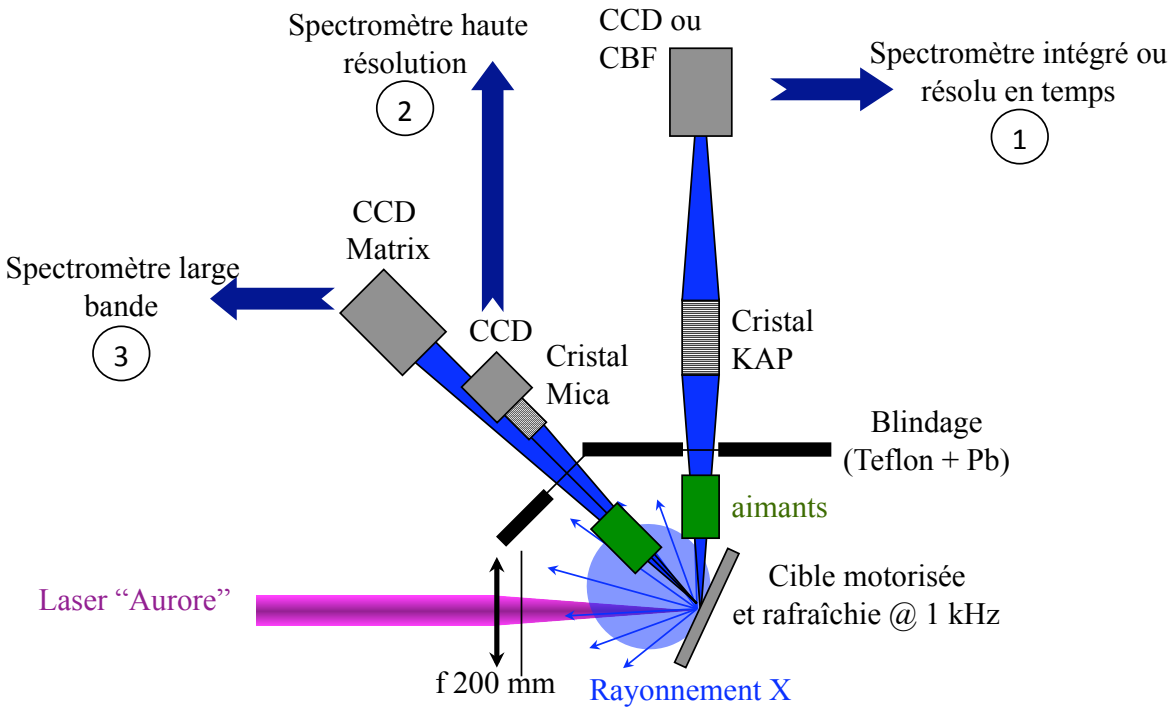


FIGURE 2.5 – Schéma de l'interaction laser - matière et diagnostics de caractérisation du rayonnement X.

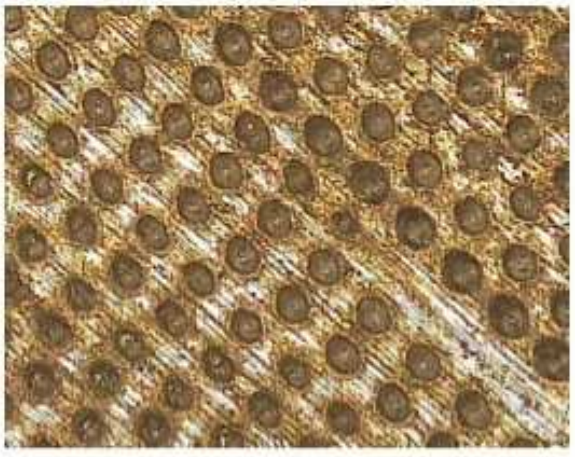


FIGURE 2.6 – Image d'une série de trous d'impact du faisceau laser sur une cible solide d'aluminium.

– la polarisation laser (S ou P)
– l'angle d'incidence laser
– et l'espacement entre les impacts lasers.

Le laser ainsi focalisé crée un plasma dense et chaud en surface de la cible qui émet un rayonnement X dans 2π stéradian (réabsorption en face arrière). L'émission X est caractérisée par divers diagnostics : deux spectromètres de haute résolution (positions 1 et 2 sur le schéma 2.5) [5, 6, 11] et un spectromètre large bande (position 3 sur le schéma

2.5) [13].

Les spectromètres X de haute résolution sont composés d'un cristal de diffraction et d'un détecteur. Le cristal permet de disperser le rayonnement issu de la source X selon la loi de Bragg :

$$2d\ sin\theta_B = n\lambda_n \tag{2.9}$$

avec n l'ordre de diffraction, d la distance interplanaire du cristal et λ_n la longueur d'onde réfléchie à l'angle de Bragg θ_B, à l'ordre n. Le spectre obtenu est détecté par une caméra CCD, pour un spectre intégré en temps, ou par une caméra à balayage de fente, pour un spectre résolu temporellement. Ces spectromètres ont été caractérisés au préalable et ont été calibrés en absolu permettant ainsi la conversion du nombre de comptes CCD en nombre de photons [5, 7].

Afin de protéger les optiques des débris projetés durant l'interaction laser - matière, nous plaçons des filtres de polypropylène C_3H_6 devant les cristaux de diffraction et une lame de microscope devant la lentille de focalisation. Durant l'interaction laser-matière, des particules chargées peuvent être accélérées et être à l'origine d'un bruit important sur les détecteurs. Pour palier à ce problème, nous avons placé des aimants sur le trajet de détection de l'émission X ainsi qu'un mur de blindage. Ce mur, composé d'une couche de plomb de 3 mm, placée entre deux couches de 6 mm de Teflon, permet d'arrêter les rayonnements X-durs parasites mais aussi les particules chargées et les rayonnements X secondaires associés.

Spectromètre à cristal de Mica

Dans un premier temps, nous avons utilisé un spectromètre, composé d'un cristal de Mica associé à une caméra CCD, montré sur la figure 2.7, que nous appellerons « spectromètre Mica ». Ce dispositif a déjà été utilisé avec succès au CELIA pour étudier l'émission de couche K (à $\sim$ 3 keV) d'agrégats d'argon [10]. Ce spectromètre est placé à 45° de l'axe d'incidence du laser (cf schéma 2.5, numéro 2). Il a été entièrement caractérisé et calibré en absolu [5].

Le cristal, de dimension 8 x 30 mm^2, disperse le rayonnement X selon la loi de Bragg (formule 2.6). Il a été taillé avec une courbure sphérique de rayon R = 100 mm. Par construction, en plaçant le détecteur au niveau du plan de focalisation, le spectre obtenu est focalisé et rectiligne (cf. figure 2.7). La résolution spatiale de la source X est donnée dans la dimension perpendiculaire à celle de la dispersion spectrale.

La gamme spectrale visée avec ce spectromètre s'étend de 1.30 à 1.70 keV. Sa résolution spectrale est estimée à $\lambda \setminus \delta\lambda \sim 3000$ soit $\delta\lambda \leq 1\ eV$ dans cette gamme spectrale. Il est utilisé à l'ordre 2 mais présente une réflectivité intégrée optimale à l'ordre 3 et 4. Des ordres supérieurs, correspondant à des émissions de environ 2.2 et 3.0 keV peuvent donc venir se superposer aux spectres attendus dans la gamme spectrale [1.30 - 1.70 keV]. Ce cristal a pour formule : $Ag(LiAl)[AlSi_3(O_8(OH)_2)]F_2$. Il est donc composé d'atomes d'aluminium dont le seuil d'absorption en couche K se situe à 1.56 keV (voir plus loin). Nous avons constaté en effet que cristal a pour particularité de présenter une coupure de réflectivité à 1.56 keV. Les spectres obtenus avec ce cristal doivent donc être corrigés de la superposition d'ordres supérieurs et de la coupure de réflectivité de l'aluminium. Nous verrons par la suite que ce spectromètre n'est pas adapté.

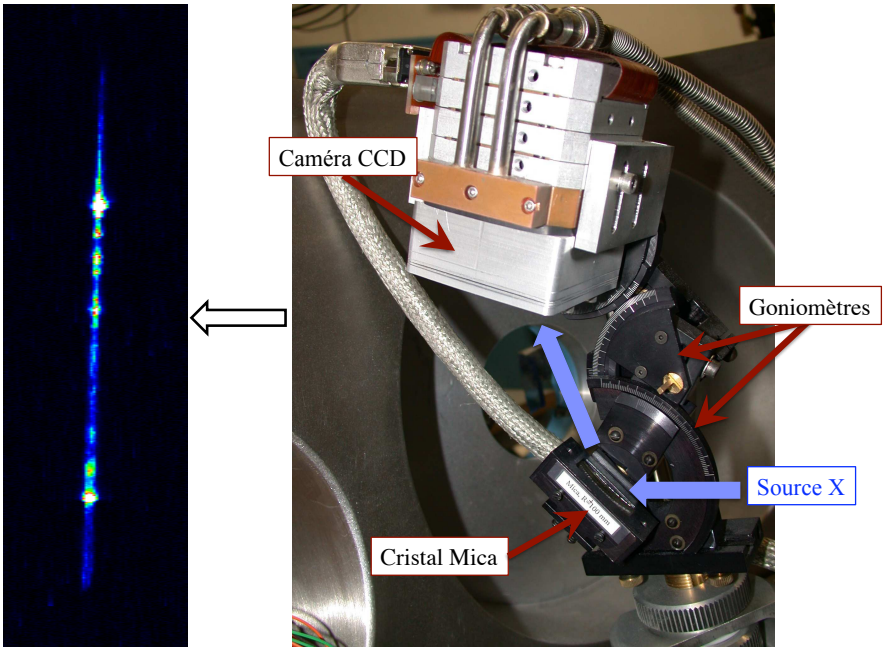


FIGURE 2.7 – Spectromètre intégré en temps composé d'un cristal Mica et image d'un spectre d'émission de l'aluminium.

Le rayonnement X, résolu en spectre, est détecté sur une caméra CCD (Charge Coupled Device). La taille d'un pixel est de 24 μm. La taille limitée du détecteur CCD (1024 $\times$ 1024 px soit $\sim$ 2.5 $\times$ 2.5 cm) restreint la gamme spectrale accessible. Malgré cela, une caméra CCD, au lieu de film photosensibles (Image Plate...) est plus adaptée sur une installation haute cadence (kHz). En effet, pour développer un film photosensible, il est nécessaire de casser le vide de l'enceinte d'interaction pour le récupérer, ce qui n'est pas le cas pour une caméra CCD. La réponse d'une caméra CCD est caractérisée par son coefficient de conversion η (nombre de comptes CCD par photons X) et son Efficacité Quantique de Détection EQD (voir plus loin).

Spectromètre à cristal de KAP

Comme nous le verrons par la suite, l'utilisation du spectromètre Mica sera limitée par une coupure de réflectivité et par la superposition d'ordres supérieurs. C'est pourquoi nous avons du développer un autre spectromètre composé d'un cristal dispersif de type KAP. Comme le spectromètre Mica, ce spectromètre a été utilisé au préalable lors d'expériences de caractérisation de l'émission X de couche K d'agrégats d'argon ($\sim$ 3 keV). Associé à une caméra à balayage de fente, il a permis de mesurer des durées d'émission X sub-ps [9]. Ce second spectromètre, utilisé ici pour obtenir des spectres intégrés en temps est placé à 90° de l'axe d'incidence du laser sur la cible (cf position 1, schéma 2.5). La même caméra CCD est utilisée de manière alternée avec le spectromètre Mica ou le spectromètre KAP. Le cristal KAP présente une courbure dite troncconique. Cette géométrie permet de focaliser le spectre le long d'un axe vertical, perpendiculaire à l'axe de détection. Comme le montre la figure 2.8, le cristal est taillé sur un cône dont le sommet se situe sur le plan focal du cristal. Comme pour le spectromètre MICA, lorsque le détecteur est placé au plan

focal, on obtient une résolution spatiale de la source X dans la dimension perpendiculaire à l'axe de dispersion spectrale.

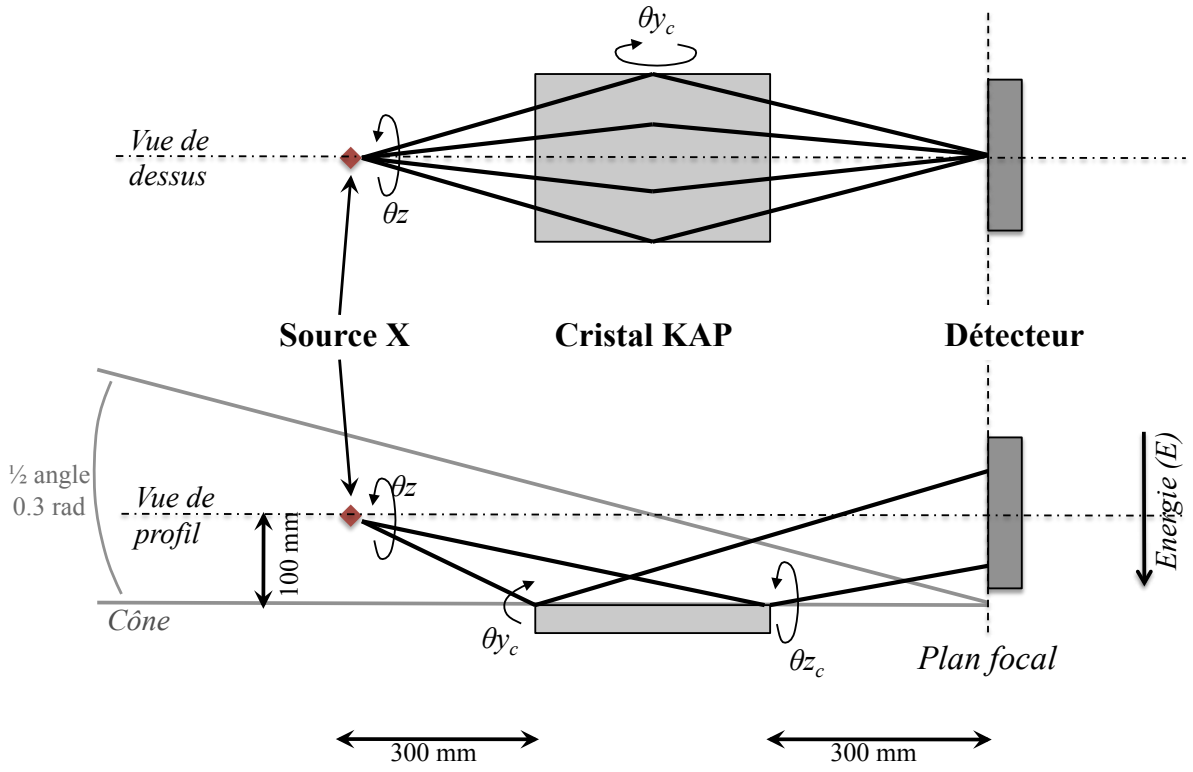


FIGURE 2.8 – Schéma de principe du spectromètre intégré en temps avec cristal KAP.

Sa réflectivité intégrée a été mesurée à l'ordre 2 ($\sim$ 3 keV) en utilisant le spectromètre Mica, calibré en absolu comme référence [8]. Elle vaut 1.5×10^{-5} rad. Sa réflectivité à l'ordre 1 est donnée par E. Martinolli et est mesurée pour un cristal semblable [11]. Elle vaut 1.5×10^{-4} rad. Tous ces résultats sont cohérents avec les valeurs calculées par A. Burek [12]. Le cristal peut aussi être couplé à une Caméra à Balayage de Fente (CBF). Dans ce cas, l'alignement est très sensible et la ligne focale de $\sim$ 100 μm de largeur doit être alignée avec la fente virtuelle de la CBF de même largeur environ ($\sim$ 100 μm). Pour cela, le cristal KAP est motorisé de façon à effectuer les réglages d'alignement sous vide. Il est motorisé selon trois axes différents :
- rotation autour de l'axe source - détecteur : θ_Z,
- rotation autour de l'axe parallèle à l'axe source - détecteur, le long du cristal : θ_{Z_c},
- rotation autour de l'axe transverse dans la largeur du cristal : θ_{Y_c}.

Ces trois rotations sont indiquées sur la figure 2.8. Elles nous permettent de régler la focalisation et la position de la trace dans le plan de focalisation. La gamme d'énergie observée est fixée par les distances source - cristal ($\sim$ 300 mm), cristal - détecteur ($\sim$ 300 mm) et hauteur du cristal par rapport à l'axe source - détecteur ($\sim$ 100 mm). Les cristaux sont taillés de manière à avoir une focalisation optimale pour une gamme d'énergie donnée, de 1.50 à 1.70 keV à l'ordre 1. Comme nous voulons optimiser l'émission X sur une gamme spectrale plus large, couvrant les oscillations XANES et EXAFS, nous avons procédé en étapes successives pour étendre la gamme d'étude de 1.5 à 1.8 keV. Par deux réglages

différents du cristal KAP, nous pouvons étudier une première gamme spectrale de 1.50 à 1.70 keV environ et une seconde de 1.60 à 1.80 keV environ. Nous avons placé devant le cristal, un cache constitué de deux lames, de part et d'autre du cristal pour limiter les aberrations de focalisation induites par les bords du cristal. Ceci diminue donc l'angle solide de collection du cristal.

Les grandeurs caractéristiques de ces spectromètres sont résumées dans le tableau 2.2. Y sont présentés, les gammes spectrales qui ont été utilisées respectivement avec les cristaux MICA et KAP, les rayons de courbures, la résolution spectrale accessible, la réflectivité intégrée à l'ordre utilisé et l'angle de collection Θ_{coll} du cristal. Ce dernier est donné par la partie de l'angle solide de détection projeté sur l'axe perpendiculaire à l'axe de dispersion spectrale. Il se calcule suivant la formule suivante :

$$\Theta_{coll} = \frac{l}{D} \tag{2.10}$$

avec l et D, respectivement, l'ouverture du cristal (largeur avec ou sans cache) et D la distance source-cristal. Pour le spectromètre avec cristal KAP, l'angle Θ_{coll} présenté dans le tableau 2.2 est calculé pour un angle d'ouverture maximal du cristal, sans cache devant les bords du cristal.

Cristal Mica à l'ordre 2	Gamme spectrale (limitée par la CCD)	1.48 - 1.63 keV
	Rayon de courbure	$R_{courbure} = 100$ mm
	Dimension	$l \times L = 8\times$ 30 mm^2
	Résolution spectrale	$\sim$ 1 eV
	Réflectivité intégrée	$R_{int} = 2 \times 10^{-5}$ rad
	Angle solide de collection	$\Theta_{coll} = 0.32$ rad
Cristal KAP à l'ordre 1	Gammes spectrales	1.50 - 1.70 keV 1.60 - 1.80 keV
	Rayon de courbure minimum	88.65 mm
	Rayon de courbure maximum	103.42 mm
	Dimension	$l \times L = 40 \times 50$ mm^2
	Résolution spectrale	$\sim$ 1 eV
	Réflectivité intégrée	$R_{int} = 1.5 \times 10^{-4}$ rad
	Angle solide de collection	$\Omega_{coll} = 0.11$ rad

TABLE 2.2 – Grandeurs caractéristiques des spectromètres de haute résolution Mica ou KAP pour la gamme d'énergie allant de 1.3 à 1.7 keV environ.

Spectromètre large-bande MATRIX

Un autre spectromètre consiste en une caméra CCD, utilisée en mode dynamique de comptage de photons. Un photon incident sur la caméra CCD laisse un signal proportionnel à son énergie dans un pixel ou dans plusieurs pixels adjacents. Ce système de détection, ne comprenant aucun élément dispersif, permet d'obtenir après utilisation d'un

algorithme de reconstruction, un spectre de très large gamme spectrale (de $\sim$ 1 à 25 keV) [13].

La reconstitution du spectre consiste brièvement en la création de l'histogramme des événements détectés. Il est pour cela nécessaire d'éviter l'accumulation d'événement sur un même pixel et de pouvoir isoler les événements à un seul pixel. Quand le signal du photon incident se réparti sur plusieurs pixels, on observe une perte du signal : l'énergie totale d'un photon, reconstituée en sommant le signal correspondant est inférieure à l'énergie du photon. Un blindage en plomb de 4 mm autour de l'axe de détection ainsi que des filtres Be de 25 μm et polypropylène devant la CCD permettent de diminuer le bruit sur la CCD. En effet, un blindage de plomb réduit le nombre de photons ne provenant pas directement de la source X et diffusés sur les optiques, les parois de l'enceinte... Les filtres de berylium et de polypropylène permettent de ne détecter que des X et d'enlever des contributions parasites telles que le rayonnement XUV ou visible. Le nombre de photons X de faibles énergies est diminué ce qui évite une accumulation de photons par pixel. Le choix de filtres de propylène très épais permet aussi de sélectionner une gamme spectrale encore plus énergétique. En mode dynamique, la CCD acquiert 80 images pour une acquisition. Ceci permet de diminuer le nombre de photons par pixel et donc d'éviter la superposition d'événements sur un même pixel CCD. L'erreur se retrouve diminuée.

Ce spectromètre mesure un spectre d'émission sur une gamme spectrale de plus de 20 keV avec une fluctuation de 13% RMS. Sa résolution est d'environ 150 eV et sa dynamique est d'environ deux ordres de grandeurs, selon le nombre d'images accumulées.

En mesurant l'émission X émise sur une aussi large gamme spectrale, nous pouvons estimer le fond continu d'émission Bremsstralhung et remonter aux températures des électrons chauds [13].

2.1.3 Spectroscopie X résolue en temps

La caméra à balayage de fente

Le système de détection ultra-rapide utilisé ici a été entièrement caractérisé par C. Bonté [7, 8]. Sa très bonne résolution temporelle a déjà permis de mesurer une durée d'émission X inférieur à la picoseconde [9]. Il est représenté sur la figure 2.9. Il s'agit d'un prototype de Caméra à Balayage de Fente (CBF), développé par la société AXIS et le laboratoire INRS-EMT (Varennes, Canada), associé à un cristal tronconique KAP. Le signal détecté est donc résolu en spectre et en temps.

Le cristal KAP est celui décrit précédemment. Sa géométrie, de type tronconique permet d'obtenir dans le plan focal une trace verticale, focalisée. L'ensemble du rayonnement X collecté par le cristal est focalisé sur la fente d'entrée de la CBF. Le fonctionnement détaillé de la CBF est représenté sur la figure 2.10.

Dans un premier temps, le rayonnement X est converti en électrons par une photocathode en KI. Une fente de 1 mm est placée à 2.5 mm de la photocathode, à un potentiel nul. La photocathode est mise sous une tension de $V_{PK} \sim -15\ kV$. Le champ électrique ainsi créé accélère les électrons convertis par la photocathode. Un système d'imagerie spatiale, constitué de lentilles électrostatiques, permet d'ajuster la focalisation des électrons sur un écran de phosphore situé en sortie de la CBF. Le faisceau d'électron est dispersé en temps au moyen de plaques de déflexion, auxquelles sont appliquées des rampes de tension représentées sur la figure 2.10 : les électrons sont soumis à un champ électrique, perpendi-

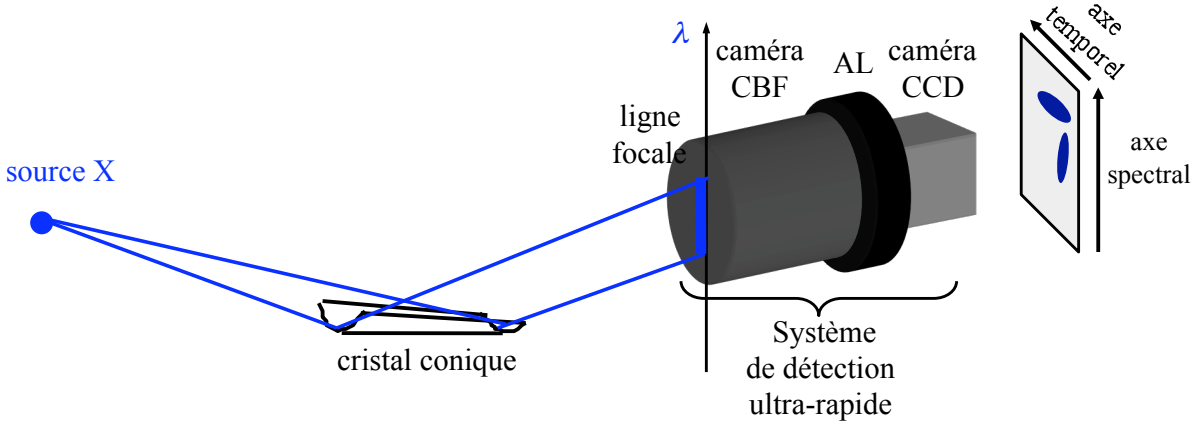


FIGURE 2.9 – Schéma du spectromètre résolu en temps, composé d'un cristal tronconique KAP, d'une caméra à balayage de fente, d'un Amplificateur de Luminescence (AL) et d'une caméra CCD.

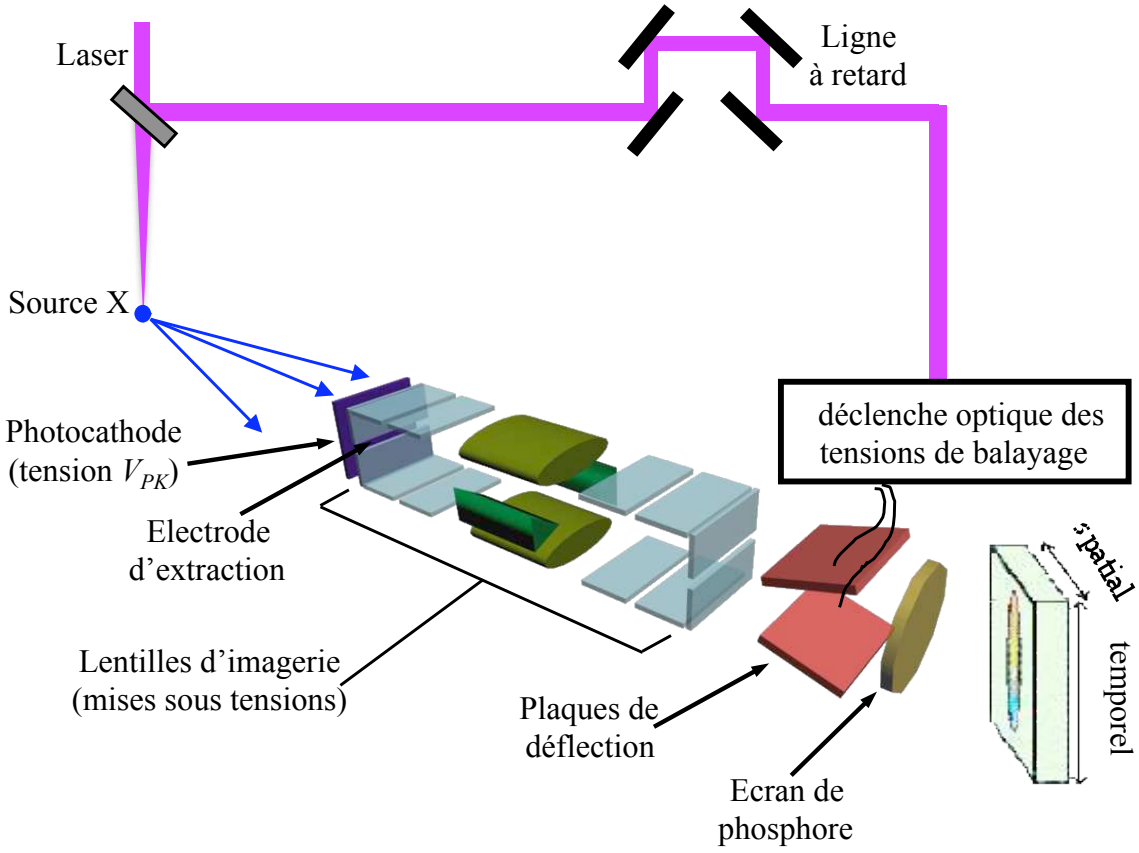


FIGURE 2.10 – Schéma de fonctionnement de la caméra à balayage de fente avec déclenche par commutateurs optiques.

culaire à l'axe de la CBF et qui évolue rapidement avec le temps, induisant une dispersion temporelle. Un pavé de phosphore convertit le faisceau d'électrons focalisé spatialement et dispersé temporellement, en photons visibles détectables par une caméra CCD. Pour

augmenter l'intensité du signal détecté et ainsi améliorer la dynamique de détection de l'ensemble du système, un amplificateur de luminescence est placé entre le phosphore de la CBF et la caméra CCD.

La résolution temporelle accessible en mode monocoup est inférieure à la ps [14]. Le signal sur bruit obtenu est limité à 10 : 1. En mode accumulé, il est possible d'augmenter considérablement la dynamique de détection. Dans ce cas la gigue temporelle de déclenche des rampes de tensions doit être constamment optimisée pour conserver une bonne résolution temporelle. Après optimisation, il est possible d'obtenir une résolution temporelle sub-ps en utilisant un système de déclenche optique [8]. Les réglages et l'optimisation de la caméra streak avec déclenche optique sont assez sensibles. Il est donc nécessaire de caractériser régulièrement la résolution temporelle et la vitesse de balayage de la CBF (surtout la résolution temporelle, la vitesse de balayage ne varie pas trop).

Montage pour la caractérisation temporelle

L'ensemble des réglages de la CBF nécessite un montage expérimental adapté qui est présenté sur la figure 2.11.

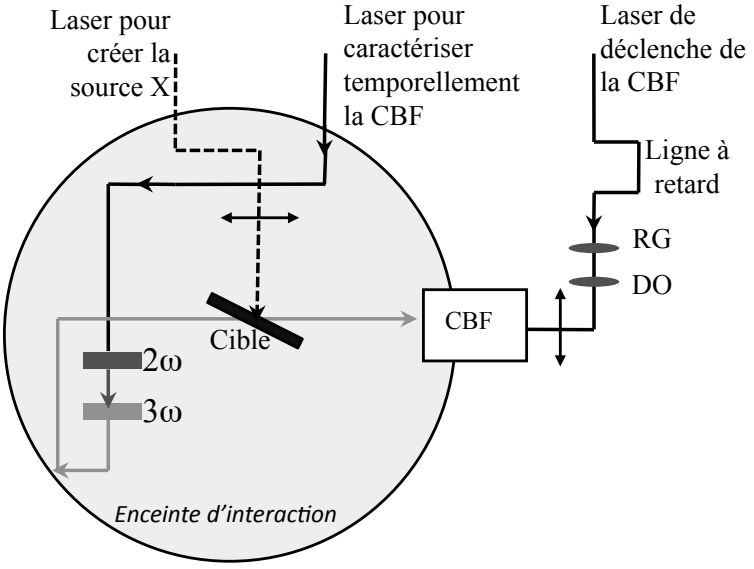


FIGURE 2.11 – Schéma du dispositif expérimental pour la mesure de la résolution temporelle et de la vitesse de balayage.

Un faisceau laser est prélevé du faisceau principal pour être envoyé sur des commutateurs optiques, consistant en des résistances photo-sensibles. Nous avons optimisé ce système de déclenche en plaçant sur le faisceau, avant les commutateurs opto-électroniques, une série d'absorbants saturables (RG), de diaphragmes ou de densité optiques DO. L'ensemble de ces éléments optiques permettent de modifier l'énergie et de nettoyer l'impulsion laser de déclenche de ses pré-impulsions et de son piédestal. Dans un premier temps, la combinaison de ces éléments est déterminée en optimisant le profil des rampes de la caméra à balayage de fente avec un oscilloscope.

Dans un second temps, nous optimisons directement la résolution temporelle en envoyant en entrée de la CBF, un faisceau 3ω obtenu par doublement puis triplement de

fréquence d'une impulsion laser de 30 fs (cf. figure 2.11). La durée estimée du faisceau 3ω est de $\sim$ 100 fs [15]. Il nous est possible de vérifier quotidiennement la résolution temporelle et la vitesse de balayage de la CBF.

Après optimisation du signal de déclenche de la caméra streak, celui ci est synchronisé avec le faisceau laser principal. La rampe de tension doit en effet être déclenché afin que les électrons créés par l'impulsion principale soient balayés au bon moment et avec la vitesse de balayage v_{bal} la plus grande possible. La synchronisation se fait d'abord avec des retards électroniques puis est affinée avec la ligne à retard.

Sur la figure 2.12, une trace balayée en sortie de détecteur est représentée. L'axe horizontal correspond au balayage en temps et l'axe vertical à l'axe spatial le long de la photoctahode.

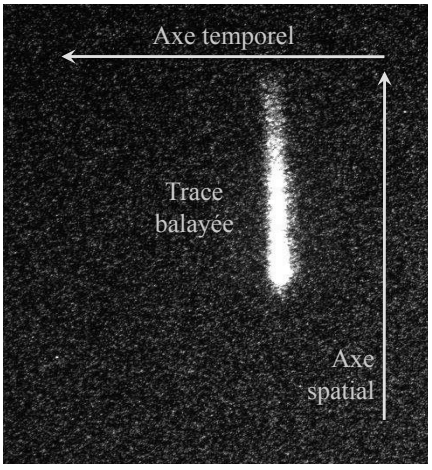


FIGURE 2.12 – Image, obtenue par la caméra à balayage de fente, du faisceau 3ω envoyé directement sur la fente d'entrée de la caméra CBF.

Cette trace se déplace le long de l'axe temporel quand on modifie le délai entre le faisceau pompe et le faisceau de déclenche. C'est ainsi que nous mesurons la vitesse de balayage, en relevant la position de la trace pour différents délais temporels entre l'impulsion de déclenche et l'impulsion 3ω. La largeur à mi-hauteur de cette trace nous permet aussi de mesurer la résolution temporelle de la CBF. Cette résolution est dominée par la gigue temporelle obtenue entre l'impulsion de déclenche et le signal détecté. Cette dernière est très sensible à la stabilité en énergie du laser et à son contraste temporel. Ainsi, la résolution temporelle a varié de 1.7 à 2.3 ps rms pendant les mesures effectuées avec la CBF (cf. chapitre 3). La valeur de la vitesse de balayage était comprise entre 12.5 et 14.5 ps/mm. Ces réglages sont en dessous des performances optimales de cette CBF mais sont largement suffisants pour caractériser les sources X à l'étude dans ce manuscrit.

2.2 Analyse et méthodologie

Afin d'extraire, à partir d'images brutes mesurées, des spectres intégrés et résolus en temps les plus fiables possibles, nous avons appliqué des procédures d'analyse systématiques.

Raies	indice figure	Energie (eV)
Kα	1	1487 ± 1
O-, F-like	2	1501 ± 5
N-like	3	1514 ± 5
C-like	4	1528 ± 5
B-like	5	1545 ± 5
Be-like	6	1560 ± 5
Li-like 1	7	1574 ± 1
Li-like 2		1578 ± 1
Li-like 3		1580 ± 1
IC Heα	8	1588 ± 1
Heα	9	1598 ± 1
Satellites Lyα	10	1724 ± 1
Doublet Lyα	11	1728 ± 1
		1729 ± 1

TABLE 2.3 – Raies d'émissions de l'aluminium [16, 17].

2.2.1 Calibration spectrale

L'objectif est d'étudier spectralement l'émission X issue de l'interaction de l'impulsion laser avec une cible solide de Z élevé. Comme expliqué au chapitre 1, nous cherchons à obtenir un spectre d'émission de large bande spectrale et avec le minimum de structures spectrales. Il est donc impossible avec ce type de spectre d'utiliser des raies bien définies pour un calage spectrale. Nous avons besoin d'une procédure de calibration spectrale fiable et indépendante. Pour cela, nous utilisons les spectres d'émissions de couche K d'éléments de Z léger, comportant des raies d'émissions, isolées, connues et identifiées. Comme expliqué précédemment, nous visons une gamme spectrale s'étendant de $\sim$ 1.4 à 1.8 keV.

Raies de l'Aluminium

Pour étalonner nos spectres, nous avons mesuré le spectre de couche K de l'aluminium dont les raies d'émission de type Kα, Heα et Lyα sont parfaitement tabulées (cf. table 2.3). Sur la figure 2.13, deux spectres d'aluminium sont présentés. Ils ont été obtenus dans deux gammes d'énergies complémentaires. Les paramètres de l'interaction laser - matière sont : une énergie laser $E_{las} = 4.5 \pm 0.2$ mJ et une durée d'impulsion laser $\tau_{las} = 2.8 \pm 0.3$ ps.
La calibration (pixel - eV) est approximée par un polynôme d'ordre 2. La précision de cette calibration est de environ 1 eV sur l'emplacement des raies. La résolution spectrale accessible avec les cristaux MICA et KAP est aussi de $\sim$ 1 eV.

Spectre du Samarium

Les raies de l'aluminium sont globalement toutes à des énergies inférieures à $\sim$ 1.6 keV. Seules subsiste la double raie Lyα située à environ 1.73 keV. La qualité de la calibration se retrouve donc limitée pour des énergies supérieures à environ 1.65 keV. Pour étalonner nos

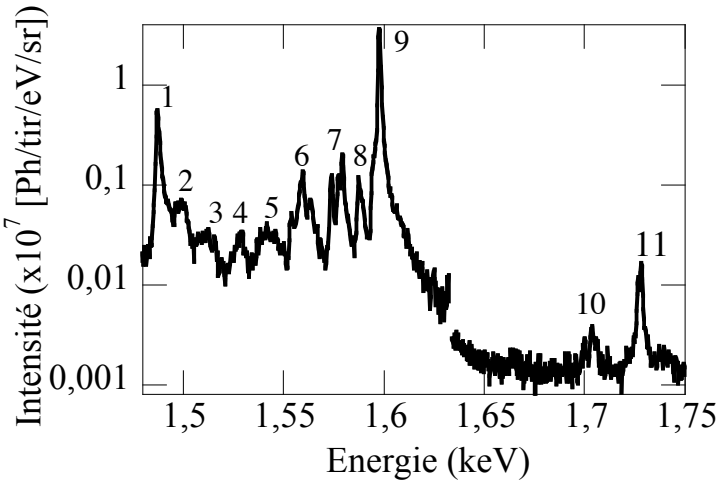


FIGURE 2.13 – Spectres de raies de l'aluminium obtenu pour $E_{las} = 5$ mJ, $\tau_{las} = 3$ ps.

spectres dans la gamme 1.65 - 1.80 keV, nous avons utilisés le spectre du samarium. Cet élément présente des « quasi-raies » non tabulées mais suffisament fines dans la gamme d'énergie voulue (cf. figure 2.14). Il nous a fallu au préalable déterminer les longueurs d'ondes de ces « quasi-raies ». Nous avons procédé de proche en proche en mesurant le spectre d'émission du samarium sur des gammes spectrales intermédiaires. On part de la gamme spectrale 1.50 - 1.65 keV, déjà calibrée avec les raies de l'aluminium et on relève les énergies des premières « quasi-raies » du samarium. On décale ensuite la gamme visée vers de plus hautes énergies pour relever les autres quasi-raies caractéristiques du samarium. Nous avons alors déterminé les énergies correspondantes sur la gamme 1.55 - 1.80 keV. Afin d'éviter une dérive de l'étalonnage, nous avons aussi utilisé le doublet Hα de l'aluminium, situé à 1728 et 1729 keV (cf. Table 2.3).

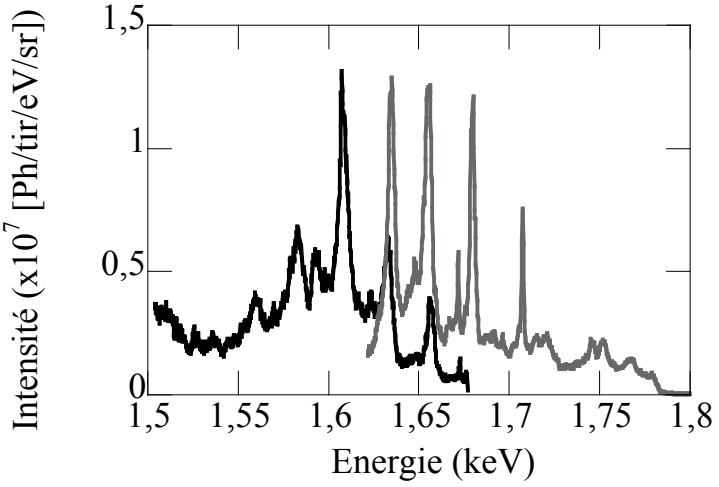


FIGURE 2.14 – Spectres des « quasi-raies » du Sm (E_{las}= 5 mJ, τ_{las}= 3ps), pour différentes gammes spectrales de détection.

Au final l'ensemble des raies du Sm et de l'Al nous permettent d'obtenir un polynôme

de conversion (pixel - eV) sur les gammes spectrales visées entre 1.50 et 1.80 keV. La précision de la calibration est évaluée en comparant deux spectres, censés être identiques, de calibrations différentes. Sur l'ensemble des spectres calibrés, de l'aluminium et du samarium, pour l'ensemble des campagnes expérimentales, l'incertitude de la position absolue des raies ne dépasse pas 1.5 eV.

2.2.2 Soustraction du bruit de fond

Pour construire le spectre d'émission à partir de l'image mesurée par la CCD, nous intégrons le signal correspondant au spectre sur une largeur $2a$ (cf. figure 2.15). Le spectre intégré comprend l'émission X S_X de la source plasma plus un bruit de fond B : $S = S_X + < B > + \Delta B$. On distingue la valeur moyenne du bruit de fond $< B >$ et les fluctuations de ce bruit ΔB.

Les contributions au bruit de fond mesuré sont diverses :
- le bruit moyen associé au système de détection est soustrait directement durant la mesure. Pour cela, nous réalisons au préalable de toute acquisition, une image de bruit de fond durant le même temps d'acquisition. Cette image est par la suite soustraite systématiquement lors de la mesure. Il reste cependant les fluctuations statistiques de ce bruit qui correspondent à seulement quelques comptes CCD quand on refroidit la CCD à -35°C.
- sur l'ensemble de l'image, s'ajoute au bruit de détection, un bruit dû au rayonnement X-durs (issu des électrons chauds du plasma) et un bruit de fluorescence des cristaux. Il nous est impossible de différencier ces différentes contributions qui constituent un fond moyen. Durant l'analyse, nous effectuons une soustraction de ce fond moyen $< B >$. Celui-ci est évalué en intégrant le signal mesuré sur deux zones (M_{haut} et M_{bas}, cf. figure 2.15), de part et d'autre du spectre, et de tailles égales à a, la moitié de la zone d'intégration du spectre S. Pour corriger du bruit de fond moyen $< B >$, il suffit de soustraire M_{haut} et M_{bas} au spectre brut S : $S_{corr} = S - < B >= S - (M_{haut} + M_{bas})$.
- au niveau des pixels CCD comprenant le signal du spectre mesuré, s'ajoute aussi un bruit statistique, dit de grenaille, associé au comptage de photons ($\propto \sqrt{N}$, avec N le nombre de photons).

Au final, il reste le bruit d'origine extérieure, de valeur moyenne nulle (X-durs...) et le bruit statistique de grenaille.

2.2.3 Conversion en nombre absolu de photons

Les spectromètres intégrés en temps ont été calibrés en absolu de manière à convertir des nombres de comptes CCD en photons émis par la source de rayonnement X, par tir, par eV et par sr [ph/tir/eV/sr].

Pour un nombre $N(E)$ de photons X d'énergie E, émis par la source :

$$N_{cptes\ CCD}(E) = N(E)_{ph/eV/sr/tir} \times \varepsilon_{detection}(E) \times \frac{\delta E}{\delta px} \times n_{tir} \tag{2.11}$$

avec $N_{cptes\ CCD}$ le nombre de comptes CCD, n_{tir} le nombre de tirs accumulés durant l'acquisition et $\varepsilon_{detection}(E)$ l'efficacité de détection. Celle ci s'exprime de la façon suivante :

$$\varepsilon_{detection}(E) = \Theta_{coll} \times R_{int} \times T_{filtre}(E) \times EQD(E) \times \eta(E) \tag{2.12}$$

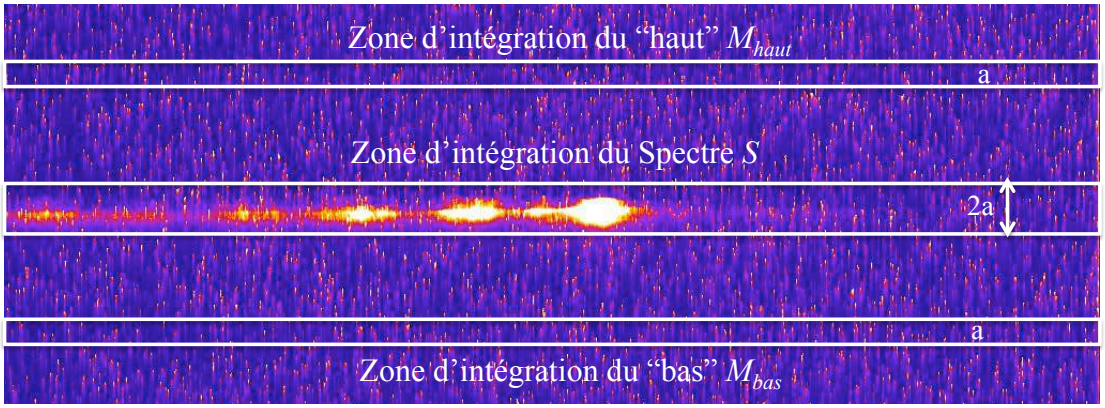


FIGURE 2.15 – Image obtenue avec le détecteur CCD d'un spectre d'Al (cristal KAP). Visualisation des zones sélectionnées pour évaluer la correction du bruit de fond.

avec Θ_{coll}, l'angle de collection (i.e. une partie de l'angle solide de détection) ; R_{int}, la réflectivité intégrée du cristal (qui intègre l'autre partie de l'angle solide de détection, le long de la dispersion spectrale) ; $T_{filtre}(E)$, la transmission de l'ensemble des filtres placés entre la source X et le détecteur ; $EQD(E)$, l'Efficacité Quantique de Détection et $\eta(E)$, l'efficacité de conversion de la CCD (nombre de comptes CCD par photon). $\frac{\delta E}{\delta px}$ s'exprime en (eV/pixel) et est dû à la conversion de l'échelle spectrale en pixel sur l'image CCD, transformée en eV sur le spectre final.

Comme nous l'avons vu précédemment, l'angle de collection Θ_{coll} du cristal se calcule suivant la formule 2.10. La réflectivité intégrée R_{int} est donnée pour chaque cristal dans le tableau 2.2 des caractéristiques des cristaux. La transmission totale des filtres $T_{filtre}(E)$ est calculée en multipliant la transmission de chaque filtre utilisé. Nous avons utilisé deux types de filtres :

- un filtre de beryllium (Be) de 25 ou 7 μm d'épaisseur dont la transmission est très faible pour des énergies inférieures à 1 keV [18],
- un film de polypropylène C_3H_6 de 8 ou 12 μm pour protéger les cristaux de diffraction des débris projetés durant l'interaction laser - cible solide.

Le premier filtre est placé juste avant la caméra CCD tandis que le second se situe devant les cristaux KAP et MICA. La transmission de ces filtres est systématiquement prise en compte dans l'analyse des spectres pour remonter au nombre absolu de photons émis par la source (ph/tir/eV/sr). La transmission totale des ces filtres est présentée en figure 2.16.

L'efficacité quantique de détection $EQD(E)$ de la caméra CCD, dans la gamme d'énergie [1.3 - 1.7 keV], est évaluée par interpolation d'une série de données, mesurées par le constructeur. Le comportement de l'EQD en fonction de l'énergie du photon incident est représenté sur la figure 2.17. Pour un photon de 1.5 keV, EQD $\sim$ 68%.

L'efficacité de conversion η de la caméra CCD correspond au nombre de comptes CCD obtenus pour un photon incident. Un quantum d'énergie ϵ de 3.65 eV est nécessaire pour créer une paire électron - trou. Le coefficent de conversion paires électrons - trou en comptes CCD est N_p= 9 (e - trou) / cpte CCD. Le coefficient de conversion η photon -

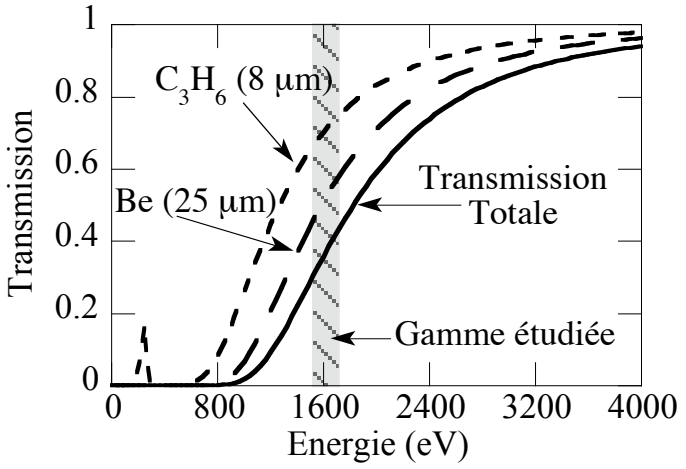


FIGURE 2.16 – Transmission des filtres utilisés pour les spectromètres X : filtre de polypropylène C_3H_6 de 8 μm, filtre de Béryllium Be de 25 μm et transmission totale.

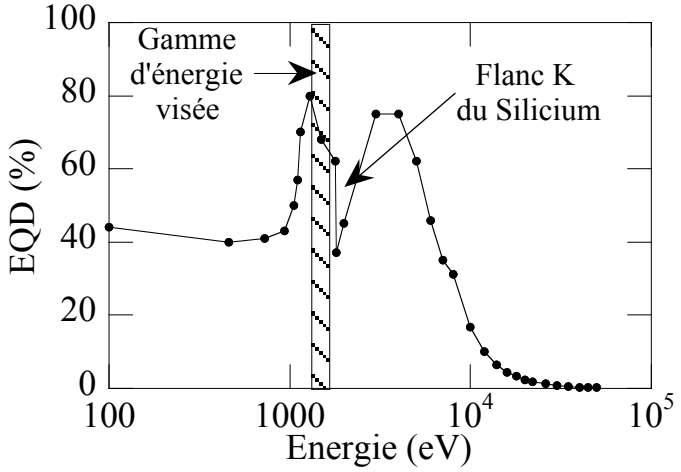


FIGURE 2.17 – Efficacité quantique de détection EQD de la caméra CCD, mesurée par le constructeur.

comptes CCD, pour une énergie de photon $E_{[eV]}$, est alors :

$$\eta(E) = \frac{E_{[eV]}}{N_p \times \epsilon} = 0.03 \times E_{[eV]} \tag{2.13}$$

Un photon de 1.5 keV laisse un signal de 45 comptes CCD.

Pour convertir l'échelle spectrale en eV, nous utilisons la calibration spectrale obtenue avec les spectres d'aluminium et de samarium. Elle s'exprime sous la forme d'un polynôme d'ordre 2 de type $E_{[eV]} = a + bx_{[px]} + cx^2_{[px]}$. Le facteur $\frac{\delta E}{\delta px}$ se calcule en fonction des coefficients b et c pour chaque position spectrale $x_{[px]}$:

$$\frac{\delta E}{\delta px}_{[eV/px]} = b + 2cx_{[px]} \tag{2.14}$$

En considérant l'ensemble de ces facteurs, nous obtenons l'expression du nombre de photons X en absolu, par eV, par tir et par sr :

$$N_{[ph/tir/eV/sr]}(E) = \frac{N_{cptes\ CCD}(E)}{n_{tir}.\frac{\delta E}{\delta px}.T_{filtres}(E).\Theta_{coll}.R_{int}.EQD(E).\eta(E)} \tag{2.15}$$

2.2.4 Correction des ordres supérieurs du cristal MICA

Méthodologie

En comparant les spectres obtenus avec le cristal KAP et le cristal MICA, nous avons constaté des structures spectrales parfois très différentes, notamment pour des spectres de Z élevé. En effet, nous utilisons le cristal MICA à l'ordre 2 (réflectivité intégrée R_{int}= 20 μrad) alors que celui-ci présente une réflectivité intégrée R_{int} de 35 μrad à l'ordre 3 et de 25 μrad à l'ordre 4. L'ensemble de nos spectres résulte alors de la superposition de l'ordre 2 avec des ordres supérieurs. Pour déterminer la contribution de ces ordres supérieurs, nous avons ajouté successivement, devant le spectromètre MICA, une série de filtres de polypropylène d'épaisseurs 100 et 200 μm. Les coefficients de transmission de ces filtres, pour les ordres 2, 3 et 4, sont récapitulés dans le tableau 2.4.

100 μm C_3H_6	ordre 2 (1500 eV)	$A = 0.85$ %
	ordre 3 (2250 eV)	$B = 21.7$ %
	ordre 4 (3000 eV)	$C = 50$ %
200 μm C_3H_6	ordre 2 (1500 eV)	$A' = 0.007$ %
	ordre 3 (2250 eV)	$B' = 4.7$ %
	ordre 4 (3000 eV)	$C' = 25$ %

TABLE 2.4 – Coefficients de transmission des filtres de polypopylène C_3H_6 de 100 et de 200 μm pour les ordres 2, 3 et 4.

L'ensemble des spectres « bruts » d'émission des éléments Samarium Sm, Gadolinium Gd, Dysprosium Dy et Erbium Er, obtenus avec des filtres de 100 et 200 μm de C_3H_6, est montré sur la figure 2.18. Dans le cas de l'Ytterbium Yb, non présenté ici, l'ensemble de l'émission est atténuée des coefficients B et B' (cf. Tableau 2.4) correspondant à une émission de l'ordre 3 principalement. Ce spectre n'est donc absolument pas exploitable pour ce qui nous intéresse ici, c'est à dire l'ordre 2 à 1500 eV.

Sur l'ensemble des spectres, on remarque la présence d'une coupure entre 1.55 et 1.6 keV. Il s'agit du flanc K d'absorption de l'aluminium qui rentre dans la composition du MICA : l'émission X détectée est plus absorbée juste après le seuil K. A noter que la « coupure aluminium» n'est pas à 1.56 keV mais plus loin. Il s'agit sans doute d'un décalage du flanc K dû à la configuration et au type des atomes voisins de l'Al dans le cristal MICA.

L'utilisation de filtres de 100 et 200 μm supplémentaires de C_3H_6 soulignent l'existence de structures d'émission correspondant à des ordres supérieurs. Ainsi, nous voyons clairement apparaître sur les spectres des éléments Sm, Gd, Dy, des pics persistant avec

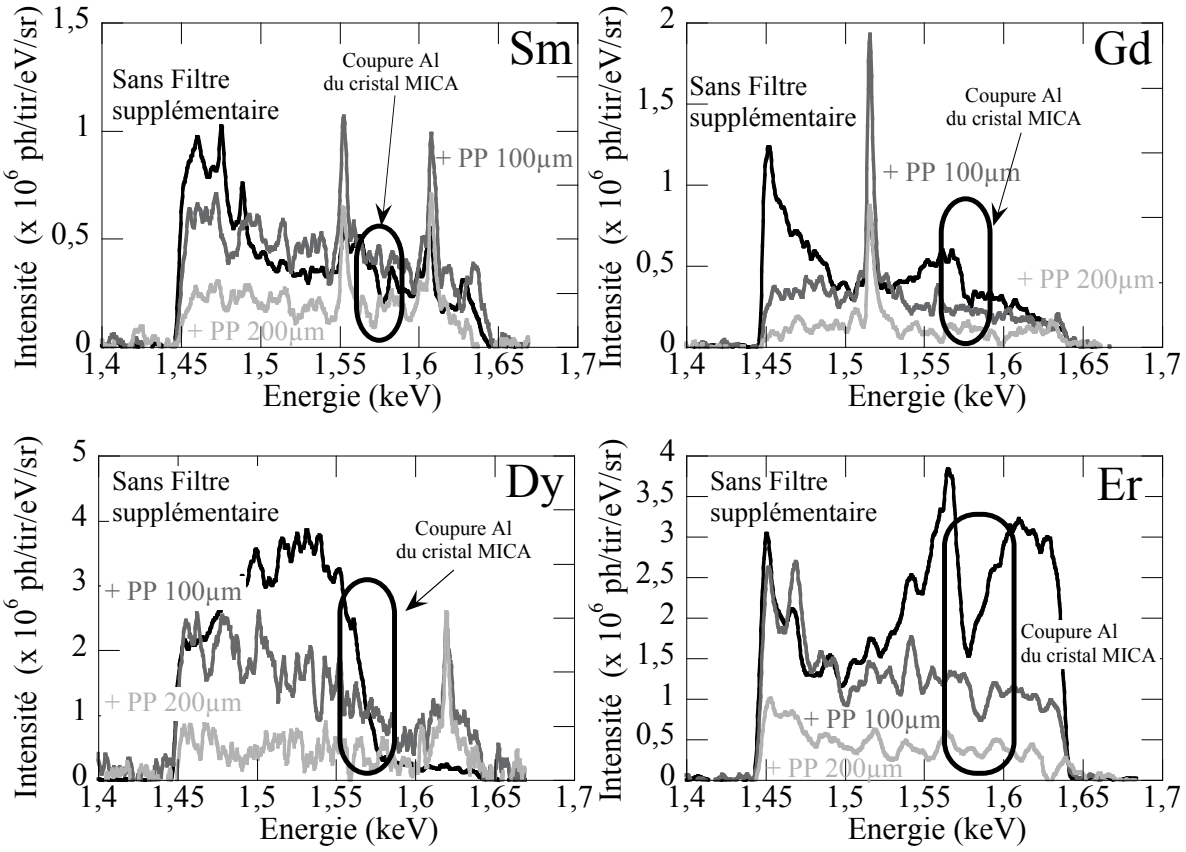


FIGURE 2.18 – Spectres d'émission du Sm, Gd, Dy et Er, enregistrés avec le spectromètre MICA avec des filtres de 100 et 200 μm de polypropylène (C_3H_6) en plus du filtre de 8 μm. Les paramètres lasers utilisés sont $E_{las} = 3.7\ mJ$ et $\tau_{las} = 3\ ps$. Note : les échelles sont données pour une émission mesurée à l'ordre 2 du cristal.

les filtres 100 et 200 μm. L'évolution de l'intensité de ces raies, en fonction de la durée d'impulsion, nous indique aussi les phénomènes physiques à leurs origines. En effet, plus la durée d'impulsion est courte, plus l'intensité laser augmente et plus l'intensité de ces raies est élevée. Ce comportement est le même que le rayonnement Kα [3]. Pour leur identification, nous suspecterons donc des raies Lα ou Lβ, pouvant correspondre à des ordres beaucoup plus élevés (parfois jusqu'à l'ordre 8).

Nous obtenons ainsi une série de trois spectres, $S_{sans\ filtre}$, $S_{C_3H_6\ 100\ \mu m}$ et $S_{C_3H_6\ 200\ \mu m}$, équivalent à une système de trois équations à trois inconnues :

$$\begin{cases} S_{sans\ filtre} = S_{ordre\ 2} + S_{ordre\ 3} + S_{ordre\ 4} \\ S_{C_3H_6\ 100\ \mu m} = A\ .\ S_{ordre\ 2} + B\ .\ S_{ordre\ 3} + C\ .\ S_{ordre\ 4} \\ S_{C_3H_6\ 200\ \mu m} = A'\ .\ S_{ordre\ 2} + B'\ .\ S_{ordre\ 3} + C'\ .\ S_{ordre\ 4} \end{cases} \tag{2.16}$$

Le résolution de ce système d'équations, nous permet de remonter aux contributions spectrales des ordres 2, 3 et 4. L'identification de certaines raies, de par leur énergie et leur comportement en fonction de la durée d'impulsion laser nous permet même de remonter à des ordres encore plus élevés.

Fiabilité des spectres obtenus

La figure 2.19 montre les spectres corrigés, obtenus après résolution de ce système d'équations. Ils ont été lissés sur 10 pixels soit environ 2 eV. On constate qu'ils sont très bruités et qu'il est difficile d'identifier clairement la contribution des différents ordres. Nous n'avons pas non plus corrigé les spectres « bruts » des réponses du détecteur aux ordres supérieurs (EQD, η...). Ce type de méthode ne nous permet donc pas d'obtenir des spectres fiables de chaque ordre. Elle nous permet cependant d'identifier grossièrement des raies et structures correspondant à des ordres supérieurs.

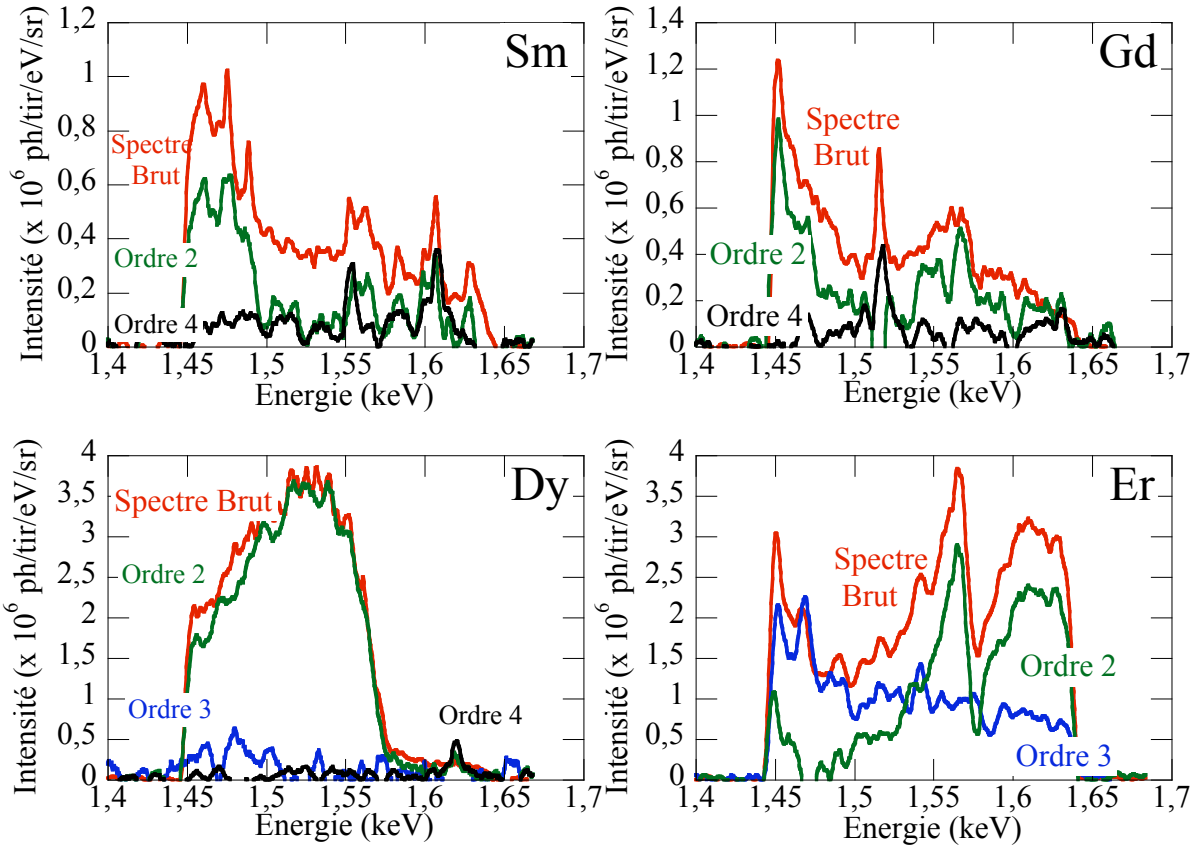


FIGURE 2.19 – Spectres des ordre 2 et supérieurs des émissions du Sm, Gd, Dy et Er, réalisés avec le spectromètre MICA et corrigés selon la formule 2.16. Les paramètres lasers utilisés sont $E_{las} = 3.7\ mJ$ et $\tau_{las} = 3\ ps$.

2.2.5 Correction des défauts des cristaux KAP

Le cristal MICA étant trop limité pour obtenir une bonne caractérisation spectrale des sources X d'éléments de Z élevé, nous avons utilisé le second spectromètre, composé du cristal KAP, pour les études de spectroscopie intégrée en temps.

Lors de l'étude des spectres de large bande spectrale, réalisés avec le spectromètre KAP, nous avons constaté l'apparition de structures, systématiques quel que soit l'élément étudié, mais corrélées à l'alignement du cristal. En se placant hors du plan focal

du cristal KAP, l'ensemble de ces structures apparaît nettement (cf. figure 2.20). Ces structures existent à la fois dans la dimension spectrale et dans la dimension spatiale. Il ne s'agit donc pas de problèmes liés à la source X. On les distingue très nettement des raies d'émission. Ces structures correspondent à des défauts de réflectivité, intrinsèque à la fabrication des cristaux. Au foyer, elles sont un peu lissées du fait de l'intégration suivant la dimension spatiale. Les modulations induites par ces défauts s'étendent sur une relativement grande échelle spectrale (quelques dizaines d'eV). Sur un spectre de raies fines tel que l'aluminium, elles ne sont pas visibles bien qu'elles puissent contribuer à modifier les rapports de raies. Sur les spectres d'émission d'éléments de Z élevé, présentant des structures d'émission particulièrement larges, l'effet de ces modulations spectrales est clairement visible. Il conduit à la formation de fausses structures dans le spectre.

Afin de remonter proprement aux spectres d'émissions de large bande spectrale, des éléments de Z élévé, nous avons mis en place la méthodologie suivante : dans un premier temps, la réflectivité du cristal KAP est obtenue expérimentalement dans la configuration de la figure 2.20, i.e. la CCD est décalée du plan focal. On obtient une cartographie 2D de la réflectivité du KAP. Dans un second temps, on intègre le long de la dimension spatiale, cette carte 2D de réflectivité. Le spectre de réflectivité du cristal obtenu est recalé en fonction des paramètres de réglage du spectromètre. Dans un dernier temps, le spectre brut est corrigé de ce facteur de réflectivité.

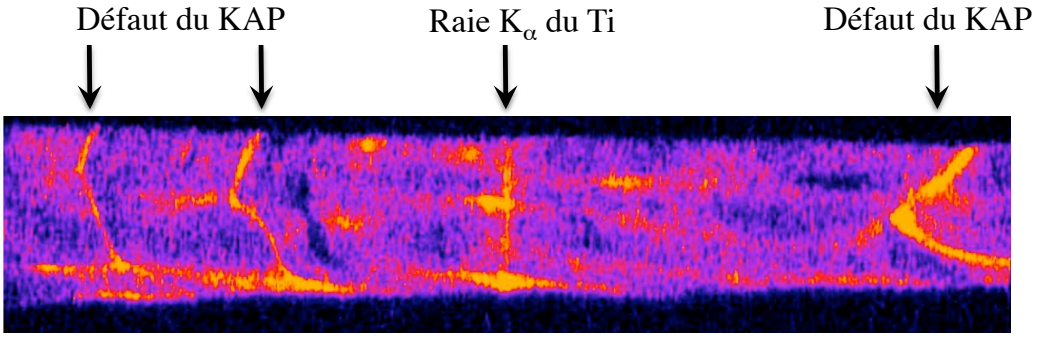


FIGURE 2.20 – Image de la trace défocalisée d'un cristal KAP, obtenue en irradiant une cible de titane avec le laser.

Mesure des défauts de réflectivité

Sur l'image 2.20, les défauts de réflectivité des cristaux KAP sont clairement visibles. Nous avons réalisé le « spectre » des défauts de réflectivité des cristaux KAP, soit la réflectivité en fonction de l'énergie du rayonnement X incident et pour un réglage donné. Pour cela, nous avons mesuré les spectres d'émission d'éléments présentant un spectre plat d'émission de type Bremsstralhung, sans structures d'émission attendues (ni raies, ni faisceaux de transition) dans la gamme spectrale étudiée. Nous avons choisi du plastique (CH) et du titane (Ti). En effet, les raies d'émission les plus énergétiques du plastique sont inférieures à ~ 1 keV. Pour le titane, notre gamme spectrale d'étude se situe entre le rayonnement de couche L (à quelques centaines d'eV) et celui de la couche K (à ~ 4.5 keV). Pour le titane comme pour le plastique, le spectre d'émission Bremsstralhung n'est pas parfaitement plat, mais présente une légère pente en $e^{-E/k_B T_h}$, avec T_h une température

très proche de celle des électrons chauds. Cette pente a été déterminée grâce au spectromètre de large gamme spectrale MATRIX [13]. Sur la figure 2.21, nous avons superposé le spectre d'émission du titane obtenu avec le spectromètre KAP et le spectromètre large bande MATRIX. La pente de l'émission Bremsstralhung est mesurée sur le spectre global comprenant la mesure avec le spectromètre MATRIX et avec celle du KAP (cf. figure 2.21).

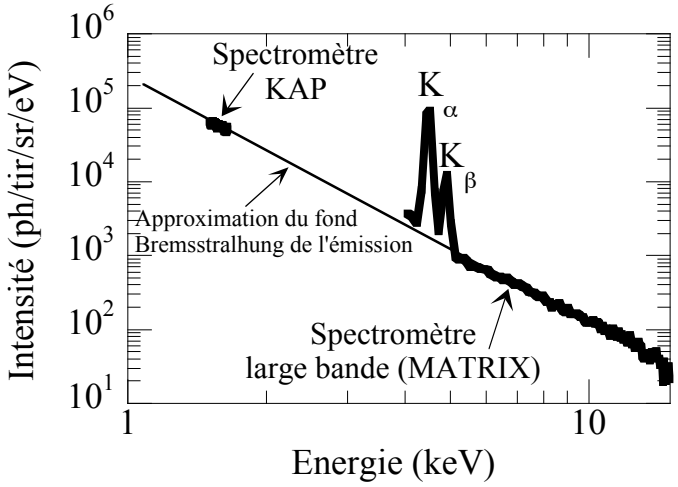


FIGURE 2.21 – Spectre d'émission de titane mesuré avec le spectromètre KAP superposé à la mesure avec le spectromètre large bande MATRIX. Ils ont été obtenus dans les mêmes conditions : $\tau_{las} = 2.7$ ps et $E_{las}= 5$ mJ. On identifie les raies caractéristiques de couche K : K_α et K_β du titane.

La carte des défauts du cristal est reconstituée dans sa globalité, d'un bord à l'autre du cristal. Pour cela, nous avons varié le réglage du cristal (angles θ_{Y_c}, θ_{Z_c} et θ_Z) pour balayer l'ensemble des positions de réflexion des rayons X sur le cristal. La reconstitution se fait ensuite par recoupement des données. Nous obtenons alors les variations de la réflectivité en fonction de la position (en pixel) sur le détecteur. La réflectivité est normalisée et est interpolée. La figure 2.22 représente le résultat de cette analyse, en fonction de la position en pixel sur la CCD. Pour corriger un spectre de ces variations de réflectivité, il faut recaler la position spatiale (pixel) de la carte des défauts par rapport à celle du spectre que l'on veut corriger. Pour éviter des erreurs sur le calage des défauts de réflectivité, un premier calage est effectué grossièrement en fonction des réglages du cristal. Le spectre de réflectivité du cristal est ensuite recalé finement au pixel près en le comparant directement au spectre d'émission brut à corriger. La conversion pixel - énergie est réalisée en utilisant la calibration réalisée pour la série de spectres « bruts » que l'on désire corriger. La dernière étape consiste seulement en une division du spectre brut par le spectre des défauts recalé finement, calibré, normalisé et interpolé.

Pour récapituler, voici les étapes de correction des spectres bruts :

– réalisation d'une carte des défauts de l'ensemble du cristal avec l'émission X spectralement plate d'une cible de CH et/ou de titane en faisant varier θ_{Yc},
– normalisation des variations de la réflectivité ,
– recalage fin, au pixel près, de la position des structures caractéristiques des défauts

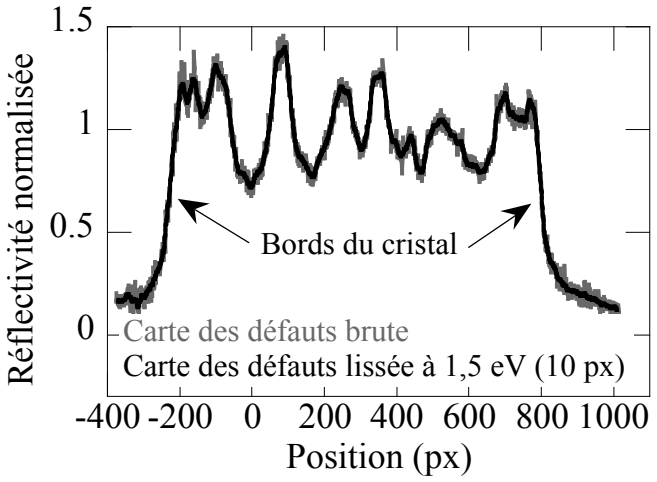


FIGURE 2.22 – Réflectivité normalisée d'un cristal KAP en fonction de la position verticale (correspondant à la dispersion spectrale) sur la caméra CCD.

par rapport au spectre que l'on veut corriger,
- application de la même calibration spectrale que le spectre que l'on veut corriger,
- division du spectre brut par la réflectivité normalisée.

Fiabilité des spectres obtenus

- Sur des spectres large-bande de Z élevé :

Un spectre corrigé ainsi obtenu est présenté sur la figure 2.23, dans le cas particulier de l'Er : il est formé de deux spectres correspondant aux deux gammes spectrales étudiées, dites gammes XANES et gammes EXAFS. Les spectres bruts, c'est à dire non corrigés des défauts de réflexion des cristaux sont en gris et les spectres corrigés sont en noir. On observe très nettement « l'amélioration » du profil spectral (qui devient très lisse) ainsi que le recoupement des deux zones d'études. Cependant, les zones correspondantes aux bords des cristaux sont difficilement corrigibles (la réflectivité varie trop fortement) et seront donc considérées comme inexploitables.

- Sur des spectres de raies :

Pour un spectre présentant des raies, tel que le Sm, la correction n'apporte pas d'importantes modifications (cf. figure 2.24), ce qui confirme que ces défauts de réflectivité des cristaux n'ont qu'un impact faible pour un spectre de raies. L'intensité de certaines raies peut varier de $\sim 15\%$. C'est pour les zones correspondant aux bords du cristal que la correction implique les plus fortes modifications (de $\sim$ 82%).

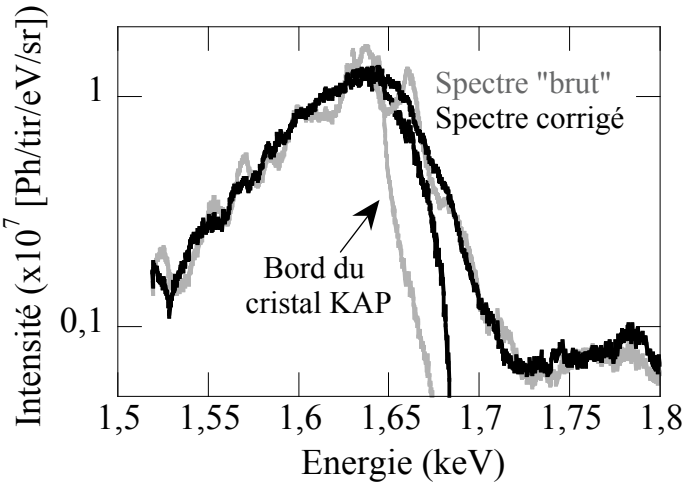


FIGURE 2.23 – Spectres d'Er bruts (gris) et corrigés des défauts de réflectivité des cristaux KAP (noir). L'énergie laser est d'environ 5 mJ et la durée d'impulsion laser est de 2.8 ps.

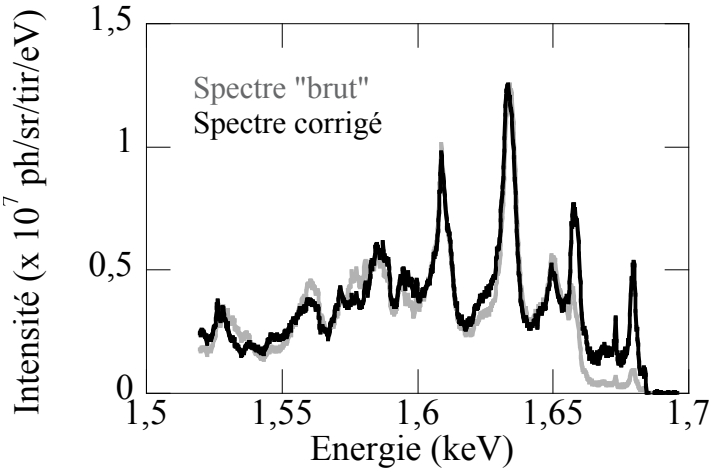


FIGURE 2.24 – Spectres du Sm bruts (gris) et corrigés des défauts de réflectivité des cristaux KAP (noir). L'énergie laser est de 4.3 mJ et la durée d'impulsion laser est de 2.8 ps.

2.2.6 Analyse des spectres résolus en temps

Redressement de la trace

L'analyse des spectres résolus en temps s'effectue de la même manière que les spectres intégrés en temps. Seules quelques étapes sont modifiées comme le calcul en absolu en ph/tir/eV/sr, ou encore le redressement des traces obtenues qui est ajouté à l'analyse. Sur la figure 2.25 (a), qui représente une image d'un spectre d'une cible de gadolinium dispersé en temps par la CBF, nous constatons que la trace n'est pas droite. De façon générale, le système d'imagerie induit un léger retard temporel pour les électrons hors axe du tube de la CBF en comparaison de ceux sur l'axe. On obtient une courbure temporelle parabolique.

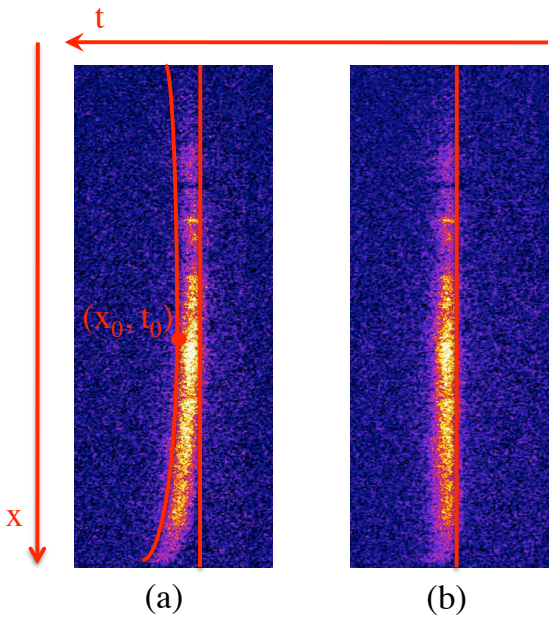


FIGURE 2.25 – Spectres résolus en temps par la CBF, obtenus avant (a) et après (b) redressement de l'image.

Nous pouvons distinguer deux contributions différentes à la courbure de la trace :
- La première consiste en un effet temporel des trajectoires les plus longues pour les électrons hors axe du tube de la CBF. La courbure induite est bien caractérisée et elle dépend de la vitesse de balayage. Cette courbure est uniforme le long de l'axe temporel.
- La seconde correspond à un effet de bord de l'imagerie du tube. La courbure induite est indépendante du balayage et elle est symétrique par rapport au centre du phosphore de la CBF. Elle augmente si on s'éloigne du centre.
Tout ceci a été l'objet de la thèse de C. Bonté [7]. Cette courbure est connue et nous la corrigerons systématiquement. Après redressement, les traces sont droites, i.e. toutes les longueurs d'onde sont émises à partir du même instant (à la résolution temporelle près).

Pour corriger cette déformation, nous redressons la trace par un polynôme $P(x)$ de type :

$$P(x) = a(x - x_0)^2 + t_0 \tag{2.17}$$

avec a la courbure du polynôme, x_0 le sommet de la parabole dans l'axe spectral et t_0, le sommet de la parabole dans l'axe temporel (cf. figure 2.25). Ce polynôme est évalué pour chaque série de tirs dont les réglages sont identiques.

Si on varie le délai entre le faisceau laser de déclenche et le faisceau laser à l'origine de l'émission X, la trace se déplace temporellement. Il faut calculer un nouveau polynôme pour chaque position temporelle. L'image après redressement est montrée figure 2.25 (b). C'est à partir de cette image que nous pouvons extraire des coupes temporelles et déduire la durée d'émission du rayonnement X étudié.

Correction des défauts

La caméra à balayage de fente permet de résoudre spectralement et temporellement l'émission X. Comme pour les spectromètres intégrés en temps qui ont été présentés précé-

demment, nous pouvons en extraire une information spectrale. Nous devons aussi corriger le spectre brut de différentes contributions telles que l'efficacité quantique de détection de la CCD, la transmission des filtres... (cf. équation 2.15). Cependant de nouveaux paramètres sont à considérer. Pour cela, la caméra à balayage de fente a été entièrement calibrée en absolu lors de la thèse de C.Bonté [7, 8]. Chaque photocathode présente un coefficient de conversion variable. Il est très fréquent que sa valeur ne soit pas uniforme la long de la photocathode (dépôt mince alcalin très fragile et sensible à l'humidité). La conversion des comptes CCD en nombre de photons X par eV, par tir et par sr est réalisée par rapport aux spectres intégrés du spectromètre intégré en temps (« KAP + CCD »). Sur la figure 2.26 est montré un spectre brut obtenu avec la CBF pour une cible d'erbium (en gris). Nous constatons la présence d'une zone due aux défauts de la photocathode. Lors de cette mesure avec la CBF, plusieurs défauts sont intégrés : la réflectivité du KAP, l'inhomogénéité de la photocathode, la réponse de l'écran de phosphore et la réponse de l'amplificateur de lumière. Les deux premiers sont particulièrement critiques alors que les deux derniers ne semblent pas trop modifier le spectre [7]. Nous avons essayé de corriger l'ensemble de ces défauts de la même manière que les défauts des cristaux (en noir sur la figure 2.26). Les résultats obtenus sont moins satisfaisants que ceux du spectromètre intégré en temps (« KAP + CCD »). Ceci est dû essentiellement aux défauts très abrupts de la photocathode. On retrouve cependant les mêmes spectres qualitativement. Les spectres intégrés en temps réalisés avec le spectromètre « KAP + CCD » étant très propres, les spectres obtenus avec la caméra à balayage de fente ne seront exploités que pour leur information temporelle.

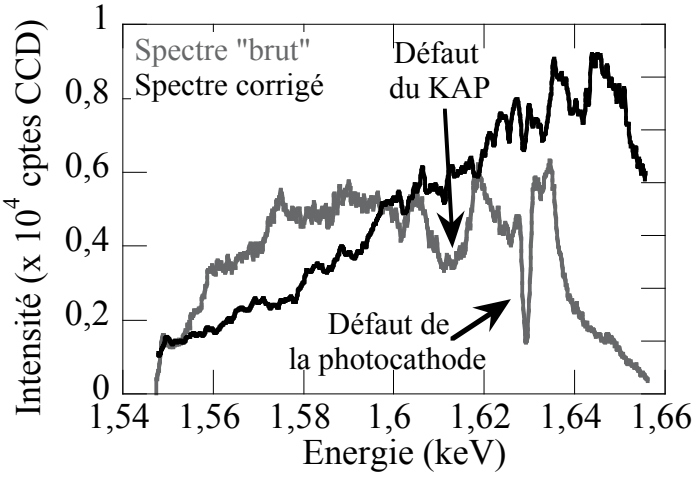


FIGURE 2.26 – Spectre d'émission d'une cible d'erbium obtenu avec la CBF puis intégré en temps. Le spectre brut (en gris) est comparé au spectre corrigé (en noir) des défauts du cristal et de la photocathode.

Bibliographie

[1] D. Descamps, Thèse de l'Ecole Polytechnique (1997).

[2] W.L. Kruer, The physics of laser plasma interaction, séries *Frontiers in Physics*, éd. D. Pines (Addison-Wesley), Reading, MA, 1987.

[3] K. Estabrook, and W.L. Kruer, Phys. Rev. Lett. **40**, 42 (1978).

[4] B. Chimier, V. T. Tikhonchuk et L. Hallo, Phys. Rev. B **75**, 195124 (2007).

[5] F. Blasco, C. Stenz, F. Salin, A.Ya. Faenov, A.I. Magunov, T.A. Pikuz, et I.Yu. Skobelev, Rev. Sci. Instrum., **72**, 1956 (2001).

[6] G. Holzer, O. Wehrhan, J. Heinisch, E. Forster, T. A. Pikuz, A. Y. Faenov, V. M. Romanova, et T. A. Shelkovenko, Phys. Scr. **57**, 301 (1998).

[7] C. Bonté, Thèse de l'Université de Bordeaux 1 (2006).

[8] C. Bonté, M. Harmand, F. Dorchies, S. Magnan, V. Pitre, and J.-C. Kieffer, P. Audebert et J.-P. Geindre, Rev. Sci. Instrum. **78**, 043503 (2007).

[9] F. Dorchies, F. Blasco, C. Bonté, T. Caillaud, C. Fourment, et O. Peyrusse, Phys. Rev. Lett. **100**, 205002 (2008).

[10] F. Dorchies, T. Caillaud, F. Blasco, C. Bonté, H. Jouin, S. Micheau, B. Pons et J. Stevefelt, Phys. Rev. E **71**, 066410 (2005).

[11] E. Martinolli, M. Koenig, J.M. Boudenne, E. Perelli, D. Batani, and T.A. Hall, Rev. Sci. Instrum. **75**, 2024 (2004).

[12] A. Burek, Space Sci. Instrum. 2, **53** (1976) .

[13] C. Fourment, N. Arrazam, C. Bonté, T. Caillaud, D. Descamps, F. Dorchies, M. Harmand, S. Hulin, S. Petit, et J.J. Santos, Rev. Sci. Instrum. **80**, 083505 (2009).

[14] P. Gallant, P. Forget, F. Dorchies, Z. Jiang et J. C. Kieffer, Rev. Sci. Instrum. **71**, 3627 (2000).

[15] H. Liu, J. Yao et A. Puri, Opt. Commun. **109**, 139 (1994).

[16] National Institut of Standards and Technology http ://physics.nist.gov

[17] R.L. Kelly, J. Phys. Chem. Ref. Data, **16**, suppl. 1 (1987).

[18] Center for X-ray Optics http ://www-cxro.lbl.gov/

Chapitre 3

Caractérisation et optimisation d'une source X ultra-brève et de large bande spectrale

Sommaire

3.1 Etude spectrale : spectres intégrés en temps 76
3.1.1 Eléments de Z léger : exemple de l'aluminium 76
3.1.2 Eléments de Z élevé 84
3.1.3 Bilan de l'optimisation spectrale de l'émission X 96
3.2 Etudes temporelles : spectres résolus en temps 97
3.2.1 Cas de l'aluminium 98
3.2.2 Cas des éléments de Z élevé 101
3.2.3 Simulation de la durée d'émission : calcul hydrodynamique simplifié associé au code Averroès - Transpec 104
3.3 Conclusion 113
Bibliographie 115

Dans la perspective de réaliser des expériences de spectroscopie fine d'absorption, proche du seuil K de l'aluminium, nous avons développé une source présentant les caractéristiques suivantes :
- Une émission X intense pour obtenir un rapport Signal sur Bruit S/B élevé permettant ainsi l'observation de fluctuations XAFS de quelques % ;
- Un spectre large bande, s'étendant sur environ 200 eV autour de seuil K considéré, i.e. pour le cas de l'aluminium de 1.55 à 1.75 keV ;
- Une durée de l'émission X de quelques picosecondes, inférieure à la durée caractéristique d'expansion de la matière dense et tiède.

L'optimisation de l'émission X autour de ces pré-requis, a été réalisée en étudiant son comportement en fonction de l'ensemble des paramètres de l'interaction laser - matière. Dans ce chapitre, nous présentons donc l'étude spectrale et temporelle de l'émission X en fonction des paramètres lasers et du type de cible utilisée. Nous évoquerons aussi la possibilité de transposer ce type d'étude pour d'autres gammes spectrales en développant des sources similaires.

3.1 Etude spectrale : spectres intégrés en temps

3.1.1 Eléments de Z léger : exemple de l'aluminium

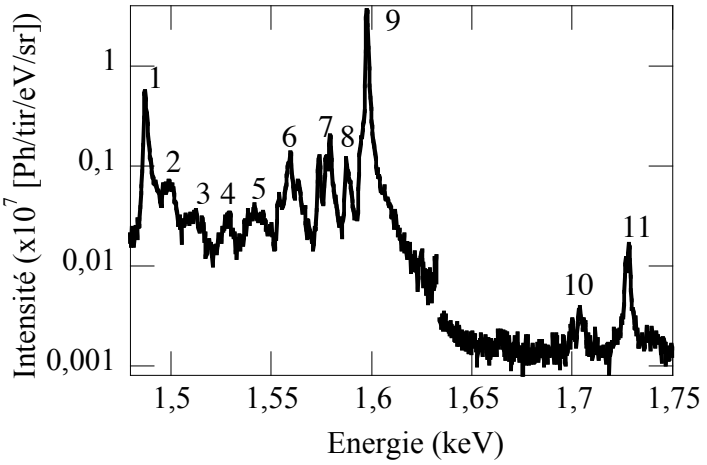
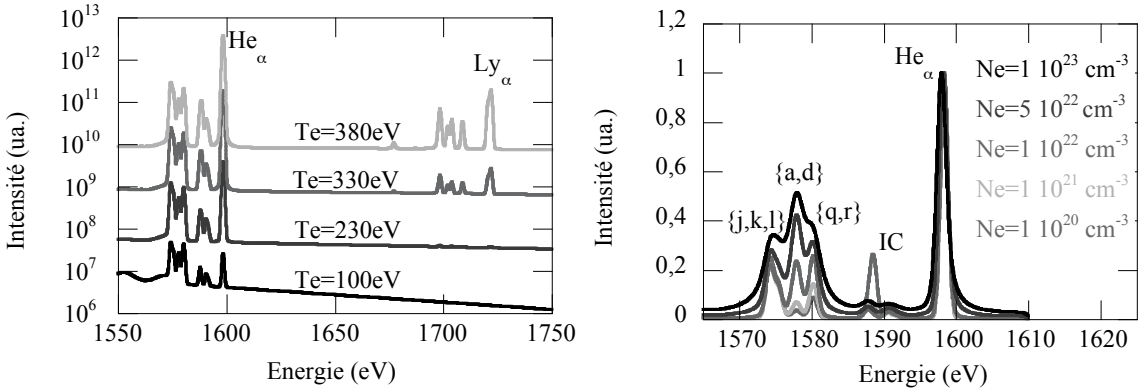


FIGURE 3.1 – Spectres de raies de l'aluminium (E_{laser} = 5 mJ, τ_{laser}= 3 ps) : raies K_α froide (1) et tièdes(2-6), Li-Like (7), Intercombinaison (8), He_α (9), satellites héliumoïdes (10) et Ly_α (11).

Dans le cas des éléments légers tel que l'aluminium, le spectre d'émission X d'un plasma chaud, dans le domaine multi-keV, est un spectre de raies individuelles (raies de couche K). Comme nous l'avons vu au chapitre 1, chaque raie est la signature d'un état d'ionisation/excitation donné et correspond à une transition entre des niveaux électroniques spécifiques. Les énergies respectives de ces raies sont listées dans le tableau 2.3 du chapitre précédent. La figure 3.1 montre un spectre d'aluminium obtenu avec une durée d'impulsion laser de 3 ps et une énergie sur cible de 5 mJ. Nous distinguons clairement :
- la raie K_α « froide », correspondant à l'état d'ionisation Al^{1+} (label 1) à laquelle se superposent quelques raies K_α « tièdes », relatives aux états d'ionisation Al^{2+} à Al^{4+} ;
- l'ensemble des raies K_α « tièdes » relatives aux états d'ionisation Al^{5+} à Al^{9+} de l'aluminium (O- à Be-like, labels 2-6) ;
- la raie K_β superposé à la raie Be-like (label 6) ;
- les raies lithiumoïdes (dites Li-like, label 7) ;
- les raies intercombinaisons (IC, label 8) ;
- la raie He_α (label 9) ;
- les satellites héliumoïdes correspondants à des transitions 2l 2l' - 1s (label 10) ;
- la raie Ly_α (label 11).

Les raies K_α « froide » et « tièdes » proviennent de régions plus tièdes, voir froides de la cible. En effet, les électrons chauds, émis par le plasma créé en face avant de la cible, pénètrent dans la cible en profondeur et viennent créer une vacance dans la sous-couche $1s$ des atomes neutres ou légèrement ionisés. La raie K_α est la signature du nombre d'électrons chauds. Une forte création d'électrons supra-thermiques entraîne donc une forte émission de ces raies K_α.

A contrario, l'ensemble des raies lithiumoïdes et des raies intercombinaison, He_α et Ly_α sont caractéristiques du rayonnement thermique du plasma chaud produit par le laser à la surface de la cible. En effet, les ions émetteurs sont suffisamment « épluchés » pour que la couche $1s$ ne soit plus à proprement parler une sous couche interne. Ce rayonnement thermique est une signature de la densité N_e et de la température électronique T_e.



a) Variation de T_e ($N_e = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3})

b) Variation de N_e ($T_e = 250$ eV)

FIGURE 3.2 – Spectres d'émission d'un plasma d'aluminium, obtenus avec le code Averroès Transpec dans l'hypothèse d'un plasma optiquement mince et sans électron supra-thermique.

Des simulations, présentées sur la figure 3.2, ont été réalisées avec le code collisionnel radiatif Averroès - Transpec, dans l'hypothèse d'une cellule de plasma homogène en densité et en température, optiquement mince et sans électron supra-thermique. Comme le montrent ces simulations, les profils spectraux de ces raies thermiques sont directement liés aux valeurs (N_e, T_e) de la zone d'émission.

Les raies Li-like sont émises préférentiellement par la partie dense de la cible chaude. Ainsi, elles voient leur structure évoluer en fonction de la densité. A faible densité, les différents satellites lithiumoïdes {j, k, l}, {a,d} et {q,r} sont discernables. Pour des densités élevées, ils s'élargissent par effet Stark et se superposent pour former une structure assez large [1]. En dessous d'une certaine densité, les satellites {j, k, l} augmentent relativement en intensité : ils deviennent prépondérants alors que les satellites {a,d} et {q,r} diminuent et se confondent entre eux. En comparant le profil expérimental des satellites Li-like de la figure 3.2 avec celui obtenu par des simulations Averroés - Transpec, nous obtenons une densité proche de 10^{22} e-/cm^{-3}.

La raie intercombinaison (IC, label 8) est quant à elle clairement associée à des régions d'émission chaudes et peu denses [2, 3]. En effet, la raie IC correspond à une transition des niveaux 1s2p $^3P_{0,1,2}$ vers le niveau $1s^1_2S_0$ (cf. Chapitre 1). Dans un milieu fortement collisionnel (dense), la voie de désexcitation radiative (IC) devient pratiquement inexistante puisque la voie de transfert collisionnel vers les niveaux 1s2p $^1P_1$ (niveau supérieur de la raie Heα) devient prépondérante.

Dans le cas des expériences réalisées sur le laser Aurore du CELIA, la présence quasi systématique de la raie IC et le profil des raies Lithiumoïdes, nous a permis de considérer une densité N_e proche de la densité critique $N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}.

Le profil spectral des raies He_α et Ly_α et leur intensité relative, révèlent aussi des informations sur les zones émissives du plasma. En effet, l'émissivité des raies issues de deux ions différents (Al^{11+} pour la raie He_α et Al^{12+} pour la raie Ly_α) est directement reliée, selon la loi de Saha - Boltzman, à la température électronique du milieu [4]. Cependant, cette loi considère un plasma à l'Equilibre Thermodynamique Locale (ETL). Elle n'est donc pas utilisable en tant que telle pour une situation hors ETL. Les rapports de raies restent exploitables en les comparant à ceux obtenus par les simulations Averroes - Transpec hors ETL et en considérant les effets éventuels de réabsorption.

La raie He_α présente un élargissement à sa base, dû à une raie satellite lithiumoïde, dont l'énergie est trop proche pour la distinguer de la raie He_α. Ce profil ne nous permet donc pas de considérer l'intégration des raies qui s'en retrouve alors faussée. Nous avons alors utilisé les rapports des maxima d'intensité des raies He_α et Ly_α, ce qui revient à supposer qu'elles ont un élargissement approximativement identiques.

Les rapports des raies He_α et Ly_α sont calculés pour différentes températures électroniques T_e, à partir de spectres simulés avec le code Averroés - Transpec pour $N_e = N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}. Sur la figure 3.3, nous constatons que ce rapport diminue lorsque la température augmente. Pour le spectre expérimental, présenté sur la figure 3.1, obtenu pour une énergie laser $E_{las} = 5$ mJ et une durée d'impulsion $\tau_{las} = 3$ ps, le rapport mesuré He_α / Ly_α correspond à $T_e \sim 260 \pm 15$ eV.

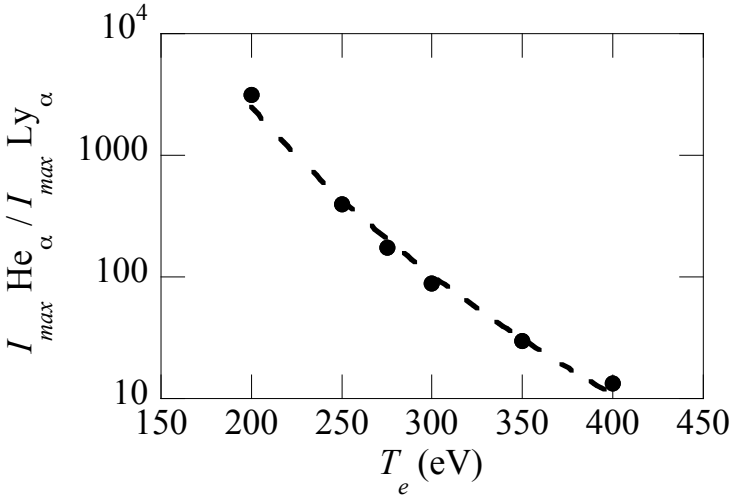


FIGURE 3.3 – Rapport des intensités maximales des raies He_α et Ly_α en fonction de la température électronique. Ce rapport est déduit de calculs Averroés - Transpec pour un plasma optiquement mince et pour $N_e = N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}.

On considère donc que pour une cible solide d'aluminium irradiée par une impulsion laser de durée $\sim 3\ ps$ et d'énergie $\sim 5\ mJ$, les caractéristiques moyennes du plasma émetteur sont $N_e \sim N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3} et $T_e \sim 260 \pm 15$ eV. Ces valeurs ne sont qu'indicatives car on compare une situation réelle complexe (gradients importants, état très transitoires...) avec des simulations figées dans le temps et homogène en N_e et T_e.

Effet de l'angle d'incidence laser

De précédentes études expérimentales ont démontré que l'angle d'incidence du laser peut avoir un effet important sur l'émission X [5]. Nous avons donc étudié l'émission X de l'aluminium en fonction de l'angle d'incidence laser en tournant la cible par rapport à l'axe du laser. Sur la figure 3.4, nous avons tracé l'évolution de l'intensité des raies He_α et K_α en fonction de l'angle d'incidence du laser sur la cible. La durée d'impulsion laser est de 45 ± 15 fs, l'énergie laser est de 2.6 mJ sur cible et la polarisation est dans le plan d'incidence de la cible (polarisation P). On observe clairement que l'émission X est favorisée pour un angle d'incidence de ∼ 20°. L'intensité des raies K_α et He_α diminue d'environ un ordre de grandeur pour un angle d'incidence de 60°.

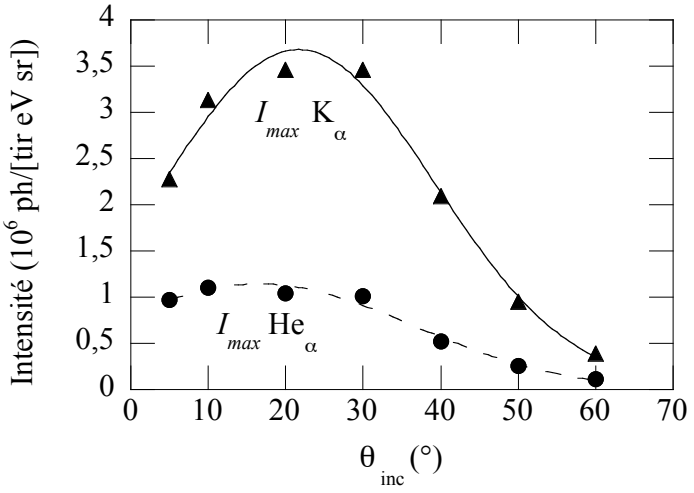


FIGURE 3.4 – Intensité des raies He_α et K_α mesurée en fonction de l'angle d'incidence du laser sur la cible solide d'aluminium. Les paramètres lasers sont : $\tau_{las} \sim 45$ fs ± 15 fs, $E_{las} = 2.8$ mJ en entrée de l'enceinte (soit 2.6 mJ sur cible) et polarisation P.

De façon générale, les différents effets pouvant contribuer à une dépendance de l'intensité de l'émission X en fonction de l'angle d'incidence du laser sont les suivants :

- l'intensité laser effective sur la cible varie en $cos^2\theta_{inc}$. Ceci est lié à la surface effective de la tâche focale sur la cible. Cet effet contribue à la diminution de l'intensité d'émission X lorsque l'angle d'incidence θ_{inc} augmente.
- dans le cas des mesures réalisées avec le spectromètre à cristal KAP, qui est placé à 90° de l'axe du laser et pour $\theta_{inc} \sim 0°$, l'angle d'observation (90° - θ_{inc}) se rapproche d'un angle rasant par rapport à la cible. La réabsorption par la cible, accentue la diminution de l'intensité d'émission X détectée pour de faibles angles d'incidence du laser θ_{inc}.
- la profondeur de propagation du laser dépend de l'angle θ_{inc}. Une onde électromagnétique oblique est réfléchie à des densités plus faibles qu'une onde à incidence normale. Les atomes (ions) qui contribuent à l'émission X sont alors moins nombreux. L'absorption laser par bremsstralhung inverse est donc sensible à l'angle d'incidence laser [8]. Comme l'absorption collisionnelle reste le phénomène prépondérant pour un chauffage élevé, l'émission He_α, liée à la température du plasma émetteur, diminue pour de grands angles θ_{inc}. Cette interprétation supplémentaire

de la diminution de l'émission X pour des angles d'incidences élevés (supérieurs à 50°) a déjà été proposée et observée [5].
– l'absorption résonnante a un effet majeur en particulier pour la génération d'électrons chauds. Dans le cas présent, l'intensité sur cible s'élève à $\sim 10^{17}$ W/cm^2. Le phénomène d'absorption résonnante (excitation des ondes plasmas électroniques) est une source majeure d'absorption. Cet effet présente un optimum pour un angle d'incidence laser $\sim 20°$ - $25°$ [6, 7]. Ceci explique principalement le comportement de la raie K_α, directement liée à la production d'électrons supra-thermiques résultante de l'amortissement des ondes plasmas.

Effet du contraste laser

Un mauvais contraste temporel laser peut modifier considérablement le gradient de densité avec lequel interagit l'impulsion laser principale et peut donc fortement perturber l'interaction laser avec la matière. Les caractéristiques de l'émission X qui en résulte peuvent donc se trouver fortement modifiées. Dans le pire des cas, une pré-impulsion trop importante détruit la cible avant l'interaction de l'impulsion principale avec la matière. A l'opposé, il a été observé qu'une impulsion laser à contraste élevé et de durée d'impulsion ultra-brève favorise l'émission K_α [9]. Dans notre cas, le contraste de l'ASE par rapport au pic principal est inférieur à 10^{-8} et est mesuré sporadiquement autour de 10^{-6}. Nous avons aussi noté l'existence d'un épaulement, environ 3 ps avant l'impulsion principale. Cet épaulement est issu de défauts de compression et est difficilement modifiable. Il était la plupart du temps autour de 10^{-5} de l'impulsion principale et certains jours autour de 10^{-4}. Pour des durées d'impulsion de 2.7 ps, sa présence ne modifie pas le profil temporel de l'impulsion. En revanche, pour des durées d'impulsion plus brèves ($\sim$ 40 fs), une légère détente de la cible peut être attendue avant l'impulsion principale. Dans la mesure où ce contraste temporel n'était pas ajustable, nous n'avons pas pu étudier rigoureusement son impact sur la génération d'X. Dans le cas des pires contrastes, nous avons observé des résultats très fluctuants. Ces mesures ont été écartées de notre analyse. La plupart du temps, le contraste était suffisamment bon pour ne pas perturber la génération d'X et lui garantir une grande stabilité.

Effet de l'énergie laser

Sur la figure 3.5, l'intensité des raies He_α et K_α a été mesurée pour des énergies du laser différentes. En augmentant l'énergie laser jusqu'à quelques mJ, nous constatons que l'intensité des raies He_α et K_α augmente non linéairement. Ceci semble indiquer que l'idéal serait de se placer à l'énergie laser la plus élevée possible. Cependant, l'émission de la raie K_α augmente beaucoup plus vite que la raie He_α. Comme le bruit induit par les X durs (rayonnement X très énergétique, non dispersé par les cristaux mais détecté par la caméra CCD) suit le même comportement que la raie K_α, il est nécessaire de vérifier l'importance de ce bruit occasionné par les électrons supra-thermiques et de s'en prémunir en blindant nos systèmes de détection.

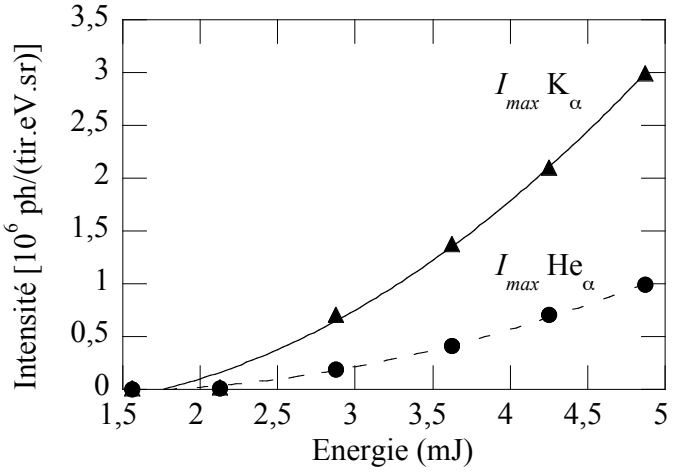


FIGURE 3.5 – Intensité maximale du pic K_α et du pic He_α en fonction de l'énergie laser E_{las} en mJ, à l'entrée de l'enceinte d'interaction, pour une polarisation P et une durée d'impulsion laser $\tau_{las} = 45 \pm 15$ fs.

Effet de la durée d'impulsion laser

Diverses études de la conversion de l'énergie laser en photons X, en fonction de la durée d'impulsion laser ont déjà été réalisées. Pour des lasers ns et des intensités modérées ($\lesssim 10^{15}$ W/cm^2) , les durées d'impulsion de quelques ns semblent être plus favorables à l'émission X que des durées plus courtes de 0.1 ns [10]. Pour des durées d'impulsion allant de quelques dizaines de fs à plusieurs centaines de fs, l'émission X n'a pas montré d'évolution significative [9]. Nous avons fait varier la durée d'impulsion du laser de 45 fs jusqu'à quelques ps, et nous avons observé son effet sur les spectres d'émission ainsi que sur l'intensité des différentes raies de l'aluminium.

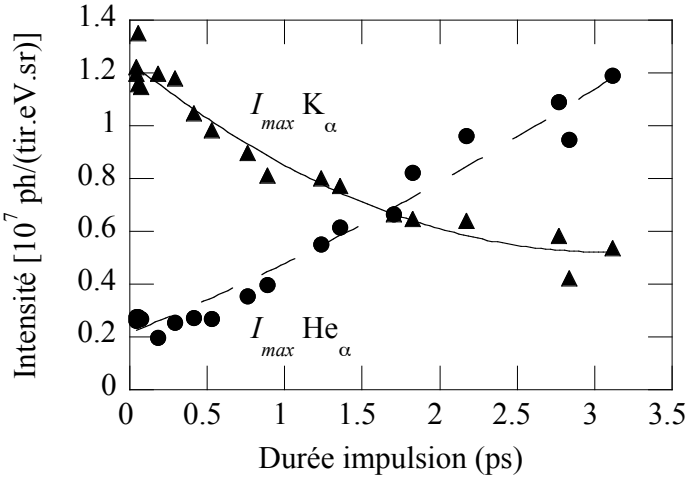


FIGURE 3.6 – Intensité maximale du pic K_α (triangles noirs)et du pic He_α (ronds noirs) en fonction de la durée d'impulsion laser τ_{las} en ps, pour une polarisation P et une énergie laser $E_{las} = 4$ mJ en entrée de l'enceinte d'interaction.

Sur la figure 3.6 est représentée l'intensité maximale des raies He_α et K_α, relevée pour différentes durées d'impulsions laser allant de $\sim$ 45 fs à 2.7 ps. Le comportement de ces deux raies en fonction de la durée d'impulsion τ_{las} est opposé. En effet, la raie He_α augmente de presque un ordre de grandeur entre $\tau_{las} = 45$ fs et 2.7 ps, alors que la raie K_α diminue d'un facteur 2 pour les mêmes durées lasers.

Cette différence de comportement peut être interprétée par l'origine physique différente de ces deux raies. Comme expliqué précédemment, la raie He_α correspond à un rayonnement thermique issu de la zone chaude du plasma créé lors de l'interaction. Son émission sera d'autant plus intense que la température du plasma sera élevée. Or, des durées d'impulsion laser plus longues impliquent un gradient de densité moins raide et donc une meilleure absorption laser. En effet, pour une cible légèrement détendue, la quantité de matière de densité N_e inférieure à la densité critique N_c, est plus importante que pour un gradient de densité raide.

Cette hypothèse est confirmée par le comportement de la raie thermique Ly_α, quasi inexistante pour des durées d'impulsions courtes et dont l'intensité augmente avec la durée d'impulsion. L'apparition de la raie Ly_α, nous permet d'affirmer qualitativement que la température du plasma émetteur augmente avec des durées d'impulsions plus longues. Quantitativement, les températures, obtenues en comparant le rapport He_α/Ly_α mesuré et calculé (simulation Averroès-Transpec, cf. figure 3.3), varient légèrement. Le rapport He_α/Ly_α passe de $\sim 500 \pm 30$ à $\sim 240 \pm 20$ ce qui correspond à une augmentation de la température électronique de seulement 25 eV (T_e varie de 250 à 275 eV). L'incertitude finale sur ce type de mesure est d'environ 50 eV et est plus élevée que la variation observée. Cette méthode nous permet d'avoir une idée grossière de la température mais pas d'en suivre finement les évolutions.

Les raies lithiumoïdes nous permettent d'arriver aux même conclusions. En effet, sur la figure 3.7, nous constatons que pour des impulsions laser de durée augmentant de 230 fs à 3 ps, les Li-like {j, k, l} deviennent plus importantes relativement aux Li-like {a,d} et {q,r}. Le même comportement des satellites Li-like en fonction de la longueur de gradient a été observé par C.Y Coté [1]. Cela indique que la densité moyenne de leur zone d'émission diminue en corrélation avec un gradient moins raide qui favorise globalement une émission X thermique (rayonnement de l'ordre de keV).

L'émission K_α est liée à la création d'électrons supra-thermiques qui viennent exciter les atomes de la cible froide en arrière du plasma chaud de surface. La création de ces derniers est favorisée par des impulsions ultra-brèves [9], la fraction d'énergie laser convertie en électrons supra-thermiques étant proportionnelle à $(I\lambda^2)^{3/4}$ [11, 12]. Lorsque la durée laser augmente à énergie constante, l'intensité diminue entraînant une diminution de la population d'électrons supra-thermiques (ainsi que de leur énergie) et par conséquent une décroissance de l'émission K_α.

Ces résultats ont aussi été observés avec le spectromètre large bande Matrix. Les spectres obtenus avec des durées d'impulsion laser de 400 fs et de 2.7 ps sont représentés sur la figure 3.8. En dessous de 4 keV, le comportement du spectre n'est pas physique et est associé à la correction de la transmission des filtres [13]. On constate que pour des durées d'impulsion laser plus courtes, l'intensité du rayonnement X dur augmente. La pente mesurée (triangle et losange sur le graphe 3.8) est plus faible en valeur absolue pour des durées d'impulsion plus courtes. Comme expliqué au chapitre 2, ce fond continu provient

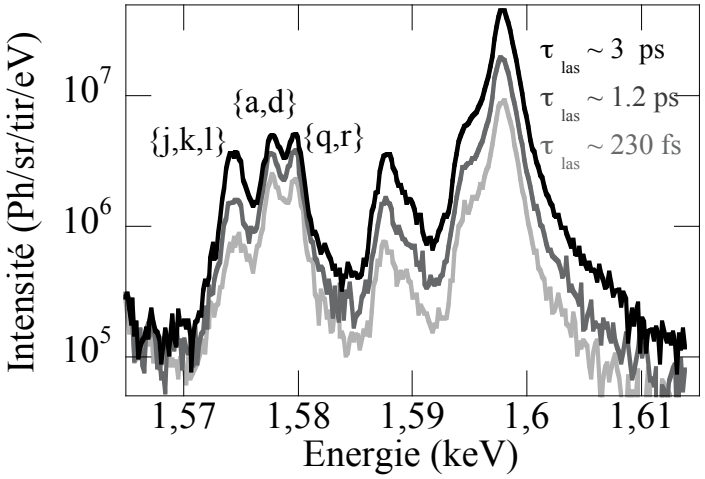


FIGURE 3.7 – Evolution du profil des Li-like pour trois durées d'impulsion laser τ_{las} différentes, pour une polarisation P et une énergie laser $E_{las} = 4$ mJ en entrée de l'enceinte d'interaction.

du rayonnement Bremsstralhung. Pour des énergies de rayons X élevées, la pente de ce fond continu est directement reliée à l'inverse de la « température » des électrons chauds (cf. chapitre 1). Cela signifie que la « température » des électrons supra-thermiques est plus élevée et que le nombre d'électrons chauds augmente pour des durées d'impulsion plus courtes. Ces « températures » des électrons chauds sont extraites par une approximation du spectre continu par une somme de deux exponentielles de type $e^{-E/k_B T_{hot}}$ (cf. figure 3.8). Ceci donne pour τ_{las}= 400 fs des températures de 2 keV et 8 keV alors qu'on obtient pour τ_{las}= 2.7 ps des températures de 1.1 keV et 2.9 keV. Nous en déduisons la même observation que sur les spectres réalisés avec les spectromètres haute résolution (MICA ou KAP) : une durée d'impulsion laser brève favorise la création d'électrons supra-thermiques plus énergétiques et implique une forte intensité d'X durs. Ce sont ces mêmes X-durs qui sont à l'origine du bruit de mesure.

Dans la perspective de réaliser des expériences de spectroscopie fine d'absorption X, il sera donc plus avantageux de choisir une durée d'impulsion laser de quelques ps, associée à une énergie laser maximale, pour avoir une source X thermique la plus intense et un bruit le plus réduit.

Effet de la polarisation du laser

Il a été démontré que la polarisation laser peut influer fortement sur l'intensité de l'émission X. Lorsqu'une composante du champ laser est normale à la cible, nous pouvons attendre des effets importants sur les mécanismes d'absorption notamment sur l'absorption résonnante. Ainsi, une polarisation P du laser peut favoriser particulièrement l'émission X de type K_α [9]. Pour étudier de tels effets, voire même pour parler de polarisation S ou P du champ laser à la surface de la cible, il est nécessaire d'avoir des cibles parfaitement planes.

Dans le cas de cibles parfaitement lisses, nous avons observé que la raie K_α chute drastiquement en polarisation S. En effet, l'émission K_α est liée à la production d'électrons

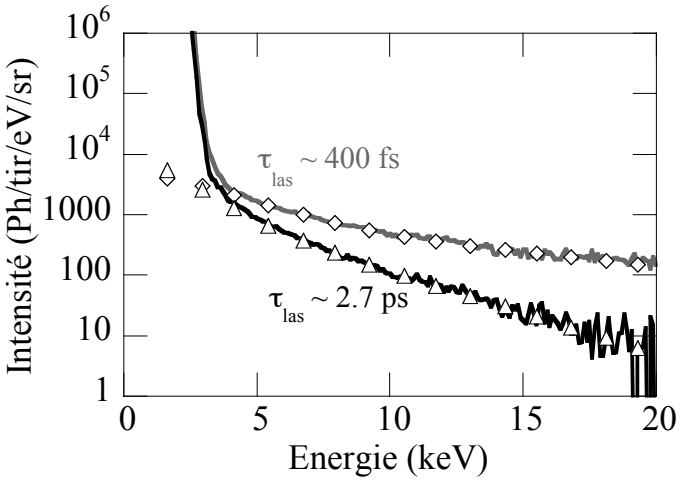


FIGURE 3.8 – Spectres d'émission de l'aluminium, mesurés avec le spectromètre large bande MATRIX, pour des durées d'impulsion laser de 400 fs (en gris clair) et 2.7 ps (en noir). Les pentes extraites sont représentées par des losanges pour τ_{las}= 400 fs et par des triangles pour τ_{las}= 2.7 ps.

chauds. Un des phénomènes prépondérants de la création de ces électrons est l'absorption résonnante qui est uniquement possible en polarisation P [6, 7]. Sur la figure 3.9, sont représentées les variations de l'intensité maximale de la raie He_α en fonction de la compression temporelle et de la polarisation du laser. Nous pouvons observer une dépendance avec la polarisation dans le cas de durées d'impulsions longues. Pour les durées d'impulsions courtes, jusqu'à $\sim$ 1 ps, nous n'observons pas de différence d'émission. Pour les durées d'impulsions longues, jusqu'à $\tau_{laser} \sim 3$ ps, l'émission de l'He_α est largement favorisée pour une polarisation P : l'émission de la raie He_α en polarisation P est plus élevée d'un ordre de grandeur qu'en polarisation S. L'émission thermique est donc favorisée pour des durées d'impulsions laser longues ($\sim 3\ ps$) et une polarisation laser P.

Dans le cas de cibles brutes, non polies, nous ne pouvons plus vraiment définir la polarisation du laser par rapport à la surface de la cible. Nous ne notons aucune différence d'intensité des raies He_α et K_α entre les polarisations P et S. Globalement, l'émission X de la raie He_α est aussi intense que pour des cibles lisses en polarisation P. Ce sont ces cibles brutes et non polies, que nous utiliserons par la suite.

3.1.2 Eléments de Z élevé

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, le rayonnement de couche K, issu des plasmas de Z élevé, correspond à une gamme énergétique très élevée, de plusieurs dizaines de keV, tandis que l'émission de couche M se situe dans une gamme pouvant aller jusqu'à plusieurs keV. L'émission de la couche M de l'élément uranium, élément de plus haut Z accessible à l'état naturel, se situe entre $\sim$ 3 et 5 keV. L'émission de couche M d'éléments de Z élevés a la particularité de présenter un spectre large bande très intense. Afin d'obtenir un large spectre d'émission autour du seuil K de l'aluminum (à 1.559 keV), nous avons au préalable sélectionné des éléments censés présenter une émission de couche M intense dans cette

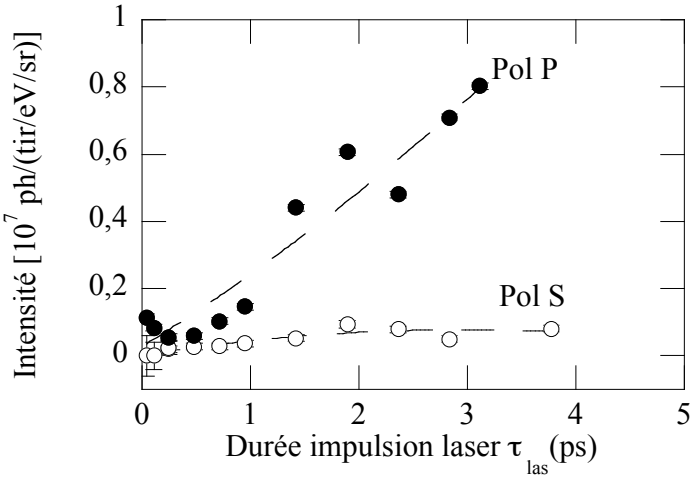


FIGURE 3.9 – Intensité maximale de la raie He_α en fonction de la durée d'impulsion laser pour des polarisations P et S et pour une cible polie. L'énergie sur cible est de 3.75 mJ. L'incertitude sur la mesure est comprise dans la grosseur de points.

gamme. Pour cela, nous nous sommes aidés des calculs Averroes - Transpec et de plusieurs publications présentants des résultats expérimentaux déjà obtenus [14, 15, 16, 17, 18, 19]. Nous avons donc choisi de mesurer les spectres d'émission des éléments suivants : le samarium ($Z = 62$), le gadolinium ($Z = 64$), le dysprosium ($Z = 66$), l'erbium ($Z = 68$) et l'ytterbium ($Z = 70$) dans la gamme d'énergie [1.5 - 1.75] keV.

Observations globales

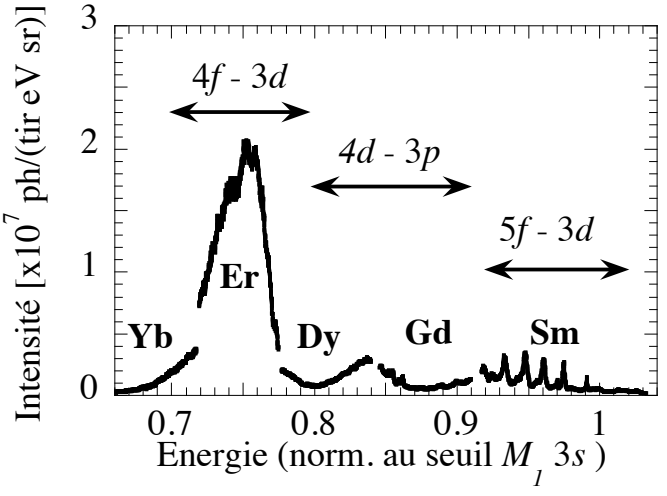


FIGURE 3.10 – Spectres d'émission des éléments Sm, Gd, Dy, Er et Yb. L'axe des énergies a été normalisé à leur énergie de liaison $M_1 3s$ respective.

L'ensemble de ces spectres, obtenus pour $E_{las} = 5$ mJ et $\tau_{las} = 2.7$ ps, sont présentés sur la figure 3.10. L'axe des énergies a été normalisé à leur énergie de liaison $M_1 3s$ respec-

tive (cf tableau 3.1). Ces énergies de liaison sont données en keV par rapport au niveau de Fermi pour un métal [20, 21].

Elements	Numéro atomique Z	$E_{M_1 3s}$ (keV)
Yb	Z=70	2.398
Er	Z=68	2.207
Dy	Z=66	2.047
Gd	Z=64	1.881
Sm	Z=62	1.723

TABLE 3.1 – Energie de liaison $M_1 3s$ des éléments étudiés [21].

Cette normalisation de l'axe des énergies suppose que le décalage spectrale des transitions de couche M entre deux éléments est à peu près homothétique avec le même rapport que celui de l'énergie de liaison $M_1 3s$ entre ces deux éléments. Cette présentation permet de reconstituer un spectre global de la couche M, tel qu'il a été observé expérimentalement pour les éléments Au, Ta et Gd [14, 15, 16]. L'émission calculée avec le code Averroès-Transpec, pour un élément donné, présente des structures spectrales équivalentes. Un spectre d'erbium (Er), calculé pour T_e = 500 eV et $N_e = N_c = 1.7\ 10^{21}$ e-/cm^{-3} sur la gamme spectrale normalisée équivalente, est montré sur la figure 3.11. Nous avons identifié ces structures comme les transitions de faisceaux $4f - 3d$, $4d - 3p$ et $5f - 3d$ des états d'ionisation Ni-like jusqu'au Br-like. Cette présentation permet aussi de construire un spectre de référence, transposable à différents seuils d'absorption. Il suffit pour cela de déterminer le facteur de multiplication de l'axe des énergies, pour projeter ce spectre normalisé dans la gamme spectrale désirée. L'élément source adapté est identifié par son énergie de liaison $M_1 3s$, la plus proche de ce facteur de projection. Par exemple, si nous cherchons à réaliser des spectres d'absorption du flanc L du Fer, situé à 780 eV, le facteur de normalisation pour y projeter le faisceau de transition $4f - 3d$ est de 1040. Cela correspond à l'énergie de liaison $M_1 3s$ de l'élément Indium.

La comparaison du spectre global normalisé (figure 3.10) et des spectres expérimentaux plus anciens, nous a permis dans un premier temps d'identifier grossièrement les principaux faisceaux de transitions [14, 15, 16]. Dans un deuxième temps, nous avons pu identifier en détail les différents faisceaux de transitions ainsi que les états de charges à l'origine des structures spectrales observées en comparant nos résultats expérimentaux avec les spectres simulés par le code Averroès - Transpec. Dans la gamme spectrale 1.5 - 1.75 keV, l'émission de l'Er est majoritairement composé de transitions $4f - 3d$ alors que celle émise principalement par le Dy et Gd est de type $4d - 3p$. L'émission du Sm correspondrait plus à une émission $5f - 3d$. Le faisceau de transitions $4f - 3d$ est particulièrement intense (quelques 10^7 ph/tir/eV/sr) et s'étend sur quelques centaines d'eV, dans la gamme spectrale de 1.5 à 1.75 keV. L'élément Er s'avère être le candidat le plus approprié pour la spectroscopie d'absorption X proche du flanc K de l'Al. Les faisceaux de transitions liés à plusieurs états de charges se superposent. Ils regroupent les faisceaux de transitions $4s - 3p$, $4f - 3d$, $4d - 3p$ et $5f - 3d$. Globalement, les états de charges mis en jeu correspondent aux états d'ionisation Br-, Se-, As-, Ge-, Ga-, Zn-, Cu- et Ni-like ($Z^* = 28$ à 35). Comme nous le verrons en détail pour le cas spécifique du Sm, nous pouvons identifier très clairement certaines raies fines issues des états d'ionisation Ni- et Cu-like. L'état d'ionisation Ni-like correspond à une couche fermée. On observe alors des raies

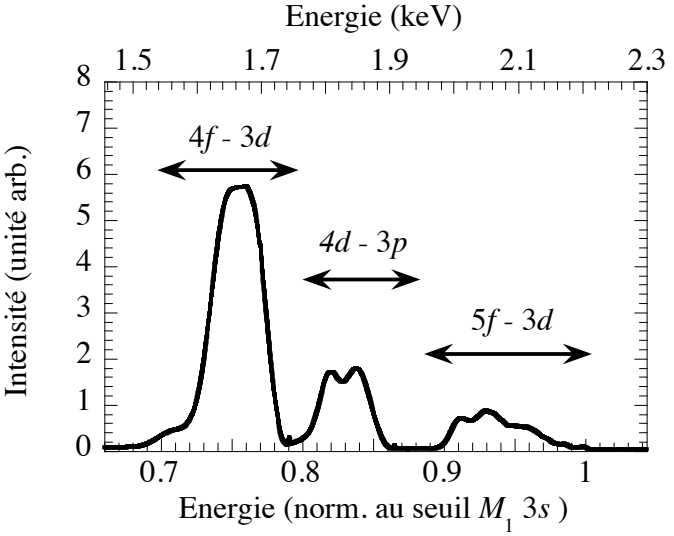


FIGURE 3.11 – Spectre d'émission de l'erbium obtenu avec le code Averroès - Transpec pour $T_e = 500$ eV, $N_e = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}. L'axe des énergies a été normalisé à l'énergie de liaison $M_1 3s$ de l'erbium.

individuelles et non des structure larges. L'état d'ionisation Cu-like étant très proche de l'état Ni-like, nous observons aussi des structures relativement fines (quelques eV).

Les simulations Averroès - Transpec nous ont permis de déterminer une densité et une température électroniques (N_e, T_e) moyennes du plasma émetteur. En effet, la position spectrale des faisceaux de transitions est liée aux états de charge émetteurs. En superposant ces larges structures obtenues expérimentalement avec les simulation Averroès - transpec, on évalue approximativement le couple (N_e, T_e).

L'émission X de l'élément erbium, de par son intense émission, sa largeur et position spectrales, sera choisie comme source X pour des expériences pompe - sonde de spectroscopie d'absorption du flanc K de l'Al. Nous allons donc détailler ici l'ensemble des études spectrales réalisées pour l'Er. La démarche d'analyse a été la même pour les éléments Gd, Dy, Yb. L'interprétation de la structure spectrale du Sm, révélant des structures spectrales plus détaillées, a nécessité un mode d'utilisation « éclaté » du code Averroès.

Cas de l'erbium

Le spectre d'émission de l'erbium ($Z = 68$), dans la gamme 1.5 - 1.75 keV, est montré sur la figure 3.12, mesuré avec une durée d'impulsion laser $\tau_{las} = 2.7\ ps$ et une énergie laser $E_{las} = 5\ mJ$. Comme nous l'avons vu, l'émission est particulièrement intense avec un maximum d'intensité de $\sim 2 \times 10^7$ ph/tir/eV/sr. Nous observons une large structure asymétrique : du côté des faibles énergies, l'intensité diminue sur presque 100 eV alors qu'elle chute plus brutalement du côté des plus hautes énergies (sur ~ 50 eV). Elle s'étend au total sur presque 200 eV, sans aucune raie ni « quasi-raie » individuelles. Nous avons cherché à reproduire ce spectre d'émission avec le code Averroès - Transpec en supposant une cellule simple de température T_e et de densité N_e uniformes. Comme l'absorption se fait principalement autour de la densité critique N_c pour les durées lasers ≥ 100 fs, nous avons considéré la densité N_e égale à la densité critique N_c ($N_e = N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}).

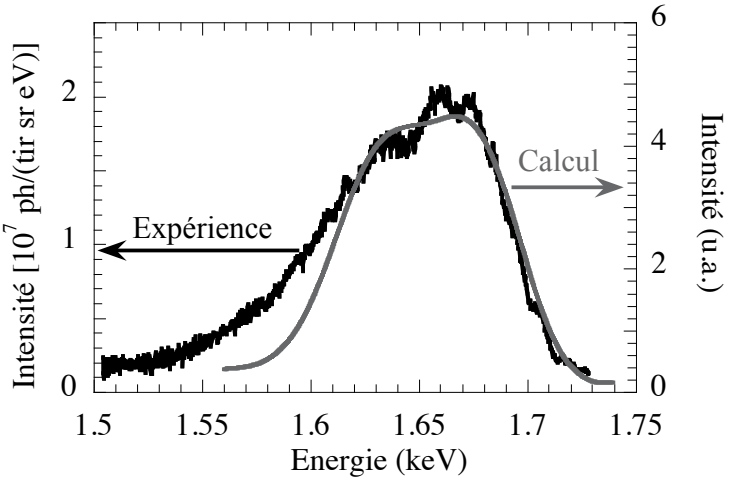


FIGURE 3.12 – Spectre d'émission de l'erbium, obtenu expérimentalement pour $\tau_{las} = 2.7$ ps et $E_{las} = 5$ mJ (trait noir, axe des ordonnées de gauche) et avec le code Averroès - Transpec pour $T_e = 450$ eV, $N_e = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3} (trait gris, axe des ordonnées de droite en unité arbitraire).

Cette hypothèse est validée par les analyses effectuées sur les spectres d'aluminium réalisés dans les mêmes conditions. Sur la figure 3.12, le profil calculé optimal est superposé avec celui mesuré. Comme nous le voyons le front de montée de l'émission calculée est plus raide. Nous avons donc calé nos faisceaux de transitions théoriques sur la partie des plus hautes énergies, i.e. sur le front de descente de l'émission. Nous obtenons alors une température électronique moyenne $T_e = 450 - 500$ eV pour une densité moyenne $N_e = N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}. La température électronique du plasma d'erbium, obtenue avec une simulation monocellule Averroès - Transpec, est plus élevée que celle obtenue pour un plasma d'aluminium. Nous ne reproduisons pas avec un calcul monocellule simple (une densité et une température moyenne) cette asymétrie spectrale, observée expérimentalement. Nous expliquons cela par l'existence d'un gradient de densité et de température, conduisant à des zones présentant des états d'ionisation plus faibles et donc à un pied d'émission vers de plus basses énergies. La simulation monocellule nous permet néanmoins d'identifier plus en détail les contributions des états d'ionisation et les faisceaux de transitions mis en jeu.

Une fois la température T_e et la densité N_e moyennes évaluées, on identifie les faisceaux de transitions impliqués dans le calcul pour constituer l'émission de large bande spectrale. Sur la figure 3.13, on remarque que les principaux états d'ionisation émetteurs sont les états As-, Se- et Br-like. Ils correspondent à une ionisation importante. Les transitions mises en jeu sont principalement les transitions $4f - 3d$ auxquelles s'ajoutent quelques transitions dont les $4d - 3p$. On distingue une légère structure composée majoritairement des transitions $4f_{7/2} - 3d_{5/2}$ et $4d_{5/2} - 3p_{3/2}$ pour la première bosse et $4f_{5/2} - 3d_{3/2}$ pour la seconde.

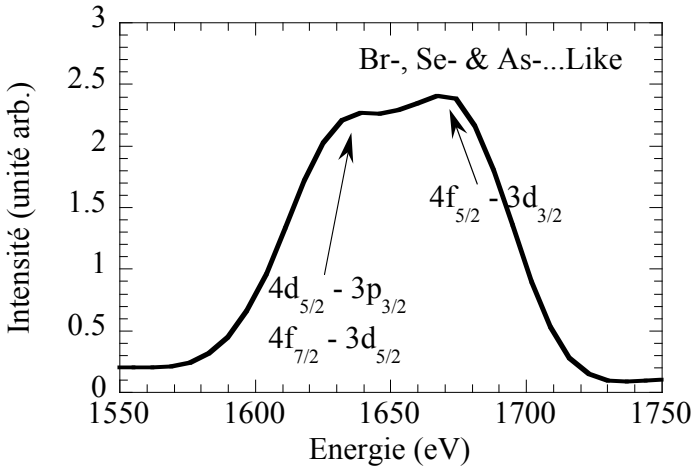


FIGURE 3.13 – Indexation détaillée du spectre d'émission de l'erbium, calculé pour $T_e = 400$ eV, $N_e = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}.

Cas du samarium

Sur la figure 3.14, un spectre expérimental et un spectre calculé du Sm sont superposés. Le spectre expérimental a été mesuré avec une énergie laser de 5 mJ et une durée d'impulsion de 2.7 ps. Ce spectre est composé de transitions, clairement identifiables, de largeur moyenne $\sim 3.7 \pm 0.4$ eV à mi-hauteur. Ces « quasi-raies » sont plus larges que la résolution spectrale (1 eV). Elles correspondent toujours à des faisceaux de transitions mais nécessitent une description plus détaillée de la physique atomique pour les reproduire par des calculs. En effet, le code Averroès - Transpec regroupe les niveaux atomiques en larges superconfigurations [22]. Néanmoins, une version plus sophistiquée (mais aussi plus coûteuse en temps de calcul) d'Averroès existe pour obtenir des détails spectraux plus fins. Dans cette version, les superconfigurations sont éclatées en simples configurations, puis toutes les configurations non relativistes contenues dans les transitions électroniques $4p-3s$, $4d-3s$, $5f-3d$ et $6f-3d$ sont éclatées en configurations relativistes. Par la suite, toutes les positions et écarts types de ces transitions entre configurations relativistes sont traitées selon la théorie SOSA [23].

Chaque groupe de transitions a donc été identifié (cf. figure 3.14). La température électronique moyenne T_e est déduite de la meilleure comparaison de ces simulations avec le spectre expérimental. Elle est d'environ 350 eV. Les états d'ionisation identifiés sont ceux du Zn-, Cu- et Ni-like. Nous soulignons aussi que contrairement à l'erbium, le samarium présente un spectre de « quasi-raies ». Ceci est simplement lié à la nature particulière de l'émission $5f-3d$, dont les faisceaux de transitions sont éclatés par le spin-orbite et sont donc « relativement » fins, qui tombe dans notre domaine spectrale étudié.

De plus, pour des états d'ionisation proches des Ni-like, le profil spectral de l'émission est modifié pour laisser apparaître des raies fines et des « quasi-raies » de ~ 4 eV à mi-hauteur en moyenne . Plus on s'écarte des Ni-like, plus on va avoir des structures larges. En effet, l'état d'ionisation Ni-like ne met en jeu qu'un seul électron optique (couche fermée). Plus on ajoute des électrons, plus on va avoir différentes transitions possibles avec des énergies de transitions variables sous l'effet d'électrons spectateurs ce qui va créer les larges faisceaux de transitions [24]. Les raies Ni-Like et les fins faisceaux peuvent se superposer

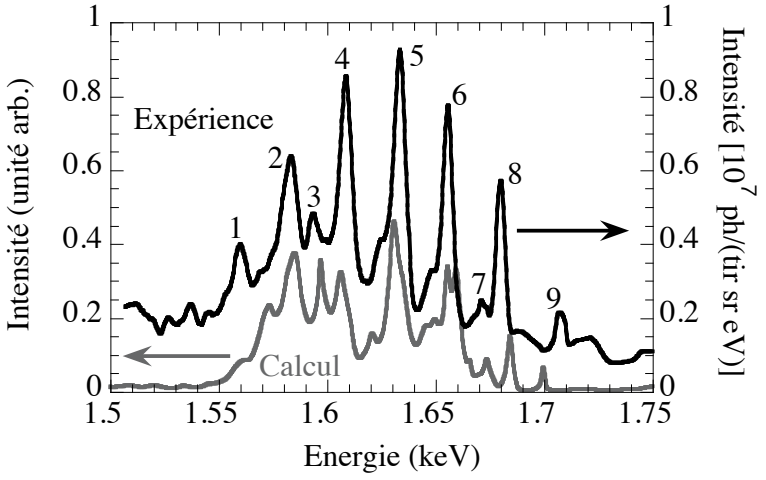


FIGURE 3.14 – Spectre d'émission de l'élément Sm, obtenu expérimentalement pour $\tau_{las} = 2.7\ ps$ et $E_{las} = 5\ mJ$ (axe des ordonnées de droite) et avec le code Averroès (version intégrée) modifié pour $T_e = 350$ eV, $N_e = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3} (axe des ordonnées de gauche). Les quasi faisceaux de transitions sont identifiés comme les transitions $5p - 3d$ de l'ion Ni-like (1), $4d-3p$ de l'ion Zn-like (2), $4d-3p$ de l'ion Cu-like (3), $4d-3p$ de l'ion Ni-like (4) $5f-3d$ de l'ion Zn- et $4p-3s$ Ni-like (5), $5f-3d$ des ions Cu- et Zn-like (6), $4p-3s$ de l'ion Ni-like (7), $5f-3d$ des ions Cu- et Ni-like (8) et la transition $5f-3d$ de l'ion Ni-like (9).

aux larges faisceaux de transitions. Ainsi, sur la plupart des spectres expérimentaux, réalisés dans des conditions similaires mais pour des éléments un peu plus légers (Ce et Ba) [25, 26], les états d'ionisation sont tels qu'on observe clairement des raies superposées à de larges structures spectrales. Ceci expliquerait pourquoi nous mesurons des structures particulièrement « lisses » dans le cas des éléments Er, Yb et Dy, contrairement aux éléments Sm et Gd qui présentent ici des spectres de fins faisceaux de transitions.

Effet de l'énergie laser : cas spécifique de l'erbium

En variant l'énergie laser incidente sur la cible solide d'erbium et pour une durée d'impulsion fixée à 2.7 ps, on observe que la large structure, correspondant principalement au faisceau de transitions $4f-3d$, se déplace vers des énergies plus élevées (cf. figure 3.15). Ceci est expliqué par une augmentation de l'état d'ionisation avec l'énergie laser. Nous observons aussi une augmentation de l'intensité X maximale de trois ordres de grandeur entre une énergie de 0.5 mJ et de 4.1 mJ.

La figure 3.16 présente l'émission X intégrée et le coefficient de conversion laser - X en fonction de l'énergie laser. L'émission X est intégrée sur la gamme spectrale correspondant à [1.57 - 1.73 keV] pour obtenir un nombre de photons par tir et par sr (ph/tir/sr). Le coefficient de conversion de l'énergie laser en émission X, utilisable sur la gamme d'intérêt, est calculé en intégrant aussi l'émission X dans 2π sr. On observe pour ces deux grandeurs

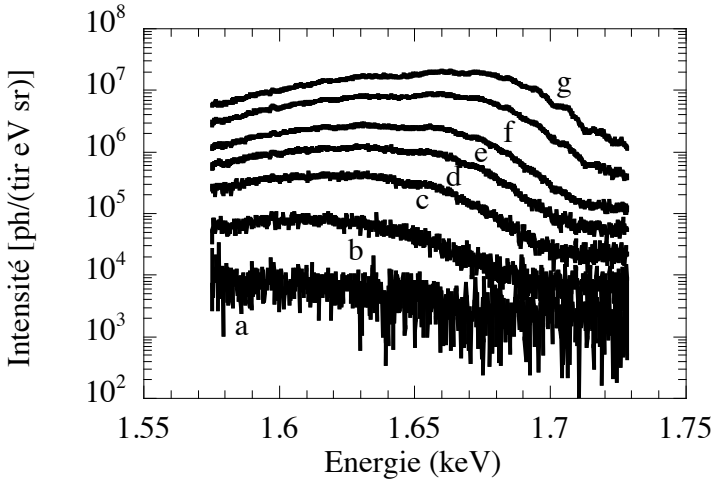


FIGURE 3.15 – Spectres d'émission d'une cible d'erbium, irradiée avec τ_{las} = 2.7 ps et pour différentes énergies laser sur cible : 0.5 ± 0.1 mJ (a), 0.8 ± 0.1 mJ (b), 1.3 ± 0.1 mJ (c), 1.6 ± 0.1 mJ (d), 1.9 ± 0.1 mJ (e), 2.7 ± 0.1 mJ (f), 4.1 ± 0.1 mJ (g).

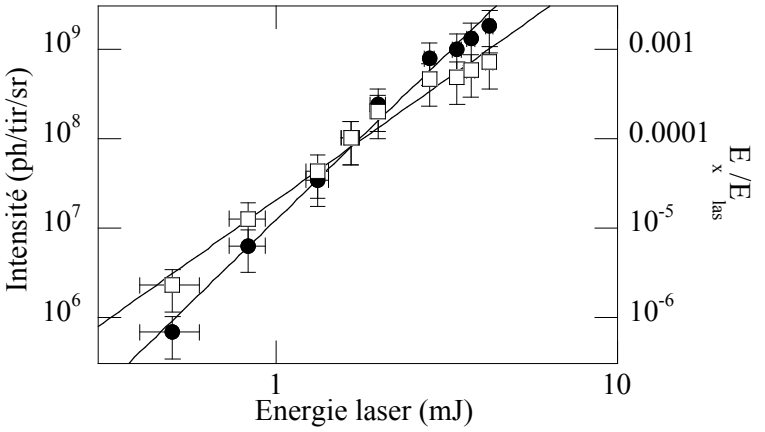


FIGURE 3.16 – Nombre de photons X émis par la cible d'erbium irradiée (points noirs) et coefficient de conversion de l'énergie laser E_{las} dans le rayonnement X E_X (carrés blancs) en fonction de l'énergie laser E_{las} et pour τ_{las} = 2.8 ± 0.3 ps. L'émission X est intégrée de 1.57 à 1.73 keV et sur 2π sr.

une augmentation non linéaire en fonction de l'énergie laser. Ainsi, pour une énergie laser maximale de 5 mJ sur cible, on mesure une conversion de l'ordre de 1‰. Ce coefficient de conversion est relativement élevé. Pour donner un ordre de grandeur, il a été mesuré à 10^{-5} pour l'émission K_α de l'argent [11]. Le cas optimal correspond à une émission de $\sim 10^9$ ph/tir/sr.

Sur la figure 3.17, nous avons superposé des spectres d'émission de l'erbium, obtenus avec le spectromètre large bande Matrix, pour différentes énergies laser E_{las}. Comparé au spectre d'émission de l'aluminium, réalisé dans des conditions équivalentes, des structures d'émission apparaissent en plus du fond continu. Elles correspondent à des raies

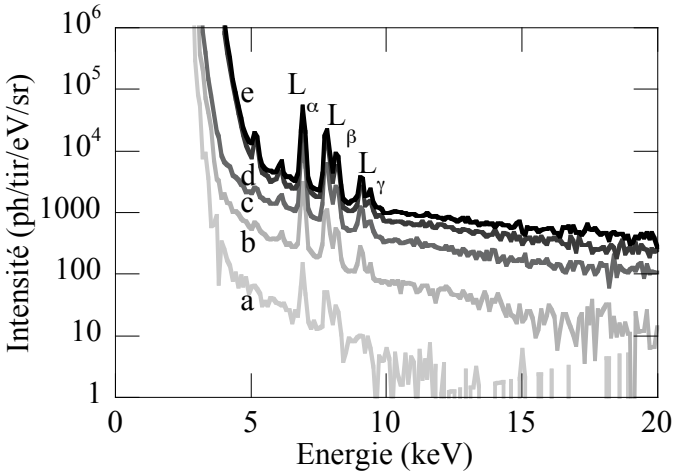


FIGURE 3.17 – Spectres d'émission de haute énergie de l'erbium, obtenus avec le spectromètre large bande Matrix pour τ_{las} = 2.8 ± 0.3 ps et en fonction de l'énergie laser E_{las} : 0.4 ± 0.1 mJ (a), 0.8 ± 0.1 mJ (b), 1.6 ± 0.1 mJ (c), 2.8 ± 0.1 mJ (d), 3.9 ± 0.1 mJ (e).

caractéristiques de couche L (L_α, L_β et L_γ). De même type que le rayonnement K_α, elles sont produites par l'interaction des électrons chauds dans le coeur froid de la cible. Plus l'énergie laser augmente, plus l'intensité de ces raies augmente [13] et plus le coefficient directeur de la pente diminue en valeur absolue. Comme expliqué auparavant, pour des énergies élevées, ce coefficient directeur est associé à la « température » des électrons chauds. Plus l'énergie augmente et plus il y a création d'électrons supra-thermiques et plus leur énergie est élevée.

Effet de la durée d'impulsion laser

- *Cas de l'erbium* :

Comme le montre la figure 3.18, pour une énergie fixée à ∼ 5 mJ, le comportement de l'émission X en fonction de la durée d'impulsion est du même type qu'en fonction de l'énergie laser (cf. figure 3.15). En effet, nous observons aussi un décalage spectral vers les hautes énergies et une augmentation de l'intensité pour des durées d'impulsions croissantes. L'intensité maximale augmente de deux ordres de grandeur, pour des durées d'impulsion de ∼ 90 fs à 2.7 ps.

Sur la figure 3.18, nous constatons aussi que cette augmentation d'intensité de l'émission X est accompagnée d'une diminution du bruit. Celui-ci est composé du bruit statistique de détection, ou bruit de photons, proportionnel à $\sqrt{N_{Photons}}$ et du bruit d'X-durs, issu du rayonnement Bremsstralhung des électrons supra-thermiques. Le bruit de détection diminue relativement au signal quand son intensité augmente. Dans ce cas, la diminution du bruit est aussi dû à la diminution de la production d'X-durs qui comme les raies L_α, L_β, L_γ de l'erbium (cf. figure 3.17), diminue pour de plus longues durées d'impulsion laser.

De la même manière que pour l'étude en fonction de l'énergie laser, nous avons calculé le coefficient de conversion de l'énergie laser en rayonnement X en intégrant le spectre

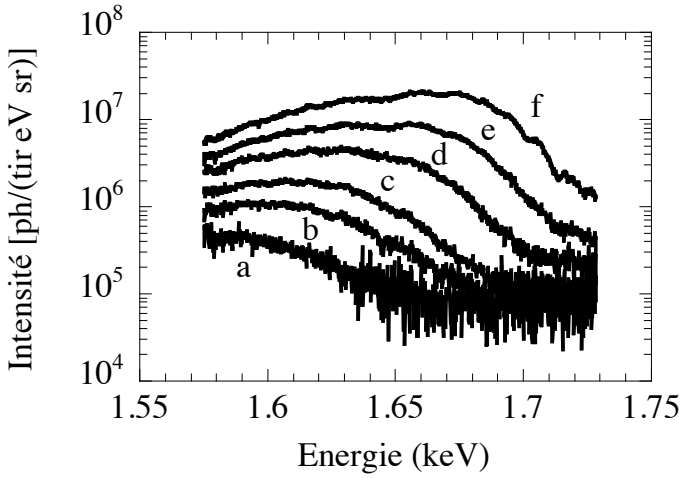


FIGURE 3.18 – Spectre d'émission de l'erbium, irradié avec $E_{las} = 5$ mJ et pour différentes durées d'impulsion laser : 90 ± 20 fs (a), 250 ± 30 fs (b), 450 ± 50 fs (c), 0.9 ± 0.1 ps (d), 1.8 ± 0.2 ps (e), 2.7 ± 0.3 ps(f).

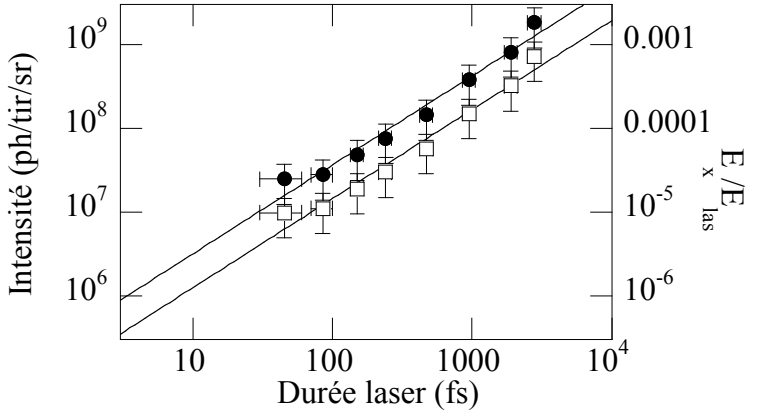


FIGURE 3.19 – Nombre de photons X de l'erbium (points noirs) et coefficient de conversion de l'énergie laser E_{las} dans le rayonnement X E_X (carrés blancs) en fonction de la durée d'impulsion laser τ_{las} et pour E_{las}= 4.2 mJ sur cible. L'émission X est intégrée de 1.57 à 1.73 keV et sur 2π sr.

dans 2π sr et sur la gamme spectrale [1.57 - 1.73 keV]. Ce coefficient de conversion passe de 10^{-5} pour $\tau_{las} \sim 90\ fs$ à presque 1 ‰ pour $\tau_{las} \sim 2.7\ ps$ (cf. figure 3.19).

Afin d'interpréter ce comportement, consistant en un décalage spectral et une augmentation de l'émission X, nous avons calculé l'émission d'un plasma d'erbium pour différentes températures T_e variant de 200 à 550 eV (cf. figure 3.20). Le calcul montre le même comportement : l'intensité de l'émission X augmente et le faisceau de transitions $4f - 3d$ se décale vers de plus hautes énergies. Globalement, plus l'impulsion laser est longue, ou plus l'énergie laser est élevée, plus la température moyenne du plasma augmente. Nous

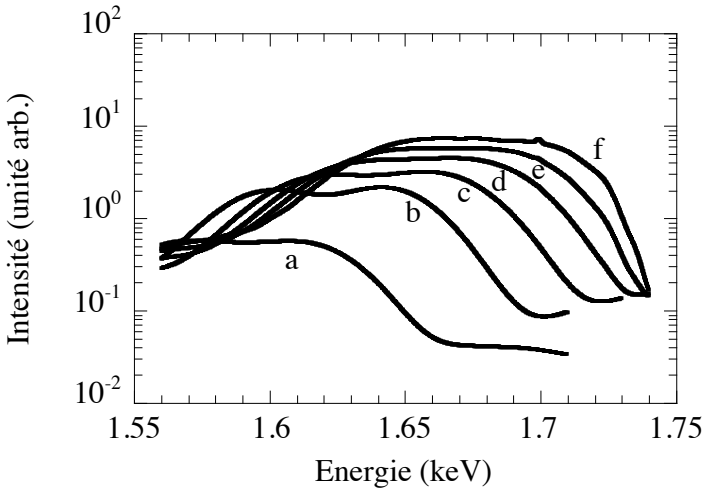


FIGURE 3.20 – Spectres d'émission de l'erbium, calculés pour $T_e = 200$ eV (a), 300 eV (b), 400 eV (c), 450 eV (d), 500 eV (e) et 550 eV (f) et pour $N_e = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}.

arrivons à la même conclusion que pour l'aluminium : pour une durée d'impulsion laser croissante, la température électronique T_e et les états d'ionisation augmentent.

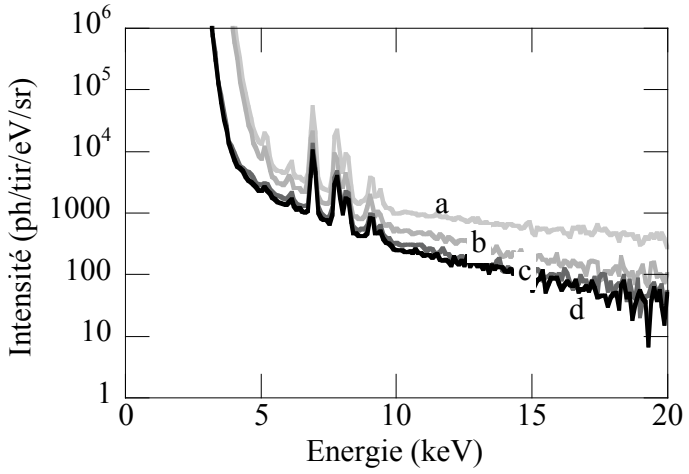


FIGURE 3.21 – Spectre d'émission de haute énergie de l'erbium, obtenu avec le spectromètre large bande pour une énergie laser $E_{las} = 4.9 \pm 0.1$ mJ et pour différentes durées d'impulsion laser τ_{las} : 400 ± 50 fs (a), 0.9 ± 0.1 ps (b), 1.8 ± 0.2 ps (c), 2.7 ± 0.3 ps(d).

La figure 3.21 montre l'évolution des spectres obtenus avec le spectromètre large bande Matrix pour différentes durées de l'impulsion laser. Comme dans le cas de l'étude en fonction de l'énergie laser, la pente du fond continu diminue en valeur absolue et l'intensité augmente avec des durées d'impulsion laser plus courtes. Une courte durée d'impulsion laser favorise le nombre d'électrons chauds et leur « température ». En comparant ces spectres à ceux obtenus pour l'aluminium (cf. figure 3.8) dans les mêmes conditions, on constate qu'un élément de Z élevé est plus favorable à l'émission Bremsstralhung [13].

Celle-ci reste néanmoins très faible comparée à l'émission de raie dans la gamme du keV.

- *Cas du samarium*

Comme nous l'avons vu, contrairement à l'erbium dont le spectre d'émission présente une large et lisse structure spectrale, le samarium présente une émission X composée de « quasi-raies », dans la gamme spectrale [1.5 - 1.75 keV]. Cependant, le comportement général de l'émission X en fonction de la durée d'impulsion et de l'énergie laser est le même que pour l'erbium. Nous observons aussi un décalage global du spectre de raies : l'enveloppe de l'émission se décale vers les hautes énergies et de nouvelles raies plus énergétiques apparaissent. Ce comportement est montré sur la figure 3.22 où le spectre d'émission du samarium est mesuré pour différentes durées d'impulsion laser τ_{las}. Ce phénomène correspond aussi à un décalage vers des états d'ionisation plus élevés dus à des températures moyennes plus importantes.

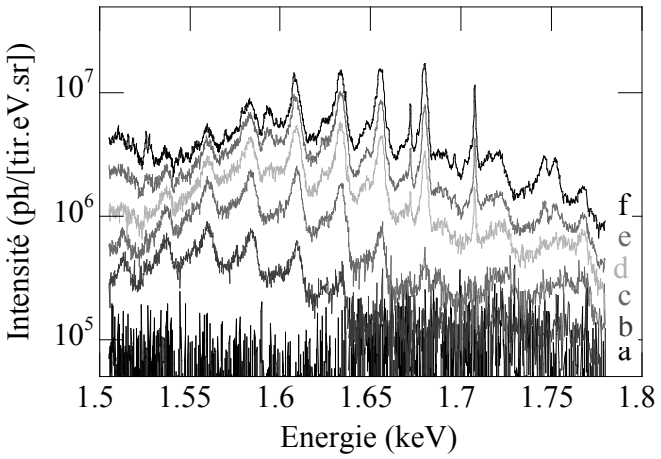


FIGURE 3.22 – Spectre d'émission du Sm, irradié avec E_{las}=4.5 mJ et pour différentes durées d'impulsion laser : 45 ± 15 fs (a), 450 ± 50 fs (b), 0.9 ± 0.1 ps (c), 1.8 ± 0.2 ps (d), 2.7 ± 0.3 ps (e), 4.5 ± 0.5 ps (f).

Sur la figure 3.14, présentée plus haut, nous avions simulé l'émission X d'une cible de samarium, irradiée par un laser d'énergie $\sim$ 5 mJ et de durée $\sim$ 2.7 ps, par un calcul Averroès avec $T_e = 350$ eV et $N_e = N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}. Sur la figure 3.23, le spectre émis par un cible de samarium irradiée et obtenu pour une énergie laser de $\sim$ 5 mJ et une durée laser de 450 fs, est comparé à une simulation réalisée pour $T_e = 225$ eV et $N_e = N_c = 1.7 \times 10^{21}$ e-/cm^{-3}. Nous soulignons que pour simuler ce dernier spectre, il nous a fallu considérer une température électronique moyenne T_e plus basse que pour une durée d'impulsion laser de 2.7 ps. Nous identifions donc des états d'ionisation plus faibles, majoritairement les états allant de As-like à Zn-like, auxquels s'ajoutent quelques transitions associées aux états Cu- et Ni-like. Pour un spectre réalisé dans les mêmes conditions avec une durée d'impulsion de 2.7 ps, nous identifions uniquement les états d'ionisation Zn-, Cu- et Ni-like témoignant d'une ionisation beaucoup plus importante. Nous retrouvons à nouveau le même comportement que pour l'aluminium et l'erbium à

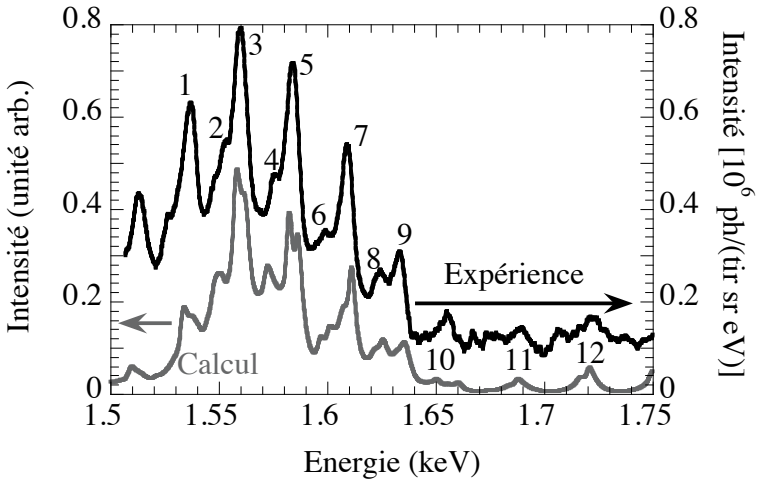


FIGURE 3.23 – Spectre d'émission du Sm, obtenu expérimentalement pour $\tau_{las} = 450$ fs et $E_{las} = 5$ mJ (axe des ordonnées de droite) et calculé avec le code Averroès (version intégrée) pour $T_e = 225$ eV, $N_e = 1.7 \times 10^{21}$ e-cm^{-3} (axe des ordonnées de gauche). Les « quasi-raies » sont identifiées comme les faisceaux de transitions $5f - 3d$ de l'ion As-like et $4d - 3p$ de l'ion Ge-like (1), $4d - 3p$ de l'ion Ga-like (2), $5f - 3d$ des ions Ge-, Ga-like et $4d - 3p$ de l'ion Zn-like (3), $5f - 3d$ de l'ion Ge-like (4), $5f - 3d$ des ions Ga- et Ge-like (5), $5f - 3d$ des ions Ga- et Zn-like (6) $5f - 3d$ de l'ion Ga-like (7), $5f - 3d$ de l'ion Ga-like et $4p - 3s$ de l'ion Zn-like (8), $5f - 3d$ des ions Cu- et Zn-like (9), $5f - 3d$ des ions Cu- et Ni-like (10), $5f - 3d$ de l'ion Ni-like (11) et $6f - 3d$ de l'ion Ge-like (12).

savoir que la température moyenne du plasma augmente avec la durée d'impulsion laser.

3.1.3 Bilan de l'optimisation spectrale de l'émission X

Globalement, nous avons pu constater que les spectres d'émission de l'erbium et de l'aluminium sont très différents. De part la différence de numéro atomique Z, nous n'observons pas les mêmes structures d'émission.

En ce qui concerne l'émission thermique qui sera utilisée comme source pour l'absorption X, l'émission de couche M d'un élément de Z élevé, irradié par laser, a été comparée à l'émission He_α de l'aluminium. Nous avons pu observer des similitudes dans leurs comportements en fonction des paramètres laser. Ces deux types d'émission, pourtant de caractéristiques spectrales différentes ont la même origine physique : l'émission thermique d'un plasma chaud et dense. Leur comportement et leur optimisation en fonction des paramètres d'interaction laser - cible solide, est donc interprétée de la même manière : l'absorption laser doit être favorisée pour obtenir des températures électroniques du plasma élevées et propices aux états d'ionisation recherchés. L'intensité de l'émission X est optimisée pour une énergie laser maximale, une polarisation P, une durée d'impulsion laser de quelques ps et une angle d'incidence laser de 20 - 25°. Pour viser la gamme d'inté-

rêt [1.5 - 1.75 keV], correspondant au seuil K de l'aluminium, l'élément le plus adapté est l'erbium, dont les faisceaux de transitions $4f - 3d$ couvrent cette gamme spectrale et sont particulièrement intenses. La gamme spectrale d'émission de l'erbium est finement ajustable en fonction de l'énergie et de la durée d'impulsion laser. Dans notre cas (quelques mJ d'énergie laser et quelques ps), les états d'ionisation sont tels qu'on ne voit pas apparaître de raies de types Ni-like ou Cu-like. Dans ces conditions, l'énergie laser convertie en rayonnement X dans la gamme [1.5 - 1.75 keV] est de $\sim 1‰$. Le maximum d'intensité de la source X est supérieur à 10^7 ph/tir/eV/sr.

A titre de comparaison, les synchrotrons dits de $3^{ième}$ génération fournissent un rayonnement X d'environ $10^4 - 10^6$ ph/tir/0.1% bandwidth mais très directionnel et à très haute cadence (MHz). Cependant les durées d'impulsion X de telles installations sont limitées à 20 - 100 ps. Diverses techniques, comme le slicing, permettent de réduire la durée de l'impulsion X à quelques centaines de fs mais au prix d'une intensité X fortement réduite ($10^1 - 10^3$ ph/tir/0.1% BW).

3.2 Etudes temporelles : spectres résolus en temps

Afin de pouvoir sonder la matière dense et tiède avant son expansion, nous devons nous assurer que la source X utilisée est suffisament brève. Typiquement, comme détaillé en introduction de ce manuscrit, pour un solide de environ 100 nm d'épaisseur, chauffé à quelques eV, le temps caractéristique de l'expansion est de l'ordre de plusieurs dizaines de ps. Nous devons nous assurer que la durée de la source X utilisée a une durée inférieure à quelques picosecondes.
Après avoir étudié les caractéristiques spectrales de l'émission X de couche M d'un élément de Z élevé irradié par un laser, nous avons mesuré la durée de cette émission X. Dans un premier temps nous avons étudié le comportement temporel de l'émission X de l'aluminium pour étendre nos observations aux éléments samarium, gadolinium, dysprosium, erbium et ytterbium. Nous avons aussi mesuré les durées d'émission X en fonction de la durée d'impulsion laser qui est, comme nous l'avons vu précédemment, un paramètre très important pour piloter la source X.

Le dispositif expérimental, composé d'une Caméra à Balayage de Fente (CBF), couplée à un cristal de Bragg KAP, est exposé au chapitre 2. Il permet de détecter le rayonnement X avec une double résolution spectrale et temporelle. La résolution temporelle et la vitesse de balayage de la CBF ont été mesurées quotidiennement. L'exploitation des données est réalisée en suivant les étapes suivantes :

- Mesure de la largeur en 1/e, notée $\tau_{1/e}$[px], exprimée en pixels (px), de la trace résolue temporellement en utilisant une courbe d'ajustement gaussienne (simple ou double selon les cas, voir plus loin).
- Conversion de $\tau_{1/e}$[px] en une durée exprimée en picoseconde (ps) rms :

$$\tau_{mes}[\text{ps rms}] = \frac{\tau_{1/e}[\text{px}]}{\sqrt{2}} \,.\, \eta[\text{mm/px}] \,.\, v_{bal}[\text{ps/mm}] \tag{3.1}$$

avec $\eta = 0.020$ mm/px la dimension d'un pixel en mm (donné par les caractéristiques de la CCD) et v_{bal} la vitesse de balayage en ps/mm associée à la mesure.

– Calcul de la durée d'émission X déconvoluée de la résolution temporelle expérimentale τ_{res}[ps rms] :

$$\tau_X[\text{ps rms}] = \sqrt{\tau^2_{mes}[\text{ps rms}] - \tau^2_{res}[\text{ps rms}]} \tag{3.2}$$

La résolution temporelle est principalement due à la gigue temporelle. On suppose qu'elle contribue à l'élargissement de la trace mesurée de manière indépendante de sa durée d'émission de base, i.e. qu'elle s'additionne quadratiquement. Cette correction est délicate car la gigue temporelle peut fluctuer rapidement. Ceci est à l'origine des incertitudes de mesure élevées, entre autre pour les durées les plus brèves.

3.2.1 Cas de l'aluminium

Le système de détection ultra-rapide permet de résoudre simultanément les informations temporelles et spectrales. Dans le cas de l'aluminium, cela nous a permis de suivre l'évolution temporelle de chaque raie. Cependant, la géométrie de la CBF ne nous permet pas d'étudier l'ensemble de la gamme spectrale de la raie K_α à la raie Ly_α. Le spectre d'aluminium résolu en temps s'étend donc de la raie Be-Like jusqu'à la raie He_α. La figure 3.24 correspond à une accumulation de tirs laser au kHz pendant 360 s, pour une durée d'impulsion laser de $\sim$ 2.7 ps. On identifie les raies Be-Like, Li-Like, l'intercombinaison (IC) et la raie He_α. On peut aussi noter la présence d'un fond continu très faible entre les raies d'émission. Les raies He_α, IC et dans une moindre importance les raies Li-like présentent une brusque montée de l'intensité émise suivie par une traînée d'émission plus ou moins longue.

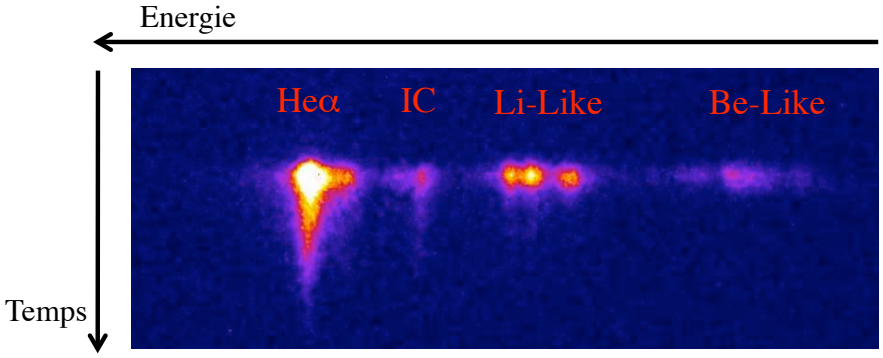


FIGURE 3.24 – Spectre d'émission de l'aluminium résolu en temps, obtenu pour une durée τ_{las}= 2.7 ps, une énergie de 5 mJ et une accumulation de 360 s au kHz.

Cas particulier des raies He_α et d'intercombinaison

Comme on le constate déjà sur la figure 3.24, la raie He_α dure particulièrement longtemps. Le profil temporel de cette raie présente une traînée d'émission. Sa dynamique d'émission a déjà été étudiée en détail [27, 28, 29]. Sa traînée d'émission est expliquée par un retard à la recombinaison. En effet, cet état d'ionisation existe pendant une durée plus longue contrairement à des états d'ionisation plus faibles qui n'existent que pendant

la durée de l'impulsion, avant l'expansion du plasma. Pour mesurer la durée de l'émission He_α nous avons différencié le pic principal d'émission et la traînée d'émission. Pour mesurer leur durée, les profils temporels bruts (cf. figure 3.25) sont approximés par deux fonctions possibles :

- (a) approximation par une gaussienne du pic principal : cette méthode permet de mesurer la durée du pic principal de manière assez précise.

- (b) approximation par une double gaussienne de l'ensemble de la trace :

$$e^{-\ (t/\tau_{He_\alpha})^2} \ + \ e^{-\ (t/\mu_{He_\alpha})^2} \tag{3.3}$$

avec τ_{He_α} la largeur en 1/e du pic principal et μ_{He_α} la largeur en 1/e de la traînée.

Dans le cas présenté sur la figure 3.25, nous avons extrait la coupe temporelle de la raie He_α pour une acquisition avec $E_{las} = 4.2$ mJ et pour $\tau_{las} = 2.8$ ps. L'approximation du pic principal par une simple gaussienne donne une durée de 2.9 ± 0.2 ps rms.
Pour la même mesure, la courbe de tendance double gaussienne donne une durée de $\tau_{He_\alpha} \sim 2.82 \pm 0.04$ ps rms pour le pic principal et de $\mu_{He_\alpha} \sim 6.9 \pm 0.4$ ps rms pour la traînée. L'erreur induite par la déconvolution de la réponse du détecteur, doit aussi être considérée.

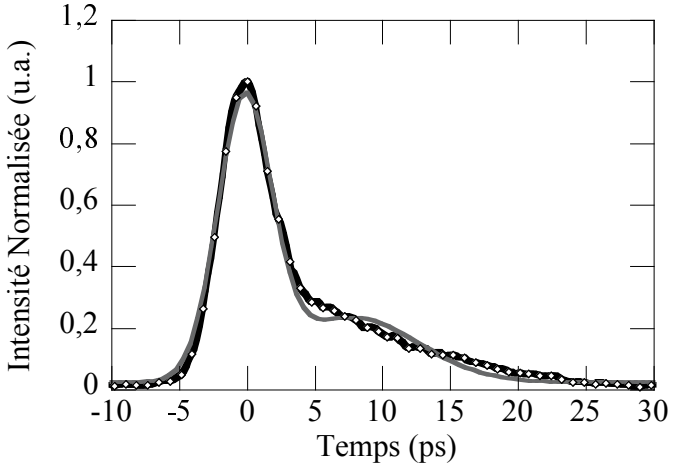


FIGURE 3.25 – Exemple d'une coupe temporelle (en noir avec losange blanc) de la raie He_α, comparée à une approximation par une double gaussienne (en gris).

Sur le tableau 3.2, nous avons regroupé les durées du pic principal τ_{He_α} et de la traînée μ_{He_α} de la raie He_α en fonction des durées d'impulsion laser, pour une série de données. Ces durées obtenues pour une autre série de mesures ont été déconvoluées de la réponse du détecteur qui est ici de 1.7 ± 0.1 ps rms. Les durées ont été déterminées par la méthode de la double gaussienne. Les erreurs associées correspondent aux erreurs effectuées par l'approximation double gaussienne. Nous avons réalisé ces mesures à plusieurs reprises. Pour un groupe de mesures rapprochées dans le temps, l'erreur statistique sur la mesure des durées est évaluée à environ 0.2 ps pour la mesure du pic principal et à presque

1 ps pour la traînée He_α. Pour un groupe d'acquisitions enregistré durant plusieurs jours, l'erreur statistique sur la mesure des durées des pics augmente et est évaluée à presque 1 ps.

De manière globale, plus la durée de l'impulsion laser augmente, plus la durée de la raie He_α augmente. La durée de la traînée est significativement plus longue que le pic principal. Pour τ_{las}= 2.8 ps, la traînée contient environ 30 % du nombre de photons He_α émis. L'essentiel de l'émission He_α a lieu grossièrement pendant les premières ps dans le pic principal. Même pour des durées d'impulsion très courtes, l'émission de ce pic principal de l'He_α n'est jamais plus courte que $\sim$ 1.5 ps rms. Dans ce cas, la résolution temporelle accessible limite nos mesures. Par contre la raie He_α continue à être émise pendant une durée qui peut être très longue (ici jusqu'à 11 ps).

τ_{las}	$\tau_{He\alpha}$ (ps rms)	$\mu_{He\alpha}$ (ps rms)
45 fs	2.2 ± 0.2	2.4 ± 0.4
500 fs	1.5 ± 0.2	4.5 ± 0.2
2.8 ps	2.0 ± 0.1	8.8 ± 0.3
4.7 ps	4.6 ± 0.1	10.8 ± 0.4

TABLE 3.2 – Durées d'émission du pic principal $\tau_{He\alpha}$ et de la traînée $\mu_{He\alpha}$ de la raie Heα en ps rms, extraites pour différentes durées d'impulsion laser τ_{las} en fs. Les erreurs sur la mesure des durées sont celles obtenues avec l'approximation double gaussienne. La résolution temporelle accessible pour cette série de données est de 1.7 ps rms.

Comme la raie Heα, la raie d'intercombinaison présente aussi une traînée d'émission. L'intensité de cette raie étant très faible, la coupe résolue en temps est plus difficile et les résultats comportent plus d'erreurs. Nous avons effectué le même genre de traitement que pour la raie He_α, en différenciant le pic principal d'émission et la traînée plus longue. Les résultats sont proches de ceux concernant la raie He_α. Dans le cas $\tau_{las} \sim$ 3 ps et avec une courbe de tendance double gaussienne, on obtient une durée du pic principal de 2.0 ± 0.4 ps rms. La durée de la traînée d'émission est de 7.3 ± 1.0 ps rms. Ces résultats sont proches de ceux concernant la raie Heα.

Durée d'émission des raies Li-like et du fond continu

Nous avons aussi mesuré la durée d'émission des raies Li-like et du fond continu, très faible, entre les raies. Nous n'avons pas pu mesurer les traînées d'émission des raies Li-like qui sont à priori faibles. Malgré de longs temps d'exposition, l'intensité de ces raies n'a pas été suffisante pour extraire significativement le profil temporel des traînées des Li-like du bruit de fond. Nous avons seulement considéré la largeur de la raie principale. Nous avons constaté que la durée d'émission X de ces raies varie mais assez faiblement avec la durée d'impulsion du laser, dans la limite de notre résolution temporelle. Dans le tableau 3.3, sont résumées les valeurs des durées pour les trois raies Li-like (notées 1, 2 et 3 pour les raies {j,k,l}, {a,d} et {q,r} respectivement) et pour le fond continu mesuré entre les raies IC et Li-Like. Les faibles intensités détectées pour le fond continu ne permettent pas de mesurer les durées d'émission avec précision. Les durées d'émission n'augmentent que

très légèrement avec la durée d'impulsion laser (variation de $\sim$ 20 à 40%) alors que la durée d'émission de la traînée raie Heα peut varier jusqu'à un facteur 5 entre $\tau_{las} = 45$ fs et 4.7 ps.

L'émission Heα est liée à la durée de vie du plasma chaud en face avant de la cible. Dans le cas des raies Li-like, celles-ci sont créées dans une zone plus dense et un peu moins chaude, plus en profondeur dans la cible. Elles sont moins sensibles à la durée de vie du plasma en détente que ne l'est la raie He$_\alpha$. Elles peuvent dépendre de la progression du front de chaleur vers l'intérieur de la cible.

τ_{las}	$\tau_{Li-like1}$ (ps rms)	$\tau_{Li-like2}$ (ps rms)	$\tau_{Li-like3}$ (ps rms)	$\tau_{fond\ continu}$ (ps rms)
45 fs	2.7 $\pm$ 0.4	1.9 $\pm$ 0.2	2.0 $\pm$ 0.2	1.7 $\pm$ 0.4
2.8 ps	2.3 $\pm$ 0.2	2.1 $\pm$ 0.2	2.2 $\pm$ 0.2	2.6 $\pm$ 0.3
4.7 ps	2.6 $\pm$ 0.3	2.3 $\pm$ 0.3	2.7 $\pm$ 0.3	2.7 $\pm$ 0.3

TABLE 3.3 – Durées d'émission des Li-like 1, 2 et 3 $\tau_{Li-like1,2,3}$ et du fond continu $\tau_{fond\ continu}$ en ps rms, extraites pour différentes durées d'impulsion laser τ_{las}. La résolution temporelle accessible pour cette série de données est de $\sim$ 1.7 ps rms.

3.2.2 Cas des éléments de Z élevé

Des expériences pour mesurer la durée d'émission X des éléments de Z élevé ont déjà été menées. L'émission des transitions $4f - 3d$ du samarium, irradié par le laser 100 TW du LULI (300 fs, $\sim 7 \times 10^{17-18}$ W/cm^2), dure entre 2.6 et 4.2 ps pour des énergies respectives de 1 et 10 J [29]. Au CELIA, Nous avons mesuré la durée d'émission des éléments gadolinium Gd, erbium Er, ytterbium Yb, dysprosium Dy et samarium Sm pour des durées d'impulsion laser variables, allant de 30 fs à $\sim$ 5 ps.

Durée d'émission de l'Er

La durée d'émission de l'erbium a été mesurée pour des durées d'impulsion laser de 45 fs à 4.7 ps. Sur la figure 3.26, nous montrons une image du même type que celle présentée pour l'aluminium (cf. figure 3.24). Elle a été obtenue pour $E_{las} \sim 5$ mJ et pour $\tau_{las} = 2.7$ ps. A première vue, nous constatons que l'ensemble de l'émission X de l'erbium est émis pendant la même durée.

Nous avons tout de même mesuré la durée de l'émission X pour différentes zones spectrales en intégrant sur des gammes spectrales différentes. Sur la figure 3.27, le spectre brut de l'erbium, sans correction des défauts du cristal KAP ni de la photocathode et les durées d'émission X en fonction de la position spectrale sont superposés. On constate que la durée d'émission X est homogène sur l'ensemble du spectre. La valeur moyenne sur l'ensemble des mesures le long du spectre donne la valeur 4.3 $\pm$ 0.1 ps rms. Comme la durée d'émission est indépendante de la zone spectrale observée, nous considérerons la durée intégrée sur l'ensemble du spectre.

Les traces, résolues en temps et intégrées spectralement sur l'ensemble de la gamme spectrale accessible, sont présentées sur la figure 3.28 pour ces différentes durées laser. La réponse du détecteur pour cette série de mesure est superposée. Les résultats présentés sont

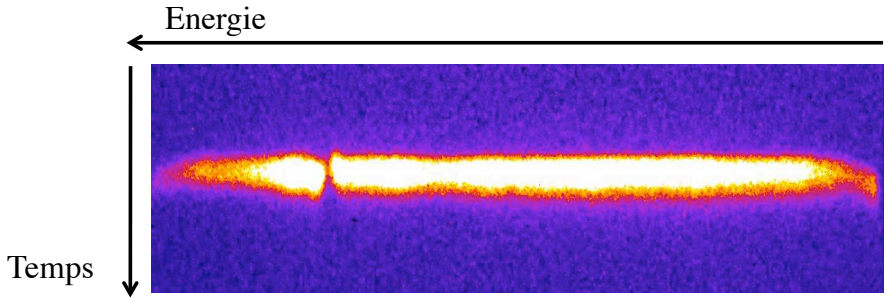


FIGURE 3.26 – Spectre d'émission de l'erbium résolu en temps, obtenu pour une durée τ_{las}= 2.7 ps, pour $E_{las} \sim 5$ mJ et pour une accumulation de 360 s au kHz.

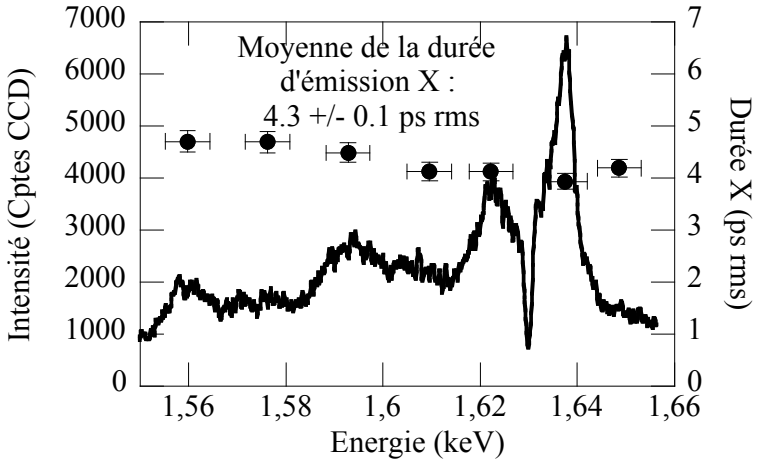


FIGURE 3.27 – Spectre d'émission brut mesuré par la CBF puis intégré en temps de l'erbium (ligne pleine) obtenu pour $E_{las} \sim 5$ mJ et pour $\tau_{las} = 4.7$ ps superposé aux mesures de durées d'émission (points) intégrées sur une largeur spectrale de 100 px soit ~ 9 eV (indiquée par les barres d'erreur horizontales).

convolués de cette réponse. Comme pour la raie He_α de l'aluminium, la durée d'émission X augmente avec la durée d'impulsion laser. Sur le tableau 3.4, les valeurs de ces durées ont été moyennées sur plusieurs séries de mesures. La résolution temporelle associée est aussi moyennée sur l'ensemble des mesures. Ainsi, pour une résolution temporelle moyenne de 1.9 ± 0.2 ps rms, on passe d'une durée de ~ 1.7 à 4.2 ps rms quand la durée laser passe de 45 fs à 4.7 ps. En comparant les tableaux 3.2 et 3.4, on observe que la durée du pic principal de l'He_α et celle de l'erbium est semblable. Contrairement à l'émission He_α de l'aluminium qui présente une traînée d'émission pouvant durer jusqu'à ~ 10 ps rms pour $\tau_{las} = 4.7$ ps, la durée d'émission thermique de l'erbium ne comporte pas de traînée.

Durée d'émission du Sm, Gd, Dy et Yb

Une étude similaire a été réalisée pour le Sm, Gd, Dy et Yb. L'ensemble des durées mesurées sont rassemblées dans le tableau 3.5. Comme pour l'Er, la durée d'émission augmente avec la durée d'impulsion laser.

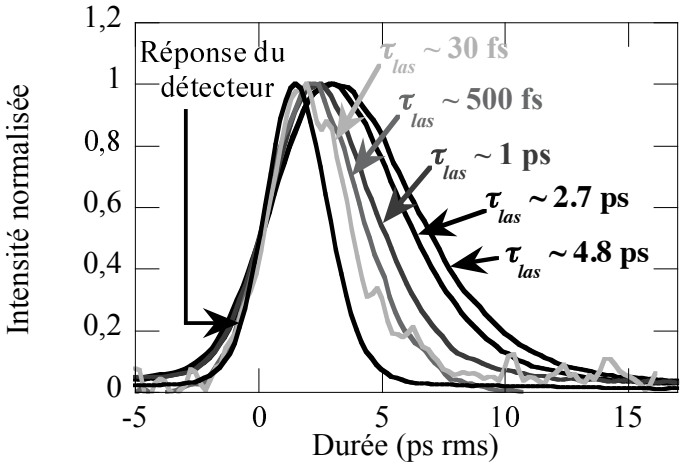


FIGURE 3.28 – Coupe temporelle de l'émission de l'Er obtenue pour $E_{las} \sim 5$ mJ et pour différentes durées τ_{las}. La réponse temporelle du détecteur associée à cette série de mesure est aussi présentée.

τ_{las}	τ_{Er} (ps rms)
45 fs	1.7 ± 0.4
500 fs	2.2 ± 0.3
1 ps	2.8 ± 0.3
2.8 ps	3.7 ± 0.3
4.7 ps	4.2 ± 0.4

TABLE 3.4 – Durée d'émission de l'erbium, moyennée sur différentes séries de mesures et pour différentes durées d'impulsion laser τ_{las}. La résolution temporelle accessible pour ces séries de données est en moyenne 1.9 ± 0.2 ps rms.

τ_{las}	τ_{Sm} (ps rms)	τ_{Gd} (ps rms)	τ_{Dy} (ps rms)	τ_{Yb} (ps rms)
45 fs	-	-	-	1.3 ± 0.6
500 fs	-	2.6 ± 0.5	-	-
1 ps	3.4 ± 0.3	2.7 ± 0.4	3.6 ± 0.6	2.2 ± 0.7
2.8 ps	3.3 ± 0.3	2.9 ± 0.3	3.1 ± 0.5	3.4 ± 0.5
4.7 ps	4.2 ± 0.3	3.5 ± 0.3	3.4 ± 0.5	3.7 ± 0.5

TABLE 3.5 – Durées d'émission du Sm, Gd, Dy et Yb, pour différentes durées d'impulsion laser τ_{las}. La résolution temporelle accessible pour ces séries de données est de 2.1 ± 0.2 ps rms pour le Sm et le Gd et 2.3 ± 0.3 ps rms pour le Dy et l'Yb.

De la même manière que pour l'Er, les spectres d'émission du Gd, Dy et Yb ne présentent pas de raies d'émission et la durée de l'émission X est homogène spectralement. Sur la figure 3.29, nous avons superposé le spectre brut et intégré en temps du Sm obtenu pour $E_{las} \sim 5$ mJ et pour $\tau_{las} = 4.7$ ps, avec les mesures de durées d'émission intégrées sur une largeur spectrale de ~ 9 eV. Le Sm, malgré son spectre d'émission composé de

« quasi-raies », présente lui aussi une durée d'émission homogène sur la gamme spectrale [1.55 - 1.66] keV.

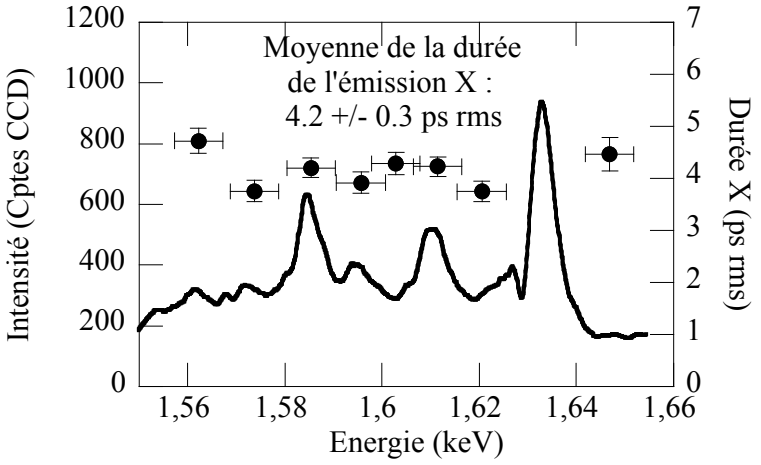


FIGURE 3.29 – Spectre d'émission brut mesuré par la CBF puis intégré en temps du Sm (ligne pleine) obtenu pour $E_{las} \sim 5$ mJ et pour $\tau_{las} = 4.7$ ps superposé aux mesures de durées d'émission (points) intégrées sur une largeur spectrale de 100 px soit ~ 9 eV (indiquée par les barres d'erreurs horizontales).

Pour conclure, nous avons observé que la durée de l'émission X de couche M, issue des cibles d'Er, Gd, Dy, Yb, Sm, est homogène spectralement dans la gamme spectrale observée. La durée de cette émission X est globalement identique quelque soit l'élément de Z élevé étudié et est de quelques ps (environ 3.5 - 4 ps rms pour une durée d'impulsion laser de ~ 5 ps). Elle augmente légèrement avec la durée de l'impulsion laser. Contrairement à l'émission He_α de l'aluminium, l'émission thermique des éléments de Z élevé ne présentent pas de trainée d'émission, y compris pour un élément comme le Sm qui présente un spectre de « quasi-raies ».

3.2.3 Simulation de la durée d'émission : calcul hydrodynamique simplifié associé au code Averroès - Transpec

Afin d'interpréter ces mesures de durées, nous avons cherché à reproduire les spectres résolus temporellement par des simulations hydrodynamiques simples couplées au code collisionnel-radiatif Averroès-Transpec. Ce type de simulation a déjà été réalisé à plusieurs reprises et de manière assez détaillée pour l'aluminium [30, 27]. Une telle approche est difficile à étendre aux éléments de Z élevé, surtout si on cherche à décrire finement la physique atomique dans la simulation hydrodynamique (physique complexe et problèmes de classification). Nous avons donc développé un modèle hydrodynamique très simple. La durée de la raie He_α de l'aluminium est plus longue que celle de l'émission thermique des éléments de Z élevé (longue traînée). L'une des hypothèses pour expliquer une telle observation est de considérer l'effet des pertes radiatives dans l'expansion hydrodynamique. Celles-ci sont beaucoup plus importantes pour les éléments de Z élevé et pourraient expliquer un refroidissement accéléré et par conséquent une durée d'émission raccourcie.

Ces pertes radiatives ont été estimées avec le code Averroès-Transpec et incluses dans le modèle hydrodynamique simplifié.

Hydrodynamique simple couplée à une simulation Averroès - Transpec dépendante du temps

Nous avons écrit un programme basé sur l'expansion auto-semblable d'une feuille chauffée à laquelle nous avons rajouté un terme de perte radiative. Celui-ci a été calculé avec le code Averroès - Transpec pour une grille de températures et de densités. Le terme de pertes radiatives a ensuite été interpolé pour chaque couple (N_e, T_e) rencontré lors du chauffage et de l'expansion hydrodynamique du plasma.

Le système des équations de conservation (de la masse, de l'impulsion et de l'énergie) pour un système à une dimension est le suivant :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial \rho}{\partial t} + \dfrac{\partial(\rho v)}{\partial x} = 0 \\ \rho \left(\dfrac{\partial v}{\partial t} + v \dfrac{\partial(v)}{\partial x}\right) = -\dfrac{\partial p}{\partial x} \\ \dfrac{\partial}{\partial t}(\rho\epsilon + \dfrac{\rho v^2}{2}) = -\dfrac{\partial}{\partial x}[\rho v(\epsilon + \dfrac{v^2}{2}) + \rho v] + \rho H + \rho S \end{cases} \tag{3.4}$$

avec $\rho\epsilon = \dfrac{3}{2} k_B T_e$ l'énergie interne, ρ la densité en g.cm^{-1}, H le taux de pertes par unité de masse (en erg/g/s) et S un terme source par unité de masse (en erg/g/s). Ce terme source sera réduit au dépôt de l'énergie laser f. L'équation d'état pour les électrons est celle d'un gaz parfait avec $p = N_e k_B T_e$, la pression cinétique électronique.

Le profil (N_e, T_e) en fonction du temps est calculé en résolvant ces équations de conservations. Les hypothèses de travail sont les suivantes :

- La géométrie est à une dimension : on considère une feuille infinie d'épaisseur $L(t)$.
- Le profil (N_e, T_e) est auto-semblable. A un instant t, le système est considéré comme homogène le long de x et dans la limite de la taille $L(t)$ de la feuille. Le principe de ce profil autosemblable en fonction du temps est schématisé sur la figure 3.30. On en déduit l'équation suivante :

$$\frac{\partial \rho}{\partial x} = 0 \tag{3.5}$$

  La vitesse est une fonction linéaire de la position à un instant t donné

$$v(x) = \frac{\partial L}{\partial t} \frac{x}{L} \tag{3.6}$$

  avec L, l'épaisseur de la feuille dépendante du temps et p, la pression cinétique électronique.
- Le degré d'ionisation Z^* est constant.
- La charge locale totale est nulle : $\rho = N_i m_i$ et $N_e = Z^* N_i$, N_i la densité ionique, m_i la masse des ions et N_e la densité électronique.

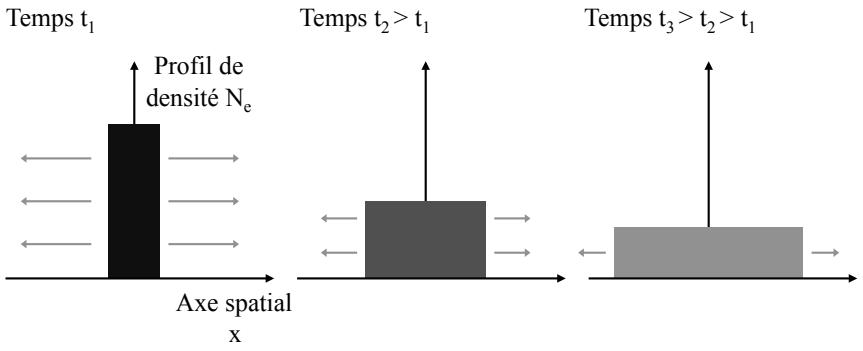


FIGURE 3.30 – Schéma du profil autosemblable considéré en fonction du temps.

En injectant les équations 3.5, 3.6 et la conservation de la charge dans le système d'équations 3.4 et après normalisation, on obtient le nouveau système d'équations suivant :

$$\begin{cases} \dfrac{d\theta}{d\tau} = -Q + F - \dfrac{2}{3}\dfrac{\theta}{X}\dfrac{dX}{d\tau} \\ X\dfrac{d^2X}{d\tau^2} = 3\theta \end{cases} \tag{3.7}$$

avec $\theta = \dfrac{T_e}{T_{e0}} = \dfrac{c_s^2}{c_{s0}^2}$ la température normalisée définie avec $c_s = \sqrt{\dfrac{Z^* k_B T_e}{m_i}}$, la vitesse d'expansion ionique ; $X = \dfrac{L}{L_0}$ l'épaisseur normalisée à l'épaisseur initiale L_0 ; $\tau = \dfrac{c_{s0}t}{L_0}$ le temps normalisé, $Q = \dfrac{H}{H_0}$ les pertes normalisées avec $H_0 = \dfrac{3}{2}\dfrac{c_{s0}^3}{L_0}$ et F l'apport en énergie normalisé. C'est le système d'équation 3.7 qui est discrétisé et résolu numériquement.

$f(t)$ représente la quantité d'énergie laser apportée durant la durée de l'impulsion laser. La fonction $F(t)$ est définie telle que $F(t) = \dfrac{f(t)}{T_{e0}}$, avec $k_B T_{e0}$ la densité d'énergie totale déposée. T_{e0} est appelée par défaut la « température initiale », définie telle que $T_{e0} = \int_0^\infty f(t)dt$. $F(t)$ est normalisée de façon à avoir $\int F(t)dt = 1$. Sur le graphe 3.31, $F(t)$ est représentée pour une durée de chauffage équivalente à la durée de l'impulsion laser $\tau_{las} = 2.7$ ps. La quantité d'énergie totale déposée doit être inférieure à $\alpha \times E_{las}$ avec α le coefficient d'absorption de l'énergie laser. Ce coefficient a été grossièrement évalué lors d'expériences, en utilisant une sphère intégratrice non décrite dans ce manuscrit. Il est de $\sim$ 20 % pour l'aluminium et $\sim$ 35 % pour l'erbium.

$Q(t)$ représente les pertes radiatives de l'élément étudié. Elles ont été tabulées pour plusieurs couples de densité N_e et de température T_e, en intégrant un spectre d'émission de très large bande spectrale (de 1 à 10000 eV) obtenu avec le code Averroès - Transpec. Ces pertes radiatives sont montrées sur la figure 3.32. Les échelles de couleur sont différentes

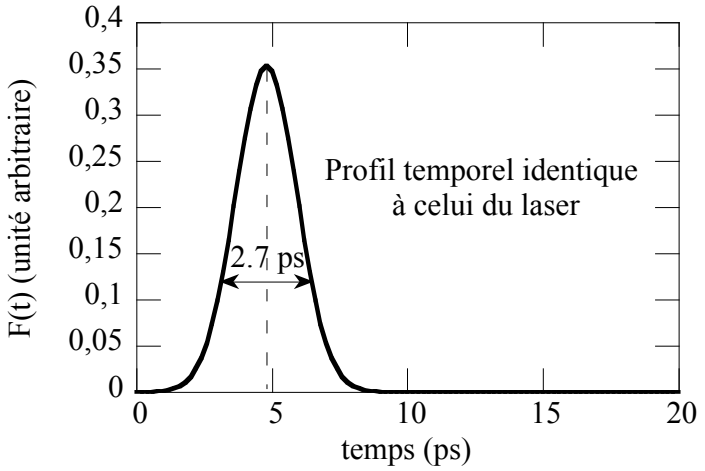


FIGURE 3.31 – Profil temporel de l'apport d'énergie normalisé F(t) correspondant à une durée d'impulsion laser $\tau_{las} = 2.7$ ps à mi-hauteur.

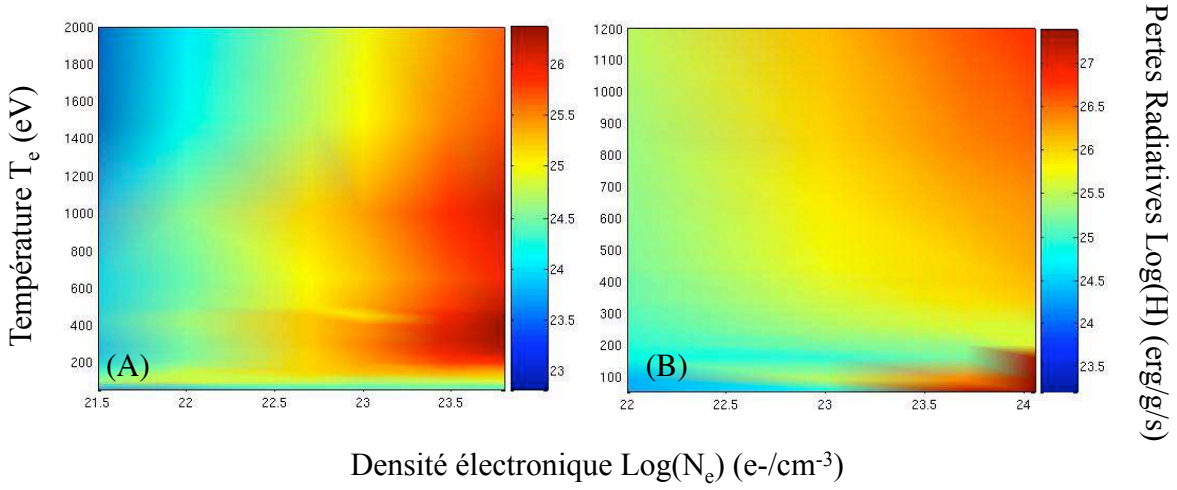


FIGURE 3.32 – Logarithme des pertes radiatives H (en erg/g/s) de l'aluminium (A) et de l'erbium (B) en fonction de la température T_e (en eV) et du logarithme de la densité électronique N_e (en e-/cm^{-3}).

pour les pertes radiatives de l'erbium et de l'aluminium. En effet, les pertes radiatives de l'erbium (élément de Z élevé) sont beaucoup plus importantes que celles de l'aluminium (élément de Z léger).

Les paramètres initiaux ajustables pour ce modèle hydrodynamique simple sont la quantité totale d'énergie déposée, T_{e0}, la densité initiale N_{e0}, l'épaisseur de la feuille L_0 et la durée du dépôt d'énergie. En général, la densité initiale est proche de la densité solide et l'épaisseur L_0 est de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de peau ($\sim$ 300 Å). Le code Averroès - Transpec est ensuite utilisé en postprocesseur.

Cas de l'aluminium

Afin de fixer les paramètres initiaux tels que l'énergie déposée initiale (une portion de l'énergie laser), la densité et l'épaisseur initiale considérées, nous avons cherché à reproduire les spectres expérimentaux intégrés en temps. Dans un second temps, nous regardons ce que donne le calcul en fonction du temps. Les résultats intégrés en temps, calculés par le code hydrodynamique + Averroèe - Transpec, sont comparés aux trois quantités mesurées expérimentalement suivantes :

- Rapport des raies He_α/Ly_α,
- Rapport des raies He_α/Li-Like,
- Profil des raies Li-Like.

Etant donné que l'évolution hydrodynamique calculée est celle d'une cellule (N_e, T_e, L) que l'on suit en fonction du temps, sans gradient de température, il nous est impossible de reconstituer des subtilités spatiales (gradients, zones d'émission...) qui peuvent être critiques dans le cas de l'aluminium. En effet, les zones à l'origine de l'émission Li-Like, He_α et Ly_α sont différentes. Les Li-Like sont créées plus en profondeur dans la cible tandis que l'émission Ly_α provient de la couronne du plasma, très peu dense. La raie He_α provient elle d'une zone intermédiaire. Il s'est avéré particulièrement difficile d'optimiser simultanément les rapports He_α/Ly_α et He_α/Li-Like. Comme nous avons considéré une densité initiale proche de la densité du solide, correspondant plus à une zone d'émission des raies He_α et Li-Like, nous avons favorisé l'optimisation de ce rapport et non le rapport He_α/Ly_α. Les résultats les plus convaincants pour reproduire le spectre mesuré avec une impulsion laser de durée de 2.7 ps, ont été obtenus pour T_{e0}= 1200 eV, $N_{e0} = 8 \times 10^{22}$ e-/cm^3< N_{solide}, L_0= 300 Å. La « température » T_{e0} correspond à l'énergie laser déposée dans la cible et est égale à 0.7% de l'énergie laser. La cible peut être légèrement préchauffée et comme l'aluminium est un élément léger, il se détend très rapidement à ces températures. Nous avons donc choisi de démarrer la simulation à une densité légèrement inférieure à celle du solide.

L'hydrodynamique d'expansion de la feuille homogène est montrée sur la figure 3.33. La température électronique T_e ne varie que très peu si on ajoute les pertes radiatives alors que la densité ionique N_i n'est absolument pas modifiée (les graphes avec et sans perte radiative sont superposés).

Le degré d'ionisation moyen Z^* obtenu lors de ce calcul Averroès - Transpec en post-processeur est de $\sim$ 10. Il est le même que celui estimé par un calcul monocellule de Averroès - Transpec pour reproduire le spectre expérimental. Sur la figure 3.34, le spectre simulé final est comparé au spectre expérimental (tous les deux intégrés en temps). Le rapport He_α/Li-Like $\sim$ 6.3 est très proche de la valeur expérimentale de $\sim$ 6.9. Le rapport $He_\alpha/Ly_\alpha \sim$ 86 est inférieur à la valeur expérimentale $\geq$ 200. Cependant, cela correspond au rapport le plus élevé que nous ayons pu obtenir ici. Il est normal qu'avec cette simulation l'émission Ly_α soit surestimée étant donné que les densités considérées sont largement supérieures à celles correspondantes à la zone d'émission réelle de la raie Ly_α (couronne sous dense). Nous pouvons noter que l'intensité maximale de la raie He_α, calculée avec le code Averroès - Transpec est de 4×10^4 erg/cm^2/eV/sr. Cette valeur peut être convertie en photons par tir par eV par sr en considérant une surface équivalente à la tache focale du laser (cf. chapitre 2) : on obtient environ 2.5×10^7 ph/tir/eV/sr ce qui est très proche de la valeur expérimentale.

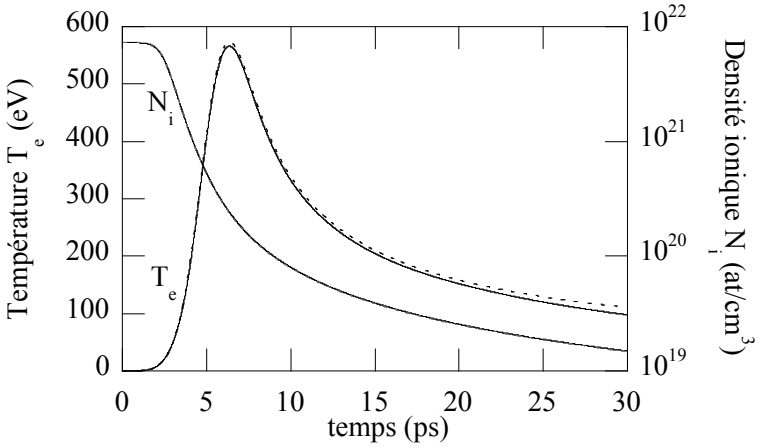


FIGURE 3.33 – Densité ionique N_i et température électronique T_e en fonction du temps pour d'une feuille d'Al homogène en expansion autosemblable (T_{e0}= 1200 eV, $N_{e0} = 8 \times 10^{22}$ e-/cm^3, L_0= 300 Å). Les traits en pointillés correspondent au cas sans perte radiative et les traits pleins correspondent au cas où les pertes radiatives sont considérées.

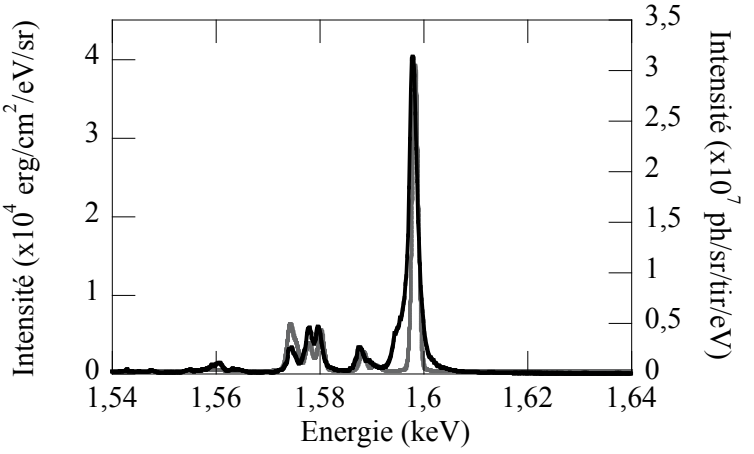


FIGURE 3.34 – Spectre d'émission de l'Al (trait plein noir) obtenu expérimentalement pour $E_{las} =$ 5 mJ et $\tau_{las} =$ 2.7 ps, comparé à un spectre (trait plein gris) obtenu par la simulation hydrodynamique + Averroès - Transpec pour T_{e0} = 1200 eV, $N_{e0} = 8 \times 10^{22}$ e-/cm^{-3}, L_0= 300 Å et $\tau_{las} =$ 2.7 ps. Les pertes radiatives de l'aluminium sont prises en compte.

En ce qui concerne la durée, l'émission simulée de la raie He$_\alpha$ résolue en temps est présentée sur la figure 3.35. Nous constatons la présence d'une traînée d'émission. La durée d'émission de la raie He$_\alpha$ est comparée aux résultats expérimentaux déconvolués de la résolution expérimentale et présentés auparavant (cf. table 3.2). Pour une simulation avec τ_{las}= 2.7 ps, le pic principal de la raie He$_\alpha$ simulée dure $\sim$ 0.8 $\pm$ 0.1 ps rms, alors qu'il dure $\sim$ 2.0 $\pm$ 0.1 ps rms expérimentalement. La traînée Heα simulée est de $\sim$ 1.4 $\pm$ 0.7 ps rms. Cette durée est très inférieure à la durée d'émission obtenue expérimentalement qui

est mesurée à $\sim$ 8.8 $\pm$ 0.3 ps rms. La traînée d'émission He_α est particulièrement difficile à reproduire avec notre simulation hydrodynamique simple.

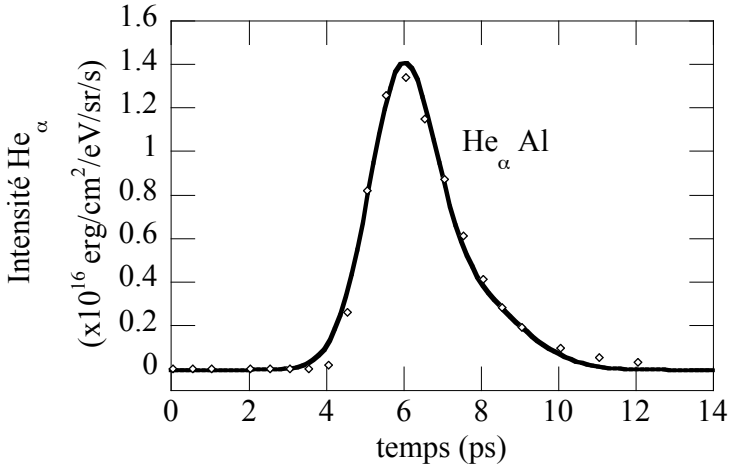


FIGURE 3.35 – Durée d'émission de la raie He_α de l'aluminium (losanges blancs) obtenu par la simulation hydrodynamique + Averroès -Transpec pour $T_{e0} = 1200$ eV, $N_{e0} = 8 \times 10^{22}$ e-/cm^{-3}, L_0= 300 Å et $\tau_{las} =$ 2.7 ps. La courbe d'ajustement (trait plein noir) est une double gaussienne. Les pertes radiatives de l'aluminium sont prises en compte (mais elles ont une influence négligeable).

Cette première simulation montre bien les limites de notre petit modèle hydrodynamique, trop élémentaire pour reproduire les dynamiques d'émission X d'un élément léger tel que l'aluminium. Entre autre, ce modèle ne tient absolument pas compte des effets de conduction et reste une approche monocellule, sans gradient de densité et de température. Les subtilités associées aux différentes zones spatiales d'émission doivent être reproduites en considérant un gradient de densité et de température à chaque pas de temps du calcul. Cependant, nous pouvons remarquer l'effet quasi-inexistant des pertes radiatives de l'aluminium sur l'hydrodynamique. Pour nos conditions expérimentales, les pertes radiatives pour un tel élément peuvent donc être négligées. Ceci n'est pas le cas dans d'autres conditions expérimentales (régime ns [31]), où ces effets peuvent être significatifs même pour des éléments de Z légers tel que l'aluminium.

Cas de l'erbium

Dans le cas de l'erbium, les conditions initiales optimales sont $T_{e0} = 3300$ eV, $N_{e0} \sim N_{sol} = 1.14 \times 10^{24}$ e-/cm^{-3}, L_0= 300 Å et τ_{las}= 2.7 ps. L'erbium étant un élément de Z élevé, sa détente est moins rapide que celle de l'aluminium. Nous avons donc considéré simplement une densité initiale égale à la densité solide. Pour la même raison, nous verrons que considérer une seule cellule, sans gradient spatial, n'est pas aussi critique que dans le cas de l'aluminium. L'évolution de la température T_e et de la densité N_e, calculées avec et sans pertes radiatives, est montrée en fonction du temps sur la figure 3.36. De manière évidente, les pertes radiatives de l'erbium ont un effet très important : la température est

fortement diminuée contrairement à la densité qui reste légèrement plus importante. En effet, le température diminue et ralenti l'expansion, ce qui maintient une densité élevée.

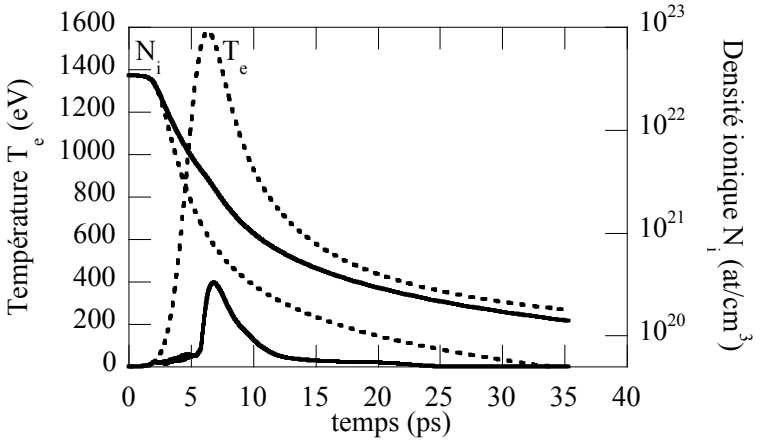


FIGURE 3.36 – Densité ionique N_i et température électronique T_e en fonction du temps pour une feuille d'erbium homogène en expansion autosemblable ($T_{e0} = 3300$ eV, $N_{e0} = 1.14 \times 10^{24}$ e-/cm^{-3}, $L_0 = 300$ Å). Les traits en pointillés correspondent au cas sans perte radiative et les traits pleins correspondent au cas où les pertes radiatives sont considérées.

Le Z moyen obtenu lors du calcul Averroès - Transpec en mode postprocesseur est de 34 ce qui est aussi égal à celui obtenu avec la simulation stationnaire monocellule qui reproduisait au mieux le spectre expérimental. Le spectre simulé en mode dépendant du temps est très proche du spectre expérimental. Contrairement à une simulation stationnaire monocellule du code Averroès - Transpec, nous arrivons à reproduire l'aile gauche (faibles énergies) de la structure $4f - 3d$. Comme nous le suggérions auparavant, cette aile est bien associée à des moments où l'émission se fait avec des températures inférieures à $\sim$ 450 eV, qui sont à l'origine d'états d'ionisation moins élevés et à des structures d'émission $4f - 3d$ moins énergétiques.

En ce qui concerne la durée d'émission, nous avons superposé, sur la figure 3.38, les durées d'émission pour des simulations avec et sans perte radiative. Les spectres ont été intégrés de 1.5 à 1.725 keV pour chaque pas de temps de la simulation. On constate l'apparition d'une traînée d'émission très longue dans le cas d'une simulation sans pertes radiatives. Avec les pertes radiatives, la durée d'émission X de l'erbium ne comporte plus cette traînée. Ceci reproduit les observations expérimentales. La courbe de tendance utilisée est une simple gaussienne. La durée de l'émission de l'Er est de $\sim$ 0.74 $\pm$ 0.03 ps rms, alors qu'elle est de $\sim$ 3.7 $\pm$ 0.3 ps rms expérimentalement.

Discussion

Pour un élément léger tel que l'aluminium, les pertes radiatives n'ont pas d'effets significatifs sur l'hydrodynamique. Par contre, pour des éléments de Z élevés tels que l'erbium, les pertes radiatives sont beaucoup plus importantes et leur effet est très visible sur l'hydrodynamique. L'évolution de la densité et de la température est très fortement modifiée, ce qui influe directement sur les spectres et les durées d'émission X. Les durées d'émission

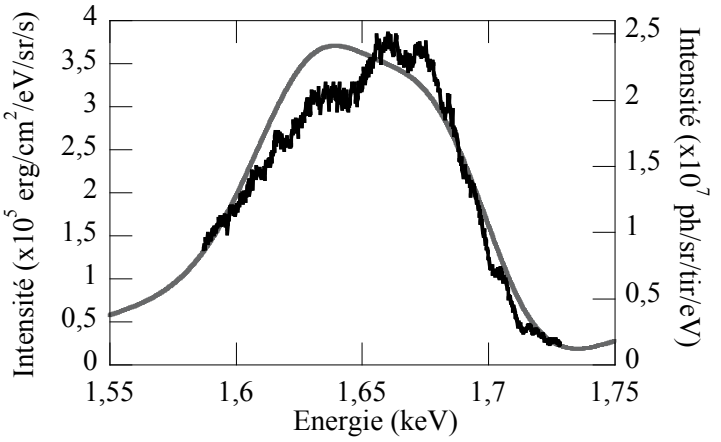


FIGURE 3.37 – Spectre d'émission de l'Er (trait plein noir) obtenu expérimentalement pour E_{las} = 5 mJ et τ_{las} = 2.7 ps, comparé à un spectre (trait plein gris) obtenu par une simulation hydrodynamique monocellule + Averroès -Transpec pour T_{e0} = 3300 eV, $N_{e0} = N_{sol} = 1.14 \times 10^{24}$ e-/cm^{-3}, x_0= 300 Å et $\tau_{las} = 2.7$ ps. Les pertes radiatives de l'erbium sont prises en compte.

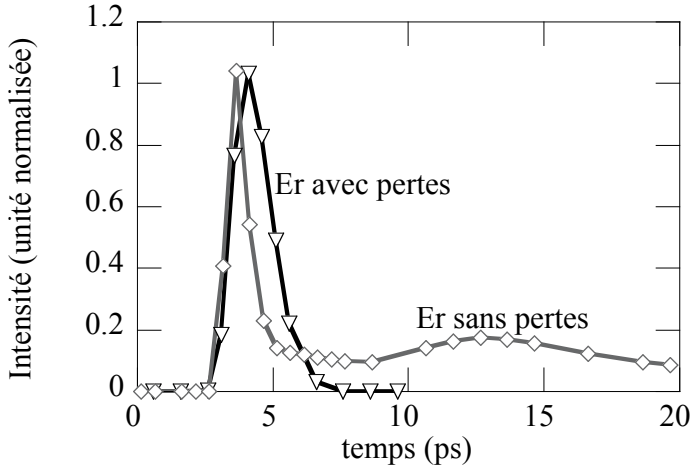


FIGURE 3.38 – Profil temporel de l'émission X de l'erbium obtenu par la simulation hydrodynamique couplée au code Averroès - Transpec, pour T_{e0} = 3300 eV, $N_{e0} = N_{sol} = 1.14 \times 10^{24}$ at/cm^{-3}, L_0= 300 Å et $\tau_{las} = 2.7$ ps. Le cas où les pertes radiatives sont prises en compte (triangles blancs, trait noir) est comparé au cas sans pertes radiatives (losanges blancs, trait gris).

X obtenues avec les simulations sont globalement plus courtes que celles obtenues expérimentalement. Ceci est fortement corrélé à l'épaisseur de la feuille initiale considérée et à la conduction dans la cible qui n'est pas prise en compte dans notre calcul hydrodynamique trop simpliste. Il n'en reste pas moins que les durées d'émission sont comparables entre

elles. Sur la figure 3.39, nous avons superposé les durées d'émission de l'aluminium et de l'erbium, obtenues avec la simulation hydrodynamique monocellule + Averroès -Transpec en considérant les pertes radiatives dans les deux cas. Les durées des pics principaux sont du même ordre, ce qui avait été observé expérimentalement. La durée d'émission de la raie thermique He_α présente une longue traînée d'émission contrairement à l'émission thermique de l'erbium. Comme nous l'avons vu, cette traînée d'émission n'apparaît pas pour l'erbium du fait des pertes radiatives élevées. Celles-ci ont tendance à refroidir beaucoup plus vite les zones émissives du plasma et par la même à diminuer la durée de l'émission X.

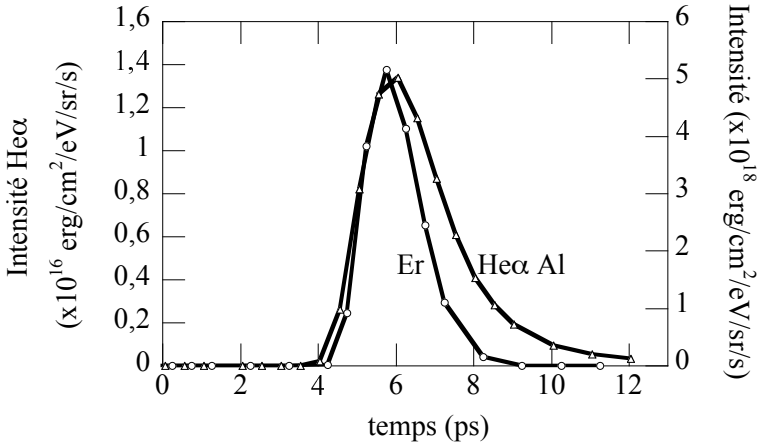


FIGURE 3.39 – Profils temporels de l'aluminium et de l'erbium obtenus par la simulation hydrodynamique couplée avec le code Averroès -Transpec pour $T_{e0} = 1200$ eV, $N_{e0} = 8 \times 10^{22}$ e-/cm^{-3}, $L_0 = 300$ Å et $\tau_{las} = 2.7$ ps dans le cas de l'aluminium et $T_{e0} = 3300$ eV, $N_{e0} = N_{sol} = 1.14 \times 10^{24}$ e-/cm^{-3}, $L_0 = 300$ Å et $\tau_{las} = 2.7$ ps dans le cas de l'erbium. Les pertes radiatives sont prises en compte.

Nous pouvons donc interpréter la différence de comportement temporel entre l'aluminium et l'erbium par un refroidissement radiatif plus important pour un élément de Z élevé. Les pertes radiatives refroidissent brutalement le plasma et réduisent très vite son émission X. De plus, la raie He_α est soumise à des effets de retard à la recombinaison.

3.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons analysé et interprété les caractéristiques spectrales et temporelles de l'émission X thermique de couche M, issue de plasmas de Z élevés, comparativement à l'émission X thermique d'un élément de Z faible tel que l'aluminium. L'étude de ces caractéristiques en fonction des paramètres laser, nous a permis de dégager des conditions optimales pour créer une source X adaptée à la spectroscopie d'absorption : ultra-brève, de large bande spectrale et intense. Pour résumer, l'émission X la plus appropriée à la spectroscopie d'absorption proche du flanc K de l'aluminium (à 1.559 keV) peut être obtenue en focalisant sur une cible d'erbium, un laser d'énergie $E_{las} = 5$ mJ et de

durée $\tau_{las} \sim 3$ ps, en polarisation P, avec un angle d'incidence de $\sim 20°$. Dans ces conditions, l'intensité des transitions de type $4f - 3d$ de l'erbium s'élève à 10^7 ph/tir/eV/sr, sur la gamme spectrale [1.5 - 1.75] keV, ce qui équivaut à 1‰ de l'énergie laser. La durée de l'émission $4f - 3d$ de l'erbium est alors d'environ 4 ps rms. Nous avons développé un code hydrodynamique simple, couplé à des calculs collisionnels - radiatifs pour reproduire les spectres intégrés en temps de l'aluminium et de l'erbium ainsi que la dynamique de l'émission X au cours du temps. Nous avons pu constater que les pertes radiative perturbent fortement l'hydrodynamique dans le cas des éléments de Z élevé, conduisant à un refroidissement radiatif rapide du plasma. Ceci entraîne une diminution de la durée de l'émission X. Ces pertes n'ont aucun effet sur des éléments de Z faible (aluminium) et dans ce cas, on observe une traînée de l'émission thermique du plasma qui représente jusqu'à 30% des X dans une traînée d'environ 10 ps.

Bibliographie

[1] C. Y. Côté, J. C. Kieffer et O. Peyrusse, Phys. Rev. E **56**, 992 (1997).

[2] S. Bastiani, Thèse de l'Ecole Polytechnique (1998).

[3] F. P. Keenan, S. M. McCann et A. E. Kingston, J. Phys. B **27**, L803 (1986).

[4] C. Pecker-Wimel, Introduction à la spectroscopie des plasmas, séries *Gordon and Breach*, éd. Dunod (1967).

[5] H. Nishimura, H. Takabe, K. Kondo, T. Endo, H. Shiraga et K. Sugimoto, Phys. Rev. A **43**, 3073 (1991).

[6] K.R. Manes, V.C. Rupert, J.M. Auerbach, P. Lee et J.E. Swain, Phys. Rev. Lett. **39**, 5 (1977).

[7] K.G. Estabrook, E.J. Valéo et W.L. Kruer, Phys. Fluids **18**, 9 (1975).

[8] W.L. Kruer, *The physics of laser plasma interaction*, séries *Frontiers in Physics*, éd. D.Pines (Addison-Wesley), Reading, MA, 1987.

[9] L. M. Chen, M. Kando, M. H. Xu, Y. T. Li, J. Koga, M. Chen, H. Xu, X. H. Yuan, Q. L. Dong, Z. M. Sheng, S.V. Bulanov, Y. Kato, J. Zhang et T. Tajima, Phys. Rev. Lett. **100**, 045004 (2008).

[10] T. Mochizuki, T. Yabe, K. Okada, M. Hamada, N. Ikeda, S. Kiyokawa et C. Yamanaka, Phys. Rev. A **33**, 525 (1986).

[11] J. Yu, Z. Jiang, J. C. Kieffer, et A. Krol, Phys. of Plasma **6**, 1318 (1999).

[12] K. Estabrook, et W.L. Kruer, Phys. Lett. **40**, 42 (1978).

[13] C. Fourment, N. Arrazam, C. Bonté, T. Caillaud, D. Descamps, F. Dorchies, M. Harmand, S. Hulin, S. Petit et J.J. Santos, Rev. Sci. Instrum. **80**, 083505 (2009).

[14] J.C. Gauthier, P. Monier, P. Audebert, C. Chenais-Popovics et J.P. Geindre, Laser and Part. Beams **4**, 421 (1986).

[15] N. Tragin, Thèse de l'école Polytechnique (1989).

[16] P.G. Burkhalter, D.J. Nagel et R.R. Whitlock, Phys. Rev. A **9**, 2331 (1974).

[17] A. Zigler, M. Givon, E. Yarkoni, M. Kishienevsky, E. Goldberg, B. Arad et M. Klapisch, Phys. Rev. A **35**, 280 (1987).

[18] R. Doron, E. Behar, M. Fraenkel, P. Mandelbaum, J. L. Schwob, A. Zigler, A.Ya. Faenov et T. A. Pikuz, Phys. Rev. A **62**, 052508 (2000).

[19] R. Doron, E. Behar, M. Fraenkel, P. Mandelbaum, A. Zigler, J. L. Schwob, A.Ya. Faenov et T. A. Pikuz, Phys. Rev. A **58**, 1859 (1998).

[20] J.A. Bearden et A.F. Burr, Rev. Mod. Phys. **39**, 125 (1967).

[21] Center for X-ray Optics www-cxro.lbl.gov

[22] O. Peyrusse, J. Phys. B **33**, 4303 (2000) ; *ibid* J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **71**, 571 (2001).

[23] C. Bauche-Arnoult, J. Bauche et M. Klapisch, Phys. Rev. A **31**, 2248 (1985).

[24] J. Bauche, C. Bauche-Arnoult et M. Klapisch, Adv. At. Mol. Phys. **23**, 131 (1987).

[25] R. Doron, E. Behar, M. Fraenkel, P. Mandelbaum, J.L. Schwob, A. Zigler, A.Y. Faenov et T.A. Pikuz, Phys. Scripta **63**, 22 (2001).

[26] R. Doron, M. Fraenkel, P. Mandelbaum, A. Zigler et J.L. Schwob, Phys. Scripta **58**, 19 (1998).

[27] J. C. Kieffer, M. Chaker, J. P. Matte, H. Pépin, C. Y. Côté, Y. Beaudoin, T. W. Johnston, C. Y. Chien, S. Coe, G. Mourou et O. Peyrusse, Phys. Fluids B **5**, 2676 (1993).

[28] P. Audebert, J. P. Geindre, A. Rouse, F. Fallibs, J. C. Gauthier, A. Mysyrowicz, G. Grillon et A. Antonetti, J . Phys. B : At. Mol. Opt. Phys, **27**, 3303 (1994).

[29] C. Chenais-Popovic, F. Dorchies, P. Audebert, V. Nagels, J. P. Geindre, J. C. Gauthier, O. Peyrusse, S. Gary et F. Girard, J. Phys. IV, **108**, 137 (2003).

[30] R. C. Mancini, P. Audebert, J. P. Geindre, A. Rousse, F. Falliès, J. C. Gauthier, A. Mysyrowicz, J. P. Chambaret et A. Antonetti, J . Phys. B : At. Mol. Opt. Phys, **27**, 1671 (1994).

[31] M. Fajardo, P. Audebert, H. Yashiro, J. C. Gauthier, C. Chenais-Popovics, P. Renaudin, O. Peyrusse, X. Fortin et R. Shepherd, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **71**, 317 (2001).

Chapitre 4

Spectroscopie d'absorption X près du seuil K de l'aluminium

Sommaire

4.1 Dispositif expérimental adapté à la spectroscopie d'absorption X 118

4.1.1 Premier dispositif expérimental à un cristal 120

4.1.2 Dispositif expérimental à deux cristaux 124

4.1.3 Origine du bruit et optimisation 128

4.1.4 Analyse du spectre d'absorption X près du flanc K de l'aluminium froid 133

4.2 Aluminium dense et tiède : chauffage par protons 140

4.2.1 Expérience de chauffage par protons 140

4.2.2 Qualité des spectres XANES « froids » (discussion sur le bruit lié aux protons) 143

4.2.3 Spectres XANES de l'aluminium chauffé 145

4.3 Conclusion 155

Bibliographie 157

Dans ce dernier chapitre, nous présentons des expériences de spectroscopie d'absorption, réalisées au laboratoire CELIA et au laboratoire LULI, en utilisant la source X de large bande spectrale présentée au chapitre 3. Nous rapporterons dans un premier temps la conception d'un spectromètre X permettant des mesures de spectres d'absorption, adapté aux caractéristiques d'une source X issue d'un plasma créé par laser. Celui ci doit permettre une mesure systématique et fiable, affranchie des effets de fluctuation de la source et avec un rapport signal sur bruit élevé.

Ce spectromètre a été testé et validé avec les sources X du laboratoire CELIA sur des échantillons d'aluminium froid. Il a été ensuite utilisé sur une expérience de type pompe - sonde au laboratoire LULI. Ceci fait l'objet d'une seconde partie. Un échantillon d'aluminium est chauffé à quelques eV par un faisceau de proton créé par laser, tandis qu'un faisceau laser secondaire crée une source X qui vient sonder par spectroscopie d'absorption X l'échantillon d'aluminium chauffé. L'ensemble de cette expérience, comprenant de nombreux diagnostics, fait l'objet de la thèse d'Ana Mancic. Des spectres d'absorption

X sont présentés et interprétés par une perte de corrélation de la matière lorsqu'elle est portée depuis l'état solide froid à l'état dense et tiède.

4.1 Dispositif expérimental adapté à la spectroscopie d'absorption X

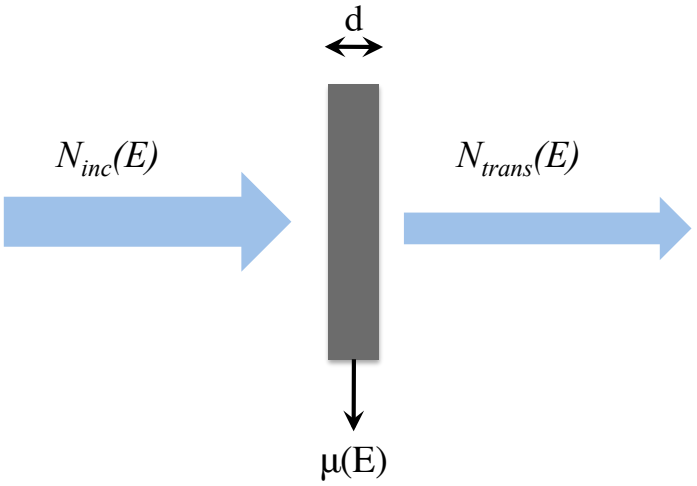


FIGURE 4.1 – Principe d'une mesure de transmission d'un échantillon pour remonter à l'absorption linéique $\mu(E)$.

Le principe de la mesure de la transmission d'un échantillon est schématisé sur la figure 4.1. Un faisceau incident $N_{inc}(E)$ est envoyé sur un échantillon. Celui ci ne transmet qu'une portion du faisceau incident $N_{trans}(E)$. La transmission T relie ces deux grandeurs selon la formule 4.1.

$$T(E) = \frac{N_{trans}(E)}{N_{inc}(E)} \tag{4.1}$$

Comme expliqué au chapitre 1, de manière générale, la transmission T s'exprime aussi selon la loi de Beer Lambert (cf. équation 4.2).

$$T(E) = e^{-\mu(E)d} = e^{-A(E)} \tag{4.2}$$

avec $\mu(E)$ l'absorption linéique en μm^{-1}, d l'épaisseur de l'échantillon sondé en μm, $A(E) = \mu(E)d$ l'absorbance et E l'énergie des photons X. L'absorption linéique $\mu(E)$ est donc donnée par $\mu(E) = -\frac{1}{d}\, ln(T(E))$. Elle se calcule alors avec la formule suivante :

$$\mu(E) = -\frac{1}{d} \times \ln\left(\frac{N_{trans}(E)}{N_{inc}(E)}\right) \tag{4.3}$$

Mesurer la transmission et donc l'absorption, revient à mesurer simultanément le nombre de photons incidents $N_{inc}(E)$ et transmis $N_{trans}(E)$ en fonction de l'énergie E de ces photons. Comme expliqué au chapitre 1 de ce manuscrit, plusieurs stratégies ont

été choisies selon les caractéristiques des sources utilisées. Sur les installations synchrotrons, où les sources X sont très intenses et collimatées, la dispersion en énergie est en générale effectuée au moyen d'un monochromateur placé en amont de l'échantillon. L'intensité incidente est souvent détectée par des chambres d'ionisation. Dans le cas de sources X ponctuelles, il est en général préconisé d'utiliser un système dispersif pour balayer les énergies de photons. Avec ce système, un spectre entier est obtenu en une seule fois. Le spectre de référence est souvent mesuré lors d'une autre acquisition ce qui peut engendrer des erreurs lors de l'analyse lorsque la source X fluctue de manière trop importante.

Il est aussi possible dans le cas de sources X non collimatées et isotropes de mesurer simultanément l'intensité incidente $N_{inc}(E)$ et transmise $N_{trans}(E)$. Le schéma de ce type de mesure est représenté sur la figure 4.2. On distingue deux bras de détection : un premier pour la mesure de signal incident $N_{inc}(E)$ sur lequel aucun échantillon n'est placé, le second pour la mesure de signal transmis $N_{trans}(E)$ avec un échantillon le long de l'axe de détection, avant le système dispersif. Ce système permet de s'affranchir des fluctuations de la source tir à tir, critiques lorsque le spectre de référence n'est pas mesuré en même temps.

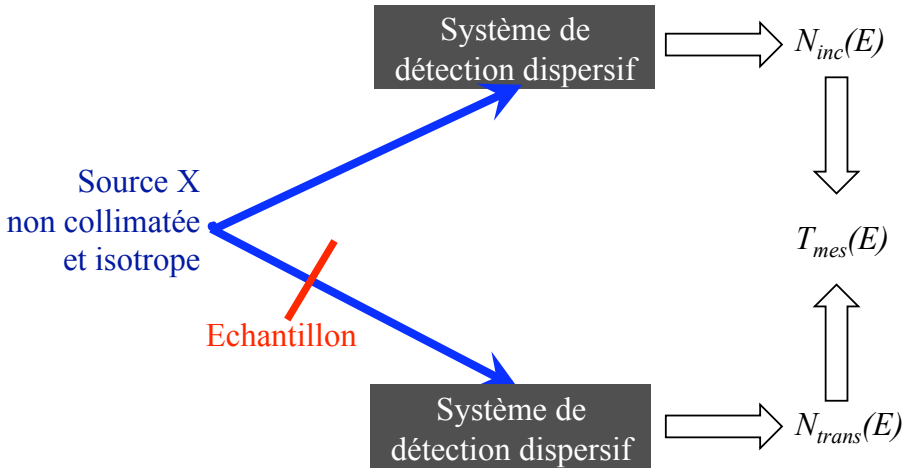


FIGURE 4.2 – Schéma synoptique d'un spectromètre d'absorption X, dispersif en énergie et adapté à une source X non collimatée et isotrope.

Dans le cas de sources X plasmas créées par laser, la source non collimatée et isotrope permet d'utiliser ce type de dispositif. Plus spécifiquement, le système de détection dispersif est composé d'un cristal ou d'un réseau associé à un détecteur (cf. figure 4.3). Un cache permet d'éviter de détecter l'émission directe de la source X. Ce système de détection a déjà fait ses preuves pour des expériences de spectroscopie d'absorption avec de telles sources X [1, 2, 3, 4]. Comme une zone de l'échantillon correspond à un trajet optique donnée, soit à une énergie X donnée, l'échantillon dans un contexte d'expérience pompe - sonde, doit être placé à proximité de la source X. La zone pompée doit être plus grande que la zone sondée. Dans notre cas, comme dans la référence [3], le spectre transmis est mesuré dans son intégralité en un seul tir laser ou en mode accumulé, dans la gamme [1.5, 1.75 keV], grâce à un cristal dispersif de type KAP. La source X, issue de l'émission thermique d'un plasma d'erbium peut fluctuer d'un tir à l'autre. Nous avons développé un spectromètre permettant la mesure simultanée, en un seul tir laser, du spectre transmis

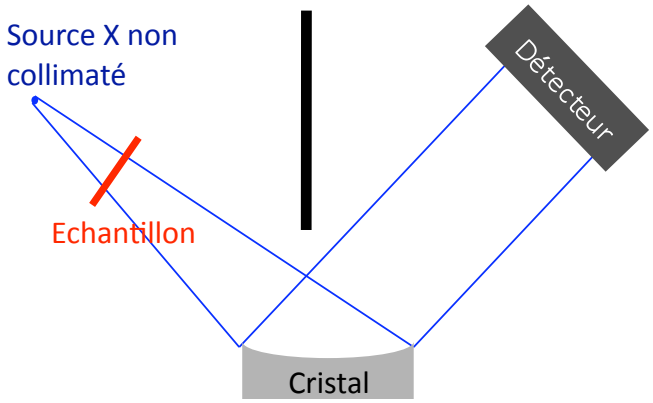


FIGURE 4.3 – Schéma synoptique d'un spectromètre d'absorption X, dispersif en énergie et adapté à une source X non collimatée.

et du spectre de référence. Nous avons pour cela testé deux types de spectromètre : un spectromètre à un seul cristal KAP et un spectromètre à double cristal KAP.

4.1.1 Premier dispositif expérimental à un cristal

Schéma expérimental

Dans un premier temps, nous avons utilisé un dispositif (cf. figure 4.4) composé d'un seul cristal tronconique KAP, détaillé au chapitre 2 et d'une caméra CCD. En plaçant cette dernière en dehors du plan focal (avant ou après), on ajoute à la dispersion spectrale induite par le caractère dispersif du cristal, une dimension spatiale. L'axe résolu spatialement est transversal à celui de la dispersion spectrale. Ceci équivaut à projeter l'image de l'échantillon sondé sur la caméra CCD. Nous qualifions cette géométrie de « configuration défocalisée ». En amont du cristal, nous plaçons un échantillon composé de deux zones. Il s'agit d'un film plastique sur lequel un dépôt d'aluminium a été réalisé sur sa moitié. La résolution spatiale permet de discerner ces deux zones spatiales correspondant aux deux zones de l'échantillon. On mesure simultanément le spectre de référence $N_{inc}(E)$, transmis à travers le plastique seul et le spectre transmis $N_{trans}(E)$ à travers le plastique et le dépôt d'aluminium. En supposant la source isotrope sur le faible angle de collection du cristal, on déduit la transmission de l'aluminium du rapport de ces deux spectres. Ce type de dispositif a déjà été proposé par C. Chenais-Popovics *et al* avec un cristal TlAp [1]. Associé à un cristal KAP, il a déjà permis de mesurer des spectres de raies d'absorption d'un plasma d'aluminium [3].

L'hypothèse de l'isotropie de la source est tout à fait fondée. En revanche, comme nous l'avons expliqué dans le chapitre 3, le cristal KAP présente de nombreux défauts de réflectivité, particulièrement identifiables en configuration défocalisée. Ces défauts de réflectivité sont à priori différents dans les deux zones considérées et varient aussi le long de la dimension de la dispersion spectrale. Ils doivent être corrigés pour pouvoir remonter à la transmission puis à l'absorption. Pour cela, nous effectuons une mesure au préalable sans échantillon. En supposant que ces défauts de réflectivité sont systématiques et en divisant l'image obtenue avec échantillon par l'image de référence sans échantillon, on obtient une mesure « corrigée » de la transmission résolue en espace et en spectre. Sur

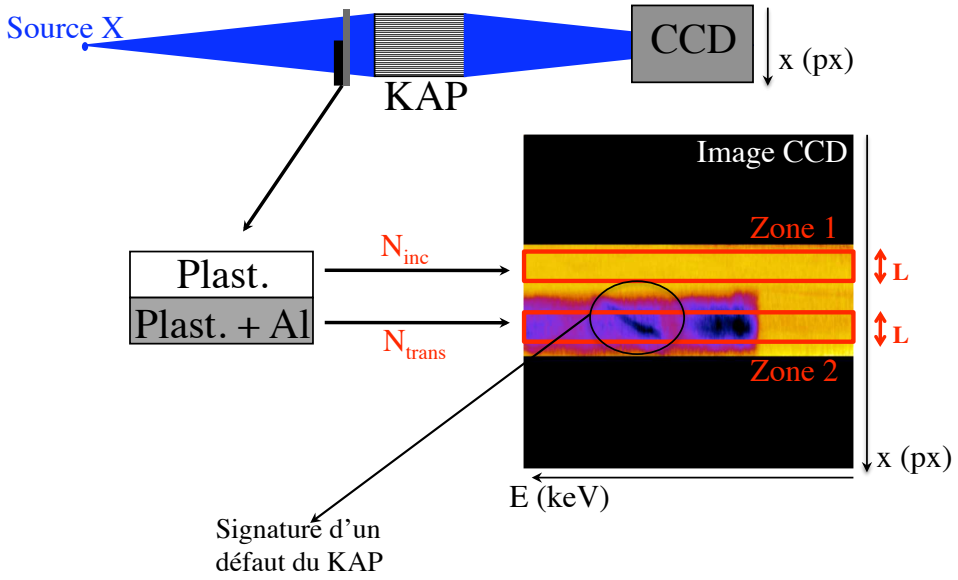


FIGURE 4.4 – Dispositif expérimental à un cristal, pour la mesure d'un spectre d'absorption.

la figure 4.4, l'image présentée a été traitée de cette manière. Comme nous le verrons par la suite et comme on peut l'observer sur la figure 4.4, cette correction n'est pas toujours parfaite. Il subsiste des défauts dans la zone 2 de l'image 4.4.

Traitement des spectres

Pour extraire un spectre d'absorption de ces acquisitions, nous intégrons spatialement deux zones de même dimension L (zone 1 et 2 sur la figure 4.4). L peut être réduite à 1 pixel si on veut garder la meilleure résolution spatiale possible. Nous réalisons cette même intégration pour les images avec et sans échantillon pour obtenir quatre spectres : le spectre transmis par l'aluminium + plastique (zone 2), noté $N_2(E)$, celui transmis par le plastique (zone 1), noté $N_1(E)$ et les spectres similaires obtenus sans échantillon, notés $N_{0}{}_2(E)$ et $N_{0}{}_1(E)$.

L'absorption finale se calcule alors avec la formule 4.4.

$$\mu(E) = -\frac{1}{d} \times \ln\left(\frac{N_2(E)}{N_1(E)} \Big/ \frac{N_{0}{}_2(E)}{N_{0}{}_1(E)}\right) \tag{4.4}$$

Le rapport $\dfrac{N_{0}{}_2(E)}{N_{0}{}_1(E)}$ est caractéristique des défauts du cristal KAP. On peut raisonnablement supposer qu'il est toujours le même. Diviser par ce rapport doit donc permettre de s'affranchir des défauts du cristal. La mesure des spectres N_1 et N_2 est faite sur les mêmes tirs lasers, i.e. avec la même source X. La mesure est donc aussi indépendante de toute fluctuation de la source X tir à tir.

Cependant, nous ne pouvons pas nous affranchir des fluctuations spatiales de la source. En effet, la cible n'étant pas parfaitement plane, la position spatiale de la source est modifiée, principalement lorsque l'on déplace la cible en hauteur (cf. chapitre 2). A cause

de cette fluctuation spatiale de la source, la projection des défauts de réflectivité du cristal KAP varie sur le détecteur. La figure 4.5 représente les coupes verticales, le long de la dimension spatiale de deux images obtenues sans échantillon d'aluminium et pour des hauteurs de cible espacées de 3 mm. Nous pouvons constater un décalage spatial des coupes. Le déplacement en hauteur de la cible de 3 mm implique un déplacement latéral de la source (cible légèrement bombée), ce qui entraîne un décalage spatial de 2.5 px des images sur la CCD, soit $\sim$ 60 μm. Supposons maintenant qu'on cherche à obtenir une mesure d'absorption à partir de ces deux images et en suivant la procédure résumée par l'équation 4.4. Puisque les deux images sont mesurées sans échantillon, on doit obtenir une absorption spectralement plate et égale à 0. La procédure appliquée brutalement impose deux zones d'intégration fixes alors que les spectres se sont décalés spatialement entre les deux images. La correction des défauts n'est donc pas parfaite et on obtient la trace « $\Delta L = 0$ » de la figure 4.6. Nous constatons que l'erreur induite par les défauts du cristal KAP sur le spectre d'absorption peut être importante. Nous voyons apparaître des structures non physiques, qui peuvent fausser l'interprétation des données spectrales.

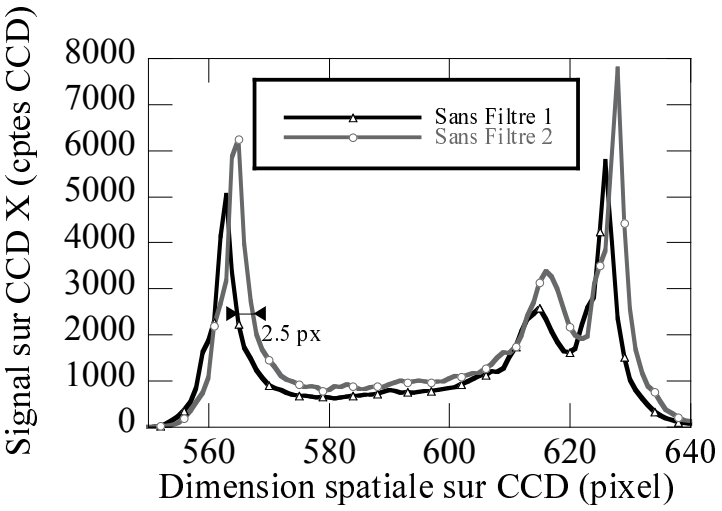


FIGURE 4.5 – Coupe le long de l'axe spatial des spectres mesurés sans échantillon pour deux hauteurs différentes de cible, espacées de $\sim$ 3 mm (accumulation 20 s).

Pour pallier à cet effet, on peut décaler les zones d'intégration utilisées pour le calcul de I_1 et I_2 d'une quantité ΔL (en pixel) par rapport aux zones utilisées pour le calcul de I_{01} et I_{02}. Nous avons testé différents décalages ΔL des zones d'intégrations. Les spectres d'absorption obtenus sont reportés sur la figure 4.6. On parvient à une bonne correction avec un décalage des zones d'intégration de 2.5 px, ce qui correspond au décalage spatial des spectres sur la caméra CCD (cf. figure 4.5).

Dans le cas « sans échantillon » de la figure 4.6, il est aisé d'optimiser une telle correction puisqu'on connaît la spectre d'absorption attendu (plat et nul). La précision de la correction est cependant limitée par la résolution spatiale accessible de 1 px ($\sim$ 25 μm). Dans le cas plus général d'un échantillon quelconque, cette opération est plus délicate et peut laisser planer un doute sur les structures spectrales obtenues. Néanmoins, pour un échantillon d'aluminium, nous avons pu réaliser cette correction en optimisant le décalage ΔL sur la partie du spectre « avant le flanc K » (énergies inférieures à 1.56 keV)) que l'on

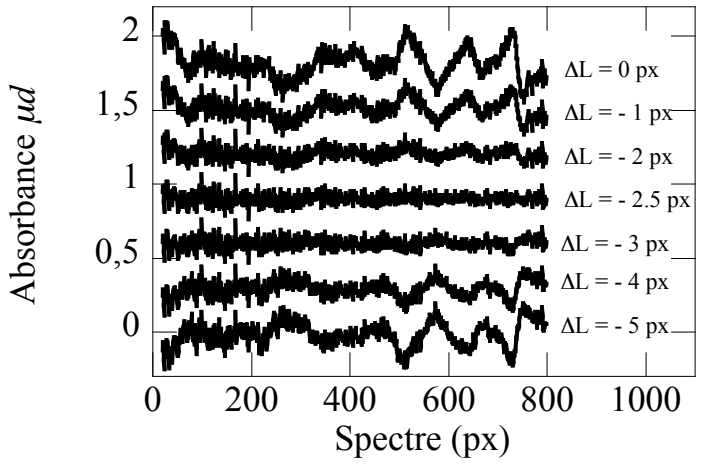


FIGURE 4.6 – Spectres d'absorption mesurés sans échantillon et pour différents décalage ΔL des zones d'intégration spatiales entre les deux images correspondantes à la figure 4.5. Ils sont artificiellement décalés de 0.3 verticalement et leurs moyennes sont centrées sur 0.

sait être plate.

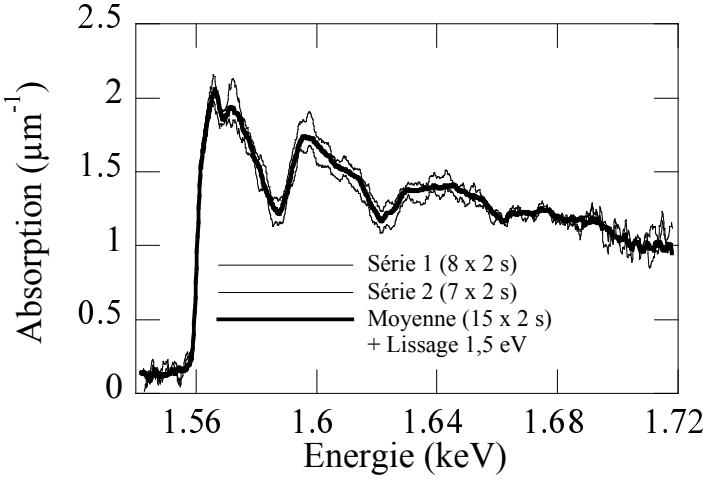


FIGURE 4.7 – Fluctuation du spectre d'absorption observée pour différentes positions de hauteur H de la cible : Comparaison de 2 moyennes réalisées sur 2 séries différentes de hauteur H (trait fin noir), espacés de 3 mm (δH= 3 mm) et comparé à la moyenne total brute et lissée sur 1.5 eV (trait plein noir).

Deux spectres XANES d'un échantillon d'aluminium solide à température ambiante sont reportés sur la figure 4.7. Ils ont été obtenus respectivement à partir d'une série de sept acquisitions et d'une autre de huit acquisitions qui durent chacune 2 s (soit 2000 tirs). Ces deux séries ont été réalisées pour des hauteurs de cibles espacées de 3 mm. Sur cet exemple, on observe une bonne reproductibilité du spectre XANES mesuré. Sur la figure 4.7, est aussi représentée la moyenne de ces deux spectres qui a été lissée spectralement

sur la résolution spectrale du dispositif, i.e. 1.5 eV. Une accumulation totale de seulement 30 s a été nécessaire pour obtenir ce spectre XANES de l'aluminium solide et froid (à température ambiante).

4.1.2 Dispositif expérimental à deux cristaux

Comme nous venons de le voir, l'utilisation d'un seul cristal présente quelques inconvénients. L'angle solide utile pour sonder l'échantillon est limité par la moitié de l'ouverture du cristal, voire un tiers en pratique. Si on veut distinguer la zone dite de référence de la zone de la transmission de l'échantillon d'aluminium, et ce malgré les décalages des images, la zone d'intégration L peut devenir très faible (L varie en général de 10 à 20 px). De plus, la fluctuation spatiale de la source X impose une procédure complexe de recalage des images pour s'affranchir d'une erreur importante induite par les défauts de réflectivité du cristal KAP. Nous avons donc développé un système à deux cristaux qui, comme nous le verrons, permettra d'agrandir cette zone d'intégration si besoin et de corriger aisément les défauts de réflectivité des cristaux malgré les fluctuations spatiales de la source.

Enfin, sonder un échantillon en configuration pompe - sonde implique une forte contrainte spatiale. En effet, nous ne pouvons chauffer efficacement qu'une surface limitée de l'échantillon ($\sim 100 \times 100\ \mu m^2$). Afin de sonder spécifiquement cette petite surface, il est nécessaire de placer l'échantillon très près de la source X. D'une part, l'alignement de l'échantillon avec le cristal devient critique. D'autre part, il est difficile de maintenir cette surface chauffée de l'échantillon, immédiatement à proximité d'une zone sans échantillon (zone de référence). Afin de relâcher toutes ces contraintes, un spectromètre à deux cristaux permettrait essentiellement de séparer spatialement la zone de référence sans échantillon, de la zone sondée.

Schéma expérimental

Le système à deux cristaux est schématisé sur la figure 4.8. Deux cristaux sont placés de part et d'autre de l'axe source X - détecteur. Ils sont décalés latéralement afin de séparer leurs traces respectives le long de l'axe spatial sur le détecteur. Comme dans le dispositif à un cristal, le détecteur est placé hors du plan focal afin d'avoir accès à une résolution spatiale. La source étant isotrope et les réglages des deux cristaux étant identiques, nous devons obtenir deux spectres identiques. Comme les deux cristaux présentent des défauts de réflectivité différents, nous les corrigerons en effectuant une mesure préalable sans aucun échantillon. Sur le trajet optique de l'un des cristaux nous plaçons l'échantillon étudié pour mesurer sa transmission. Sur le trajet du second cristal, nous mesurons directement l'émission X de la source, correspondant à l'intensité incidente sur l'échantillon sondé.

Méthodologie

Une image consiste en l'acquisition de deux spectres parallèles correspondant au cristal KAP#1 et au cristal KAP#2. Sur la figure 4.9 une série de 3 images est représentée : une image sans aucun échantillon (notée (1)), une autre avec un échantillon de 1 μm d'aluminium devant le cristal KAP#1 (notée (2)), et la dernière (notée (3)) qui correspond à la division de l'image (2) par l'image (1). L'image (3) est donc à priori corrigée des

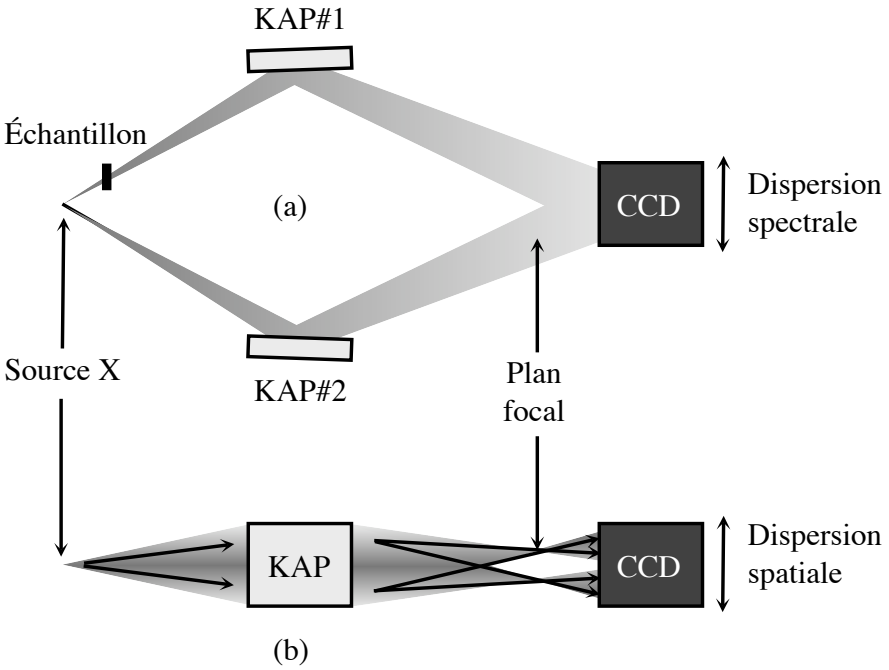


FIGURE 4.8 – Spectromètre d'absorption à deux cristaux.
(a) vue de côté, (b) vue de dessus.

défauts des cristaux KAP. Mais elle est encore sensible aux éventuelles fluctuations de source X entre l'acquisition des images (1) et (2). L'opération finale qui consiste à diviser le spectre KAP#1 par le spectre KAP#2 de l'image (3) permet une mesure absolue de la transmission, indépendante des fluctuations de la source X.

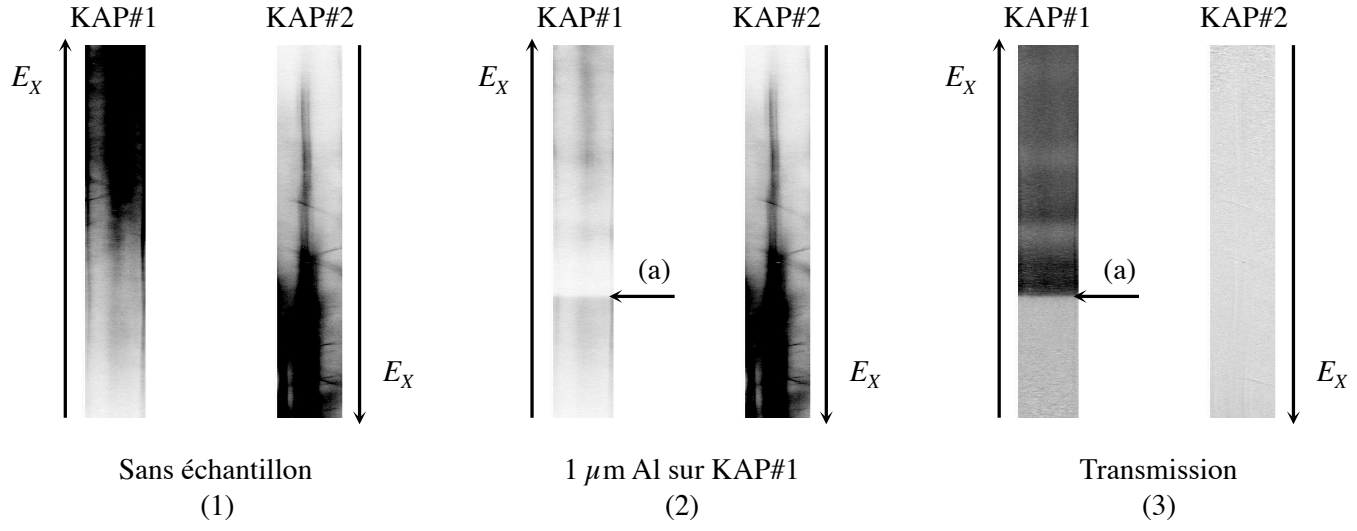


FIGURE 4.9 – Série de deux images ((1) et (2)) mesurées avec le spectromètre à deux cristaux. Le spectre de transmission de l'échantillon d'aluminium (3) est obtenu par division de l'image (2) par l'image (1).

Nous allons préciser cette procédure ci-dessous. Pour cela, on note $N_{i,j}(E)$, le nombre de photons X d'énergie E, collecté par le cristal KAP#i et enregistré sur l'image j. Ce nombre de photon peut être indifféremment résolu ou intégré spatialement. Chacun des ces $N_{i,j}(E)$ est donné par la formule 4.5 :

$$N_{i,j}(E) = N_{S,j}(E) \times R_i(E) \times T_{i,j}(E) \tag{4.5}$$

avec $N_{S,j}(E)$ le nombre de photons X émis par la source, indépendamment du cristal i, $R_i(E)$ une grandeur intégrant l'angle solide de collection et la réflectivité du cristal i et $T_{i,j}(E)$ la transmission définie telle que $T_{1,2}(E)$ est égale à la transmission $T(E)$ de l'échantillon et $T_{i,j}(E) = 1$ dans les autres cas.

Sur ces nombres de photons mesurés $N_{i,j}(E)$, on applique la formule suivante pour obtenir une transmission mesurée de l'échantillon T_{mes} :

$$T_{mes}(E) = \frac{N_{1,2}/N_{1,1}}{N_{2,2}/N_{2,1}} = \frac{N_{S,2} \times T \times R_1/N_{S,1} \times R_1}{N_{S,2} \times R_2/N_{S,1} \times R_2} = T \tag{4.6}$$

Comme nous l'avons expliqué précédemment, nous constatons explicitement dans la formule 4.6 que diviser l'image (1) par l'image (2) revient à s'affranchir des défauts de réflectivité des cristaux R_1 et R_2. De même, diviser les images issues du KAP#1 par celles du KAP#2, revient à s'affranchir des fluctuations de la source lors de l'acquisition des deux images ($N_{S,1}$ et $N_{S,2}$). Nous remontons donc proprement à la transmission T, à priori dépourvue de contributions parasites expérimentales, pour en extraire par la suite l'absorption linéique qui s'obtient avec la formule 4.7 :

$$\mu(E) = -\frac{1}{d}\, ln(T_{mes}) = -\frac{1}{d} \times \ln\left(\frac{N_{1,2}/N_{1,1}}{N_{2,2}/N_{2,1}}\right) \tag{4.7}$$

Comme on le constate sur la dernière image (3) de la figure 4.9, contrairement au cas cristal KAP unique (cf. figure 4.4), les défauts sont bien corrigés. Nous n'observons pas de structures parasites alors qu'elles sont clairement visibles sur les images (1) et (2). La fluctuation spatiale de la source peut être corrigée complètement en décalant les images dans leur totalité de quelques pixels si besoin. Le spectre de droite (KAP#2) de l'image (3) est une mesure de « transmission nulle » (sans échantillon). Il permet d'optimiser ce recalage sans aucune ambiguïté, jusqu'à obtention d'un spectre de transmission plat. Sur le spectre de gauche (KAP#1, image (3) de la figure 4.9), nous observons nettement le flanc K de l'aluminium ainsi que les oscillations XANES juste après le seuil.

Les étapes consécutives pour une mesure d'absorption d'un échantillon sont donc les suivantes :

- Acquisition préalable d'une image sans échantillon (image (1), figure 4.9),
- Acquisition de l'image avec échantillon (image (2), figure 4.9),
- Division de l'image avec échantillon par l'image sans (image (3), figure 4.9),
- Conversion des pixels en eV le long de la dispersion spectrale (calibration au préalable réalisée avec un spectre d'émission de plasma d'aluminium),
- Division du spectre transmis à travers l'échantillon (KAP#1) par le spectre de référence (KAP#2),
- Intégration spatiale, si nécessaire et sur une largeur variable, du spectre d'absorption obtenu à l'étape précédente,

– Eventuel lissage spectral sur la résolution.

Quelques mesures de spectres d'absorption

Des spectres d'absorption mesurés selon la méthode précédemment décrite sont reportés sur la figure 4.10. Ils ont été obtenus en utilisant la source X large bande, intense et ultra-brève, issue de l'émission thermique d'un plasma d'erbium créé par laser. Ses caractéristiques et son optimisation font l'objet du chapitre 3 de ce manuscrit. Un spectre d'absorption d'un échantillon de 1 μm d'aluminium est comparé à un spectre obtenu sur une installation synchrotron [5, 6]. Le spectre réalisé au laboratoire CELIA a été obtenu avec 30 s d'accumulation. Le spectre d'absorption synchrotron est décalé artificiellement sur l'axe vertical. La qualité de notre spectre est comparable à celle obtenue sur l'installation synchrotron. Globalement les structures XANES sont identiques mais nous observons quelques différences au niveau de la $1^{ère}$ oscillation XANES (à environ 1.57 keV) et au niveau du seuil. En effet, le flanc d'absorption du spectre synchrotron semble plus structuré que celui de nos spectres d'absorption. Ceci pourrait être expliqué par une meilleure résolution spectrale sur la mesure synchrotron et/ou par une qualité différente de l'échantillon d'aluminium.

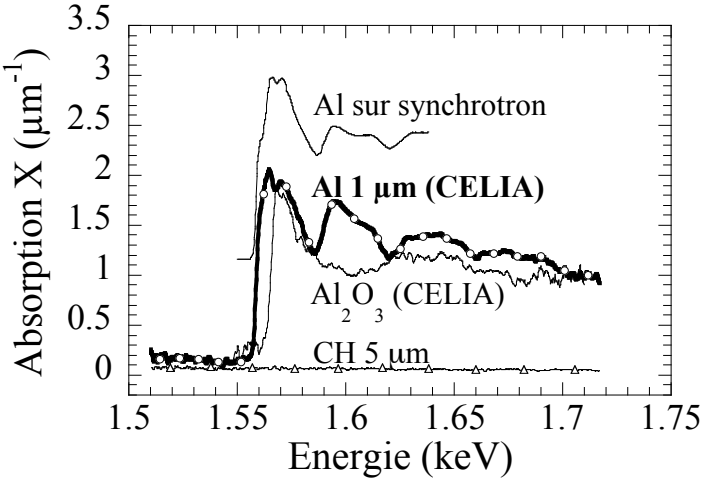


FIGURE 4.10 – Comparaison des spectres d'absorption mesurés avec une source X créée par laser (CELIA) et une source X synchrotron [5, 6]. Mesure de la fluctuation associée en utilisant un échantillon de plastique CH.

Nous avons aussi mesuré des spectres d'absorption de l'alumine Al_2O_3 afin d'observer comparativement, un effet sur les oscillations XANES lié au changement de la structure locale. La structure de l'alumine est de type hexagonale [6]. Des mesures EXAFS ont souligné l'importance accrue de la couche de coordination des premiers voisins alors que les couches plus éloignées sont relativement négligeables [6]. Comparé à l'aluminium de structure cubique face centrée (cfc), ceci a pour effet de diminuer le nombre et les sous structures des oscillations XANES. Un spectre d'absorption obtenu avec un échantillon de 2000 Å d'alumine est reporté sur la figure 4.10. Nous constatons que certaines structures XANES « disparaissent » (le doublet de la $1^{ère}$ bosse et la $2^{ème}$ bosse) et que le seuil K se décale de $\sim$ 5 eV vers les plus hautes énergies. Ceci s'explique par la présence des atomes

d'oxygène, très électronégatifs. En effet, l'effet d'écrantage du noyau par les électrons de valence diminue, ce qui augmente la charge effective du noyau. L'énergie de liaison de l'électron 1s, et par la même l'énergie du seuil K d'absorption, augmente [6].

Nous avons aussi évalué les fluctuations de notre mesure en utilisant pour échantillon un film plastique CH de 5 μm (cf figure 4.10). En effet, le plastique ne présente pas de flanc d'absorption dans la gamme 1,5 - 1,75 keV et révèle un spectre d'absorption très plat. Les fluctuations varient de 0.3 à 0.6% de l'amplitude du flanc K de l'aluminium, le long de la gamme spectrale. Cette variation s'explique par le profil spectral de la source X. L'émission X du plasma d'erbium n'est pas uniforme spectralement et son intensité est plus importante autour de 1,65 keV. Comme nous le verrons au chapitre suivant, ces fluctuations sont principalement associées au nombre de photons détectés. Elles sont donc plus importantes dans les gammes spectrales où la source X est la moins intense.

4.1.3 Origine du bruit et optimisation

Après optimisation du dispositif expérimental, les problèmes liés aux défauts de réflectivité des cristaux et aux fluctuations en intensité de la source X sont minimisés par le dispositif à deux cristaux. Nous pouvons aussi minimiser les fluctuations des spectres d'absorption en optimisant leur méthode d'analyse.

Optimisation de la méthode de dépouillement

Pour obtenir des spectres d'absorption de meilleure qualité et avoir un rapport signal sur bruit S/B élevé, nous avons accumulé des séries de tirs de quelques secondes chacune. En effet, la saturation de la caméra CCD limite le nombre de tirs accumulables sur une seule image. Pour atteindre un rapport bruit sur signal, inférieur au %, nous avons enregistré un ensemble d'images, correspondant à un total accumulé de 30 s, soit 30 000 tirs à la cadence de 1 kHz.

Le spectre d'absorption est extrait suivant la méthode exposée plus haut (cf. partie 1.1.2 de ce chapitre). Sur la figure 4.11, nous comparons deux ordres d'analyse différents : le premier consiste à sommer les images mesurées puis à extraire le spectre d'absorption en appliquant l'équation 4.7 ; le second est la démarche inverse, les spectres d'absorption sont extraits avant que ne soit effectuée la moyenne sur l'ensemble des acquisitions. Dans ce second cas, le bruit est légèrement plus important. Cela est visible sur la figure 4.11, pour la partie du spectre avant le flanc K d'absorption. En effet, dans le cas contraire, i.e. effectuer la somme des images puis le calcul de l'absorption $\mu(E)$, nous pouvons caler chaque image au pixel près, de manière à minimiser le bruit avant le flanc d'absorption. Nous verrons plus tard, que faire la somme avant l'extraction du spectre d'absorption augmente aussi le nombre de photons $N_{i,j}$ et diminue le bruit.

Origine du bruit : bruit de comptage des photons

Pour rappel, on note $N_{i,j}$, le nombre de photons détectés sur l'image j et collectés par le KAP i. Chaque mesure de nombre de photon $N_{i,j}$ suit une loi de probabilité binomiale avec une probabilité très faible pour un photon émis par la source d'être détecté par la

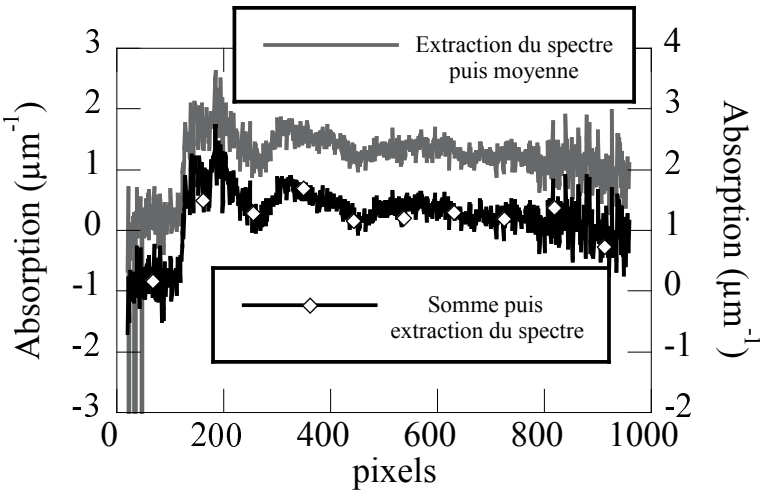


FIGURE 4.11 – Comparaison de deux spectres d'absorption obtenus par deux séquences d'analyse différentes : sommer les images puis extraire le spectre d'absorption ; extraire les spectres d'absorption puis les moyenner.

caméra CCD (faible angle solide de collection et faible réflectivité du cristal). La déviation standard (rms), associée au comptage des $N_{i,j}$ photons, est donnée par $\delta N_{i,j} = \sqrt{N_{i,j}}$.

Pour le cas d'une mesure sans échantillon, on mesure une absorbance $A = -ln(T)$ (calculée avec la formule 4.6) nulle en moyenne avec une fluctuation statistique δA_0 qui suit la loi suivante :

$$\delta A_0 = \sqrt{\sum_{i,j} \left(\frac{1}{\sqrt{N_{i,j}}} \right)^2} \approx \frac{2}{\sqrt{N}} \tag{4.8}$$

Où N est le nombre moyen de photon collecté par chaque cristal KAP et détecté sur chaque image.

Sur la figure 4.12, nous avons tracé les quatre spectres $N_{i,j}(E)$ nécessaires au calcul du spectre d'absorption, pour un cas sans échantillon. Pour cette mesure, chaque image a été accumulée sur 20 s. Le spectre d'absorbance sans échantillon est extrait et est tracé sur le même graphique 4.12. On observe une fluctuation autour d'une valeur moyenne nulle, qui varie typiquement de plus de 1 % à 4 ‰ pour des énergies plus élevées. Dans cette zone spectrale autour de 1.65 keV, nous mesurons environ 20 000 comptes CCD par pixel sur une surface de 100 pixels transversalement et 6 pixels spectralement (i.e. 1 eV), soit 1.2×10^7 comptes CCD. Ceci correspond à $N_{i,j} \sim 2.5 \times 10^5$ photons X détectés sur la CCD soit une erreur statistique calculée $\delta A_0 = 4‰$ rms (cf. formule 4.8) très proche de la fluctuation observée.

De façon plus générale, nous avons mesuré la valeur de la fluctuation statistique δA_0 de l'absorbance sur différentes zones du spectre montré figure 4.12 et donc pour différents nombre de photons détectés. Ces mesures sont reportées sur la figure 4.13 où nous avons tracé la fluctuation statistique δA_0 en fonction du nombre de photons X détectés N. Elles sont comparées avec la loi théorique 4.8. Nous pouvons constater que les résultats expérimentaux sont parfaitement reproduits par la relation 4.8. Les fluctuations statistiques de la mesure proviennent donc essentiellement du bruit statistique de comptage des photons.

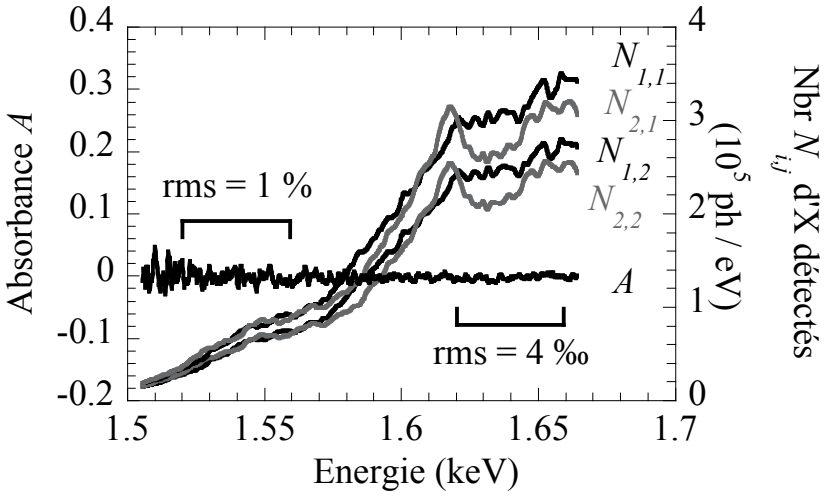


FIGURE 4.12 – Spectres $N_{i,j}(E)$ collectés par le cristal i et mesurés sur l'image j. Ils sont obtenus sans échantillon d'aluminium. Le spectre d'absorbance A calculé à partir de ces $N_{i,j}(E)$ est reporté sur l'échelle de gauche.

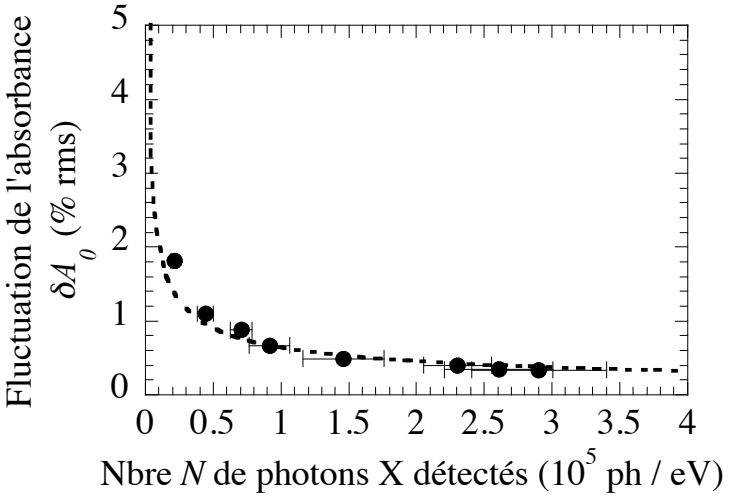


FIGURE 4.13 – Fluctuation statistique de l'absorbance δA_0 (en % rms) calculée (trait plein) et expérimentale (points noirs et barres d'erreurs associées), en fonction du nombre N de photons X détectés. L'absorbance est estimée pour un cas sans échantillon (donc nulle en moyenne).

Comportement avec l'épaisseur de l'échantillon

Pour une épaisseur d'aluminium trop faible, la portion de photons absorbés peut devenir insuffisante pour résoudre le flanc d'absorption étudié. Pour une épaisseur d'aluminium trop importante, les photons incidents peuvent être complètement absorbés pour les énergies supérieures au flanc d'absorption. Il n'est alors plus possible de résoudre les structures XANES. Ces deux cas limites fixent le comportement asymptotique de la mesure d'un spectre d'absorption exploitable de type XANES et EXAFS. Comme expliqué

en introduction de ce manuscrit, réaliser un chauffage homogène par laser, ne nous permet de considérer que l'épaisseur de peau, qui est de seulement quelques centaines d'Å. Dans cette perspective, nous avons alors mesuré les spectres d'absorption d'échantillons d'aluminium de différentes épaisseurs. Sur la figure 4.14, sont représentés des spectres d'absorption obtenus pour des épaisseurs de 1000 Å à 2 μm après une accumulation de tirs laser sur cible (ou d'impulsion X) pendant 30 s. L'absorption a été normalisée arbitrairement pour des soucis de présentation. Nous constatons que le bruit augmente lorsque l'épaisseur diminue. La fluctuation relative avant le seuil, passe de 60% pour une épaisseur variant de 1000 Å à $\sim 1\%$ pour 2 μm. Malgré cette perte de qualité, les oscillations XANES restent relativement bien résolues pour une épaisseur de 1000 Å. Il est tout à fait envisageable, pour améliorer nos résultats, d'accumuler ces données plus longtemps et de parvenir à réduire de manière conséquente la fluctuation statistique même pour des épaisseurs de 1000 Å.

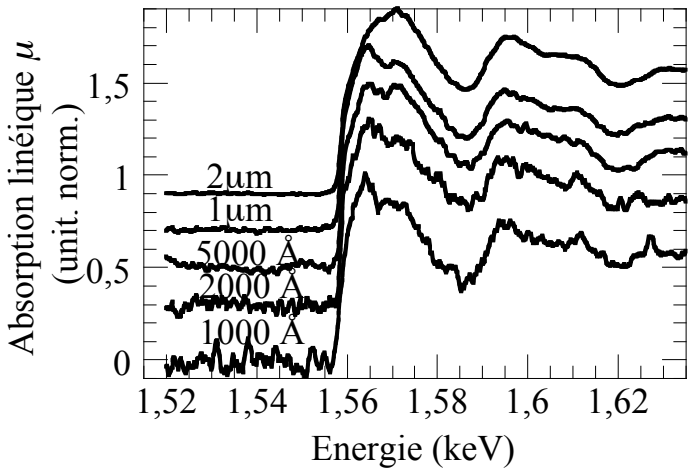


FIGURE 4.14 – Spectres d'absorption de l'aluminium solide à température ambiante pour différentes épaisseurs d'échantillon. Les spectres sont normalisés et décalés artificiellement le long de l'axe vertical. Ils sont obtenus après une accumulation de 30 s.

Une étude détaillée du bruit en fonction de l'épaisseur de l'échantillon sondé a été réalisée. De manière générale, pour un échantillon d'épaisseur d, les fluctuations statistiques relatives sur la mesure de l'absorption linéique μ, soit la valeur rms normalisée à la valeur moyenne, sont données par la relation suivante :

$$\frac{\Delta\mu}{\mu} = \delta A_0 \cdot \frac{\sqrt{3 + \exp(\mu d)}}{2\mu d} \tag{4.9}$$

En effet, selon l'équation 4.7, nous pouvons écrire :

$$\frac{\Delta\mu}{\mu} = \frac{\Delta\mu d}{\mu d} = \frac{1}{\mu d}\sqrt{\sum_{i,j}\frac{1}{N_{i,j}}} = \frac{1}{\mu d}\sqrt{\frac{3}{N} + \frac{1}{NT}} \tag{4.10}$$

Sachant que la fluctuation statistique de l'absorbance δA_0 est reliée à $\sqrt{N}$ par la formule 4.8 et que T, la transmission est donnée par la loi de Beer-Lambert $T = exp(-\mu d)$, nous obtenons la relation 4.9.

Cette loi a été tracée sur la figure 4.15 (en trait plein) où elle est comparée à des données expérimentales (points et barres d'erreurs associées). Cette figure souligne l'existence d'un minimum de bruit en fonction de l'épaisseur. Dans le cas présent, le minimum semble atteint pour $\mu d \sim 1$ à 2. Dans le cas d'une hauteur de flanc d'absorption de environ 2 μm^{-1}, cet optimum correspond à une épaisseur $d \sim 5000$ Å à 1 μm.

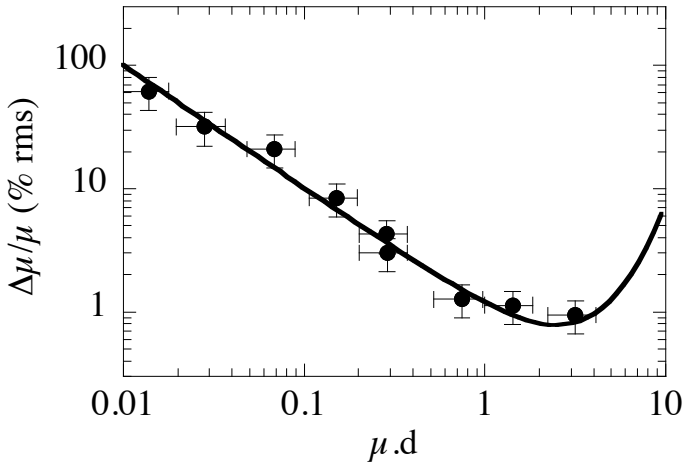


FIGURE 4.15 – Fluctuation statistique relative en fonction de $\mu.d$ avec d l'épaisseur en μm.

Cet optimum est déterminé à nombre de photon constant. Dans le cas où l'épaisseur de l'échantillon est imposée par l'expérience (par exemple, un chauffage laser homogène uniquement compatible avec une faible épaisseur d'échantillon), il reste la possibilité d'accumuler plus longtemps pour augmenter le nombre de photons et améliorer le rapport signal sur bruit.

Conclusions sur les limitations du système

Le spectromètre d'absorption X composé de deux cristaux nous a permis de mesurer des spectres d'absorption X d'un échantillon d'aluminium de très bonnes qualités. En effet, les fluctuations associées aux spectres d'absorption d'un échantillon d'aluminium de 1 μm sont inférieures à 1 % pour une accumulation de 30 s, soit 30 000 tirs. Ceci nous permet de résoudre les oscillations XANES et EXAFS avec une qualité équivalente à celle des installations synchrotrons. Nous avons vu que le bruit est essentiellement composé du bruit de comptage des photons. Le comportement de ce bruit est décrit par des lois statistiques parfaitement reproduites expérimentalement. Pour améliorer le rapport signal sur bruit, différentes possibilités, revenant à augmenter le nombre de photons utiles pour extraire le spectre d'absorption, sont envisageables :
- accumuler sur un nombre de tirs plus importants,
- augmenter les zones d'intégration spatiale avec et sans échantillon,
- utiliser des cristaux de meilleure réflectivité,
- augmenter l'intensité de la source X,
- travailler sur des épaisseurs optimales d'échantillon.

Comme nous le voyons sur la figure 4.10, les oscillations EXAFS sont légèrement plus bruitées. Nous expliquons cela par la faible intensité d'émission X dans cette gamme

d'énergie. Comme nous l'avons vu, ce problème serait alors surmontable en augmentant le nombre de photons utiles dans cette gamme spectrale. Il serait envisageable de décaler légèrement la gamme spectrale d'émission de notre source X et/ou d'augmenter l'intensité d'émission X en utilisant par exemple un laser d'énergie plus élevée (cf. chapitre 3).

4.1.4 Analyse du spectre d'absorption X près du flanc K de l'aluminium froid

Les oscillations XANES et EXAFS sont liées à l'organisation locale de la matière et plus spécifiquement des atomes. Pour remonter à des informations physiques sur la structure de la matière sondée, plusieurs méthodes sont envisagées. Dans le cas du signal EXAFS, des méthodes d'extraction par transformée de Fourier ont été développées [7, 8]. Pour le signal XANES, du fait des diffusions multiples qui y contribuent, l'analyse est moins directe. Cependant, des modèles théoriques, basés sur plusieurs approches possibles, permettent de calculer les spectres d'absorption XANES à partir d'une configuration atomique donnée et de les comparer aux spectres expérimentaux.

Calcul des distances interatomiques : analyse du signal EXAFS

L'analyse du signal EXAFS (loin du seuil) a été largement développée par la communauté des installations synchrotrons [7]. De part sa formulation analytique, il s'agit d'un traitement relativement simple et éprouvé, comparativement à l'analyse du signal XANES. Des subtilités doivent néanmoins être considérées.

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, la section efficace globale de photoionization s'exprime selon la règle d'or de Fermi (formule 4.11)

$$\sigma_{i,f}(E) = a\ h\nu\ |\langle\phi_f|\mathbf{R}|\phi_i\rangle|^2\ (1 - f(E)) \tag{4.11}$$

avec a une constante numérique, $E = h\nu$ l'énergie du photon X absorbé, $\mathbf{R}$ est l'opérateur dipolaire électrique, $f(E)$ le facteur d'occupation de Fermi-Dirac et $\phi_{i,f}$ les fonctions d'onde de l'état final f et initial i. La fonction d'onde de l'état initial est une fonction d'onde atomique de « coeur ». La fonction d'onde de l'état final correspond à la fonction d'onde du photoélectron. Elle peut s'interpréter comme la superposition d'une onde sortante et de la somme des ondes diffusées sur les atomes voisins (cf. formule 4.12).

$$|\phi_f\rangle = |\phi_{diffusé}\rangle + |\phi_{sortante}\rangle \tag{4.12}$$

L'absorption est déduite de la section efficace de photoionization par la formule suivante 4.13 :

$$\mu(E) = n.\sigma_{i,f}(E) \tag{4.13}$$

avec n le nombre d'atome par unité de volume.

La région avant le seuil d'absorption est souvent affectée par divers processus tels que l'absorption par des électrons liés d'autres couches, la diffusion Compton... La valeur moyenne μ_p de l'absorption avant le flanc est appelée pré-seuil. Pour faciliter le traitement du signal EXAFS, ces contributions peuvent être retirées en soustrayant ce pré-seuil. La contribution de l'absorption de « l'atome isolé » μ_0 doit elle aussi être enlevée. Ces corrections seront détaillées plus tard.

On définit alors une absorption normalisée $\chi(E)$, appelée fonction EXAFS, de la façon suivante :

$$\chi(E) = \frac{\mu(E) \ - \ \mu_0(E)}{\Delta\mu_0(E)} \tag{4.14}$$

avec $\Delta\mu_0(E)$, un facteur de normalisation qui découle du saut du flanc d'absorption ($\Delta\mu_0(E) = \mu_0(E) - \mu_p(E)$).

Dans le cas de l'EXAFS, les phénomènes de diffusions simples sont prépondérants par rapport aux phénomènes de diffusions multiples (cf. Chapitre 1). La formule 4.14 se simplifie alors. Nous obtenons l'équation caractéristique des oscillations EXAFS, pour un atome j, valable pour les faibles températures où les atomes bougent peu autour de leur positions d'équilibre dans le réseau :

$$\chi(E) = \sum_j S_0^2 N_j \ \frac{|f_j(k)|}{kR_j^2} \ sin(2kR_j + 2\delta + \phi_j) \ e^{-2R_j/\lambda(k)} \ e^{-2\Delta_j^2 k^2} \tag{4.15}$$

avec S_0 un facteur d'amplitude, N_j le nombre de coordination des atomes voisins diffuseurs (soit le nombre de diffuseurs équivalent à j), f_j l'amplitude diffusée, k l'impulsion, R_j la distance interatomique, δ la phase de l'atome absorbant dans son état final, ϕ_j la phase induite par la rétrodiffusion, $\lambda(k)$ le libre parcours moyen du photoélectron et Δ_j les fluctuations statistiques sur la distance R_j. En mesurant les oscillations EXAFS, nous pouvons déterminer la distance interatomique locale R_j.

Pour extraire des informations utiles du signal EXAFS il est nécessaire d'effectuer une série d'opérations, résumée sur la figure 4.16. Les méthodes d'analyse du signal EXAFS sont très variables et plus ou moins perfectionnées. Il existe de nombreux logiciels constamment améliorés. Dans notre cas, nos résultats dans la gamme EXAFS sont limités spectralement du côté des hautes énergies et nous n'avons réalisé qu'une première analyse succinte. Généralement, les démarches d'analyse du spectre d'absorption (étape A) sont les suivantes :

- estimer et enlever la contribution du pré-seuil (contributions à l'absorption différentes de l'effet photoélectrique) pour remonter quantitativement au nombre d'atomes voisins (cf. figure 4.16, étape B). Cette correction ne changera que l'intensité des pics et non leur positions. Elle n'est donc pas nécessaire si on veut remonter uniquement aux distances interatomiques.
- estimer et enlever la contribution de « l'atome isolé » μ_0, i.e. soustraire μ_0 de μ (cf. équation 4.15 et figure 4.16 étape C). Ceci peut être réalisé par approximation de μ_0 par un polynôme. Il est alors nécessaire de fixer le degré du polynôme et son point d'accroche. Ce dernier consiste à sélectionner la zone distinguant la fin du XANES et le début de l'EXAFS. Il est aussi possible de réaliser une extraction par transformation de Fourier inverse. Cette dernière méthode est conseillée après une première extraction grossière par polynôme et nécessite une bonne distinction des pics physiques et des pics de basse et haute fréquence.
- réaliser la transformée de Fourier pour remonter aux positions interatomiques.

Les paramètres ajustables pour obtenir une extraction optimale sont donc :

- l'énergie seuil E_{seuil} du flanc K qui intervient pour le calcul de l'impulsion k (cf.

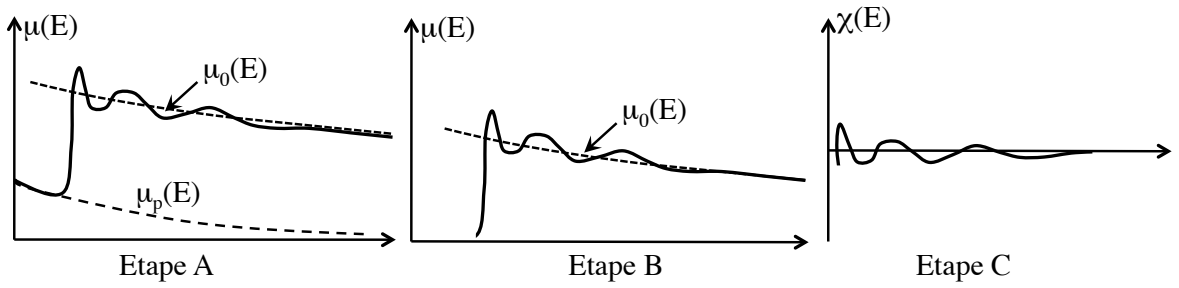


FIGURE 4.16 – Opérations pour l'extraction du signal EXAFS.

formule 4.16).

$$k = \frac{2\pi}{h}\sqrt{2m(E - E_{seuil})} \tag{4.16}$$

avec h, la constante de Planck ; m la masse de l'électron,

- la gamme d'énergie $[k_1, k_2]$ considérée comme étant celle du signal EXAFS, avec k_1 le « point d'accroche » du polynôme et k_2 le point d'arrêt,
- le choix du polynôme d'extraction de la contribution μ_0 (degré et coefficients).

L'optimisation des paramètres d'extraction se fait en comparant directement les transformées de Fourier obtenues. Pour cela on cherche à minimiser le bruit de basse fréquence et de haute fréquence, ainsi qu'à conserver les valeurs des distances atomiques R_i quelques soient les paramètres d'extraction du signal EXAFS. Nous présentons ici le cas optimum. La précision de cette optimisation entraîne des erreurs sur les distances atomiques mesurées. Elles ont été évaluées en considérant leurs variations pour des paramètres optimum proches. Pour la distance atomique la plus petite R_1, l'erreur est de $\sim$ 4%. Pour les distances mesurées, les plus éloignées, les fluctuations de mesures peuvent aller jusqu'à $\sim$ 10%.

Le calcul d'extraction du signal EXAFS a été réalisé sur Matlab. Nous avons accès aux paramètres libres suivants :

- l'énergie seuil E_{seuil}. Après optimisation elle a été maintenue à sa valeur théorique 1.560 keV.
- la gamme spectrale considérée, donnée par le point d'accroche du polynôme k_1 et le point d'arrêt k_2. Les différents points d'accroche considérés sont montrés sur la figure 4.17. Les variations induites par k_1 apparaissent essentiellement pour les courtes distances. L'optimum de k_1 a été déterminé à la valeur $k_1 = 3.4$ Å^{-1}. Comme nous n'avons pas mesuré un spectre EXAFS sur une très grande gamme spectrale, nous avons conservé la totalité de la gamme spectrale au delà de k_1. Le paramètre k_2 a donc été fixé à la position maximale $k_2 = 6.4$ Å^{-1}.
- le degré et les coefficients du polynôme d'extraction : le polynôme optimum est un polynôme d'ordre 2 superposé au spectre d'absorption sur la figure 4.18.
- la méthode du *zero padding* pour fixer la résolution accessible. Cette méthode consiste à calculer la transformée de Fourier sur une gamme spectrale plus étendue que la mesure, en ajoutant des zéros, afin d'obtenir un pas δR plus petit ($\delta R = \frac{2\pi}{\Delta k}$). Dans notre cas, la résolution accessible sur nos mesures des distances atomiques est de 0.1 Å. Cette résolution est bien inférieure à l'erreur induite par la qualité de notre extraction.

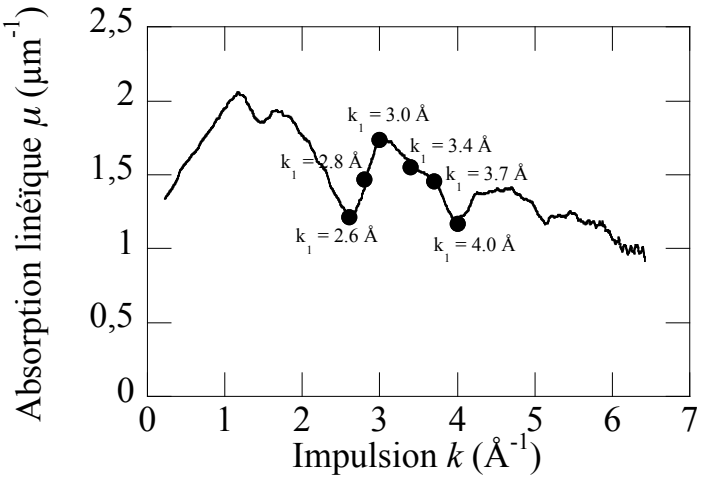


FIGURE 4.17 – Spectre d'absorption de l'aluminium et point d'accroche k_1 du polynôme d'extraction du signal EXAFS.

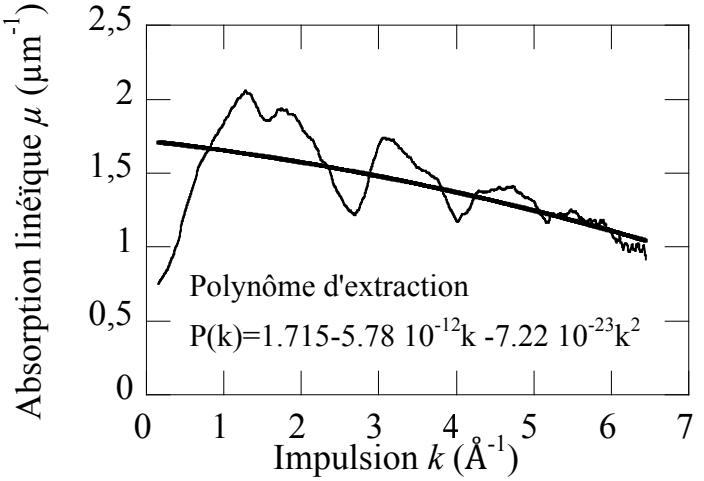


FIGURE 4.18 – Polynôme d'extraction optimal du signal EXAFS superposé au spectre d'absorption de l'aluminium.

Le résultat de cette extraction optimale est montré sur la figure 4.19, Nous pouvons constater la présence de pics, dits « basse fréquence » (zone hachurée sur la figure 4.19), pour de très faibles distances. Ces pics sont principalement dus à une mauvaise optimisation du point d'accroche k_1. En effet, nous avons probablement gardé une partie du signal XANES en voulant conserver la plus grande gamme spectrale d'analyse. En augmentant k_1, le signal extrait devient inutilisable. Une meilleure possibilité serait d'appliquer la méthode de sélection des fréquences par transformée de Fourier inverse. Cette dernière nécessite une identification fine de l'origine des différentes fréquences ce qui n'est pas le cas ici étant donné notre faible gamme de mesure. Nous considérons les pics correspondant à une distance $R < 1.5$ Å comme non physiques et nous n'en tenons pas compte par la suite (zone hachurée sur la figure 4.19). L'évaluation du polynôme de soustraction est aussi limitée par notre gamme spectrale restreinte. La détermination des coefficients du polynôme devient plus fiable lorsque la gamme EXAFS s'étend sur plusieurs centaines

d'eV.

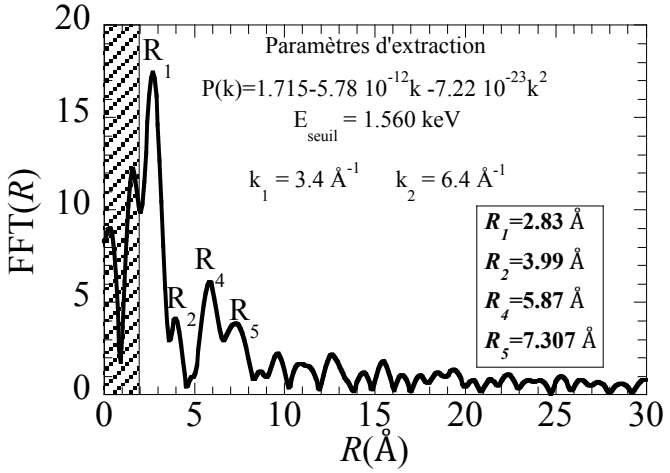


FIGURE 4.19 – Exemple d'une transformée de Fourier du signal EXAFS extrait par un polynôme d'ordre 2 optimisé. Les positions atomiques R_i de l'aluminium froid sont mesurées.

Les distances interatomiques R_i obtenues après optimisation sont comparées aux valeurs théoriques dans le tableau 4.1. Les distances des plus proches voisins R_1 et R_2 mesurées sont très proches des valeurs théoriques. Pour des distances inter-atomiques plus grandes, les valeurs expérimentales et théoriques divergent ou ne sont pas observées. Nous obtenons une distance interatomique R_4 qui semble correspondre mais la distance R_3 n'apparaît pas dans les pics extraits du signal EXAFS.

TABLE 4.1 – Distances inter-atomiques (en Å) des plus proches voisins de l'aluminium froid (configuration cubique face centrée cfc) déterminées par l'extraction du signal EXAFS et comparées aux valeurs théoriques tabulées.

R_i théoriques (Å)	R_i mesurées (Å)
$R_1 = 2.86$	$R_1 = 2.83 \pm 0.15$
$R_2 = 4.05$	$R_2 = 3.99 \pm 0.15$
$R_3 = 4.96$	-
$R_4 = 5.73$	$R_4 = 5.87 \pm 0.40$

Cette brève analyse souligne la limitation actuelle de nos mesures EXAFS : la gamme spectrale doit être étendue. Dans l'état actuel de nos mesures, une analyse plus poussée avec des méthodes d'extraction plus raffinées serait probablement peine perdue. Les problèmes soulevés peuvent néanmoins être facilement résolus lors de futures campagnes expérimentales. La source X peut être optimisée pour une gamme d'énergie légèrement plus élevée en utilisant un élément de Z élevé proche et plus élevé, comme l'ytterbium. La gamme spectrale de détection peut aussi être décalée vers des énergies plus élevées en modifiant les réglages de nos cristaux KAP. Cela étant rendu possible par l'utilisation de ces cristaux en mode défocalisé.

Calcul des spectres XANES de l'aluminium froid

Contrairement aux oscillations EXAFS, avec lesquelles nous pouvons directement remonter aux distances interatomiques, les grandeurs physiques liées à l'ordre local ne peuvent pas être extraites directement du spectre XANES. Nous avons comparé et interprété nos résultats avec deux types de calculs présentés au chapitre 1 : le calcul de diffusions multiples (MS pour Multiple Scattering) / différences fines (FD pour Finites Differences) [9, 10] ou la simulation par la Dynamique Moléculaire Quantique (DMQ) [11, 12]. Dans un premier temps, l'exploitation des spectres XANES de l'aluminium froid, déjà observés avec des sources synchrotrons, comporte de nombreuses informations et permet d'affiner les simulations.

- Calculs de diffusions multiples / différences finies (MS/FD) :

La configuration atomique de l'aluminium froid est une structure cubique face centrée (cfc). Dans ce cas, les calculs MS/FD ne font pas appel à une modélisation de la matière mais uniquement à un calcul de section efficace de photoionisation. Ils fonctionnent ici avec la configuration spatiale des atomes positionnés sur une grille 3D. Les distances interatomiques correspondantes sont celles présentées dans le tableau 4.1. Les atomes considérés sont alors organisés en « couches » d'atomes placés à des distances R, selon la configuration cfc, d'un atome central photoionisé.

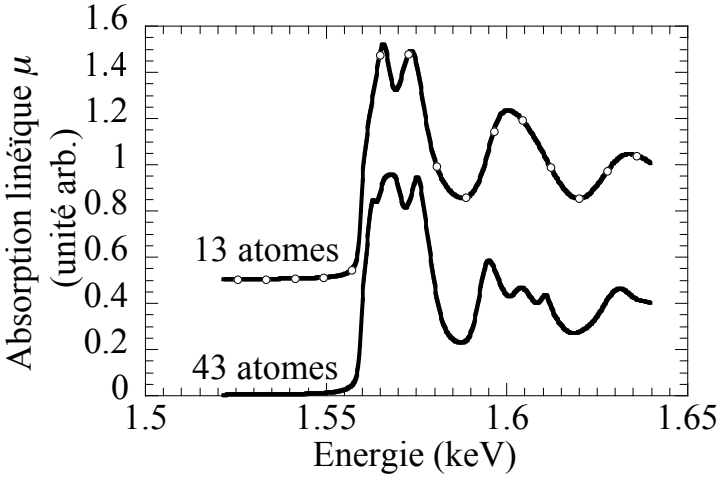


FIGURE 4.20 – Comparaison des spectres d'absorption de l'aluminium froid calculés par la méthode Muffin-Tin en considérant 13 (trait plein noir et points blancs) ou 43 atomes (trait plein noir).

Sur la figure 4.20, le spectre XANES a été calculé par la méthode des diffusions multiples MS, en considérant 13 et 43 atomes, respectivement. Dans le cas d'un nombre plus élevé d'atomes voisins, les structures plus fines, au niveau de la $1^{ère}$ et de la $2^{ème}$ structure, sont plus détaillées. Le calcul par la méthode des diffusions multiples s'avère être très performant pour la description de l'état solide, froid et ordonné mais présente de nombreuses limitations. En particulier, cette approche nécessite de considérer un potentiel constant entre les sphères atomiques : c'est l'approximation Muffin-Tin MT (cf. chapitre 1). Pour

des milieux désordonnés, cette approximation MT peut s'avérer douteuse. Une autre méthode a donc été utilisée pour modéliser le potentiel entre les atomes d'aluminium. Il s'agit de la méthode des différences finies (FD). Elle consiste à calculer la fonction d'onde du photoélectron sur une grille 3D par la méthode des différences finies sans aucune approximation sur le potentiel (cf. chapitre 1). Le prix à payer est un calcul beaucoup plus coûteux en terme de temps de calcul et de ressource mémoire.

Sur la figure 4.21, les spectres XANES, de l'aluminium froid, obtenus avec les deux méthodes, Muffin-Tin et différences finies, sont comparés. Ces deux méthodes aboutissent à des spectres XANES dont les structures sont très proches. Les principales structures, $1^{ère}$ bosse puis $2^{ème}$ bosse, sont reproduites pas les deux modèles. Nous ne considérons ici que 13 atomes et non 43 ce qui ne permet pas de reproduire les structures plus fines. On observe quelques différences au niveau du flanc d'absorption qui est plus raide pour le calcul avec la méthode des différences finies, i.e. plus proche des observations expérimentales.

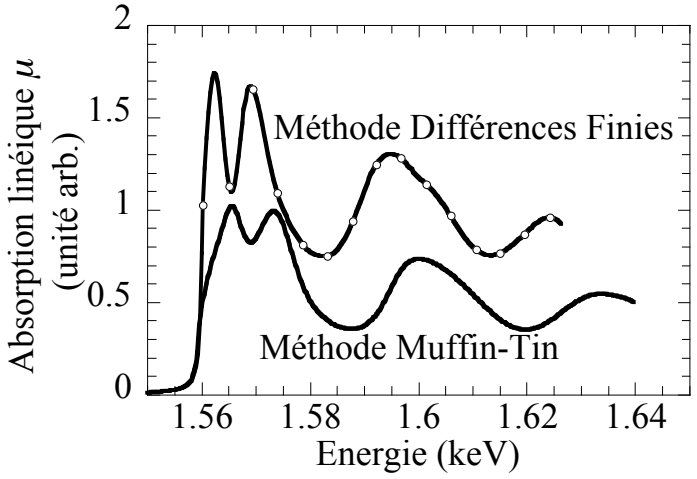


FIGURE 4.21 – Comparaison des spectres d'absorption de l'aluminium calculés par la méthode Muffin-Tin (trait plein noir) et par la méthode des différences finies (trait plein noir et points blancs).

Sur la figure 4.22 (A), le calcul FD d'un spectre XANES du flanc K de l'aluminium froid est comparée au spectre XANES mesuré expérimentalement. Le calcul a été réalisé en considérant la configuration spatiale cubique face centrée de l'aluminium pour 13 atomes. Nous constatons que les structures XANES sont relativement bien reproduites. Nous retrouvons le double pic de la première structure, qui cependant est beaucoup plus marqué dans le calcul que dans l'expérience. La deuxième structure est aussi reproduite. Nous ne reproduisons pas la structure plus fine de la $2^{ème}$ bosse. Comme nous l'avons vu, ces structures plus fines peuvent être retrouvées en augmentant le nombre d'atomes considérés dans le calcul FD.

- Calcul de dynamique moléculaire quantique (DMQ) :

Le calcul de DMQ est une simulation *ab initio*. Le spectre XANES de l'aluminium froid est calculé dès les premiers instants du calcul pour une cellule (répétée périodique-

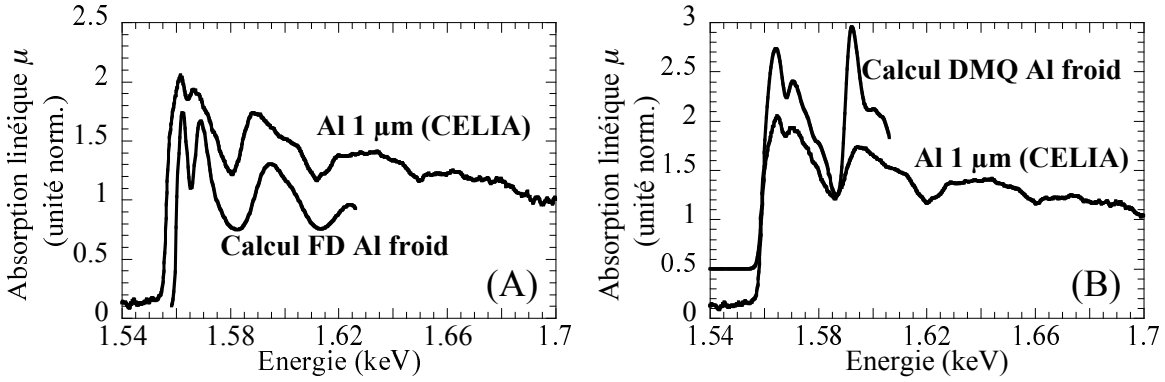


FIGURE 4.22 – (A) Comparaison des spectres d'absorption de l'aluminium froid mesuré et calculé par la méthode FD, développée au CELIA par Olivier Peyrusse [9].(B) Comparaison des spectres d'absorption de l'aluminium mesuré et calculé par le code DMQ, développé au CEA par V. Recoules et S. Mazevet [11].

ment dans l'espace) contenant environ une centaine d'atomes. Sur la figure 4.22 (B), la simulation DMQ d'un spectre XANES du flanc K de l'aluminium froid est aussi comparée au spectre XANES mesuré expérimentalement. Pour des raisons de visibilité, le spectre simulé est décalé artificiellement le long de l'axe vertical sur le graphe. Cette simulation est réalisée pour une gamme spectrale allant de 1.54 keV à 1.61 keV. La coupure observée sur le spectre 4.22 (B) est liée à la limite en énergie du calcul. Les variations d'absorption sont beaucoup plus importantes que les résultats expérimentaux. La $2^{ème}$ oscillation XANES est d'ailleurs très importante et atteint un niveau d'absorption légèrement plus intense que la $1^{ère}$ bosse XANES. Contrairement au calcul FD à 13 atomes, on retrouve les sous structures de la $2^{ème}$ bosse XANES. Elles sont cependant très marquées par rapport au spectre expérimental.

4.2 Aluminium dense et tiède : chauffage par protons

Après avoir optimisé, tant du point de vue expérimental que du point de vue théorique, le diagnostic de spectroscopie d'absorption X sur un échantillon simple tel que l'aluminium froid (à température ambiante), nous avons cherché à l'utiliser pour une expérience sur la matière dense et tiède.

4.2.1 Expérience de chauffage par protons

L'une des alternatives pour chauffer de façon homogène la matière et la porter à l'état de matière dense et tiède, est le chauffage par protons créés par laser. Un faisceau laser intense focalisé sur une feuille solide est à l'origine de l'accélération d'électrons. Ceux-ci émergent de la face arrière où il apparaît un champ électrostatique dû à la séparation de charge [13]. Ce dernier est à l'origine de l'accélération de protons, préexistants sur la feuille, d'énergies pouvant aller de quelques dizaines de keV à plusieurs dizaines de MeV [14]. Les faisceaux de protons issus de l'interaction laser avec une cible solide ont été

caractérisés lors de nombreuses études [15, 16]. Des efforts sont actuellement mis en oeuvre pour caractériser le chauffage de la matière par un tel faisceau de protons [17, 18, 19]. Il a été démontré que des protons peuvent chauffer la matière en profondeur, de façon homogène sur plusieurs microns et ce jusqu'à plusieurs dizaines d'eV.

Dispositif expérimental

En collaboration avec P. Audebert et J. Fuchs du LULI et P. Renaudin du CEA, nous avons inséré notre diagnostic de spectroscopie fine d'absorption X lors d'une expérience de chauffage d'un échantillon d'aluminium par un faisceau de protons créé par laser. L'ensemble des campagnes expérimentales a été réalisée sur l'installation laser LULI 100 TW. Nous nous attachons ici au seul diagnostic de spectroscopie fine d'absorption X et aux résultats qui ont été obtenus avec. L'analyse de tous les autres diagnostics fait l'objet de la thèse d'Ana Mancic. La figure 4.23 résume le dispositif expérimental global qui a été mis en place.

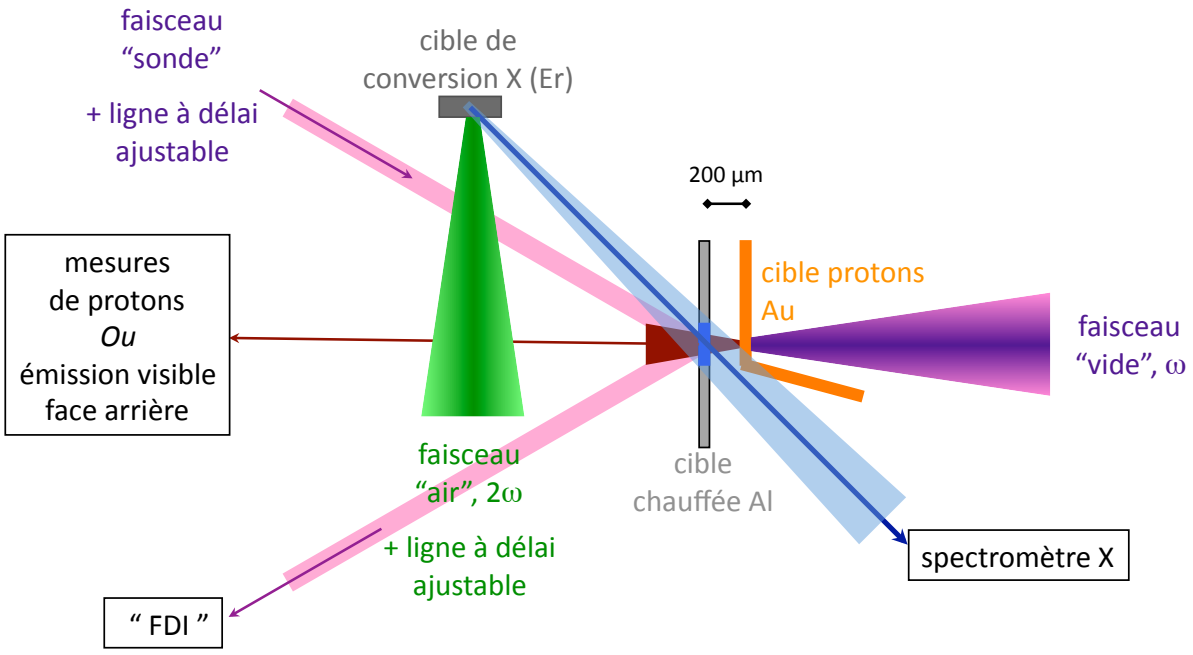


FIGURE 4.23 – Dispositif expérimental de l'expérience de chauffage par protons au LULI 100 TW.

Le faisceau principal (30 J, 300 fs FWHM, 1057 nm, comprimé sous vide), est focalisé sur une cible d'or. L'intensité sur cible est de $\sim 3 \times 10^{19}$ W/cm^2. Le faisceau de protons créés en face arrière est caractérisé par des spectromètres magnétiques et des films radiochromique (RCF). Il vient chauffer un échantillon d'aluminium placé 200 μm derrière la cible d'or. Cette distance a été optimisée pour avoir à la fois un faisceau le moins étalé transversalement et temporellement possible et une bonne accélération de protons [20]. De manière synchrone, un faisceau secondaire (5 J, 1.4 ps FWHM, à 2ω soit 528 nm, comprimé à l'air) est focalisé sur une cible d'erbium pour créer une source X intense. Cette source X est utilisée pour sonder l'aluminium tiède et dense grâce au spectromètre double cristal présenté plus tôt (cf. section 4.1.2 de ce chapitre 4).

D'autres diagnostics permettent aussi de caractériser l'aluminium dense et tiède et de remonter à sa densité et à sa température. Il s'agit du TASRI (Time And Space Resolved Interferometry) et de l'HISAC (HIgh-speed SAmpling Camera).
Le TASRI, variante du diagnostic FDI (Fourier Domain Interferometry [21, 22]) consiste à mesurer par interférométrie, résolue temporellement et spatialement, l'expansion de la face arrière de l'échantillon d'aluminium chauffé. Pour cela, un $3^{ème}$ faisceau, dit «sonde» (en polarisation P, étiré jusqu'à 50 ps FWHM) est réfléchi sur la surface arrière de l'échantillon, à un angle d'incidence de 15°. Il est ensuite imagé sur un interféromètre Mach-Zender pour créer une figure d'interférences puis envoyé sur la fente d'un spectromètre. Au final, la mesure du déphasage, induit par l'expansion de la face arrière de la cible chauffée, est comparée au déphasage calculé par un code hydrodynamique et permet de caractériser la zone chauffée [23].
Le HISAC (pour HIgh speed SAmpling Camera) [24] mesure l'émission visible issue de la face arrière de la cible chauffée avec une résolution spatiale et temporelle. Pour cela ce diagnostic consiste en une reprise d'image suivie d'un pavé fibré assemblé de manière à transformer une image 2D en une ligne focalisée sur l'entrée d'une caméra à balayage de fente. L'image 2D est ensuite reconstruite lors de l'analyse. La résolution temporelle accessible, limitée par la dimension des fibres, est de l'ordre de 10 ps environ.

La synchronisation des faisceaux a été réalisée en plusieurs étapes : une première synchronisation à la ns près au moyen d'une caméra à balayage de fente, une seconde synchronisation de l'ordre de la centaine de fs à quelques ps par interférométrie des faisceaux dans le domaine spectral.

Le double spectromètre d'absorption X a été aligné de manière à observer simultanément l'émission X transmise au travers de l'échantillon d'aluminium chauffé et l'émission X issue directement de la source. L'alignement a été vérifié en mettant au centre de la chambre, à l'emplacement de l'échantillon d'aluminium chauffé, un fil de cuivre de 20 μm. Grâce à la résolution spatiale, la surface sondée est de 170 x 66 μm^2. De façon à avoir une plus grande gamme spectrale et de ne pas être limité par la taille d'un détecteur CCD, le détecteur utilisé était une feuille photosensible (Image Plate, IP), révélée par un scanner après chaque tir laser. L'analyse des spectres obtenus s'est déroulée de la même manière qu'avec une caméra CCD (si ce n'est que la conversion en ph/tir/eV/sr suit un calcul différent). Le spectromètre a été protégé du bruit de fond par une feuille de plomb. Autour de l'axe de détection, le blindage a été renforcé en utilisant un système équivalent à celui présenté au chapitre 2 (une feuille de plomb et une feuille de teflon). Nous avons aussi placé des filtres de polypropylène devant les cristaux KAP pour les protéger des débris créés lors de l'interaction laser-matière. Nous avons cherché à minimiser l'émission directe du plasma créé par le faisceau principal ultra-intense focalisé en face avant de la cible d'or, en pliant cette dernière (voir schéma 4.23). Comme nous le verrons, le bruit occasionné par cette interaction reste malgré tout assez important.

Chauffage par protons

Le faisceau de protons est obtenu en focalisant le faisceau principal de l'installation LULI 100 TW sur une feuille d'or de 10 μm d'épaisseur. De précédentes campagnes expérimentales ont permis de le caractériser en détail [18, 25, 23]. Pour cela, deux types de diagnostics ont été utilisés : un spectromètre magnétique pour mesurer le spectre d'énergie des protons et des films radiochromiques pour mesurer leur dispersion angulaire. Les

protons les plus énergétiques ($E_{max} \sim 20$ MeV), comme les protons les plus faibles en énergie ($E_{min} \sim 130$ keV) sont mesurés avec des angles de divergence allant jusqu'à 20°. Le faisceau de protons obtenu est très intense ($\sim 10^{13}$ protons/tir), très bref (quelques ps à leur sortie de la feuille d'or) et fortement directionnel.

Le chauffage a aussi été caractérisé [23]. Des simulations basées sur les mesures de spectres des protons et sur leur pouvoir d'arrêt dans l'échantillon d'aluminium concordent avec les mesures du diagnostic TASRI. Elles démontrent un chauffage relativement uniforme le long de l'épaisseur de l'échantillon. L'expansion d'une feuille de 1.5 μm d'aluminium, chauffée à ~ 1 eV, ne devient significative qu'après plusieurs dizaines de ps [23] ce qui assure un chauffage quasi-isochore à la densité du solide pendant le temps de la mesure par l'impulsion sonde X. Il existe cependant un gradient transverse de température de l'échantillon d'aluminium. La température de chauffage obtenue sur l'axe peut monter jusqu'à ~ 10 à 15 eV. Pendant l'expérience, la source de protons a été modulée de façon à faire varier la température de l'échantillon.

Source X

La source X est créée par interaction du laser secondaire, doublé en fréquence, avec une cible d'erbium. Des campagnes expérimentales réalisées au LULI en collaboration avec Serena Bastiani (non reportées dans ce manuscrit) ont permis d'étudier l'émission X des éléments samarium (Sm), dysprosium (Dy), holomium (Ho) et erbium (Er). Sur la figure 4.24, nous présentons les spectres d'émissions du Dy (a), Ho (b) et Er (c) irradiés par le faisceau principal du laser 100 TW, à 2ω avec une énergie laser à ω de 30 J et une durée d'impulsion de 2.5 ps. Les spectres sont corrigés du bruit de fond et des défauts de réflectivité des cristaux KAP. Pour couvrir l'ensemble de la gamme spectrale de 1.45 eV à 1.75 eV, nous avons utilisé le double spectromètre KAP dont les cristaux ont été réglés avec des gammes spectrales complémentaires. L'angle d'incidence du laser sur la cible a été fixé à 14°. Dans la continuation des observations effectuées au CELIA (cf. Chapitre 3), l'énergie laser étant beaucoup plus élevé, la température électronique du plasma est plus importante et les structures émissives se décalent légèrement vers de plus hautes énergies, i.e. vers des états d'ionisation plus élevés.

Au final, le spectre de la source X utilisée pour les expériences de chauffage par protons est présenté sur le figure 4.25. L'impulsion de 5 J est doublée à 2ω et focalisée sur une cible avec une incidence très proche de la normale à la cible. Le doublage en fréquence étant très sensible à l'intensité, une trop longue durée d'impulsion laser implique une chute drastique de l'énergie laser à 2ω. La durée d'impulsion laser a donc été optimisée à 1.4 ps. Les unités reportées sur les figures 4.24 et 4.25 sont des «PSL» (Photo Stimulated Luminescence) intégrés le long de la dimension de résolution spatiale du double spectromètre X. Il s'agit d'une unité caractéristique de la lecture des IP, linéaire avec le nombre de photons détectés.

4.2.2 Qualité des spectres XANES « froids » (discussion sur le bruit lié aux protons)

Sur la figure 4.26, les spectres d'absorption de l'aluminium froid obtenus sur l'installation laser monocoup et ultra intense du LULI (spectres XANES (b) et (c)) sont comparés à ceux accumulés pendant 30 s sur l'installation laser kHz du CELIA (spectre XANES

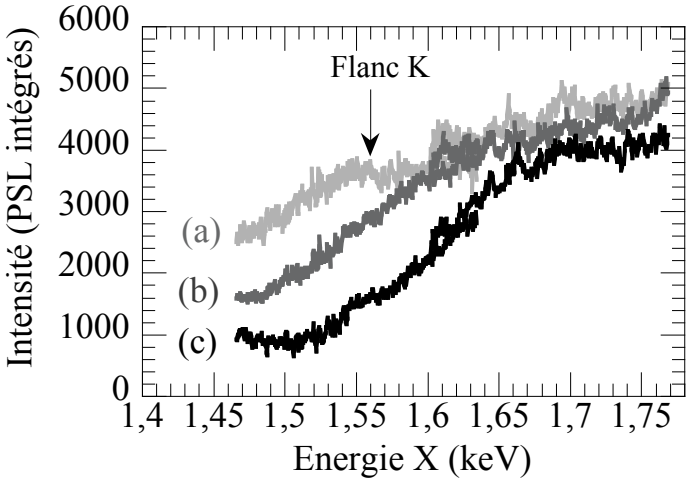


FIGURE 4.24 – Spectre d'émission du Dy (a), Ho (b) et Er (c), irradiés par le faisceau principal du LULI 100 TW à 2ω et obtenu en un seul tir. L'énergie laser est de 30 J à ω et la durée d'impulsion est réglée à 2.5 ps. L'angle d'incidence laser est de 14°.

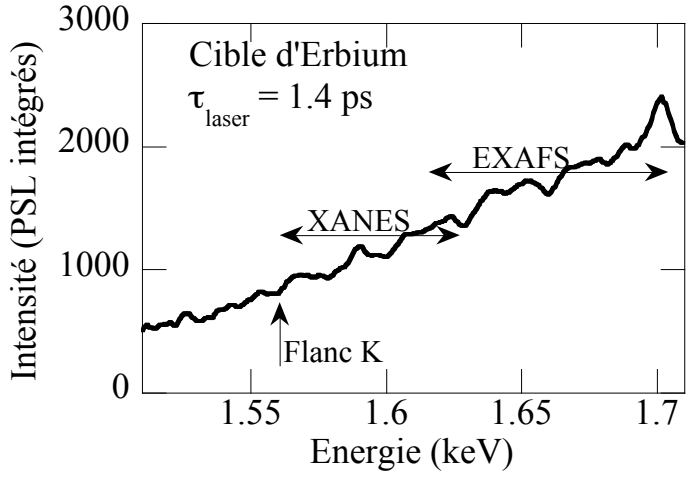


FIGURE 4.25 – Spectre d'émission de l'Er irradié par le faisceau secondaire du LULI 100 TW et obtenu en un seul tir. L'énergie laser est de $\sim$ 5 J et la durée d'impulsion est réglée à 1.4 ps. L'angle d'incidence laser est de environ 0°.

(a)). Dans le cas (b), le faisceau principal à l'origine du faisceau de proton est coupé. Seul le faisceau secondaire arrive jusqu'à la cible d'erbium. Comme nous l'avons détaillé auparavant, nous avons installé autour des films photosensibles (IP), un blindage en plomb pour minimiser le bruit dû au rayonnement X durs engendré dans l'enceinte expérimentale. Les spectres XANES obtenus en un seul tir (cf. figure 4.26 (b)) sont plus bruités que les spectres accumulés réalisés au CELIA (cf. figure 4.26 (a)). Les détails des oscillations XANES, encadrés sur la figure 4.26, sont moins bien résolues mais restent cependant exploitables.

Par la suite, on verra que la création de protons avec le faisceau principal focalisé sur

la cible d'or va affecter le rapport signal sur bruit. La contribution de l'émission directe du plasma créé en face avant de la cible d'or est minimisée en pliant cette dernière (cf. figure 4.23). Il reste néanmoins une source de bruit non négligeable liée à la création de protons. En effet, la génération de protons nécessite une très grande intensité laser sur cible. Optimiser la génération de protons revient à aussi optimiser le création d'électrons suprathermiques et donc à augmenter le rayonnement X dur induit par leur interaction avec la cible. Ce bruit additionnel n'a pas pu être éliminé. Certains tirs ont été fait en dégradant volontairement la source de protons (en défocalisant le faisceau laser sur la cible d'or) de façon à moduler la température atteinte dans l'échantillon d'aluminium. Dans ce cas le bruit sur les spectres était réduit. Sur la figure 4.26, nous montrons un spectre d'absorption X d'un échantillon d'aluminium très faiblement chauffé par un faisceau de protons. Le faisceau principal, à l'origine du faisceau de protons, est défocalisé de 400 μm. Le rapport bruit sur signal, même réduit, reste plus important que sur les spectres réalisé au CELIA (a) et au LULI sans faisceau de protons (b).

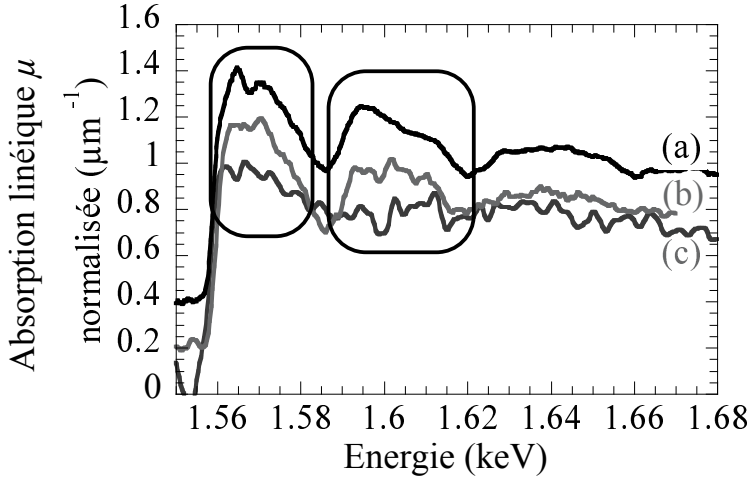


FIGURE 4.26 – Spectres d'absorption de l'aluminium froid, réalisés sur l'installation kHz du CELIA (30 s d'accumulation) pour un échantillon d'aluminium de 1 μm d'épaisseur (spectre (a)), sur l'installation monocoup 100 TW du LULI pour un échantillon d'aluminium de 0.8 μm d'épaisseur sans faisceau de protons (spectre (b)) et avec (spectre (c)).

4.2.3 Spectres XANES de l'aluminium chauffé

Détermination de la température par analyse de la pente du flanc K

- *Modèle de Fermi-Dirac*

On remarque que sonder un flanc K d'absorption X revient à sonder la densité d'états p ($l = \pm 1$) vacants du continuum. En effet, un électron absorbant un photon X passe d'un état interne lié 1s, à un état libre selon la règle d'or de Fermi exprimée par la formule 4.11 et rappellée ci dessous :

$$\sigma_{i,f}(E) = a\ h\nu |\langle \phi_f | \mathbf{R} | \phi_{1s} \rangle|^2\ (1 - f(E)) \tag{4.17}$$

R étant l'opérateur dipolaire, les nombres quantiques orbitaux des électrons initial 1s et final obéissent à la règle de sélection $|l_{1s} - l_f| = 1$, soit pour le flanc K ($l_{1s} = 0$) on a $l_f = \pm 1$. C'est donc la densité d'état en $l = \pm 1$ (Density Of State DOS partielle) qui est en toute rigueur sondée. Notons que selon la normalisation choisie pour la fonction d'onde du continu $\langle \phi_f |$, on peut faire apparaître explicitement la DOS dans l'expression 4.17. La densité totale des états inoccupées $D(E)$, pour un métal simple tel que l'aluminium s'exprime selon la formule 4.18 :

$$D(E) = \sqrt{E}(1 - f(E)) \tag{4.18}$$

La fonction $f(E)$, donnée par une statistique de Fermi-Dirac, est le facteur d'occupation des états et il dépend de la température électronique :

$$(1 - f(E)) = \left(1\ -\ \frac{1}{1 + e^{(E-\mu(T_e))/k_B T_e}}\right) \tag{4.19}$$

avec $\mu(T_e)$ le potentiel chimique tel que $\mu(0) = E_{Fermi}$ et T_e la température électronique de la matière sondée. Pour un chauffage isochore, la pente d'un flanc d'absorption est donc liée à la température électronique T_e de la matière sondée.

Sur la figure 4.27, la structure électronique de l'aluminium solide ainsi que la densité d'états $D(E)$ sont schématisés. La densité d'état totale à partir du bas de la bande de valence est proportionnelle à $\sqrt{E}$ pour un métal simple. L'aluminium solide possède trois électrons dans la bande de valence $3s\ -\ 3p$.

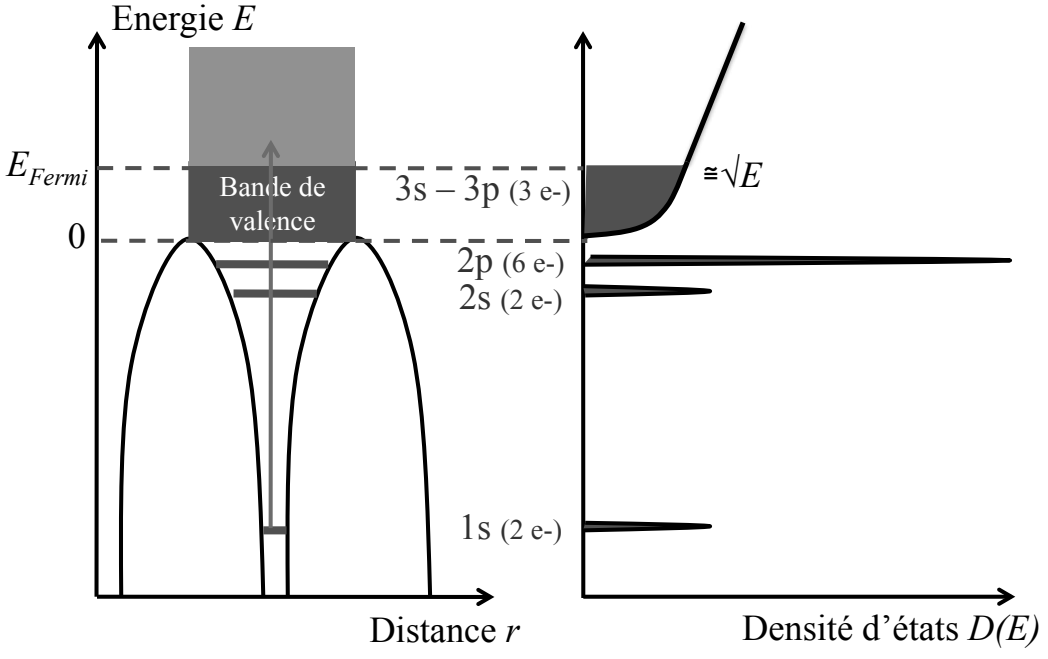


FIGURE 4.27 – Schéma des niveaux électroniques de l'aluminium solide froid et de la densité totale des états $D(E)$ ($E_{Fermi} = 11.63$ eV pour l'aluminium).

Sur la figure 4.28, nous avons tracé la densité d'état totale $D(E)$ (Density Of State, DOS) pour les états de la bande de valence. La DOS partielle ($l = \pm 1$) est également tracée. On constate que la DOS projetée sur les états p est beaucoup plus plate spectralement. Comme la règle de sélection favorise la transition 1s - np, nous ferons l'approximation du flanc d'absorption X par une courbe de type $1 - f(E)$ et non de type $\sqrt{E}(1 - f(E))$.

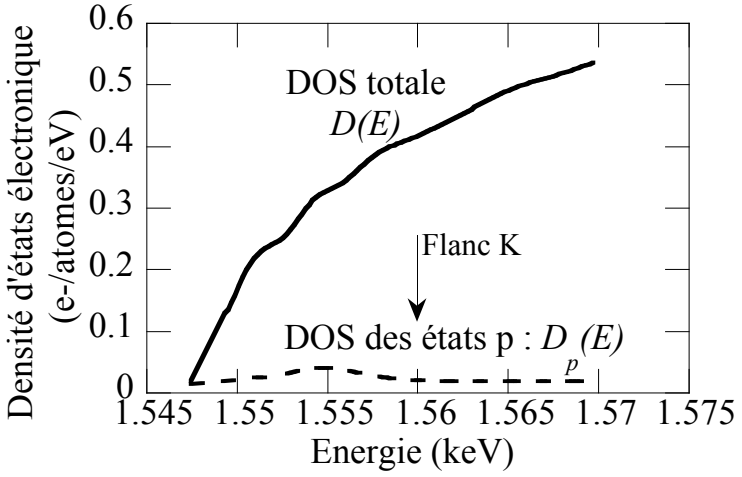


FIGURE 4.28 – Densité des états (DOS pour Density Of State) totale et DOS des états p seulement.

Le potentiel chimique $\mu(T_e)$ est ajusté de façon à avoir un nombre d'électrons égal à 3 dans la bande de valence (soit la charge de valence dans le cas de l'aluminium solide). Ceci reste raisonnable tant que la température reste inférieure à l'énergie de fermi ($E_{Fermi} = 11.63$ eV) et tant que l'ionisation n'a pas lieu ce qui se traduirait par une augmentation du nombre d'électrons dans la bande de valence. Des calculs on montré que ceci est valable pour des températures $T_e \leq 10$ eV [9] et pour des densités proches de celle de l'aluminium solide.

$$\int f(E)\ D(E)\ dE = 3 \tag{4.20}$$

En résolvant cette intégrale numériquement ou analytiquement [27] pour une température électronique petite devant la température de Fermi ($T_e \ll E_{Fermi}$), on obtient l'expression de $\mu(T_e)$ suivante, apellée formule de Sommerfeld :

$$\mu(T_e) = k_B E_{Fermi} \left(1 - \frac{\pi^2}{12}\ \left(\frac{T_e}{E_{Fermi}}\right)^2\right) \tag{4.21}$$

Sur la figure 4.29, la fonction $1 - f(E)$ est tracée pour différentes températures T_e. Nous observons une diminution de la pente du flanc d'absorption lorsque la température T_e augmente.

Pour extraire la température, on compare donc la pente du flanc K, mesurée à son point d'inflection sur les spectres XANES expérimentaux, aux pentes issues du modèle simple Fermi-Dirac ci-dessus [28].

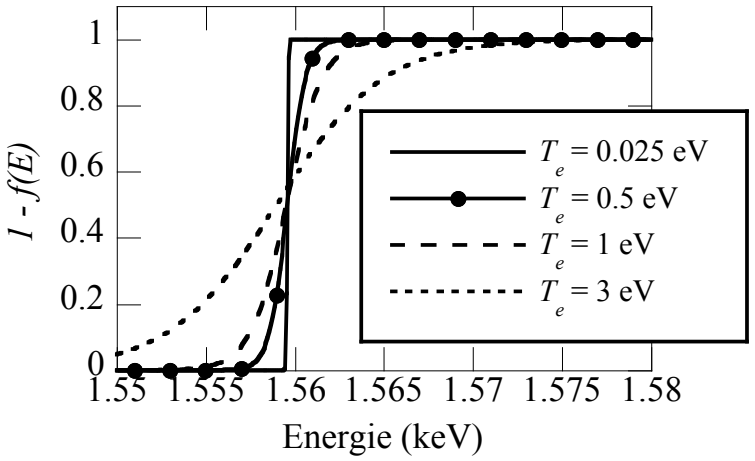


FIGURE 4.29 – Fonction $1 - f(E)$ tracée pour différentes températures électroniques T_e. Le cas $T_e = 0.025$ eV correspond à l'aluminium solide à température ambiante.

- Effet des gradients de températures sur la pente du flanc d'absorption

Ce diagnostic permet d'extraire pour chaque tir laser, la température de l'échantillon d'aluminium. Cette température correspond à une moyenne sur la zone spatiale sondée : la température de l'échantillon d'aluminium chauffé par un faisceau de proton est homogène en profondeur (la température attendue est uniforme si on sonde assez tôt par rapport à l'expansion hydrodynamique) mais présente un gradient de température dans la dimension transversale. La source X n'étant pas suffisamment intense, nous avons dû intégrer le spectre d'absorption sur une certaine dimension spatiale. La zone sondée est estimée à partir de la configuration spatiale du spectromètre par rapport à l'échantillon d'aluminium. Elle correspond à une surface de 170 x 66 μm^2. Cette zone sondée est schématisée sur la figure 4.30. La zone centrale du chauffage par les protons est excentrée et est plus petite que la zone totale sondée par le spectromètre. La température mesurée par analyse du flanc K d'absorption correspond en réalité à une moyenne sur un gradient transverse de température. Une source X plus intense et un bruit moins important nous permettraient de conserver une meilleure résolution spatiale (de ~ 30 μm) et de résoudre ce gradient de température.

Nous avons voulu évaluer l'effet de gradients transverses de température sur le flanc d'absorption. Pour cela nous avons considéré une feuille d'aluminium, schématisée sur la figure 4.31, constituée de deux zones, de même surface, chauffées à deux températures différentes (0.5 et 3 eV respectivement). Les fonctions $1 - f(E)$ respectives sont montrées sur la figure 4.31. Nous avons superposé la pente calculée du flanc K dans le cas de l' échantillon composé des deux zones. La température extraite par le modèle de Fermi-Dirac est de 1 eV(cf. figure 4.31) et elle prend plus en compte la partie froide de la cible. La zone chaude contribue plus faiblement à la pente du flanc d'absorption. Cela signifie que dans notre configuration expérimentale, le diagnostic sous évalue la température moyenne de l'échantillon.

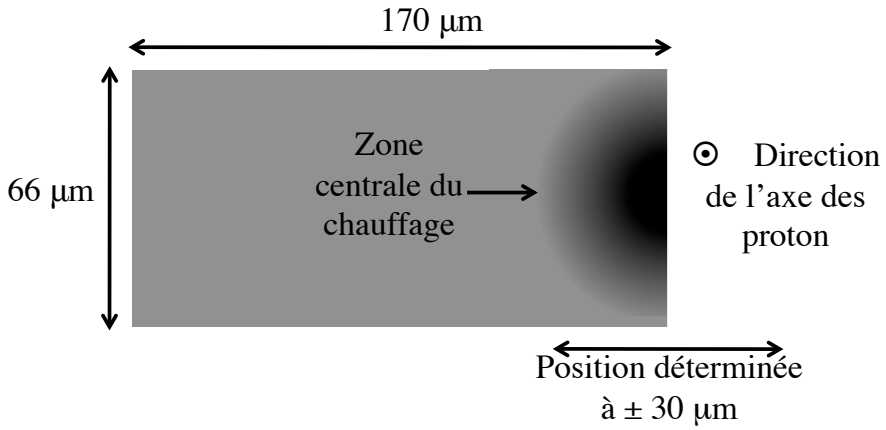


FIGURE 4.30 – Zone sondée par le spectromètre d'absorption. Le faisceau de proton est perpendiculaire au plan de la page.

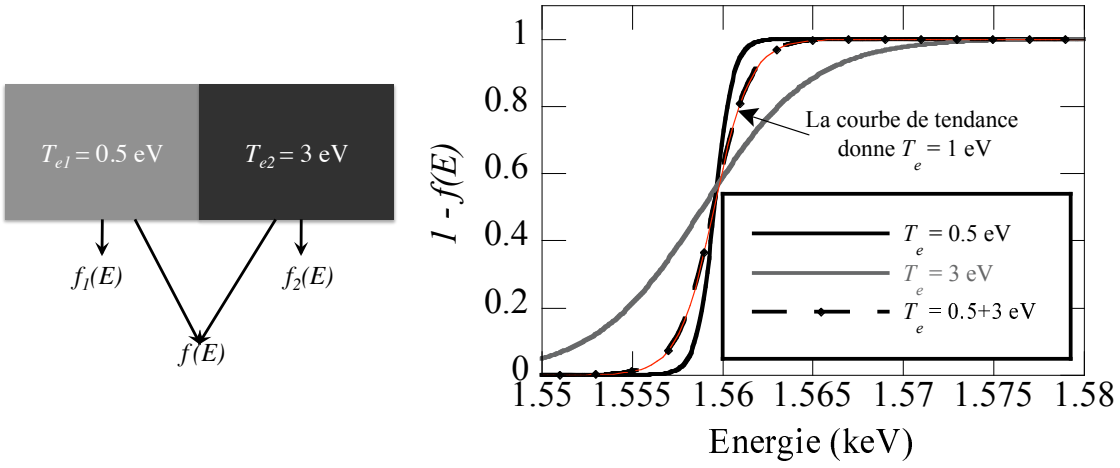


FIGURE 4.31 – Schéma d'une feuille composée de deux zones chauffées à des températures différentes. Fonction $1 - f(E)$ tracée pour ces différentes températures et pour la moyenne des deux zones.

-Sélection des données expérimentales

La température mesurée de l'échantillon d'aluminium dépend du délai choisi entre les impulsions pompe (chauffage par protons) et sonde (source X), de l'épaisseur de l'échantillon et des caractéristiques du faisceau de protons. Pour limiter l'étude à un chauffage homogène et isochore, nous avons sélectionné les spectres XANES exploitables en considérant deux limites en terme de délai pompe - sonde :

– Le temps « t_0 » de chauffage homogène de l'échantillon, temps minimal, a été choisi comme le temps nécessaire aux protons pour venir chauffer la totalité de la cible. Avant ce temps t_0, on considère que la température de l'échantillon peut ne pas être homogène en profondeur. Suivant l'épaisseur de l'échantillon, ce ne sont pas les mêmes protons qui vont dominer le chauffage. Par exemple, pour des cibles d'aluminium de 470 nm et de 1.6 μm, ce sont respectivement les protons de 52 $\pm$ 2 keV et 190 $\pm$ 10 keV qui présentent un pouvoir d'arrêt optimal et qui doivent être consi-

dérés pour le calcul de « t_0 ». Les temps « t_0 » sont alors de 63 ± 1 ps et 33 ± 1 ps respectivement. Ils correspondent au temps de vol des protons depuis la cible d'or jusqu'à la feuille d'aluminium distante de 200 μm.
- Le temps maximal t_{max} est estimé par une expansion trop importante de la matière dense et tiède. Après ce temps t_{max}, on ne peut plus considérer que l'échantillon d'aluminium est homogène en densité. Nous avons fixé une longueur d'expansion maximale autorisée Δd_{max}, définie par la vitesse acoustique ionique c_s de l'expansion hydrodynamique de l'échantillon d'aluminium. On a :

$$c_s = \sqrt{Z^* k_B T_e / m_i} \tag{4.22}$$

ou m_i est la masse d'un atome d'aluminium et

$$\Delta d = c_s(t - t_0) \tag{4.23}$$

Nous avons retiré tous les tirs lasers tels que $|\Delta d/d| > 10\%$ avec d l'épaisseur initiale de l'échantillon.

Au final, les données sont sélectionnées telles que le spectre XANES ait été mesuré au délai pompe - sonde t_i tel que $t_0 < t_i < t_{max}$. De ce fait, nous ne considérons que les échantillons d'aluminium homogènes en températures et à la densité du solide. La limite basse couplée à la durée relativement longue des paquets de protons ($\sim$ 10 ps) assure aussi qu'on sonde l'échantillon après que l'équilibre entre la température électronique et ionique soit réalisé ($T_e = T_i = T$ au bout d'un temps caractéristique $\leq$ 10 ps à la densité du solide).

Spectres XANES mesurés

Les spectres, présentés sur la figure 4.32 ont été traités avec le modèle de Fermi-Dirac présenté ci-dessus et sélectionnés selon les deux critères décrit précédement. Le tir laser sans chauffage par proton, pour une cible d'aluminium à température ambiante est noté (a). Les différentes températures déterminées vont de $\sim$ 0.1 à 2.7 eV (cas notés de (b) à (g)). Les valeurs des températures des échantillons d'aluminium sont indiquées dans la légende de la figure 4.32.

Tous les spectres sont normalisés de la même manière de façon à avoir l'absorption maximale des spectres (e), (f) et (g) égale à 1. Nous avons choisi cette normalisation aux cas sans oscillations XANES afin de déterminer le plus précisément possible le point d'inflexion et la pente du flanc d'absorption. Nous observons une diminution progressive des structures XANES, corrélée avec l'augmentation de la température de l'échantillon. Les structures disparaissent à partir d'une température voisine de 1 eV.

Validation du modèle Fermi-Dirac pour la détermination de la température

Les spectres XANES calculés avec les simulations DMQ et WDM-FD (détaillées dans le chapitre 1) sont montrés sur les figures 4.33 (A) et (B). On observe le même comportement que pour les résultats expérimentaux : la pente du flanc d'absorption diminue et les structures XANES disparaissent avec l'augmentation de la température. Le même type de normalisation a été utilisée : les spectres sont normalisés à la valeur de l'absorption après le flanc des spectres sans structures XANES.

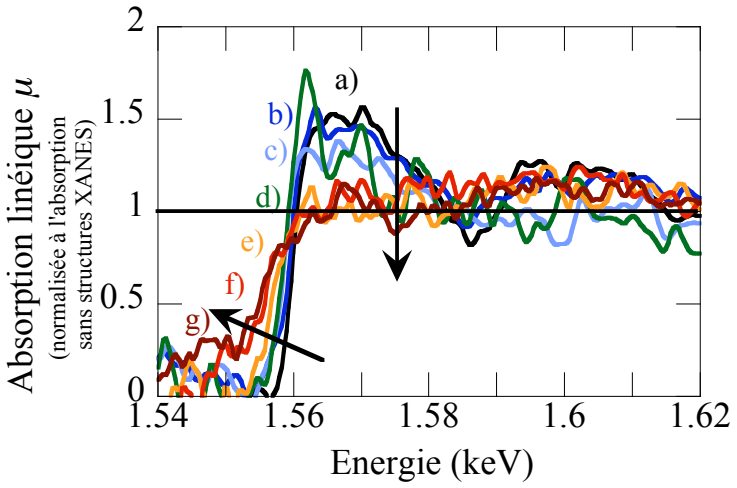


FIGURE 4.32 – Spectres d'absorption X mesurés de l'aluminium chauffé à différentes températures, déduites du modèle Fermi-Dirac : tir « froid » (a), 0.09 ± 0.25 eV (b), 0.27 ± 0.15 eV (c), 0.45 ± 0.2 eV (d), 1.4 ± 0.2 eV (e), 1.8 ± 0.3 eV (f), 2.74 ± 0.25 eV (g). L'absorption est multipliée par un coefficient identique à toutes les mesures et tel que le spectres XANES sans structure tende vers 1 après le flanc. Les flèches indiquent l'évolution des spectres de (a) à (g).

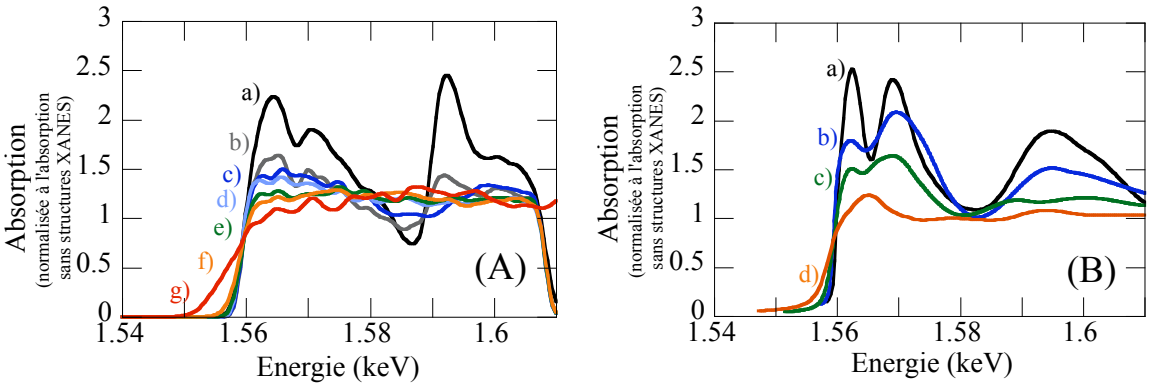


FIGURE 4.33 – (A) Spectre d'absorption de l'aluminium chauffé, calculé avec le code DMQ pour différentes températures : 0.025 eV soit Al « froid » (a), 0.077 eV (b), 0.095 eV (c), 0.17 eV (d), 0.43 eV (e), 0.86 eV (f) et 2.6 eV (g). (B) Spectre d'absorption de l'Al chauffé, calculé avec le code WDM-FD pour les températures : 0.025 eV, soit Al « froid » (a), 0.1 eV (b), 0.5 eV (c) et 1 eV (d).

Pour valider l'utilisation du modèle Fermi-Dirac pour extraire la température de la pente du flanc d'absorption, nous avons appliqué cette même méthode aux spectres XANES calculés par les simulations DMQ et WDM-FD, respectivement. Sur la figure 4.34, nous avons tracé la température T_e déduite de l'approximation Fermi-Dirac en fonction de la température T_0 utilisée en entrée des simulations. Nous avons tracé la droite

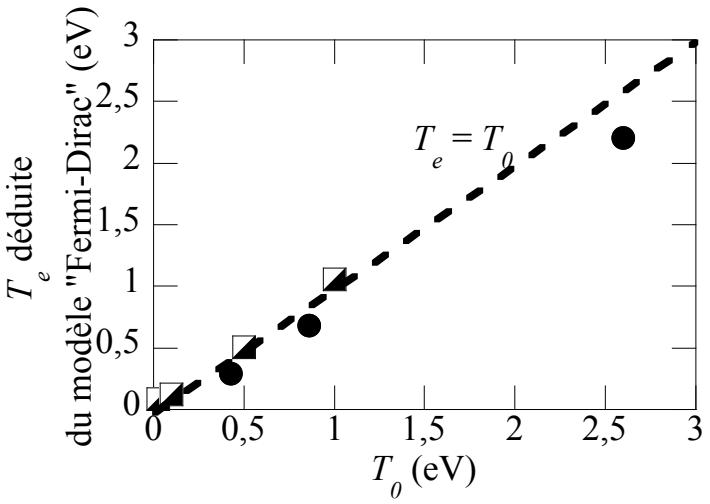


FIGURE 4.34 – Température T_e, déduite du modèle Fermi-Dirac appliqué aux spectres XANES simulés par les modèles DMQ (ronds noirs) et WDM-FD (carrés noirs et blancs), en fonction de la température d'entrée T_0 des modèles. La ligne en pointillés est la droite $T_e = T_0$.

$T_e = T_0$. L'erreur effectuée avec le modèle Fermi-Dirac est un peu plus importante pour des températures T_e élevées (cf. point à $T_e = 2.6$ eV). Ce modèle est effectivement valable pour des températures faibles devant l'énergie de Fermi. L'erreur maximale, induite par le modèle Fermi-Dirac est de 15 % dans la gamme de température de 0 à 3 eV, i.e. plus faible que l'incertitude expérimentale sur la mesure de T_e.

Evolution des structures XANES en fonction de la température

- *Observations expérimentales :*

Pour mieux suivre qualitativement l'évolution des structures XANES mesurées avec la température, les spectres d'absorption ont été normalisés par rapport au premier creux d'absorption (situé à environ 1.585 keV) du spectre d'aluminium «froid». Ils sont reportés sur la figure 4.35. On observe la disparition progressive des structures XANES avec l'augmentation de la température de l'aluminium. La seconde bosse XANES semble disparaître légèrement avant la première. L'ensemble des structures XANES disparaît entre ~ 0.45 et 1.4 eV. La qualité de nos spectres n'est cependant pas suffisante pour observer les structures XANES plus fines (double pic de la $1^{ère}$ et de la $2^{ème}$ structure) et suivre leur évolution.

- *Calculs DMQ et WDM-FD :*

Les simulations DMQ (cf. figure 4.33 (A)) et WDM-FD (cf. figure 4.33 (B)), indiquent le même comportement en fonction de la température. Dans le cas du code DMQ, les structures ont quasiment disparu pour $T = 0.43$ eV (cas (d)) alors que pour la simulation WDM-FD, les structures XANES sont encore présentes pour $T = 0.5$ eV (cas (c)).

Afin de suivre l'évolution de la disparition des structures XANES, nous avons mesuré

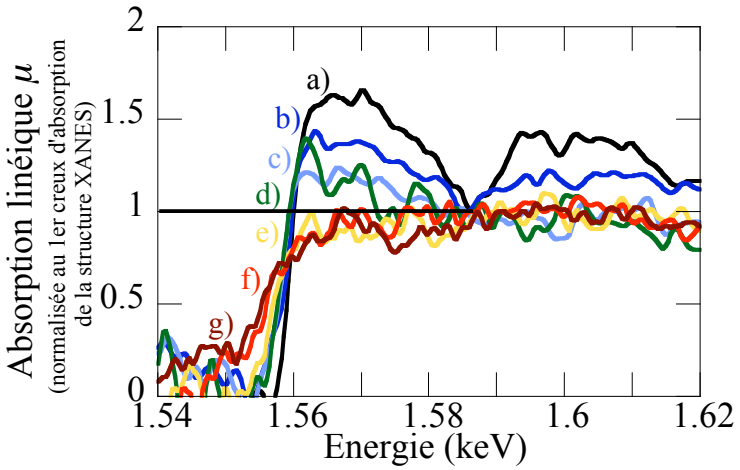


FIGURE 4.35 – Spectres d'absorption mesurés de l'aluminium chauffé à différentes températures, déduites du modèle Fermi-Dirac : tir « froid » (a), 0.09 ± 0.25 eV (b), 0.27 ± 0.15 eV (c), 0.45 ± 0.2 eV (d), 1.4 ± 0.2 eV (e), 1.8 ± 0.3 eV (f), 2.74 ± 0.25 eV (g). L'absorption est normalisée au premier creux d'absorption (aux environs de 1.585 eV).

le contraste de ces oscillations en fonction de la température. Pour cela, nous définissons le contraste C tel que

$$C = \frac{\mu_{max} - \mu_{min}}{\mu_{max} + \mu_{min}} \tag{4.24}$$

avec μ_{max} l'absorption moyennée sur la zone de la première bosse XANES (de $\sim$ 1.56 keV à 1.57 keV) et μ_{min} l'absorption moyennée sur la zone du premier creux XANES (de $\sim$ 1.58 keV à 1.59 keV). Le contraste C, mesuré sur les spectres d'absorption expérimentaux et sur les spectres d'absorption calculés, est tracé en fonction de la température sur la figure 4.36. Les données expérimentales se trouvent entre les données de la simulation DMQ et celles de la simulation WDM-FD. En fonction de T_e, les structures XANES disparaissent plus vites pour le calcul DMQ que pour l'expérience. Les structures XANES disparaissent moins vite pour la simulation WDM-FD que pour les données expérimentales. Nous observons aussi que le double pic de la $1^{ère}$ bosse XANES disparaît pour des températures de $\sim$ 0.1 eV pour la simulation DMQ et pour $\sim$ 0.5 eV pour le calcul WDM-FD.

Interprétation

La disparition progressive de ces structures XANES, liée à l'augmentation de la température de l'aluminium, est expliquée par une modification de la structure atomique locale de l'aluminium. A l'état solide et froid, l'aluminium présente une structure cubique face centrée qui explique les structures XANES de son spectre d'absorption. Lorsque l'aluminium est porté dans un état dense et tiède, les distances interatomiques sont modifiées et les corrélations ion - ion tendent à disparaître. La probabilité de trouver un ion à une distance r devient la même pour toutes les distances, sauf pour les très petites distances.

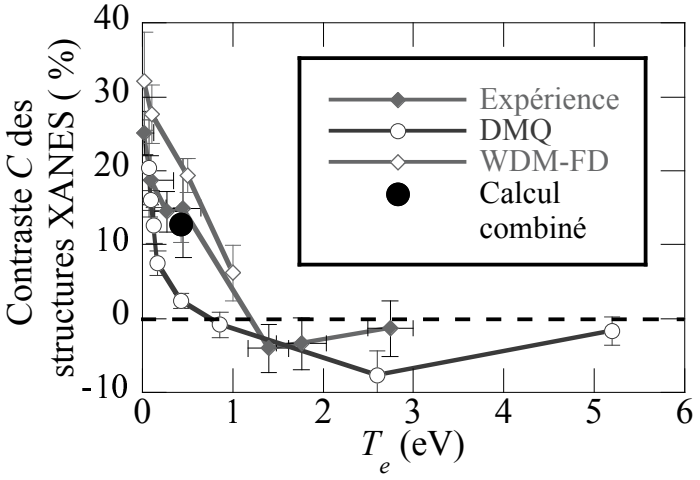


FIGURE 4.36 – Le contraste C, en fonction de la température électronique de chauffage T_e de l'échantillon d'aluminium, est tracé pour les données expérimentales (losanges pleins gris), pour la simulation DMQ (ronds creux) et pour le calcul WDM-FD (losanges creux). La valeur, symbolisée par un rond noir, correspond à un calcul combiné WDM-FD et DMQ.

Cela se traduit par une fonction de corrélation ion - ion $g(r)$ constante. Les fonctions $g(r)$, calculées avec les codes DMQ et WDM-FD sont présentées sur la figure 4.37. Elle ont été calculées pour des températures comprises entre 0.025 eV (aluminium froid) et 5 eV. Dans le cas du calcul WDM-FD, la fonction de corrélation ion - ion $g(r)$ est obtenue à partir d'un modèle plasma dense, qui suppose une phase liquide ($1^{ère}$ partie du calcul dite «WDM»). Cette fonction $g(r)$ est échantillonnée pour construire des configurations spatiales en 3D, à la base du calcul XANES par la méthode des différences finies ($2^{ème}$ partie du calcul, dite FD). Pour le calcul DMQ, le spectre XANES est directement obtenu a partir de configurations spatiales constamment recalculées. La fonction $g(r)$ doit être reconstruite à partir de la simultion. Pour les deux simulations, les fonctions de corrélations ion - ion confirment notre interprétation. Plus la température augmente, plus les oscillations sur les fonctions $g(r)$ disparaissent. On observe de très légères différences entre le calcul DMQ (A) et le calcul WDM-FD (B) essentiellement à basse température. En effet, le modèle WDM-FD suppose un état liquide et décrit probablement mal la structure atomique locale très proche de la transition solide - liquide. Ces différences peuvent expliquer pourquoi le contraste C des structures XANES (cf. figure 4.36) diminue plus rapidement pour le calcul DMQ que pour le calcul WDM-FD. C'est pour cela qu'un calcul combiné a été réalisé. Il s'agit d'un calcul du spectre XANES par la méthode des différences finies (FD) et réalisé avec les configurations spatiales 3D obtenues avec le calcul DMQ. Le contraste C obtenu avec ce calcul est montré sur la figure 4.36, représenté par un rond noir plein. Ce point est beaucoup plus proche des données expérimentales. Une étude approfondie reste à être réalisée pour mieux comprendre les différences entre les deux modèles et les faire converger.

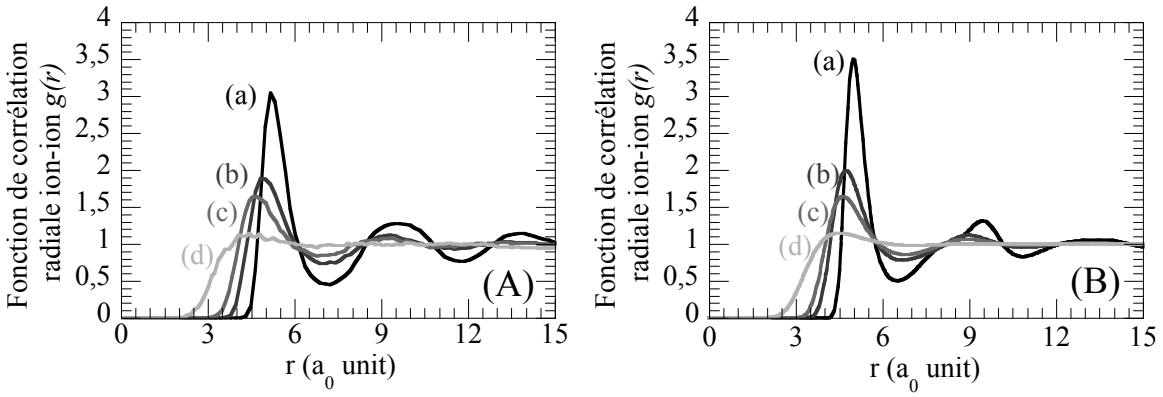


FIGURE 4.37 – (A) Fonctions de corrélation $g(r)$ calculées avec le code DMQ pour différentes températures : 0.095 eV (a), 0.43 eV (b), 0.86 eV (c), 5.17 eV (d). (B) Fonctions de corrélation $g(r)$ calculées avec le code WDM-FD pour les températures : 0.025 eV, soit l'Al « froid » (a), 0.1 eV (b), 0.5 eV (c), 1 eV (d). a_0 est le rayon de Bohr.

4.3 Conclusion

Le spectromètre d'absorption, composé de deux cristaux tronconiques et associé à une source X de large bande spectrale, créée par un laser kHz, permet de mesurer un spectre d'absorption X dont les fluctuations du bruit varient entre 1% et 4‰ du signal mesuré, avec une accumulation des impulsions X pendant 30 s. Le spectre EXAFS d'un échantillon d'aluminium froid a été mesuré et a été analysé. Les distances inter-atomiques obtenues sont très proches des valeurs tabulées. La qualité de cette analyse reste dépendante de la méthode d'extraction du signal EXAFS. Pour obtenir des résultats plus stables et plus fiables, la mesure EXAFS nécessiterait des temps d'accumulation plus longs et une extension de la gamme spectrale vers de plus hautes énergies. Cela impliquerait de légères améliorations comme l'optimisation de la source X qui peuvent être apportées facilement. Le spectre XANES est de qualité comparable à celle obtenue sur des installations synchrotrons. C'est en le comparant à des simulations, telles qu'un modèle de dynamique moléculaire quantiques et un calcul XANES de diffusions multiples, ou en utilisant des modèles simples tels que le modèle Fermi-Dirac, que nous pouvons extraire des informations pertinentes sur la matière sondée (température électronique et corrélations ion - ion).

Ce diagnostic nous a permis d'étudier l'évolution d'un échantillon d'aluminium chauffé par un faisceau de protons créé par laser. Cette expérience a été réalisée sur l'installation laser 100 TW du LULI, en collaboration avec des équipes du LULI, du CEA et de l'INRS. Les spectres XANES du flanc K de l'aluminium présentent un bruit plus important qu'au laboratoire CELIA. Ce bruit est dominé par la génération d'X durs corrélée à la production de protons. Les spectres XANES restent néanmoins largement exploitables. Une méthode d'analyse de la pente du flanc K, basée sur un modèle de Fermi-Dirac, a permis de remonter à la température de la matière sondée. Ceci est limité à des températures relativement faibles (jusqu'à 3 eV) et considère un chauffage homogène et isochore. Les spectres XANES ont été comparés aux simulations DMQ et WDM-FD et ont révélé une perte progressive

de corrélation ion-ion pour des températures de chauffage relativement faibles, autour de 1 eV.

Bibliographie

[1] C. Chenais-Popovic, H. Merdji, T. Missalla, F. Gilleron, J. C. Gauthier, T. Blenski, F. Perrot, M. Klapisch, C. Bauche-Arnoult, J. Bauche, A. Bachelier et K. Eidmann, The Ast. Journal Supp. Series **127**, 275 (2000).

[2] F. Benesch, T. Lee, Y. Jiang et C.G. Rose-Petruck, Opt. Lett. **29**, 1028 (2004).

[3] P. Audebert, P. Renaudin, S. Bastiani-Ceccotti, J.-P. Geindre, C. Chenais-Popovics, S. Tzortzakis, V. Nagels-Silvert, R. Shepherd, I. Matsushima, S. Gary, F. Girard, O. Peyrusse et J.-C. Gauthier, Phys. Rev. Lett. **94**, 025004 (2005).

[4] S. Fourmaux, L. Lecherbourg, M. Harmand, M. Servol et J. C. Kieffer, Rev. Sci. Instrum. **78**, 113104 (2007).

[5] J. Wong, G.N. George, I.J. Pickering, Z.U. Rek, M. Rowen, T. Tanaka, G.H. Via, B. DeVries, D.E.W. Vaughan et G.E. Brown Jr., Solid State Commun. **92**, 559 (1994).

[6] J. Wong, G.N. George, I.J. Pickering, Z.U. Rek, M. Rowen, T. Tanaka, G.H. Via, B. DeVries, D.E.W. Vaughan et G.E. Brown Jr., Physica B **208**, 220(1995).

[7] D.E. Sayers et B.A. Bunker, X-ray Absorption, Principles, Applications, Techniques of EXAFS, SEAXFS and XANES, ed. by D. C. Koningsberger and R. Prins (1988).

[8] Cours de l'école d'été *Spectroscopie d'AbsorptionX : Initiation à l'EXAFS*, Montepellier 28 Mai - 1^{er} Juin 2001.

[9] O. Peyrusse, J. Phys. : Condens. Matter **20**, 195211 (2008).

[10] O. Peyrusse, proceeding de la conférence AIP (2009)

[11] V. Recoules et S. Mazevet, Phys. Rev. B **80**, 604110 (2009).

[12] S. Mazevet et G. Zérah, Phys. Rev. Lett. **101**, 155001 (2009).

[13] S. C. Wilks, A.B. Langdon, T. E. Cowan, M. Roth, M. Singh, S. Hatchett, M. H. Key, D. Pennington, A. MacKinnon et R. A. Snavely, Phys. of Plasmas **8**, 542 (2001).

[14] M. Borghesi, J. Fuchs, S.V. Bulanov, A.J. MacKinnon, P.K. Patel, M. Roth, Fusion Sci. Tech. **49**, 412 (2006).

[15] J. Fuchs, Y. Sentoku, S. Karsch, J. Cobble, P. Audebert, A. Kemp, A. Nikroo, P. Antici, E. Brambrink, A. Blazevic, E. M. Campbell, J. C. Fernandez, J.-C. Gauthier, M. Geissel, M. Hegelich, H. Pépin, H. Popescu, N. Renard-LeGalloudec, M. Roth, J. Schreiber, R. Stephens et T. E. Cowan, Phys. Rev. Lett. **94**, 045004 (2005).

[16] J. Fuchs, P. Antici, E. d'Humières, E. Lefebvre, M. Borghesi, E. Brambrink, C. Cecchetti, T. Toncian, H. Pépin et P. Audebert, J. Phys. IV **133**, 1151 (2006).

[17] P.K. Patel, A.J. MacKinnon, M.H. Key, T.E. Cowan, M.E. Foord, M. Allen, D.F. Price, H. Ruhl, P.T. Springer et R. Stephens, Phys. Rev. Lett. **91**, 125004 (2003).

[18] P. Antici, J. Fuchs, S. Atzeni, A. Benuzzi, E. Brambrink, M. Esposito, M. Koenig, A. Ravasio, J. Schreiber, A. Schiavi et P. Audebert, J. Phys. IV **133**, 1077 (2006).

[19] G.M. Dyer, A.C. Bernstein, B.I. Cho, J. Osterholz, W. Grigsby, A. Dalton, R. Shepherd, Y. Ping, H. Chen, K. Widmann et T. Ditmire, Phys. Rev. Lett. **101**, 015002 (2008).

[20] E. Brambrink, T. Schegel, G. Malka, K. U. Amthor, M.M. Aléonard, G. Claverie, M. Gerbaux, F. Gobet, F. Hannachi, V. Méot, P. Morel, P. Nicolai, J.N. Scheurer, M. Tarisien, V. Tikhonchuk et P. Audebert, Phys. Rev. E **75**, 0654015 (2007).

[21] J. P. Geindre, P. Audebert, S. Rebibo et J.-C. Gauthier, Opt. Lett. **26**, 1612 (2001).

[22] P. Antici, J. Fuchs, M. Borghesi, L. Gremillet, T. Grismayer, Y. Sentoku, E. d'Humières, C.A. Cecchetti, A. Mancic, A.C. Pipahl, T. Toncian, O. Willi, P. Mora et P. Audebert, Phys. Rev. Lett. **101**, 105004 (2008).

[23] A. Mancic, J. Robiche, P. Antici, P. Audebert, C. Blancard, P. Combis, F. Dorchies, G. Faussurier, S. Fourmaux, M. Harmand, R. Kodama, L. Lancia, S. Mazevet, M. Nakatsutsumi, O. Peyrusse, V. Recoules, P. Renaudin, R. Sheperd et J. Fuchs, High Energy Density Phys. **6**, 21 (2010).

[24] R. Kodama, K. Okada et Y. Kato, Rev. Sci. Instrum. **70**, 625 (1999).

[25] A. Mancic, A. Levy, M. Harmand, M. Nakatsutsumi, P. Antici, P. Audebert, P. Combis, S. Fourmaux, S. Mazevet, O. Peyrusse, V. Recoules, P. Renaudin, J. Robiche, F. Dorchies et J. Fuchs, Phys. Rev. Lett. **104**, 035002 (2010).

[26] F. Dorchies, M. Harmand, D. Descamps, C. Fourment, S. Hulin, S. Petit, O. Peyrusse et J. J. Santos, Appl. Phys. Lett. **93**, 121113 (2008).

[27] N.W. Ashcroft et N. David Mermin, Physique des solides, *ed. EDP Sciences* (2003)

[28] W. Schwanda et K. Eidmann, Phys. Rev. Lett. **69**, 3507 (1992).

Conclusion et perspectives

Afin d'étudier la dynamique structurelle de la matière dense et tiède nous avons choisi de développer un diagnostic résolu en temps de spectroscopie d'absorption X près des seuils. En particulier, nous avons cherché à démontrer la faisabilité de cette approche en se focalisant autour du flanc K d'absorption de l'aluminium situé à 1.559 keV. Dans cette perspective nous avons tout d'abord optimisé une source X ponctuelle, isotrope, ultra-brève et de large bande spectrale que nous avons associée à un spectromètre adapté à ces spécificités. Nous avons ensuite inséré ce diagnostic sur une expérience pompe - sonde où un échantillon d'aluminium était chauffé par un faisceau de protons créé par un laser ultra-intense.

Dans la perspective de développer une source X pertinente pour la spectroscopie d'absorption X près du seuil K de l'aluminium, nous avons analysé et interprété les caractéristiques spectrales et temporelles de l'émission X thermique de couche M, issue de plasmas de Z élevé [1]. Afin de comprendre nos résultats, nous les avons comparé à l'émission X thermique d'un élément de Z faible tel que l'aluminium. Dans les deux cas, nous avons fait varier les paramètres de l'interaction laser - cible solide. Nous avons aussi interprété l'ensemble de ces mesures à l'aide de calculs collisionnels - radiatifs. Cette étude systématique, nous a permis de dégager des conditions optimales pour créer une source X ultra-brève, intense et de large bande spectrale, adaptée à la spectroscopie d'absorption X.
Contrairement à l'émission de raies de couche K d'un élément comme l'aluminium, l'émission de couche M d'éléments de Z élevé présente dans la même gamme spectrale des structures larges, dites faisceaux de transitions. Nous nous sommes concentrés sur le faisceau de transition $4f - 3d$ particulièrement intense. Le choix de l'élément de Z élevé utilisé comme source X plasma pour la spectroscopie d'absorption X se fait en fonction de la position spectrale de ses structures d'émission $4f - 3d$. Nous avons pour cela étudié l'émission X de plusieurs éléments de Z élevé tels que le samarium, le gadolinium, le dysprosium, l'erbium et l'ytterbium. Les études en fonction de l'énergie et de la durée d'impulsion du laser nous ont permis de constater que le nombre de photons est optimum avec une énergie laser maximale et des durées d'impulsion laser de quelques picosecondes. Dans ce cas, l'émission X correspond à des états d'ionisation plus élevés et l'augmentation de l'intensité d'émission X s'accompagne d'un léger décalage spectral des faisceaux de transitions vers les plus hautes énergies.
Nous avons mesuré la durée de l'émission X des raies de couches K de l'aluminium et de l'émission de couche M des éléments de Z élevé. L'ensemble de ces mesures a donné des durées inférieures à 10 ps. Nous avons pu noter que les pertes radiatives, particulièrement importantes pour des éléments de Z élevé favorisent un refroidissement plus rapide du plasma. Ceci entraîne une diminution de la durée de l'émission X. Brièvement, nous

retiendrons les observations suivantes :

- l'émission X associée au faisceau de transition $4f - 3d$ d'un plasma d'erbium est la plus adaptée pour des mesures de spectres d'absorption X autour du flanc K de l'aluminium,
- pour un laser d'énergie $E_{las} = 5$ mJ et de durée $\tau_{las} \sim 3$ ps, en polarisation P, avec un angle d'incidence de $\sim 20°$, l'intensité des transitions de type $4f - 3d$ de l'erbium s'élève à $\sim 10^7$ ph/tir/eV/sr. L'émission X, intégrée sur la gamme spectrale [1.57 - 1.73] keV et sur 2π sr, correspond à 1‰ de l'énergie laser.
- dans ces conditions optimales, la durée de l'émission X est d'environ 4 ps.

Ce type de source, basée sur l'émission de couche M, peut à priori être extrapolée jusqu'à environ 5 keV (cas de l'uranium, élément de plus haut Z accessible naturellement).

Parallèlement, nous avons développé un spectromètre d'absorption X [2], basé sur les particularités des sources X laser - plasma, quasi ponctuelles et isotropes. Ce spectromètre est en effet composé de deux cristaux tronconiques : l'un mesure le spectre transmis à travers l'échantillon et l'autre un spectre de référence. En mesurant simultanément ces deux spectres, l'absorption déduite est affranchie des fluctuations tir à tir de la source X. Nous avons testé ce dispositif en mesurant des spectres XANES d'échantillons d'aluminium à température ambiante. Les spectres obtenus sont de qualité comparable à ceux obtenus sur des installations synchrotron. Nous avons mesuré un spectre d'absorption X dont les fluctuations du bruit varient entre 1% et 4‰ du signal mesuré, avec une accumulation des impulsions X pendant 30 s (à 1 kHz).

Ce diagnostic a été implanté sur une expérience au LULI, consistant à étudier la structure d'un échantillon d'aluminium chauffé à différentes températures par un faisceau de protons créé par laser [3]. A mesure que la température augmente, nous observons clairement une diminution de la pente du flanc d'absorption ainsi que la disparition progressive des structures XANES. Le facteur d'occupation de Fermi-Dirac nous a permis de décrire la pente du flanc d'absorption et d'en extraire la température électronique de l'échantillon sondé. Ceci est limité à des températures relativement faibles (jusqu'à 3 eV) et considère un chauffage homogène et isochore. C'est en comparant les spectres XANES à des simulations, telles qu'un calcul de dynamique moléculaire quantique [4, 5] ou un modèle de plasma dense et tiède [6] que nous avons pu remonter au fonctions de corrélation ion - ion. Ceci a révélé une perte progressive de corrélation ion-ion pour des températures de chauffage autour de 1 eV [7, 8]. Nous avons pu noter de légères disparités entre le modèle de dynamique moléculaire quantique et le modèle de plasma dense. Un travail théorique est actuellement en cours pour appréhender ces différences : la première voie consiste à comparer les méthodes utilisées pour obtenir les configurations spatiales des atomes ; une seconde voie consiste à tester le calcul des coefficients de photo-absorption mis en place dans le modèle de dynamique moléculaire, comparativement aux méthodes directes de calcul XANES telles que celles utilisées à partir du modèle de plasma dense.
Comme nous l'avons vu en introduction puis au chapitre 4, ce type de chauffage se fait sur des temps relativement longs puisque le faisceau de protons s'étend sur plusieurs dizaines de picosecondes lorsqu'il atteint l'échantillon d'aluminium. La dynamique observée est alors limitée par le temps de chauffage [7]. C'est l'augmentation de la température qui induit directement la perte de corrélation ion - ion que nous avons suivie. Pour observer l'effet du transfert d'énergie des électrons vers les ions sur les corrélations ion - ion, il

faudrait pouvoir chauffer l'échantillon plus rapidement que la durée caractéristique de ce transfert. Pour cela, on peut envisager d'isoler les protons les plus énergétiques et donc moins étalés dans le temps en utilisant un échantillon multi-couche ou encore de se pencher sur de nouveaux mécanismes de génération de protons mono-énergétiques par laser.

D'autres méthodes de chauffage, citées en introduction, sont aussi possibles. L'une d'entre elle consiste à chauffer la matière de façon isochore par une impulsion laser ultra-brève ($\sim$ 30 fs). Une série d'expériences par « chauffage laser » va se dérouler prochainement au CELIA. La difficulté sera ici de sonder des échantillons relativement fins ($\sim$ 100 nm), i.e. dont l'épaisseur est adaptée à la profondeur du chauffage laser. Comme pour l'expérience de chauffage par protons, le diagnostic d'absorption X sera couplé à un diagnostic optique (interférométrie dans le domaine de Fourier) pour s'assurer des conditions de chauffage. Il est aussi possible de chauffer la matière plus en profondeur par une impulsion UV, et bientôt X, sur des installations laser à électrons libres. Ce chauffage présente un temps caractéristique ultra-bref.
Parallèlement, une prochaine campagne expérimentale va consister à implanter notre diagnostic d'absorption X sur une expérience de compression par choc laser. L'objectif est de lever certaines inconnues concernant le comportement du flanc K d'absorption et des structures XANES d'un échantillon d'aluminium soumis à des facteurs de compression allant de 1 à 3. Schématiquement, des modèles, comparés à des données expérimentales [9] ont démontré que pour de faibles facteurs de compression, le flanc d'absorption se décale vers les basses énergies, lorsque la densité augmente le long de l'Hugoniot [4]. Pour des facteurs de compression élevés, la température augmente aussi fortement. L'objectif de cette expérience est multiple. D'une part, il s'agit de voir si la mesure de la position et de la pente du flanc K d'absorption peut être utilisée pour déduire respectivement la densité et la température de l'échantillon. D'autre part, le comportement des structures XANES lors de ces variations de densité et de température reste aussi à être observé. La comparaison des résultats expérimentaux au modèle de plasma dense et tiède et aux calculs de dynamique moléculaire quantique permettra de valider ces modèles pour d'autres régimes de densité et de température.
Afin de progresser sur des problématiques comme l'astrophysique, la planétologie..., ce diagnostic doit à terme être adapté à l'étude d'autres éléments comme le fer, le silicium, l'hydrogène... Il est nécessaire pour cela d'adapter la source X et le spectromètre d'absorption X pour des gammes spectrales différentes. Dans le cas du fer, le flanc K d'absorption X se situe à 7.112 keV. En plus d'étendre la gamme spectrale d'émission de la source X, il serait intéressant de diminuer sa durée pour mieux résoudre l'évolution de la matière soumise à un chauffage ultra rapide. Pour palier à ces difficultés, plusieurs solutions sont envisageables. Pour étendre la gamme spectrale d'émission X, une possibilité à explorer serait l'émission de couche L d'éléments de Z élevé ou de matériaux composés de plusieurs éléments. En ce qui concerne la durée de l'émission X, il est possible d'utiliser l'émission d'agrégats de Z élevé tels que le xénon. En effet, la durée d'émission X d'agrégats a récemment été mesurée à moins d'une picoseconde [10, 11]. L'émission X de type bétatron peut aussi apporter une solution au problème de la résolution temporelle accessible. D'autant plus que comme nous l'avons vu en introduction de ce manuscrit, cette émission X présente à la fois une durée de quelques dizaines de femtosecondes et une large bande spectrale. La gamme spectrale, actuellement mesurée jusqu'à quelques keV, peut

être étendue en optimisant l'accélération des électrons provoquée par sillage laser [12]. Enfin, l'émission Bremsstralhung, malgré sa faible intensité, est émise dans des gammes spectrales beaucoup plus énergétiques. Raisonnablement, le nombre de photons émis jusqu'à presque 10 keV peut encore être suffisamment important pour des expériences de spectroscopie d'absorption [13]. La durée d'émission de ce rayonnement X est inférieure à la picoseconde de part son processus de création lié aux électrons supra-thermiques. Pour palier au faible nombre de photons présents dans ces gammes d'énergies, nous pouvons envisager d'accumuler un nombre de tir élevé en utilisant des installations laser de haute cadence. Pour des installations laser monocoup, la faisabilité d'une telle source X doit être étudiée.

Bibliographie

[1] M. Harmand, F. Dorchies, O. Peyrusse, D. Descamps, C. Fourment, S. Hulin, S. Petit et J. J. Santos, Phys. of Plasmas **16**, 063301 (2009).

[2] F. Dorchies, M. Harmand, D. Descamps, C. Fourment, S. Hulin, S. Petit, O. Peyrusse et J. J. Santos, Appl. Phys. Lett. **93**, 121113 (2008).

[3] A. Mancic, J. Robiche, P. Antici, P. Audebert, C. Blancard, P. Combis, F. Dorchies, G. Faussurier, S. Fourmaux, M. Harmand, R. Kodama, L. Lancia, S. Mazevet, M. Nakatsutsumi, O. Peyrusse, V. Recoules, P. Renaudin, R. Sheperd et J. Fuchs, High Energy Density Phys., in press (2009).

[4] S. Mazevet and G. Zérah, Phys. Rev. Lett. **101**, 155001 (2008).

[5] V. Recoules et S. Mazevet, Phys. Rev. B **80**, 604110 (2009).

[6] O. Peyrusse, J. Phys. Condens. Matter **20**, 195211 (2008).

[7] A. Mancic, A. Levy, M. Harmand, M. Nakatsutsumi, P. Antici, P. Audebert, P. Combis, S. Fourmaux, S. Mazevet, O. Peyrusse, V. Recoules, P. Renaudin, J. Robiche, F. Dorchies et J. Fuchs, Phys. Rev. Lett. **104**, 035002 (2010).

[8] A. Lévy, F. Dorchies, M. Harmand, C. Fourment, S. Hulin, O. Peyrusse, J.J. Santos, P. Antici, P. Audebert, J. Fuchs, L. Lancia, A. Mancic, M. Nakatsutsumi, S. Mazevet, V. Recoules, P. Renaudin, S. Fourmaux, Plasma Phys. Control. Fusion, in press (2009).

[9] T. A. Hall, J. Al-Kuzee, A. Benuzzi, M. Koenig, J. Krishnan, N. Grandjouan, D. Batani, S. Bossi et S. Nicolella, Europhys. Lett. **41**, 495 (1998).

[10] F. Dorchies, F. Blasco, C. Bonté, T. Caillaud, C. Fourment et O. Peyrusse, Phys. Rev. Lett. **100**, 205002 (2008).

[11] S. Micheau, C. Bonté, F. Dorchies, C. Fourment, M. Harmand, H. Jouin, O. Peyrusse, B. Pons et J.J. Santos, High Energy Density Phys. **3**, 191 (2007).

[12] F. Albert, R. Shah, K. Ta Phuoc, R. Fitour, F. Burgy, J. P. Rousseau, A. Tafzi, D. Douillet, T. Lefrou et A. Rousse, Phys. Rev. E **77**, 056402 (2008).

[13] T. Lee, F. Benesch, Y. Jiang et C. G. Rose-Petruck, Chem. Phys. **299**, 233 (2004).

Annexe

Le code Averroès - Transpec est un code collisionnel - radiatif HETL basé, pour les corps lourds, sur le formalisme des supraconfigurations. Ce code se déroule en deux temps :
- Dans une première partie, le code Averroès calcule les énergies moyennes, et la largeur des supraconfigurations , les moments STA, et les taux moyens collisionnels - radiatifs mis en jeu.
- Dans un $2^{ième}$ temps, le code Transpec calcule les populations ioniques hors équilibre thermodynamique local (HETL) en utilisant les données calculées précédemment par le code Averroès. Ce calcul consiste à résoudre le système d'équations collisionnel radiatif simplifié par le formalisme des supraconfigurations. Le code Transpec permet aussi de générer le spectre d'émission ou de transmission.

Premièrement, le code Averroès construit les supraconfigurations. Dans un second temps, le taux radiatif moyen est calculé en prenant en compte l'ensemble des couplages radiatifs et collisionnels entre toutes les supraconfigurations. Finalement, le système des équations bilans (stationnaires ou non) est résolu pour obtenir les populations des différentes supraconfigurations.

Le code Transpec utilise les grandeurs issues du code Averroès pour en déduire l'ionisation moyenne, l'énergie interne, les émissivités et opacités. Il calcule aussi les populations de chaque espèce ionique. Il consiste en trois exécutables associées à un fichier de paramètres ajustables (cf. schéma 4.38).

La première, appellée *POP*, permet de calculer les populations de chaque espèce ionique et la durée de vie effective des niveaux excités. Le fichier *param* permet entre autre de régler les critères de convergence, la mise en jeu d'électrons chauds, de l'ionisation par pression, la géométrie, les ions et types de transitions considérées, leur gamme d'énergie... A ce niveau, le code peut être utilisé en configuration *monocell* ou en configuration *postprocess*. La première consiste à prendre en compte une cellule homogène de densité N_e et de température électronique T_e. La configuration *postprocess* permet d'utiliser un code hydrodynamique au préalable et d'insérer dans le code Averroès - Transpec des densités et températures inhomogènes et leurs évolutions temporelles.

La seconde exécutable, *HOP*, génère les émissivités locales et les opacités en considérant ou non l'effet Stark. Les paramètres liés à cette exécutable sont précisés dans le fichier *spec_don*. Il s'agit de décider si l'effet Stark est pris en compte et de définir la gamme spectrale sur laquelle les résultats seront affichés.

La dernière exécutable, *ETOC*, permet de tracer le spectre d'émission ou de transmission, à un angle et une géométrie donnés d'émission et avec un profil expérimental ajustable (convolution expérimentale). Les paramètres ajustables, spécifiés dans le fichier *spec_obs*, sont l'angle d'émission, la géométrie d'émission et la largeur de la gaussienne

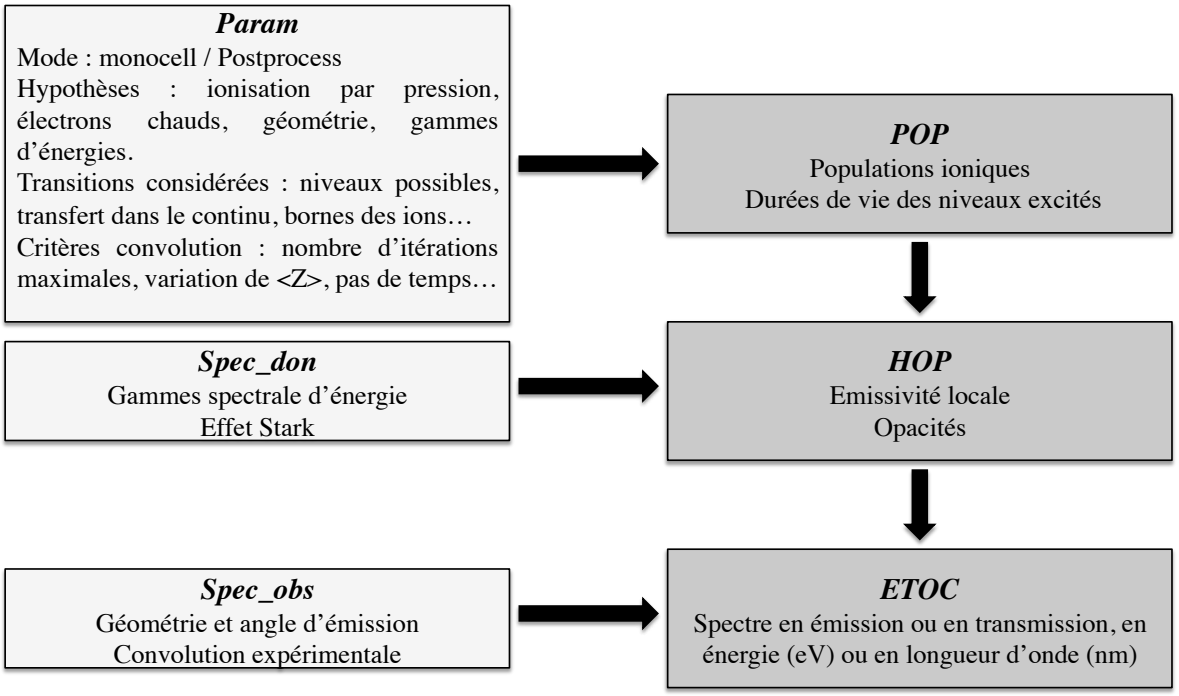


FIGURE 4.38 – Structure du code Averroès - Transpec.

de convolution expérimentale.

Liste de publications

Publications avec referee

Double conical crystal X-ray spectrometer for high resolution ultrafast X-ray Absorption Near-Edge Spectroscopy of Al K-edge.
A. Levy, F. Dorchies, O. Peyrusse, M. Harmand, D. Descamps, C. Fourment, S. Hulin, S. Petit et J. J. Santos
Soumis à Rev. of Sci. Instrum. (2010).

Picosecond Short-Range Disordering in Isochorically Heated Aluminum at Solid Density.
A. Mancic, A. Levy, M. Harmand, M. Nakatsutsumi, P. Antici, P. Audebert, P. Combis, S. Fourmaux, S. Mazevet, O. Peyrusse, V. Recoules, P. Renaudin, J. Robiche, F. Dorchies et J. Fuchs
Phys. Rev. Lett. **104**, 035002 (2010).

X-ray absorption for the study of warm dense matter
A. Lévy, F. Dorchies, M. Harmand, C. Fourment, S. Hulin, O. Peyrusse, J.J. Santos, P. Antici, P. Audebert, J. Fuchs, L. Lancia, A. Mancic, M. Nakatsutsumi, S. Mazevet, V. Recoules, P. Renaudin, S. Fourmaux
Plasma Phys. Control. Fusion **51**,124021 (2009).

Broad M-band multi-keV x-ray emission from plasmas created by a short high repetition rate laser
M. Harmand, F. Dorchies, O. Peyrusse, D. Descamps, C. Fourment, S. Hulin, S. Petit et J. J. Santos
Phys. of Plasmas **16**, 063301 (2009).

Broadband, high dynamics and high resolution charge coupled device-based spectrometer in dynamic mode for multi-keV repetitive x-ray sources
C. Fourment, N. Arazam, C. Bonte, T. Caillaud, D. Descamps, F. Dorchies, M. Harmand, S. Hulin, S. Petit et J.J. Santos
Rev. Sci. Instrum. **80**, 083505 (2009).

High-power 1kHz laser plasma x-ray source for ultrafast x-ray absorption near edge spectroscopy in the keV range.
F. Dorchies, M. Harmand, D. Descamps, C. Fourment, S. Hulin, S. Petit, O. Peyrusse et J. J. Santos
Appl. Phys. Lett. **93**, 121113 (2008).

High repetition rate laser produced soft x-ray source for ultrafast x-ray absorption near edge structure measurements
S. Fourmaux, L. Lecherbourg, M. Harmand, M. Servol et J. C. Kieffer
Rev. Sci. Instrum. **78**, 113104 (2007).

S. Micheau, C. Bonté, F. Dorchies, C. Fourment, M. Harmand, H. Jouin, O. Peyrusse, B. Pons et J.J. Santos
High Energy Density Phys. **3**, 191 (2007).

High dynamic range streak camera for sub-picosecond time-resolved X-ray spectroscopy
C. Bonté, M. Harmand, F. Dorchies, S. Magnan, V. Pitre, J.-C. Kieffer, P. Audebert, J.-P. Geindre
Rev. Sci. Instrum. **78**, 043503 (2007).

Proceedings de Conferences

Isochoric heating of solids by laser-accelerated protons : Experimental characterization and self-consistent hydrodynamic modeling.
A. Mancic, J. Robiche, P. Antici, P. Audebert, C. Blancard, P. Combis, F. Dorchies, G. Faussurier, S. Fourmaux, M. Harmand, R. Kodama, L. Lancia, S. Mazevet, M. Nakatsutsumi, O. Peyrusse, V. Recoules, P. Renaudin, R. Shepherd, J. Fuchs.
High Energy Density Physics HEDP 6, 21 (2010)

Temporal and spectral behavior of sub-picosecond laser-created X-ray sources from low- to moderate-Z elements.
S. Bastiani-Ceccotti, P. Renaudin, F. Dorchies, M. Harmand, O. Peyrusse, P. Audebert, S. Jacquemot, A. Calisti et D. Benredjem.
High Energy Density Physics HEDP 6, 99 (2010)

Dynamique temporelle des sources X créées par laser sub-picoseconde.
S. Bastiani-Ceccotti, P. Renaudin, F. Dorchies, M. Harmand, O. Peyrusse, S. Jacquemot, E. Brambrink, M. Geissel et P. Audebert.
Journal de Physique IV (accessible en ligne Doi : 10.1051/uvx/2009003)

Absorption X près des seuils (XANES, EXAFS) pour l'étude de la matière dense.
M. Harmand, F. Dorchies, O. Peyrusse, C. Fourment, S. Hulin, J.J. Santos.
Journal-de-physique-IV. (accessible en ligne DOI : 10.1051/uvx/2009012)

Dynamics of rare gas nanoclusters irradiated by short and intense laser pulses.
S. Micheau, C. Bonté, F. Dorchies, C. Fourment, M. Harmand, H. Jouin, O. Peyrusse, B. Pons, J.J. Santos.
High Energy Density Physics HEDP 3, 191 (2007)

Caractérisation spectrale et temporelle de l ?émission X issue de l ?interaction laser-agrégats.
C. Bonté, C. Fourment, M. Harmand, H. Jouin, S. Micheau, O. Peyrusse, B. Pons, J.J. Santos, F. Dorchies.
Journal-de-physique-IV. 138, 73 (2006)

Time-resolved x-ray spectra of hot and dense plasmas from laser-clusters interaction.
F. Dorchies, C. Bonté, F. Blasco, T. Caillaud, R. Fedosejevs, C. Fourment, M. Harmand, O. Peyrusse, J.J. Santos, J. Stevefelt.
Journal-de-physique-IV. 133, 963 (2006)

Ultra-short X-ray source from laser-clusters interaction.
F. Dorchies, C. Bonté, F. Blasco, T. Caillaud, C. Fourment, M. Harmand, O. Peyrusse, J.J. Santos, J. Stevefelt.
Proceedings of SPIE 5975, 597501 (2006)