



Accord de phase et quasi-accord de phase en génération d'harmoniques d'ordres élevés : effet de la pression et du guidage laser

Sameh Daboussi

► To cite this version:

Sameh Daboussi. Accord de phase et quasi-accord de phase en génération d'harmoniques d'ordres élevés : effet de la pression et du guidage laser. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2013. Français. NNT : 2013PA112030 . tel-00840425

HAL Id: tel-00840425

<https://theses.hal.science/tel-00840425>

Submitted on 2 Jul 2013

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

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

Thèse de doctorat de l'Université Paris Sud

Spécialité : LASER ET MATIÈRE

Présentée et soutenue par :

Sameh DABOUSSI

Pour obtenir le grade de :

Docteur en Physique

Sujet de thèse :

**Accord de phase et quasi accord de phase en
génération d'harmoniques d'ordres élevés :
effet de la pression et du guidage laser**

Soutenue publiquement le 28 février 2013 devant le jury composé de :

Rapporteurs :	M. Andrei BELSKY	- LPCML (Université de Lyon 1)
	M. Eric MEVEL	- CELIA (Université de Bordeaux 1)
Examineurs :	M. Philippe ZEITOUN	- LOA (École Polytechnique)
	M. Meherzi OUESLATI	- USR (Faculté des Sciences de Tunis)
Président du jury :	M. Fabian ZOMER	- LAL (Université Paris Sud 11)
Directrice de thèse :	Mme Sophie KAZAMIAS	- LASERIX (Université Paris Sud 11)

Résumé

L'interaction d'une impulsion laser intense ($\simeq 10^{14}$ W/cm²) et de courte durée (femtoseconde) avec un gaz rare induit une polarisation hautement non-linéaire dans le domaine spectral XUV ; les harmoniques d'ordre élevés. En raison des propriétés spécifiques du rayonnement harmonique et de ses applications, cette thématique est particulièrement riche et fertile. La production efficace d'harmoniques d'ordres élevés repose à la fois sur la réponse non-linéaire de l'atome unique et un comportement collectif.

Le fil directeur des études présentées dans cette thèse est la compréhension et le contrôle de l'accord de phase ou du quasi accord de phase en présence d'une ionisation substantielle du gaz générateur. Dans ce contexte, nous montrons l'importance de la longueur de cohérence sur l'accord de phase en génération d'harmoniques. Nous étudions sa dépendance en fonction de la focalisation du laser, de la pression mais aussi sa dépendance temporelle liée à l'ionisation, effet que nous avons mis en évidence lorsqu'on a cherché à optimiser une double impulsion harmonique.

Le travail de développement, sur la station LASERIX, de la source à double impulsion harmonique générée à partir d'un même milieu gazeux et avec un délai picoseconde variable est présenté. Cette source possède un véritable potentiel d'applications scientifiques, injectée dans un milieu amplificateur plasma qu'on appelle laser X, la double impulsion permettra de sonder la réponse temporelle de ce type de milieu.

Par ailleurs, des expériences et des simulations menées sur la génération d'harmoniques en propagation guidée visent ainsi à étendre les spectres harmoniques vers les courtes longueurs d'ondes, zone spectrale pour laquelle le laser X à plasmas est émis. Ceci donnera l'accès à une source offrant des caractéristiques complémentaires des lasers X, sources développées en parallèle sur la station LASERIX.

Mots clefs :

Optique non-linéaire, génération d'harmoniques d'ordres élevés, interaction laser-gaz, accord de phase, quasi-accord de phase.

Abstract

The interaction of an intense laser pulse of short duration with a rare gas induces a highly non-linear polarization in the XUV spectral range : the high order harmonics. Due to the specific properties of the harmonic radiation and its applications, this issue is particularly rich and fertile. The efficient production of high order harmonics is based both on the non-linear response of the single atom and on collective behavior.

The principle of the research presented in this thesis is the understanding and control of phase matching or quasi-phase matching in the presence of substantial ionization in the generating gas. In this context, we show the importance of the coherence length on the phase matching in High harmonic generation. We study its dependence on laser focusing, pressure but also its time dependence related to ionization.

Moreover, experiments and simulations aim at extending harmonic spectra towards shorter wavelengths, a spectral range for which the X Ray Laser is emitted. This will give access to a source with complementary characteristics as regards to X-ray lasers. This source shall be developed in parallel on the LASERIX station or injected in soft X-ray laser amplifiers.

Keywords :

Non-linear optics, high harmonic generation, phase matching, quasi-phase matching.

Table des matières

Résumé	iii
Abstract	v
Introduction	1
1 Physique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés	7
1.1 Introduction	7
1.2 Aspects microscopiques de la génération d'harmonique	8
1.2.1 Processus d'ionisation des gaz rares	8
1.2.2 Modèle à trois étapes : modèle semi-classique	10
1.2.3 Modèle quantique de Lewenstein	15
1.3 Aspects macroscopiques et accord de phase	19
1.3.1 Cadre général de l'accord de phase	19
1.3.2 Accord de phase dans un milieu dilué	20
1.3.3 Accord de phase dans un milieu absorbant	21
1.3.4 Accord de phase dans un milieu dispersif	23
1.4 Optimisation de la génération d'harmonique	23
1.4.1 Influence du gaz générateur	24
1.4.2 Influence de l'éclairement	24
1.4.3 Influence de la durée d'impulsion laser	26
1.5 Récapitulatifs des caractéristiques des harmoniques	27
1.5.1 Caractéristiques spectrales : atome unique	27
1.5.2 Caractéristiques spatiales	28
1.5.3 Efficacités typiques	28
1.6 Conclusion	28
2 Influence de la pression sur l'accord de phase en géométrie de forte focalisation	31
2.1 Introduction et motivation	31
2.2 Présentation des résultats de Seres et al	32
2.3 Modélisation 1D dépendante du temps	34
2.3.1 Description du modèle 1D	34
2.3.2 Limites et avantages du modèle	34
2.4 Calcul de la longueur de cohérence	35
2.4.1 Vecteur d'onde des harmoniques	35
2.4.2 Gradient de phase propre du dipôle	35
2.4.3 Vecteur d'onde du laser IR	36
2.4.4 Vecteur d'onde de désaccord	40
2.4.5 Longueur d'absorption	40

2.5	Calcul du signal harmonique total	41
2.6	Application et résultats	42
2.7	Dépendance de la longueur de cohérence en fonction de la pression	44
2.7.1	Basse intensité : faible ionisation	44
2.7.2	Dépendance temporelle : prise en compte de l'ionisation	46
2.8	Inflexions du signal pour certaines pressions	49
2.8.1	Cas de faible ionisation	49
2.8.2	Inflexions en présence de l'ionisation	50
2.9	conclusion	52
3	Mise en place et développement de la ligne harmonique de la station LASE- RIX	55
3.1	Généralités sur LASERIX	56
3.2	Caractéristiques du laser Pilote	56
3.3	Installation de la ligne harmonique de LASERIX	59
3.3.1	Rôle et intérêt de la ligne harmonique	59
3.3.2	Schéma d'ensemble	60
3.4	Systèmes de caractérisation des harmoniques	60
3.4.1	Spectromètre à transmission	60
3.4.2	Caractérisation spatiale bidimensionnelle du faisceau XUV	62
3.4.3	Photodiode XUV calibrée	63
3.5	Estimation de l'énergie harmonique par impulsion	63
3.5.1	Transmission du filtre	64
3.5.2	Estimation de l'énergie harmonique avec la caméra XUV	65
3.5.3	Estimation de l'énergie harmonique avec la photodiode XUV	66
3.5.4	Comparaison entre les estimations du flux de photon avec la photodiode et avec la caméra CCD XUV	67
3.6	Optimisation et caractérisation de la source de rayonnement harmonique de LA- SERIX	68
3.6.1	Étude des spectres	69
3.6.2	Effet de l'énergie IR	72
3.6.3	Effet de la diaphragmation du faisceau d'excitation	72
3.6.4	Effet de la pression	74
3.7	Récapitulatif des caractéristiques de la source harmonique	76
3.8	Étude de l'aspect spatial des harmoniques	77
3.8.1	Importance de la divergence du faisceau harmonique	77
3.8.2	Paramètres influençant la divergence harmonique	77
3.8.3	Effet de la diaphragmation du faisceau IR sur la divergence des harmoniques	79
3.8.4	Effet de la pression du gaz sur la divergence des harmoniques	84
3.9	Application : Mesure de la résolution temporelle d'une caméra à balayage de fente	86
3.9.1	Enjeu et principe	86
3.9.2	Caméra à balayage de fente	86
3.9.3	Résultat de mesure temporelle obtenu	89
3.9.4	Perspectives	90

3.10 Conclusion	90
4 Génération d'une double impulsion harmonique avec une structure picoseconde	93
4.1 Introduction	93
4.2 Position du problème	94
4.3 Processus de génération quasi-colinéaire	96
4.4 Dispositif expérimental	98
4.4.1 Interféromètre infrarouge	98
4.4.2 Approche de génération suivie	100
4.4.3 Systèmes de caractérisation des faisceaux XUV	102
4.5 Effet du délai temporel	104
4.5.1 Travail expérimental	104
4.5.2 Estimations théoriques du temps caractéristique de recombinaison du plasma	110
4.6 Discussion des spectres harmoniques en double impulsion	112
4.7 Accord de phase dans la génération de double impulsion XUV	114
4.7.1 Influence de l'énergie de la première impulsion infrarouge	114
4.7.2 Influence de la pression	117
4.8 Génération d'harmoniques avec un délai temporel nul	122
4.8.1 Résultats expérimentaux obtenus	123
4.8.2 Modélisation de la génération d'harmoniques à délai nul	124
4.9 Conclusion	129
5 Génération d'harmoniques en configuration guidée	131
5.1 Introduction	131
5.2 Propriétés du guidage dans un tube capillaire	132
5.2.1 Tubes capillaires	132
5.2.2 Mode propre d'un tube capillaire	132
5.2.3 Principe du couplage	136
5.2.4 Battements de mode	139
5.3 Génération d'harmoniques dans des tubes capillaires	143
5.3.1 Accord de phase des harmoniques dans un capillaire	143
5.3.2 Limite de l'accord de phase des harmoniques dans un capillaire	145
5.3.3 Quasi accord de phase des harmoniques dans un capillaire	146
5.4 Campagne expérimentale sur LASERIX : juillet 2011	154
5.4.1 Tube capillaire utilisé	154
5.4.2 Dispositif expérimental de génération	156
5.4.3 Technique d'alignement du capillaire	158
5.5 Stabilité de pointé laser sur la ligne harmonique de LASERIX	158
5.5.1 Mesure de la stabilité du pointé	158
5.5.2 Amélioration de la stabilité du pointé	160
5.6 Campagne expérimentale au CELIA : Mars et avril 2012	162
5.6.1 Ligne de lumière harmonique de la salle Éclipse 2	162
5.6.2 Résultats obtenus	165

5.6.3 Conclusion	181
Conclusion	183
Bibliographie	187
A Liste de publications	197

Table des figures

1.1	L'atome est initialement dans son état de repos où l'électron est piégé dans un puits de potentiel coulombien. Le champ laser abaisse la barrière de potentiel et rend l'ionisation possible par effet tunnel.	11
1.2	Accélération de l'électron dans le continuum du champ laser.	11
1.3	Recombinaison de l'électron à son ion parent et émission d'un photon XUV.	12
1.4	Trajectoire du noyau et de l'électron dans le référentiel de « Krammers-Henneberger » en fonction de la phase du champ laser [KAZAMIAS 2003].	13
1.5	Énergie cinétique au moment de la recombinaison de l'électron à son ion parent en fonction de la phase du laser à l'ionisation [Lytle 2008].	14
1.6	Allure d'un spectre harmonique typique, les raies correspondent à des harmoniques impaires. Un plateau pour lequel l'efficacité est constante est suivi d'une chute rapide du signal au-delà d'une fréquence de coupure.	15
1.7	Phase et amplitude du dipôle harmonique en fonction de l'intensité laser pour l'harmonique 45 générée dans le néon. Les valeurs sont obtenues par la méthode de la phase stationnaire et résultent de la contribution des deux chemins quantiques prédominants [Pascal Salieres 1995b].	18
1.8	Propagation des dipôles harmoniques générés à différentes phase du champ infra-rouge jusqu'à la sortie du milieu générateur.	19
1.9	Longueur d'absorption pour les trois gaz (argon, néon et xénon) en fonction de la longueur d'onde exprimée en nm. La pression est égale à 15 mbar pour les trois gaz (argon, néon et xénon).	22
1.10	Évolution du nombre de photon total généré dans le xénon, l'argon, le néon et l'hélium en fonction de l'ordre harmonique. L'intensité laser est de l'ordre de $1.5 \cdot 10^{15}$ W/cm ² . Figure extraite de la référence [L'Huillier 1993].	24
1.11	Évolution du signal de l'harmonique H15 générée dans l'argon en fonction de l'intensité du laser. Figure extraite de la référence [C.-G. Wahlstrom 1993].	25
1.12	Nombre de photons HHG en fonction de l'ordre harmonique. (a) génération dans l'argon, pour des intensités entre 10^{14} W/cm ² à $3.4 \cdot 10^{14}$ W/cm ² . (b) génération dans le néon, pour des intensités entre $1.1 \cdot 10^{14}$ W/cm ² à $7.8 \cdot 10^{14}$ W/cm ² . Figure extraite de la référence [C.-G. Wahlstrom 1993].	26
1.13	Signal harmonique obtenu dans l'argon pour trois impulsions laser de durées différentes (25 fs, 50 fs et 100 fs) à intensité maximale constante ($4 \cdot 10^{14}$ W/cm ²). Cette figure est extraite de la référence [Ivan P. Christov 1996].	27
1.14	Signal harmonique généré dans le néon pour deux impulsions de durées différentes (7 fs et 30 fs). La fréquence de coupure ν_{max} augmente quand la durée d'impulsion τ diminue. Figure extraite de la référence [E.Priori 2000].	27

2.1	Variation du signal harmonique en nJ / impulsion en fonction de la pression d'argon pour une impulsion centrée à 1054 nm et de durée 350 fs. L'intensité laser est égale à (a) $4 \cdot 10^{14}$ W/cm ² , (b) $3 \cdot 10^{14}$ W/cm ² , (c) $2 \cdot 10^{14}$ W/cm ² . Figure extraite de la référence [J. Seres 2010a].	33
2.2	Variation du signal harmonique en nJ / impulsion en fonction de la pression d'argon pour une impulsion centrée à 1054 nm et de durée 350 fs. L'intensité laser est égale à (d) $1.5 \cdot 10^{14}$ W/cm ² , (e) $1.1 \cdot 10^{14}$ W/cm ² . Figure extraite de la référence [J. Seres 2010a].	34
2.3	Évolution de la fraction ionique en fonction du temps pour des valeurs d'intensité variable de $1.1 \cdot 10^{14}$ W/cm ² jusqu'à $4 \cdot 10^{14}$ W/cm ² . La durée d'impulsion est 350 fs et le maximum de l'impulsion se situe à 500 fs. Le degré d'ionisation est quasiment nul pour $I=1.1 \cdot 10^{14}$ W/cm ² , dès que $I > 2 \cdot 10^{14}$ W/cm ² , l'ionisation est pratiquement totale. Les états de charge supérieurs peuvent être ionisés quand $I > 4 \cdot 10^{14}$ W/cm ² .	36
2.4	Évolution de la fraction ionique au cours du temps pour cinq durées d'impulsions différentes (50, 100, 200, 350 et 500 fs). Pour les cinq cas, l'intensité maximale est fixée à $1.5 \cdot 10^{14}$ W/cm ² .	37
2.5	Évolution de la dispersion de Gouy en fonction de la longueur de la zone de Rayleigh. Le calcul est effectué pour trois valeurs de position de la cellule par rapport au foyer du laser (2 mm avant, 2 mm après et au foyer). Cette dispersion correspond à la modification du vecteur d'onde du laser, elle est due la focalisation du laser de pompe.	38
2.6	Longueur d'absorption en mm pour 100 mbar d'argon en fonction de l'ordre harmonique.	41
2.7	Variation du signal harmonique calculé avec le code 1D en fonction de la pression d'argon pour l'harmonique H31. L'intensité laser est égale à $1 \cdot 10^{14}$ W/cm ² , $1.5 \cdot 10^{14}$ W/cm ² et $2 \cdot 10^{14}$ W/cm ² .	42
2.8	Variation du signal harmonique calculé avec le code 1D en fonction de la pression d'argon pour l'harmonique H55. L'intensité laser est égale à $1 \cdot 10^{14}$ W/cm ² , $1.5 \cdot 10^{14}$ W/cm ² et $2 \cdot 10^{14}$ W/cm ² .	43
2.9	Variation du signal de l'harmonique H31 en fonction de la pression (courbe bleu), courbe de croissance quadratique (★), longueur de cohérence en mm (courbe rouge). La durée de l'impulsion est 350 fs et la longueur d'onde est égale à 1054 nm.	45
2.10	Évolution du degré d'ionisation optimal en fonction de la pression du gaz générateur.	48
2.11	L'évolution temporelle de la longueur de cohérence en mm et du signal harmonique (en unités arbitraires) pour deux valeurs de pression $P = 150$ mbar et $P = 250$ mbar. L'harmonique étudiée est l'harmonique H43. La courbe noire représente l'enveloppe temporelle du laser IR, $I = 2 \cdot 10^{10}$ W/cm ² .	49
2.12	Évolution temporelle de la longueur de cohérence en mm (cercles) et du signal harmonique de H55 (triangles) pour trois valeurs de pression : $P = 30$, 85 et 150 mbar. L'enveloppe de l'impulsion est représentée par la courbe noire, avec $I = 10^{14}$ W/cm ² .	51

3.1	Vue d'ensemble de la salle contenant la chaîne du laser pilote IR de la station LASERIX et de la salle expérimentale où nous avons installé les deux lignes de lumière XUV.	57
3.2	Schéma de principe de la chaîne laser Ti :Sa de la station LASERIX.. . . .	58
3.3	Schéma du dispositif de génération d'harmoniques d'ordres élevés mis en oeuvre sur LASERIX.	60
3.4	Photographies de la salle d'expérience prises respectivement au mois de janvier 2010 (photo (a)) et au mois de juin 2010 (photo (b)).	61
3.5	Schéma complet du spectromètre par transmission utilisant une optique rasante. Méthode de détermination des ordre harmoniques générés.	62
3.6	Schéma de principe de mesure bidimensionnelle du faisceau XUV.. . . .	63
3.7	Transmission théorique calculée pour 200 nm d'épaisseur d'aluminium et 10 nm d'oxyde d'aluminium (Al_2O_3) (source : www.cxro.lbl.gov).	64
3.8	Courbe d'évolution de l'efficacité quantique de la caméra XUV Princeton PIXIS-XO : 1024 B.	65
3.9	Efficacité quantique de la photodiode calibrée NIST SN411 Al_2O_3	66
3.10	Comparaison entre les mesures du signal harmonique effectuées avec la photodiode XUV et la caméra CCD XUV.	67
3.11	Allure temporelle de l'impulsion laser de la station LASERIX utilisée pour la génération d'harmoniques.	68
3.12	Spectre harmonique généré dans l'argon mesuré après un filtre Al de 0.2 μm d'épaisseur pour les conditions d'optimisation suivantes : $P = 15$ mbar, $\phi_{iris} = 11$ mm, $E_{iris} = 2$ mJ.	70
3.13	Intensité relative des raies harmoniques obtenues dans l'argon déduites du spectre de la figure 3.12. On y voit les harmoniques entre 15 et 29, ce qui correspond à une fenêtre spectrale qui s'étend de 27 nm à 53 nm.	70
3.14	Spectre harmonique généré dans le Néon pour les conditions d'optimisation suivantes : $P = 30$ mbar, $\phi_{iris} = 14$ mm, $E_{iris} = 6$ mJ.	71
3.15	Spectre harmonique construit à partir du spectre 3.14. On voit les harmoniques entre 23 et 47, ce qui correspond à une fenêtre spectrale qui s'étend de 17 nm à 35 nm. La coupure spectrale autour de 17.05 nm due à la présence du filtre aluminium est bien nette sur ce spectre.	71
3.16	Évolution du signal total intégré sur la caméra CCD XUV en fonction de E_{IR} . L'énergie IR est mesurée après un iris fermé à 10 mm, $P_{Ar} = 15$ mbar.	72
3.17	Évolution du signal total intégré sur la caméra CCD XUV en fonction de ϕ_{iris} pour une pression de l'argon fixée à 15 mbar.	73
3.18	Évolution du signal de l'harmonique H21, générée dans l'argon, en fonction du diamètre de l'iris. Évolution du signal harmonique calculé pour les mêmes conditions expérimentales (ligne continue). Image extraite de la référence [S. Kazamias 2002].	74
3.19	Évolution du signal total intégré sur la caméra CCD XUV en fonction de la pression d'argon, $\phi_{iris} = 11$ mm et l'énergie mesurée après l'iris est $E_{IR} = 2$ mJ.	75
3.20	Évolution du signal total intégré sur la caméra CCD XUV en fonction de la pression de néon, $\phi_{iris} = 14$ mm et l'énergie mesurée après l'iris est $E_{IR} = 6$ mJ.	75

3.21	Variation de la divergence calculée en fonction de l'ordre harmonique pour plusieurs ouvertures de l'iris. Le calcul est effectué pour le premier chemin quantique. La divergence des harmoniques augmente avec l'ordre harmonique et avec l'ouverture de l'iris.	80
3.22	Variation de la divergence calculée en fonction de l'ordre harmonique pour plusieurs ouvertures de l'iris. Le calcul est effectué pour le second chemin quantique. La divergence des harmoniques diminue avec l'ordre harmonique mais augmente avec l'ouverture de l'iris.	81
3.23	Évolution de la divergence moyenne des ordres harmoniques entre 19 et 31 en fonction de l'ouverture de l'iris. On observe une faible divergence du chemin 1 contre une divergence plus importante du deuxième chemin quantique.	81
3.24	Profil spatial du faisceau harmonique total transmis par le filtre aluminium et mesuré après 3 m de propagation.	82
3.25	(a) Évolution du signal harmonique total intégré en fonction du diamètre de l'iris. (b) Divergence du faisceau XUV en fonction de l'iris pour tous les ordres harmoniques. La pression est fixée à 20 mbar d'argon.	83
3.26	Divergence du faisceau harmonique en fonction de l'iris pour des pression d'argon de 10, 20, 30 et 40 mbar. La courbe en rouge et rose présentent respectivement les divergences calculées pour le premier et le second chemin quantique.	85
3.27	Schéma d'un tube cathodique d'une caméra à balayage de fente.	87
3.28	Rampe de balayage.	87
3.29	Schéma de l'expérience de mesure de la résolution temporelle de la caméra à balayage de fente.	88
3.30	Résolution temporelle d'une caméra à balayage de fente mesurée à l'aide d'une source harmonique femtoseconde. La résolution temporelle est de 2.00 ± 0.18 ps.	89
4.1	Schéma de principe de la génération de double impulsion harmonique. Les deux impulsions IR issues de l'interféromètre sont focalisées sur une cellule remplie de gaz. Les harmoniques générées se propagent colinéairement avec l'IR qui sera bloqué par un filtre Aluminium.	95
4.2	Dispositif expérimental de l'expérience de conversion de fréquence à l'aide de l'interférométrie de deux faisceaux XUV. Figure extraite de la référence [S. Dobosz 2009].	96
4.3	Dimensionnement des deux faisceaux IR au sein de la cellule de 10 mm de longueur. Le rayon de la tache focale en $1/e^2$ est de l'ordre de $80\mu\text{m}$, la zone de Rayleigh est donc de 23 mm.	97
4.4	Dispositif expérimental pour la génération quasi-colinéaire d'une double impulsion harmonique : BS, lame séparatrice 50/50 ; WP, lame demi onde ; P, Polariseur à Brewster ; NF, contrôle du champ proche ; FF, contrôle actif du champ lointain. La polarisation de l'impulsion réfléchiée est contrôlée par la lame d'onde WP2. L'énergie réfléchiée est ajustée par l'intermédiaire de WP1+P. M1 et M2, deux miroirs agilis permettant d'effectuer la superposition des deux faisceaux IR lors de la recombinaison.	99

4.5	Photo de l'interféromètre de Mach-Zehnder utilisé pour toute la campagne d'expériences de la génération de double impulsion harmonique. La platine motorisée constitue la ligne à retard utilisée pour changer le délai entre les impulsions IR. Les miroirs actifs M1 et M2 sur la voie transmise permettent de contrôler la superposition des deux taches focales lors de la recombinaison.	100
4.6	Enregistrement des champs proches et lointains pour le contrôle des deux faisceaux de pompe au foyer. (a) Champ proche et lointain d'un des deux faisceaux IR. (b) Champ proche et lointain pour deux faisceaux IR séparés au foyer. (c) Champ proche et lointain pour deux faisceaux IR superposés au foyer.	101
4.7	Étapes suivies pour la génération de double impulsion : (a) optimisation de la première impulsion harmoniques (impulsion réfléchie), (b) optimisation de la deuxième impulsion harmoniques (impulsion transmise), (c) génération de la double impulsion XUV.	102
4.8	Schéma de principe du spectromètre à réseau pour la caractérisation spectrale des harmoniques. Le miroir est monté sur une platine de translation pour pouvoir envoyer le faisceau vers la caméra de caractérisation spatiale.	103
4.9	Spectres des harmoniques générées dans 15 mbar d'argon par 2 faisceaux croisés diaphragmés par un iris de 11 mm d'ouverture et de même énergie focalisée 2 mJ. L'axe horizontal correspond à la dimension spectrale et l'axe vertical correspond à la dimension spatiale.	103
4.10	Schéma de principe du système de caractérisation spatiale des harmoniques. Le miroir du spectromètre est retiré pour permettre aux harmoniques de se propager jusqu'à la caméra XUV. Un filtre d'aluminium de 200 nm d'épaisseur est installé pour bloquer l'infrarouge et transmettre les harmoniques.	104
4.11	Profil expérimental de tache focale pour les deux faisceaux réfléchi et transmis obtenus par le système d'imagerie au foyer. L'iris est de 10 mm de diamètre pour chacun des deux faisceaux.	105
4.12	Courbes d'optimisation des faisceaux XUV générés par les faisceaux réfléchi et transmis en fonction de la pression d'argon. Pour chaque optimisation, l'un des deux bras est bloqué.	106
4.13	Longueur d'absorption dans l'argon pour une pression de 15 mbar en fonction de la longueur d'onde.	107
4.14	Signal harmonique mesuré pour la première (cercle) et la deuxième impulsion (carré) en fonction du délai en ps pour une pression de 15 mbar d'argon. Les signaux sont normalisés par rapport au maximum de signal généré par chaque faisceau seul. Ces mesures correspondent à l'intensité totale intégrée sur la caméra XUV CCD.	108
4.15	Images des empreintes du faisceau harmonique généré isolément par l'impulsion transmise (a) et réfléchie (b), (c) Empreinte des faisceaux harmoniques générées simultanément par les deux faisceaux de pompe (délai 10 ps).	109

4.16	Signal harmonique mesuré pour la première (cercle) et la deuxième impulsion (carré) en fonction du délai en ps pour une pression d'argon de 15 mbar. Les signaux sont normalisés par rapport aux signaux générés par chaque faisceau seul. Ces mesures correspondent à l'intensité totale intégrée sur la caméra XUV CCD.	109
4.17	Spectre harmonique généré par la première (a) et la deuxième (b) impulsion IR, pour un délai fixé à 10 ps. La mesure des deux spectres est obtenue sur la même image en un seul tir.	112
4.18	Spectre d'intensité du signal harmonique déduit de la mesure de la figure 4.18 par intégration des différentes raies. Ces spectres ont été générés dans 15 mbar d'argon par la première (a) et la deuxième (b) impulsion IR. Pour les deux spectres on observe les ordres harmoniques de 15 à 27.	113
4.19	Évolution des signaux XUV induits de la première et de la deuxième impulsion harmonique dans l'argon en fonction de l'énergie IR du premier faisceau. Le délai entre les 2 impulsions est fixé à 10 ps et la pression de gaz de 15 mbar.	115
4.20	Évolution de l'intensité et du degré d'ionisation calculé dans l'argon avec les taux ADK pour une première impulsion de durée 50 fs et d'intensité $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Le maximum est situé à 100 fs.	116
4.21	Évolution de l'intensité et du degré d'ionisation calculé dans l'argon avec les taux ADK pour la deuxième impulsion de durée 50 fs et d'intensité $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Le maximum est situé à 100 fs.	117
4.22	Évolution du signal généré par chacune des impulsion en fonction de la pression pour un délai fixé à 10 ps. L'intensité au foyer des deux faisceaux est de l'ordre de $I = 1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$	120
4.23	Évolution de la longueur de cohérence pour l'harmonique H25 générée dans l'argon en fonction de la pression pour cinq valeurs de longueur de la zone de Rayleigh. Le taux d'ionisation est fixé à 2.25 % et la pression varie de 3 à 30 mbar.	121
4.24	Évolution du signal généré par chacune des impulsion en fonction de la pression pour un délai fixé à 10 ps. L'intensité au foyer des deux faisceaux est plus importante, de l'ordre de $1.75 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$	122
4.25	Empreintes de faisceaux harmoniques générés respectivement dans 15 mbar d'argon et dans 30 mbar de néon. Les empreintes correspondent à la génération avec l'impulsion réfléchie, transmise et les deux impulsions à délai nul.	124
4.26	(a) Cartes d'évolution de l'intensité pic pour un faisceau gaussien ($w_0 = 80 \mu\text{m}$ et $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$). (b, c d et e) Cartes d'évolution de l'intensité pic résultant de l'interférence entre deux faisceaux équivalents croisés à délai nul sous un angle de : 0, 1, 5 et 10 mrad). Plus l'angle de non-colinéarité est grand plus la taille de la zone efficace de génération est rétrécit.	126
4.27	(a) Signal de l'harmonique 25 générée dans 20 mbar d'argon par un seul faisceau supposé gaussien ($I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $w_0 = 80 \mu\text{m}$). (b) Signal de l'harmonique 25 générée dans 20 mbar d'argon par un deux faisceaux croisés à délai nul sous un angle de 1 mrad ($I = 4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $w_0 = 80 \mu\text{m}$).	128

4.28	(a) Évolution du signal harmonique intégré en fonction de l'ordre harmonique pour le cas d'un seul faisceau laser d'intensité 10^{14} W/cm ² . (b) Évolution du signal harmonique intégré en fonction de l'ordre harmonique pour le cas de deux faisceaux laser, l'intensité équivalente est $4 \cdot 10^{14}$ W/cm ² . La pression de l'argon est fixée à 20 mbar pour les deux cas.	129
5.1	(a) Longueurs d'atténuation en fonction du rayon du capillaire pour les modes $m = 1$ à 10. (b) Longueurs d'atténuation en fonction du mode m pour quatre valeurs de rayon du capillaire $R_{cap} = 50, 100, 150$ et $200 \mu\text{m}$. La longueur d'onde du laser est de 800 nm.	135
5.2	Coefficient de couplage C_{1m} ($m=1$ à 10) pour une faisceau gaussien en fonction du paramètre $\chi = \frac{w_0}{R_{cap}}$. La courbe Somme représente la sommation sur m entre 1 et 10 des coefficients C_{1m} ($\sum_1^{10} C_{1m}$).	137
5.3	Coefficient de couplage C_{1m}^* ($m=1$ à 10) pour une faisceau gaussien en fonction du paramètre $\chi = \frac{w_0}{R_{cap}}$. La courbe Somme représente la sommation sur m entre 1 et 10 des coefficients C_{1m}^* ($\sum_1^{10} C_{1m}^*$).	138
5.4	Coefficient de couplage C_{1m} ($m=1$ à 10) pour une tache d'Airy en fonction du paramètre $\chi = \frac{r_0}{R_{cap}}$. La courbe Somme représente la sommation sur m entre 1 et 10 des coefficients C_{1m} ($\sum_1^{10} C_{1m}$).	139
5.5	Coefficient de couplage C_{1m}^* ($m=1$ à 10) pour une tache d'Airy en fonction du paramètre $\chi = \frac{r_0}{R_{cap}}$. La courbe Somme représente la sommation sur m entre 1 et 10 des coefficients C_{1m}^* ($\sum_1^{10} C_{1m}^*$).	140
5.6	Profils d'intensité calculés analytiquement pour un faisceau d'air et un faisceau gaussien ($\lambda = 800\text{nm}$) se propageant dans un capillaire de $101 \mu\text{m}$ de rayon. Le paramètre χ étant égal à 1.05 pour le profil d'air et 0.64 pour un profil gaussien. Les figures (a) et (b) correspondent au cas d'un calcul incluant seulement les contributions des deux premiers modes (EH_{11} et EH_{12}). Les figures (c) et (d) correspondent au cas du calcul incluant les contributions des vingt premiers modes ($m = 1$ à 20).	141
5.7	Profils d'intensité calculés analytiquement pour un faisceau d'air et gaussien ($\lambda = 800\text{nm}$). Le paramètre χ étant égal à 0.7 pour le profil d'air et 0.2 pour un profil gaussien. Deux rayons du tubes capillaires différents ont été étudié ($R_{cap} = 101$ et $150 \mu\text{m}$).	142
5.8	Évolution du signal harmonique en fonction de la distance de propagation dans le cas d'un bon accord de phase (courbe bleu), quasi-accord de phase avec une inversion périodique de la structure du matériau non-linéaire (courbe noir), quasi-accord de phase via une suppression du signal (courbe rouge), absence d'accord de phase (courbe verte).	147

5.9	Évolution du signal calculé pour l'harmonique 95 générée dans 1 Torr d'argon dans deux structures différentes : (a) structure non modulée et (b) structure modulée. La durée d'impulsion est de 15 fs et l'intensité laser est de l'ordre de $7 \cdot 10^{14}$ W/cm ² . La figure est extraite de la référence [I. Christov 2000].	148
5.10	Photographie d'un tube capillaire présentant une périodicité de modulation de 2.5 mm. Image extraite de la référence [E. A. Gibson 2003].	149
5.11	Résultats du quasi accord de phase des harmoniques obtenu par [A. Paul 2003] et [E. A. Gibson 2003].	150
5.12	Photographie présentant les endroits de forte ionisation tout au long du tube capillaire résultants d'une modulation de l'intensité par battements de modes du faisceau dans le tube capillaire. Ce plasma est généré dans 1 bar d'argon par un laser IR ($\lambda = 800nm$). La périodicité de 2.6 mm a été confirmée par le calcul présenté sur la même la figure, les modes considérés sont les modes EH ₁₁ et EH ₁₂ . Cette figure est extraite de la référence [Pfeifer 2007].	152
5.13	Simulation numérique du signal de l'harmonique 201 du 800 nm générée par la technique du multimode quasi accord de phase dans un tube capillaire de rayon 90 μ m. Figures extraites de la référence [B. Dromey 2007].	153
5.14	(a) Quasi accord de phase pour la fenêtre de l'eau ($P_{Ar} = 20$ mbar, $\chi = 0.2$, et $I = 10^{15}$ W/cm ²). (b) Quasi accord de phase multimode pour le plateau ($\lambda \simeq 30$ nm) ($P_{Ar} = 54$ mbar, $\chi = 0.3$). Figure extraite de la référence [M. Zepf 2007]. . .	154
5.15	Photographie d'un tube capillaire de 3 cm de longueur. On voit le cœur de 203 μ m de diamètre et la gaine extérieure de diamètre 5.5 mm.	155
5.16	Schéma de notre tube capillaire avec les mesures des dimensions caractéristiques. La coupe de scie arrive jusqu'au niveau du cœur du capillaire. La longueur caractéristique du capillaire est la longueur qui sépare les deux fentes.	156
5.17	(a) Système motorisé du porte cible. Ce dispositif possède cinq degré de liberté (3 mouvements de translations X, Y et Z et deux mouvements de rotation horizontal et vertical), tout ces mouvements sont remplis par le montage des capillaires dans un système de dimensions (20 cm x 20 cm x 25 cm). (b) Système d'injection sous vide du gaz : le gaz est injecté dans le porte capillaire à travers un trou ensuite conduit et réparti sur les deux fentes du tube capillaire. (c) Système d'imagerie de la tache focale et de caractérisation de la transmission de l'énergie à travers le tube capillaire.	157
5.18	Position x du centroïde du foyer du faisceau laser en fonction du nombre de tir. L'enregistrement est effectué au niveau de la caméra du système d'imagerie pendant environ quatre minutes ce qui correspond à 2400 tirs.	159
5.19	Positions (x,y) du centroïde du foyer du faisceau laser mesuré au niveau de la caméra du système d'imagerie installé sous vide. L'enregistrement est effectué pendant environ quatre minutes ce qui correspond à 2400 tirs.	159
5.20	Position x du foyer du faisceau laser en fonction du nombre de tir. L'enregistrement est effectué au niveau de la caméra du système d'imagerie pendant environ six minutes ce qui correspond à 3600 tirs.	161

5.21	Positions (x,y) du centroïde du foyer du faisceau laser mesuré au niveau de la caméra du système d'imagerie installé sous vide. Enregistrement effectué après l'amélioration de la stabilité du pointé pendant environ six minutes ce qui correspond à 3600 tirs.	161
5.22	Vue d'ensemble de la source harmonique d'ordres élevés d'Éclipse 2. Cette figure est extraite de la référence [Dubrouil 2011].	162
5.23	Dispositif expérimental pour la génération et la caractérisation d'harmoniques d'ordres élevés dans des tubes capillaires.	163
5.24	Le système porte capillaire utilisé pour la campagne expérimentale au CELIA. . .	164
5.25	Schéma de principe du spectromètre à réseau de la source harmonique de la salle Eclipse 2 de CELIA [Dubrouil 2011].	164
5.26	Signal harmonique en fonction de l'intensité laser maximale à l'entrée du tube capillaire pour les ordre harmoniques entre 21 et 33.	165
5.27	Évolution de l'intensité laser maximale estimée ainsi que l'intensité laser maximale calculée à partir de la loi de cutoff en fonction de l'ordre harmonique généré. . . .	166
5.28	Spectre résolu spectralement et spatialement d'harmoniques générées dans un jet de gaz. La pression en amont est de 2.6 bar d'argon et l'énergie estimée après un iris fermé à 13 mm est 22 mJ résultant à une intensité de $7 \cdot 10^{14}$ W/cm ² . Les spectres sont moyennés sur 10 tirs laser et la fenêtre spectrale s'étend de 10 à 35 nm, l'ordre harmonique maximal observé est l'ordre 37.	167
5.29	Spectres harmoniques obtenus dans un tube capillaire de 101 μ m et de 30 mm de longueur pour différentes valeurs de pression d'argon. L'intensité à l'entrée du capillaire est égale à $6.65 \cdot 10^{14}$ W/cm ² (pour 45 fs - 6.5 mJ - 7.5 mm) et le paramètre χ étant égal à 0.82.	168
5.30	Évolution du signal harmonique intégré des ordres harmoniques variant entre 33 et 53 pour quatre valeurs de pression ; spectre (a) P = 5 mbar ; spectre (b) P = 12 mbar ; spectre (c) P = 15 mbar , spectre (d) P = 25 mbar. L'intensité à l'entrée du capillaire est égale à $6.65 \cdot 10^{14}$ W/cm ² (pour 45 fs - 6.5 mJ - 7.5 mm) et le paramètre χ étant égal à 0.82.	169
5.31	Spectres harmoniques obtenus respectivement dans un jet de gaz (spectre a) avec une pression en amont de 2.6 bar d'argon (45 fs - $\phi_{iris} = 13$ mm - $E_{iris} = 22$ mJ) et dans un capillaire rempli de 12 mbar d'argon (spectre b) ($R_{cap} = 101 \mu$ m et $L_{cap} = 30$ mm, $\phi_{iris} = 7.5$ mm, $E_{iris} = 6.5$ mJ).	170
5.32	Évolution de la longueur de cohérence en fonction de la pression pour les ordres harmoniques entre 35 et 53. Ce calcul analytique a été effectué pour un capillaire de 101 μ m de rayon et 30 mm de longueur.	171
5.33	Profil d'intensité calculé analytiquement pour un faisceau d'airy ($\lambda = 800nm$) se propageant dans un capillaire de 101 μ m de rayon. Le paramètre χ étant égal à 0.82.	172
5.34	Évolution de l'énergie intégrée spatialement et spectralement des harmoniques en fonction de la longueur d'onde. Trois spectres sont présentés pour trois valeurs de pression différentes (30, 50 et 100 mbar). La fenêtre spectrale s'étend de 21 à 35 nm. L'intensité laser à l'entrée du capillaire (de 30 mm de longueur et de 101 μ m de rayon) est estimée à $1.8 \cdot 10^{14}$ W/cm ²	173

5.35	Spectres résolus spectralement et spatialement d'harmoniques générées pour plusieurs pression d'argon (entre 90 et 140 mabr). Le milieu générateur est un capillaire ($R_{cap} = 101 \mu\text{m}$ et $L_{cap} = 30 \text{ mm}$). L'intensité laser estimée est égale à $6.65 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ((pour 45 fs - $\phi_{iris} = 7.5 \text{ mm}$ - $E_{iris} = 6.5 \text{ mJ}$)). La fenêtre spectrale s'étend de 21 à 35 nm.	174
5.36	Évolution de la longueur d'absorption en mm en fonction de l'ordre harmonique pour quatre valeurs de pressions différentes (90, 100, 110, 120 et 140 mbar). Les ordres harmoniques varient de 23 à 33.	175
5.37	Spectres harmoniques générés dans l'argon : (a) Spectre harmonique obtenu dans un jet de gaz pour une pression en amont de 2.6 bar d'argon et avec une intensité laser de $7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. (b et c) Spectres harmoniques obtenus en sortie d'un tube capillaire de 30 mm de longueur et $101 \mu\text{m}$ de rayon. La pression est égale à 30 mbar et l'intensité laser est respectivement égale à $1.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (spectre b) et de $6.65 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (spectre c).	176
5.38	Spectres harmoniques générés dans l'argon : (a) Spectre harmonique obtenu dans un jet de gaz pour une pression en amont de 2.6 bar d'argon et avec une intensité laser de $7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. (b et c) Spectres harmoniques obtenus en sortie d'un tube capillaire de 30 mm de longueur et $101 \mu\text{m}$ de rayon. La pression est égale à 50 mbar et l'intensité laser est respectivement égale à $1.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (spectre b) et de $6.65 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (spectre c).	177
5.39	Spectres harmoniques générés dans l'argon : (a) Spectre harmonique obtenu dans un jet de gaz pour une pression en amont de 2.6 bar d'argon et avec une intensité laser de $7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. (b et c) Spectres harmoniques obtenus en sortie d'un tube capillaire de 30 mm de longueur et $101 \mu\text{m}$ de rayon. La pression est égale à 100 mbar et l'intensité laser est respectivement égale à $1.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (spectre b) et de $6.65 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (spectre c).	178
5.40	Modélisation théorique du spectre de l'impulsion fondamentale avant et après la propagation dans le tube capillaire. Le gaz de l'absence du gaz ainsi que les cas de plusieurs valeurs de pression ont été examinés. Cette figure est extraite de la référence [Gibson 1997].	179
5.41	Spectres harmoniques obtenus dans 22 mbar d'argon dans un capillaire de 30 mm de longueur et de $150 \mu\text{m}$ de rayon. Le paramètre de couplage est égale à 0.33 et les harmoniques observées sont entre l'ordre 23 et 35. Le spectre (a) a été obtenu pour une intensité laser égale à $3 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ et le spectre (b) pour une intensité de $5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ et le spectre (c) correspond à une intensité de $7 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$	181

Introduction

L'invention il y a cinquante ans du premier laser par Theodore Maiman [Maiman 1960] et les développements qui ont suivi ont donné aux scientifiques l'accès à des intensités lumineuses supérieures de plusieurs ordres de grandeur à celles de n'importe quel processus naturel. La capacité du laser à produire une lumière intense et cohérente a provoqué une révolution scientifique et technologique. Cette source de lumière s'est infiltrée non seulement dans nos laboratoires, mais dans notre vie quotidienne. Le laser a notamment permis l'avènement de l'optique non-linéaire qui a élargi la gamme de fréquence sur laquelle il est possible de générer de la lumière cohérente. C'est en 1961 que Franken et al [P.A.Franken 1961] ont démontré la génération de la seconde harmonique du laser à rubis ($\lambda = 694,3$ nm) pour produire une nouvelle longueur d'onde dans l'ultraviolet. Les phénomènes non-linéaires ont révolutionné l'optique, apportant un nouvel éclairage sur les interactions entre la lumière et la matière. Plus récemment, des amplificateurs ultra-rapides et de haute puissance ont été développés produisant des impulsions à haute énergie avec des durées dans le régime femtoseconde (fs) [S. Backus 1998]. Ces systèmes reposent sur la méthode de l'amplification à dérive de fréquence (CPA) afin d'éviter les effets non-linéaires et les dommages optiques pendant le processus d'amplification [Strickland 1985]. La possibilité de produire avec ces nouvelles sources ultra-courtes de la lumière cohérente dans le domaine spectral XUV et VUV à des courtes longueurs d'onde (entre 1 et 100 nm) est apparue rapidement et ouvre des perspectives d'applications nouvelles en physique. Plusieurs schémas de génération de rayonnement cohérent dans le domaine XUV ont été étudiés d'un point de vue théorique aussi bien qu'expérimental. Dans le but de comprendre le contexte scientifique des études présentées dans cette thèse je vais présenter un panorama rapide des différentes sources de rayonnement XUV cohérent existantes en commençant par la plus imposante tant en terme de dimensions que de caractéristiques de sources.

Les lasers à Électrons Libres (LEL) : Le laser à électrons libres est une source de rayonnement synchrotron rendue cohérente et capable de produire de fortes puissances crêtes dans un domaine spectral allant de l'infrarouge aux rayons X. Il a été démontré pour la première fois par J.Madey en 1977 [J.M.J.Madey 1971, D.G.Deacon 1977] puis utilisé par une large communauté scientifique. Un accélérateur de particules produit une suite de paquets d'électrons relativistes qui arrivent ensuite dans une structure magnétique périodique permanente appelée « onduleur ». Ces électrons acquièrent alors une vitesse transverse et émettent spontanément un rayonnement connu par le nom « rayonnement synchrotron ». La cohérence de la source est le résultat de la modulation longitudinale en énergie du paquet d'électrons au cours de l'interaction entre le faisceau d'électrons et l'onde électromagnétique. Tout au long du parcours du paquet dans l'onduleur la modulation en énergie se transforme progressivement en une modulation périodique de la densité électronique, ce phénomène est appelé l'effet SASE (Self Amplification of Spontaneous Emission) [et M.Xie 1993]. Cette modulation permet de mettre en phase les trains d'onde émis par chaque électron. Étant dépourvus de cavité optique, l'amplification pour les LELs se fait en un seul passage tel le cas du mode SASE. Pour que ce mode soit efficace, l'interaction entre le paquet d'électrons et les photons émis doit être très forte, puisqu'elle

s'effectue en un seul passage. Malgré la forte luminosité du faisceau de photons et le haut degré de cohérence transverse fournis par le rayonnement SASE, ses propriétés de cohérence temporelle restent limitées. En effet, en régime de SASE, la génération du bruit de rayonnement synchrotron induit une mise en paquets qui intervient aléatoirement, à différentes positions du paquet, les profils temporel et spectral de la lumière rayonnée sont alors composés d'une série de sous structures en pics appelés « spikes » et présentent d'importantes fluctuations statistiques. Pour résoudre ce problème, une solution possible est d'injecter à l'entrée de l'onduleur du LEL un rayonnement cohérent de faible énergie. Contrairement aux lasers traditionnels dont la longueur d'onde est fixée par les niveaux atomiques du milieu amplificateur, le LEL présente l'avantage d'une large gamme d'accordabilité spectrale. Le LEL permet aussi de produire de fortes puissances crêtes, des impulsions femtosecondes avec des taux de répétition élevés. Ayant en plus de bonnes qualités optiques (faible divergence, polarisation linéaire et cohérence spatiale élevée), le LEL est une source idéale pour les expériences d'applications dans des domaines très variés. Cependant, les limitations de l'utilisation d'un LEL résident dans son coût très élevé puisqu'il nécessite l'installation d'un accélérateur de particules de grande dimension et de blindages de protection contre les rayonnements ionisants ; sa mise en place en laboratoire n'en est rendue que plus difficile. Ceci explique le fait que l'accès à ce type d'installations est limité.

Les lasers XUV à plasma : Cette source de rayonnement est plus modeste en terme de coût et d'encombrement spatial. Le principe de fonctionnement des lasers dans le domaine de l'XUV repose, comme celui des lasers émettant dans le visible et dans l'infrarouge, sur une inversion de population produite entre deux niveaux, ici ceux d'un ion multichargé au sein d'un plasma crée par le laser. Le pompage de cette inversion se fait par collisions électroniques au sein du plasma, les électrons étant généralement chauffés par laser. Le plasma peut être obtenu à partir d'une cible solide irradiée par une impulsion laser intense. Les températures ioniques et électroniques doivent être optimisées pour permettre d'obtenir à la fois le bon niveau d'ionisation et le bon taux d'excitation des ions visés. Ayant une bonne résistivité à la sur-ionisation grâce à une dernière couche complète, les ions nickelloïdes ou néonoïdes sont les ions les plus couramment utilisés. Différents schémas de pompage théoriques de l'inversion de population ont été proposés dès la fin des années soixante. Celui qui a donné les meilleurs résultats expérimentaux est le pompage collisionnel. Dans le cas d'un pompage collisionnel quasi-stationnaire, une seule impulsion de durée nanoseconde et de quelques dizaines de Joule est focalisée en ligne sur une cible solide de quelques centimètres de longueur et de quelques microns de dimension transverse. Cette impulsion assure d'abord la création du plasma puis le pompage de l'inversion de population. Pour le pompage collisionnel transitoire, les deux actions de création du plasma à partir de la cible solide et de pompage de l'inversion de population par les électrons chauffés sont assurées par deux impulsions séparées temporellement. La première impulsion est relativement longue (de durée nanoseconde) alors que la deuxième est plus courte (picoseconde voire des centaines de femtoseconde). Ce schéma de pompage a été proposé et démontré en 1997 pour le titane néonoïde à 32,6 nm [P.V. Nickles 1997], il correspond au schéma adapté pour la génération du laser X sur la station LASERIX, station sur laquelle j'ai préparé ma thèse. Les lasers X peuvent fournir une luminosité importante et demandent un espace et un coût très réduits par rapport aux sources de rayonnement synchrotron. En l'absence de cavité, comme pour les LEL, ce type de source fonctionne en régime d'amplification

(par émission stimulée) de l'émission spontanée (ASE pour « amplification of spontaneous emission ») et leur cohérence peut être améliorée par injection par une source moins énergétique mais plus cohérente comme par exemple la source d'harmoniques d'ordres élevés qui fait l'objet de cette thèse.

Les harmoniques d'ordres élevés : Des harmoniques peuvent être générées lorsqu'une lumière intense traverse la matière. Il est fréquent de produire la deuxième ou la troisième harmonique en utilisant comme matière un cristal. Lorsqu'un gaz rare est utilisé comme cible, les ordres harmoniques peuvent atteindre des centaines, produisant un rayonnement dans le domaine spectral XUV avec une brillance comparable aux autres sources XUV [E. A. Gibson 2003]. Étant un processus optique hautement non-linéaire, la génération d'harmoniques d'ordres élevés permet de convertir la lumière cohérente des fréquences visibles jusqu'à l'extrême ultra-violet. Par rapport aux sources mentionnées ci-dessus, cette source présente plusieurs qualités attrayantes. Il s'agit d'une source entièrement cohérente (temporellement et spatialement) [I. Christov 2000, M. Schnürer 1999], produisant des impulsions de durées allant de la femtoseconde à l'attoseconde.

Pour des intensités supérieures à 10^{14} W/cm², l'amplitude du champ électrique du rayonnement laser est comparable au champ liant l'électron à un atome. Dans ce régime, le champ laser peut facilement ioniser les atomes. Une fois l'atome ionisé, le mouvement de l'électron libre est contrôlé par le champ laser oscillant, et l'électron peut facilement atteindre des énergies cinétiques plus grandes que l'énergie de liaison des électrons à leur ions parent. Une conséquence importante de cette forte interaction lumière-matière est le processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés [M. Ferray 1987, A. McPherson 1987]. Grâce à la polarisation linéaire du rayonnement fondamental, l'électron libéré peut se recombiner à son ion parent donnant lieu à un photon XUV. La contrainte pour les processus de générations non-linéaires, et le principal obstacle de la production d'un rayonnement XUV intense pour la génération d'harmoniques, est la différence de vitesse de phase entre le rayonnement fondamental et harmonique provenant essentiellement de la dispersion électronique dans le milieu.

Après une certaine distance de propagation, le rayonnement harmonique généré à une position peut-être déphasé de π par rapport au rayonnement produit à une nouvelle position. Dans ce cas, des interférences destructives ont lieu, ce qui limite la croissance du rayonnement XUV avec la longueur de milieu. Dans le cas de la génération de la deuxième ou la troisième harmonique, la biréfringence du cristal peut être utilisée pour réaliser l'accord de phase. Pour ce faire, il suffit d'adapter la vitesse de phase du fondamental, dans un état de polarisation donné, à celle de l'harmonique pour l'état de polarisation orthogonal. Toutefois, pour le domaine XUV qui nous intéresse, les matériaux solides sont fortement absorbants et ne tiennent pas aux fortes intensités laser exigées. L'accord de phase pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans un gaz peut être obtenu, pour des longueurs d'onde modérées (entre 25 et 50 nm) dans le cas d'un faible degré d'ionisation du gaz, en équilibrant les dispersions dans le milieu. Les harmoniques plus élevées (longueurs d'onde inférieures à 10 nm) nécessitent une ionisation plus forte, empêchant l'accord de phase de se produire.

On peut contourner ce problème en utilisant la technique du « quasi accord de phase » pour laquelle la zone d'interaction entre le laser et le gaz est structurée d'une manière telle que la génération d'harmoniques est supprimée dans les zones de production des interférences destructives. C'est dans ce contexte scientifique que le sujet de ma thèse s'intègre. Lors du démarrage de l'aménagement de la station LASERIX, fin 2009, Sophie KAZAMIAS a obtenu un financement de l'agence nationale de recherche (ANR) ayant pour projet de construire et d'optimiser une source harmonique à haute énergie, fiable et efficace, complémentaire de la source laser X à plasma.

Organisation du mémoire

Ce manuscrit rassemble les résultats de trois années de thèse sur la station LASERIX de l'Université Paris Sud 11. Il se compose de cinq chapitres :

- L'introduction présente brièvement l'historique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés ainsi qu'un résumé du déroulement du manuscrit.
- Le premier chapitre prolonge cette introduction en décrivant le processus de génération d'harmoniques dans les gaz rares, en rappelant les principales propriétés de ce rayonnement et en explicitant l'influence des différents paramètres de génération sur son optimisation.
- Le chapitre 2 aborde les résultats de simulations numériques effectuées sur l'accord de phase dans la génération d'harmoniques pour une configuration de forte focalisation. Le but de cette étude est la compréhension des résultats publiés dans la référence [J. Seres 2010a] montrant le comportement du signal harmonique en fonction de la pression, de l'intensité laser et de l'ordre harmonique. Une description du contexte de l'étude et du modèle unidimensionnel utilisé est fournie. Nous exposons ensuite une discussion des résultats ainsi qu'une comparaison entre nos simulations et les résultats expérimentaux.
- Le troisième chapitre décrit la construction, le développement et l'optimisation expérimentale de la source harmonique de la station LASERIX, première source construite dans le nouveau local de LASERIX depuis son déménagement en 2009. Les mesures de caractérisation du rayonnement harmonique produit sont abordées dans ce chapitre tant d'un point de vue spectral que spatial. Une étude expérimentale ainsi que des estimations théoriques de la divergence des harmoniques sont également données. Une expérience d'application validant la fiabilité de la source est ainsi illustrée.
- Le chapitre 4 se focalise sur la génération d'une double impulsion harmonique. On y présente plus précisément les motivations de ce travail, le processus et l'approche de génération suivie. Le dispositif expérimental, que nous avons développé pendant ma thèse est également explicité. Les résultats de l'étude du comportement des deux impulsions harmoniques en fonction du délai temporel sont présentés en premier lieu, puis ensuite ceux sur l'optimisation et l'accord de phase de la double impulsion. La méthode est

ensuite appliquée au cas d'un délai temporel fixé à zéro les deux impulsions.

- Le dernier chapitre est constitué de deux parties. La première partie présente une étude bibliographique de la génération d'harmoniques dans une configuration de propagation guidée. La deuxième partie a pour but de présenter l'expérience de génération d'harmonique en capillaire effectuée en collaboration avec les chercheurs du laboratoire CELIA de Bordeaux ainsi que les principaux résultats obtenus.

Physique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés

Sommaire

1.1	Introduction	7
1.2	Aspects microscopiques de la génération d'harmonique	8
1.2.1	Processus d'ionisation des gaz rares	8
1.2.2	Modèle à trois étapes : modèle semi-classique	10
1.2.3	Modèle quantique de Lewenstein	15
1.3	Aspects macroscopiques et accord de phase	19
1.3.1	Cadre général de l'accord de phase	19
1.3.2	Accord de phase dans un milieu dilué	20
1.3.3	Accord de phase dans un milieu absorbant	21
1.3.4	Accord de phase dans un milieu dispersif	23
1.4	Optimisation de la génération d'harmonique	23
1.4.1	Influence du gaz générateur	24
1.4.2	Influence de l'éclairement	24
1.4.3	Influence de la durée d'impulsion laser	26
1.5	Récapitulatifs des caractéristiques des harmoniques	27
1.5.1	Caractéristiques spectrales : atome unique	27
1.5.2	Caractéristiques spatiales	28
1.5.3	Efficacités typiques	28
1.6	Conclusion	28

1.1 Introduction

La génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG en abréviation anglaise) est un processus hautement non-linéaire induit dans les gaz rares par un champ laser très intense dans le régime ultra-court. L'efficacité de ce processus résulte de la combinaison d'un aspect microscopique (réponse de l'atome unique) et d'un aspect macroscopique (accord de phase).

La génération d'une polarisation non linéaire au niveau atomique peut être décrite par un modèle dit à trois étapes qui a été analysé pour la première fois en 1992 en utilisant une approche semi-classique [Corkum 1993, Jeffrey L. Krause 1992]. En 1994, une étude quantique complète a été effectuée par Lewenstein dans le cadre de l'approximation du champ fort (SFA)

[M. Lewenstein 1994]. Ce modèle permet de calculer la phase et l'amplitude du dipôle harmonique en fonction de l'intensité laser et des autres paramètres de génération.

Le signal harmonique total résulte de la superposition cohérente des champs émis par les atomes du gaz le long de la propagation dans la cellule de génération sous l'effet du champ électromagnétique véhiculé par l'impulsion laser ultra-brève. Le signal en sortie de cellule est maximal quand l'accord de phase est obtenu, c'est à dire quand les dipôles harmoniques de la cellule oscillent en phase. Pour cela, il faut que les vitesses de propagation des champs laser d'excitation et d'harmoniques soient égales. Dans le cas contraire, ces dipôles interfèrent destructivement, ayant pour effet de réduire la production de signal harmonique.

Le déphasage entre les faisceaux laser et harmonique est influencé par plusieurs effets macroscopiques comme la géométrie du faisceau laser, l'ionisation induite par son passage dans le milieu de génération et la phase intrinsèque du dipôle atomique. Pour avoir une bonne efficacité de conversion il est indispensable d'optimiser simultanément toutes ces contraintes. Une contrainte supplémentaire importante pour la production des harmoniques est la réabsorption du signal XUV dans le milieu générateur. Ce problème est connu sous le nom de limite d'absorption [E. Constant 1999]. Ce chapitre aborde les aspects microscopique et macroscopique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés ainsi que l'influence des différents éléments sur son optimisation.

1.2 Aspects microscopiques de la génération d'harmonique

1.2.1 Processus d'ionisation des gaz rares

Considérons un atome dans l'état fondamental ayant un seul électron de valence dans sa couche externe. L'état fondamental de cet atome est caractérisé par le potentiel de première ionisation de l'atome I_p quand l'électron est piégé dans le puits de potentiel coulombien du noyau. Lorsqu'une onde électromagnétique de fréquence temporelle ω interagit avec cet électron, elle peut lui transmettre une partie de son énergie. Si cette énergie ($\hbar \omega$) est supérieure ou égale à l'énergie de liaison de l'électron à son noyau celui-ci peut être arraché et l'atome est ionisé par absorption d'un photon, mais ce n'est pas le cas quand on considère l'interaction d'un gaz rare (I_p de l'ordre de la dizaine d'eV) et d'un laser infrarouge (énergie de photon de l'ordre de 1,5 eV). Par contre, les intensités laser atteintes dès le début des années 1990 ont permis de produire des intensités telles que le champ électrique du laser devient supérieur au champ qui lie les électrons au noyau atomique. A niveau plus modéré, les processus d'excitation électronique (d'ionisation) des couches les plus externes (électrons de valence) sous champ laser sont les suivants :

- **Ionisation multi-photonique :**

Lorsque l'intensité laser est modérée et que l'énergie d'un photon n'est pas suffisante pour libérer l'électron de l'attraction nucléaire, un électron peut-être libéré s'il absorbe l'énergie successive de plusieurs photons pour dépasser l'énergie de liaison au noyau. On parle alors d'ionisation multiphotonique.

- **Ionisation par effet tunnel :**

Une intensité laser suffisamment forte (dès quelques 10^{13} pour les gaz lourds) abaisse suffisamment la barrière de potentiel pour permettre à un électron de valence de s'échapper par effet tunnel. Ce phénomène peut se produire deux fois par cycle optique quand le champ laser atteint son maximum.

- **Ionisation par suppression de barrière :**

On parle du régime de suppression de barrière lorsque l'amplitude du champ électrique associée au champ laser est supérieure au champ de liaison électronique. Le champ laser supprime alors la barrière de potentiel atomique [S. Augst 1989] et l'ionisation est certaine. Pour quantifier ce phénomène, on considère l'intensité de suppression de barrière I_{BSI} , intensité au bout de laquelle la barrière de potentiel peut être supprimée. Ce régime n'est pas favorable à la génération d'harmoniques car il dépeuple la totalité de la population de neutres, indispensables à la production de rayonnement XUV. D'un point de vue quantitatif l'intensité de suppression de barrière I_{BSI} s'exprime par :

$$I_{BSI}(W/cm^2) = 3.810^9 \frac{I_P^4(eV)}{Z^2} \quad (1.1)$$

Où I_P est le potentiel d'ionisation de l'atome et Z la charge après l'ionisation. Il est à remarquer que l'intensité de suppression de barrière ne dépend ni de la pulsation du laser (ω) ni de la durée d'impulsion du laser, elle ne dépend que du gaz considéré pour la génération via le potentiel d'ionisation atomique et la charge Z . Les potentiels d'ionisation des gaz rares couramment utilisés pour la génération d'harmonique (Argon, Néon, Xénon) ainsi que les intensités de suppression de barrière sont résumés dans le tableau 1.1 :

Gaz	I_P (eV)	I_{BSI} (W/cm ²)
Néon	21.56	$8.20 \cdot 10^{14}$
Argon	15.75	$2.34 \cdot 10^{14}$
Xénon	12.13	$8.23 \cdot 10^{13}$

TABLE 1.1 – Valeurs des potentiel d'ionisation et d'intensité de suppression de barrière pour les gaz rares couramment utilisés pour la génération d'harmoniques.

- **Paramètre de Keldysh (γ) :**

Ce paramètre permet de définir le régime d'ionisation dominant à partir d'une intensité laser donnée [Keldysh 1965]. Il s'exprime comme le rapport entre le temps que met l'électron pour traverser la barrière de potentiel (δt) et la période optique du laser ($T = 2\pi/\omega$). Le paramètre de Keldysh est défini par :

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_P}{2U_P}} \quad (1.2)$$

U_P est le potentiel pondéromoteur du laser fondamental associé à l'énergie d'oscillation d'un électron de masse m_e et de charge e , soumis à un champ électrique E de pulsation ω et d'amplitude E_0 , ce potentiel s'exprime comme :

$$U_P = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2} = \frac{e^2 I}{2m_e \varepsilon_0 c \omega^2} \quad (1.3)$$

$$U_P(eV) = 9.33 I [10^{14} W/cm^2] \lambda^2 (\mu m^2) \quad (1.4)$$

ε_0 est la permittivité du vide, l'intensité laser (I) est exprimée en W/cm^2 . Le potentiel pondéromoteur du laser ($\lambda = 800nm$) utilisé pour les résultats expérimentaux présentés dans cette thèse s'écrit :

$$U_P(eV) = 5.99 10^{-14} I [10^{14} W/cm^2] \quad (1.5)$$

Le paramètre γ compare le potentiel pondéromoteur du laser (U_P) au potentiel d'ionisation de l'électron (I_P). Lorsque $\gamma \gg 1$ c'est le régime d'ionisation multi-photonique qui domine. Dans le cas contraire où le potentiel pondéromoteur du laser domine le potentiel atomique, c'est le régime d'ionisation par suppression de barrière qui prévaut. La génération d'harmoniques d'ordres élevés a généralement lieu pour le régime d'ionisation par effet tunnel ($\gamma \simeq 1$).

1.2.2 Modèle à trois étapes : modèle semi-classique

Le modèle à trois étapes est un modèle relativement simple permettant d'expliquer la réponse de l'atome unique (à l'échelle microscopique) dans le régime de champ fort et de décrire les différentes dépendances des spectres harmoniques observés expérimentalement [K.J.Schafer 1993, Corkum 1993]. Ce modèle suppose un champ fondamental polarisé linéairement et de basse fréquence, il décompose le processus en trois étapes :

1.2.2.1 Ionisation à effet tunnel

Lors de l'interaction entre le champ laser intense et les atomes du gaz, le champ laser modifie le champ qui relie l'électron au noyau en abaissant la barrière de potentiel à franchir pour ioniser l'atome. Au moment du maximum du champ la barrière devient suffisamment basse pour permettre la libération de l'électron qui passe dans un état de continuum avec une vitesse nulle et se trouve au voisinage du noyau. C'est l'ionisation par effet tunnel (figure 1.1).

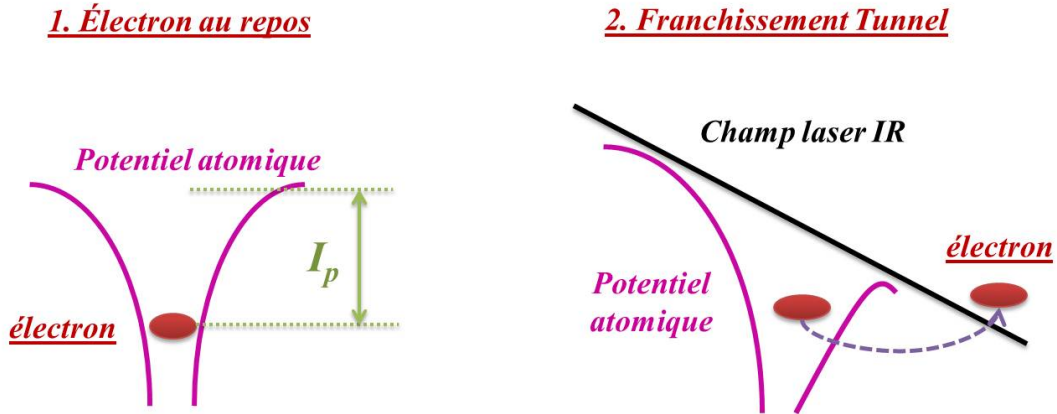


FIGURE 1.1 – L'atome est initialement dans son état de repos où l'électron est piégé dans un puits de potentiel coulombien. Le champ laser abaisse la barrière de potentiel et rend l'ionisation possible par effet tunnel.

1.2.2.2 Accélération dans le continuum du champ laser

L'électron quasi libre est accéléré dans le champ du laser et ne ressent plus l'effet du potentiel attracteur du noyau. Au cours de son trajet, l'électron acquiert une énergie cinétique dont la valeur dépend de son instant d'ionisation t_i par rapport au maximum du champ électrique du laser, ceci est illustré sur la figure 1.2.

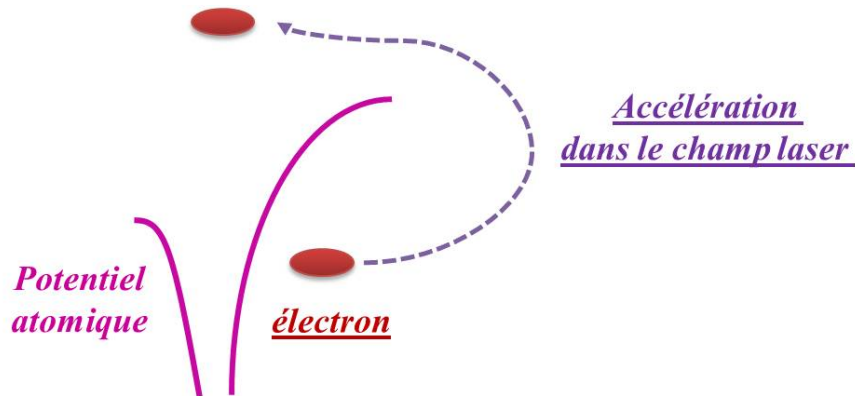


FIGURE 1.2 – Accélération de l'électron dans le continuum du champ laser.

La trajectoire de l'électron est étudiée d'une manière classique en négligeant le potentiel d'attraction de l'ion parent par rapport au potentiel accélérateur du champ laser fondamental. Sous l'effet de la force électrique du champ laser polarisé rectilignement suivant l'axe x ($F = eE(t) = eE_0 \cos(\omega t)$), l'équation du mouvement électronique s'écrit :

$$m_e a(t) = -eE_0 \cos(\omega t) \quad (1.6)$$

Soit $\phi = \omega t$ la phase du laser à un instant t donné et $\phi_i = \omega t_i$ sa phase à l'instant d'ionisation t_i . L'intégration de l'équation 1.6 donne l'expression de la vitesse de l'électron et de sa

trajectoire :

$$V(t, t_i) = -\frac{eE_0}{m_e\omega}(\sin(\phi) - \sin(\phi_i)) \quad (1.7)$$

$$x(t, t_i) = \frac{-eE_0}{m_e\omega^2}(\cos(\phi_i) - \cos(\phi) + \sin(\phi_i)(\phi_i - \phi)) \quad (1.8)$$

E est le champ laser de pulsation ω et d'amplitude E_0 , e est la charge de l'électron et m_e sa masse. La loi de vitesse (équation 1.7) est composée d'une partie oscillante et d'une vitesse de dérive. Dans le référentiel du laboratoire, l'électron possède une trajectoire oscillante alors que l'ion est supposé immobile. Si on se place dans le référentiel «Krammers-Henneberger» [Muller 1998] pour lequel l'origine d'espace est la partie oscillante, la trajectoire de l'électron devient une droite tandis que la trajectoire de l'ion devient oscillante.

1.2.2.3 Recombinaison radiative

Le laser étant polarisé linéairement, l'électron est toujours accéléré dans la même direction (seul le sens varie), d'où une probabilité non nulle pour que l'électron se trouve de nouveau à proximité du noyau et se recombine avec son ion parent. C'est à l'instant de la recombinaison que se produit l'émission d'un photon harmonique ayant comme énergie la somme du potentiel d'ionisation de l'atome et de l'énergie cinétique acquise pendant le passage dans le continuum (voir la figure 1.3).

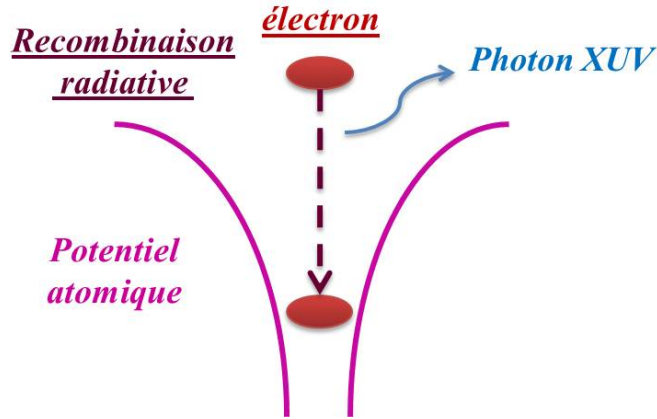


FIGURE 1.3 – Recombinaison de l'électron à son ion parent et émission d'un photon XUV.

La figure 1.4 montre la trajectoire oscillante de l'ion (courbe bleue) et quelques trajectoires de l'électron dans le référentiel de «Krammers-Henneberger» (courbes rose, verte, orange et violette). Il est à noter que tous les instants d'ionisation ne donnent pas nécessairement lieu à une recombinaison radiative. Pour les phases comprises entre $(0 \text{ et } \frac{\pi}{2})$ et $(\pi \text{ et } \frac{3\pi}{2})$ l'électron suit une trajectoire fermée et repasse par la position de l'ion parent avec une énergie cinétique non-nulle (courbes verte et violette). La recombinaison est représentée par l'intersection entre les trajectoires de l'ion parent et de l'électron.

Pour une phase d'ionisation nulle ($\phi = 0$), l'électron est émis au maximum du champ laser, il suit une trajectoire donnant une recombinaison un cycle optique plus tard (courbe rose (a)). Dans ce cas, le temps passé par l'électron dans le champ du laser correspond à la plus longue durée d'excursion électronique. Lorsque l'électron est libéré pour des phases d'ionisation comprises entre $(\frac{\pi}{2} \text{ et } \pi)$ et $(\frac{3\pi}{2} \text{ et } 2\pi)$ la norme du champ laser croît, les électrons sont donc accélérés sans repasser dans le champ d'attraction de l'ion (courbe orange (b)). Ces électrons ne se recombinent pas au noyau et donc ne participent pas au processus de génération.

Le processus complet de génération à caractéristiques semblables (ionisation tunnel, propagation dans le continuum et recombinaison radiative) peut se produire deux fois par cycle optique (périodicité de $\frac{T}{2}$, avec T la période optique du laser) car la recombinaison n'est seulement possible que sur une demie-période du champ laser vu les trajectoires possibles de l'électron. La réponse temporelle de l'atome unique sera donc un train d'impulsions séparées par une demi période du fondamental. La transformée de Fourier donne alors dans le domaine spectral un signal avec une périodicité de (2ω) . En raison de la nature centro-symétrique du portentiel de l'atome, le spectre harmonique obtenu contient uniquement les harmoniques impaires de la fréquence fondamentale.

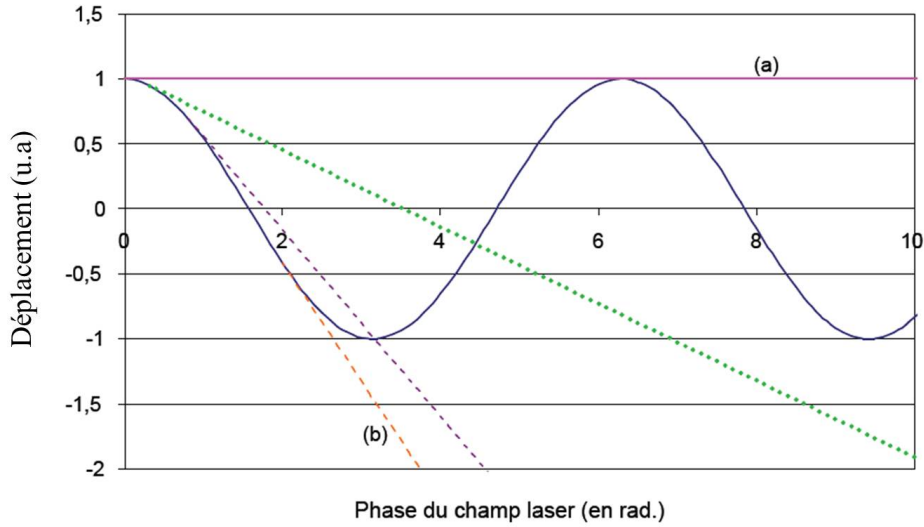


FIGURE 1.4 – Trajectoire du noyau et de l'électron dans le référentiel de « Krammers-Henneberger » en fonction de la phase du champ laser [KAZAMIAS 2003].

1.2.2.4 Loi de coupure - Étude classique

L'énergie cinétique acquise par l'électron au cours de son mouvement dans le continuum du laser est donnée par :

$$E_c = \frac{1}{2}mV^2(t_r) \quad (1.9)$$

t_r est l'instant de recombinaison de l'électron à son ion parent, les équations 1.7, 1.9 et 1.3 donnent :

$$E_c = \frac{e^2 E_0^2}{2m_e \omega^2} (\sin(\phi) - \sin(\phi_i))^2 \quad (1.10)$$

$$\frac{E_c}{U_P} = 2(\sin(\phi) - \sin(\phi_i))^2 \quad (1.11)$$

L'équation 1.11 montre que l'énergie cinétique classique acquise par l'électron au moment de la recombinaison peut être calculée en fonction de la phase d'ionisation ($\phi_i = \omega t_i$). La figure 1.5 présente le résultat de calcul de l'énergie cinétique de l'électron au moment de la recombinaison en fonction de la valeur de phase au cours de laquelle il a été libéré. Les valeurs de l'énergie cinétique sont données par unité du potentiel pondérateur ($\frac{E_c}{U_P}$) pour des valeurs de phase comprises entre 0 et $\pi/2$ pour lesquelles la recombinaison se produit.

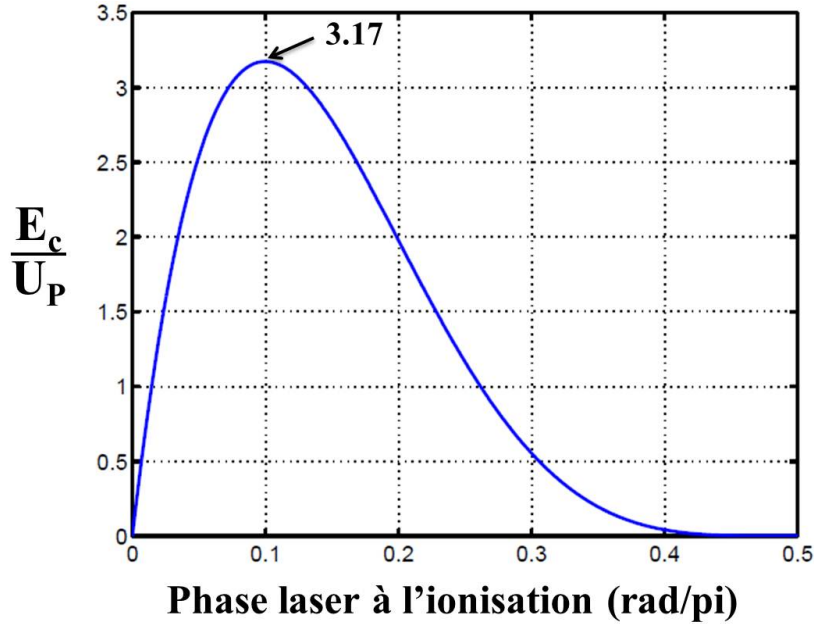


FIGURE 1.5 – Énergie cinétique au moment de la recombinaison de l'électron à son ion parent en fonction de la phase du laser à l'ionisation [Lytle 2008].

Cette courbe montre que pour une valeur de l'énergie cinétique correspondent deux phase d'ionisations différentes (ωt_i). Par contre, une phase d'ionisation donnée, ne donne qu'un seul instant de recombinaison donc une seule énergie cinétique. Le sommet de la courbe correspond à la plus haute énergie cinétique de recombinaison ($E_c = 3.17 U_P$). Pour une énergie cinétique inférieure, il existe deux phases d'ionisation correspondant à deux trajectoire électronique. Ces deux trajectoires sont la trajectoire courte et longue pour lesquelles l'électron évolue dans le champ respectivement, pendant un temps court et un temps long. Elles sont distinctes pour les ordres harmoniques faibles et pour le plateau, au niveau de la coupure ces deux trajectoires convergent. Le photon harmonique émis a donc une énergie égale à :

$$E_q = I_P + E_c \quad (1.12)$$

Pour un gaz donné, l'énergie de l'ordre harmonique maximal est fixée par l'énergie cinétique maximale au moment de la recombinaison ($E_c = 3.17 U_P$) :

$$E_{q_{max}} = I_P + 3.17 U_P \quad (1.13)$$

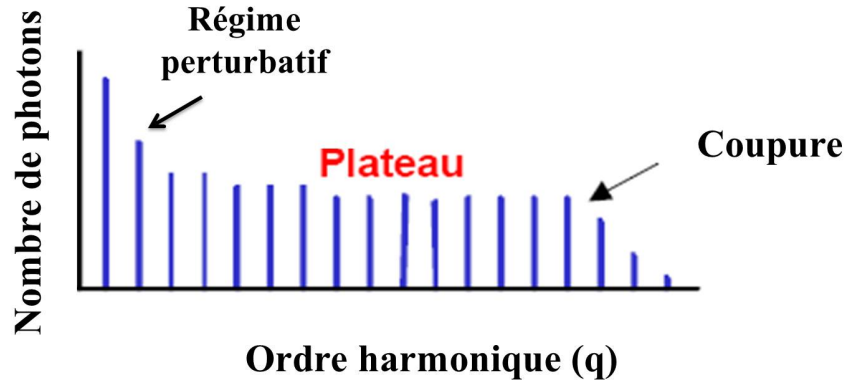


FIGURE 1.6 – Allure d'un spectre harmonique typique, les raies correspondent à des harmoniques impaires. Un plateau pour lequel l'efficacité est constante est suivi d'une chute rapide du signal au-delà d'une fréquence de coupure.

Cette loi est connue comme étant la loi de « cutoff » permettant d'estimer l'ordre harmonique maximal (q_{max}) du spectre harmonique [L'Huillier 1993]. U_P étant proportionnel à $(I \lambda^2)$, l'ordre harmonique maximal obtenu est d'autant plus élevé que les intensités laser et des longueurs d'onde sont élevées. La coupure dépend également du gaz générateur via le potentiel d'ionisation atomique. Or sachant que l'intensité laser ne doit pas dépasser l'intensité de suppression de barrière, à chaque gaz correspond une harmonique maximale théorique.

Les caractéristiques du spectre harmonique sont illustrées sur la figure 1.6, un régime perturbatif pour les faibles ordres harmoniques suivi d'un plateau contenant les ordres harmoniques pour lesquels l'efficacité de conversion est constante. Au niveau de la coupure, vers l'ordre harmonique maximal, se produit une chute rapide du signal.

1.2.3 Modèle quantique de Lewenstein

L'approche semi-classique donne une représentation simple du processus de génération et permet de comprendre l'origine physique de la coupure. Toutefois elle ne permet pas de calculer la phase et l'amplitude de la polarisation induite par le laser à la fréquence harmonique. Il faut donc faire appel au modèle quantique. Pour cela il convient de résoudre l'équation de Schrödinger dépendante du temps. Deux approches sont possibles : la première repose sur une résolution numérique assez complexe alors que la deuxième est une approche analytique développée par

Lewenstein et al datant de 1994 [M. Lewenstein 1994]. Cette approche analytique quantique calcule la réponse de l'atome unique et inclut l'ionisation tunnel.

A partir de ce modèle les caractéristiques de phase et de la génération sont calculées par l'intermédiaire du moment dipolaire. Le calcul du dipôle harmonique se ramène au calcul de l'excursion de l'électron par rapport au noyau (notée x) ; le dipôle harmonique est le produit de x et de la charge électronique ($e x$). Les amplitudes et les phases harmoniques correspondent au moment dipolaire induit par le champ laser. Les différents étapes de calculs sont illustrées dans plusieurs références ([M. Lewenstein 1994, KAZAMIAS 2003]) ; dans la partie suivante je ne mentionne que les grandes étapes du calcul.

Dans l'approximation de l'atome unique, ce dernier est soumis à un champ électrique $E(t)$ polarisé linéairement selon l'axe x . Il vérifie l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(\vec{x}, t)\rangle = \left(-\frac{1}{2} \nabla^2 + V(\vec{x}) - E(t) \vec{x} \right) \Psi(\vec{x}, t) \quad (1.14)$$

Où $E(t)$ est le champ laser exciteur, $V(\vec{x})$ est le potentiel atomique et $-\frac{1}{2} \nabla^2$ exprime l'énergie cinétique de l'électron.

Les approximations nécessaires à ce modèle sont [M. Lewenstein 1994, Keldysh 1965] :

- **De l'électron actif unique (Single Active Electron (SAE)) :**

L'atome est décrit en ne prenant en compte qu'un seul électron, toutes les interactions multiélectroniques sont négligées.

- **L'approximation en champ fort (Strong Field Approximation (SFA)) :**

1. Il n'y a que l'état fondamental qui est pris en compte comme état électronique lié.
2. La force pondéromotrice est telle que l'électron une fois ionisé sort définitivement du potentiel attracteur du noyau.
3. Le potentiel d'ionisation ($I_P \propto$ quelques dizaines d'eV) du gaz est prépondérant devant l'énergie d'un photon fondamental (quelques eV), l'ionisation se fait par effet tunnel.

Dans le cadre de ces approximations le calcul du moment dipolaire $x(t)$ fait apparaître une intégrale sur les instants de recombinaison t_r et d'ionisation t_i :

$$x(t) = i \int_0^{t_r} dt_i \int d^3p [dx E \cos(t_i)(p - A(t_i))] [e^{-iS(p, t_r, t_i)}] [dx^*(p - A(t))] \quad (1.15)$$

$$S(p, t_r, t_i) = \int_{t_r}^{t_i} dt \left(I_P + \frac{(p - A(t))^2}{2} \right) \quad (1.16)$$

Où $A(t)$ est le potentiel vecteur du champ laser, p est le moment canonique, $S(p, t_r, t_i)$ est l'action quasi-classique de l'électron dans le continuum, définie comme l'intégrale de l'énergie cinétique de l'électron et du potentiel d'ionisation. Cette équation traduit la somme de toutes les contributions des chemins quantiques dépendant de ces trois valeurs (p, t_r, t_i) . Les termes dx et dx^* traduisent respectivement la probabilité d'émission d'un électron dans le continuum

et de recombinaison radiative. En se basant sur le modèle semi-classique cette expression peut être interprétée comme suit :

- Le terme $([dx E \cos(t_i)(p - A(t_i))])$: traduit la probabilité d'ionisation.
- Le terme $([e^{-iS(p, t_i, t_r)}])$: traduit la propagation de l'électron dans le champ oscillant du laser, il permet de calculer la phase accumulée pendant le trajet de l'électron.
- Le terme $(dx^*(p - A(t)))$: traduit la probabilité de recombinaison de l'électron à l'instant t_r avec son ion parent.

La phase de la radiation émise dépend de la phase du champ laser fondamental et de son intensité. La phase du dipôle aussi appelée la phase intrinsèque est la phase accumulée par la fonction d'onde de l'électron au cours de la propagation dans le champ du laser. La phase totale du champ harmonique est donc la somme de ces deux composantes :

$$\Phi_q = q\omega t_r - \frac{1}{\hbar} S(p, t_i, t_r) \quad (1.17)$$

$$\Phi_q = q\omega t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left(\frac{(p - A(t))^2}{2} + I_P \right) dt \quad (1.18)$$

On en déduit le spectre harmonique en calculant la transformée de Fourier de cette équation pour une harmonique donnée :

$$x(w_q) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt_r x(t_r) e^{i w_q t_r} \quad (1.19)$$

$$x(w_q) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_0^{t_r} \int d^3p M(p, t_i, t_r) e^{i\phi(p, t_i, t_r)} \quad (1.20)$$

avec ϕ_q la phase de l'ordre harmonique q et M l'amplitude de l'intégrande dans l'équation (1.15). L'équation 1.20 montre que chaque trajectoire quantique contribuant à la génération d'un ordre harmonique donné acquiert une phase différente puisqu'elle correspond à des instants de recombinaison différents. Le calcul direct est possible mais demande un temps de calcul relativement long ; pour simplifier les calculs on peut appliquer la méthode de la phase stationnaire (« saddle point » en Anglais).

Les chemins quantiques qui contribuent significativement sont ceux pour lesquels la phase est stationnaire $\partial\phi_q = 0$. La condition de stationnarité de la phase se ramène à la condition physique où les électrons capables d'induire des dipôles atomiques importants sont ceux qui se recombinent aux ions parents dont ils sont issus soit $x(t_r) = x(t_i)$. A partir de cette méthode on montre que lorsque l'intensité n'est pas suffisante pour générer une harmonique du plateau, le système n'a pas de solution réelle. Dans le cas contraire, deux solutions d'égale importance co-existent. Une correspond à une trajectoire courte dans le continuum, donc à une phase accumulée qui est faible, et l'autre correspond à une longue durée d'excursion de l'électron dans le champ laser, donc à une trajectoire plus longue.

En effet, en combinant les équations 1.3, 1.7 et 1.15, on rend explicite la dépendance de la phase à l'intensité laser (avec $\phi_i = \omega t_i$ et $\phi_r = \omega t_r$) :

$$\phi_q = -\frac{2U_P}{\hbar\omega} \int_{\phi_i}^{\phi_r} d\phi (\sin(\phi) - \sin(\phi_i))^2 + q\phi_r - \frac{I_P}{\hbar\omega} (\phi_r - \phi_i) \quad (1.21)$$

La dépendance de la phase harmonique en fonction de l'intensité est donnée par :

$$\frac{\partial \phi_q}{\partial I} = \frac{2B}{\hbar\omega} \frac{\partial U_P}{\partial I} = \frac{Be^2}{\hbar m_e \varepsilon_0 c \omega^3} \quad (1.22)$$

Où B est la solution de l'intégrale dans l'équation 1.21 qui est une constante sans dimension dont la valeur dépend de la trajectoire de l'électron. Le chemin quantique présentant la phase la plus importante est appelé chemin 2, le chemin 1 présente une phase inférieure. Plus l'intensité augmente plus les chemins d'ordres supérieurs apparaissent, elles correspondent à des trajectoires dont le temps de passage dans le continuum peut dépasser la période optique du laser.

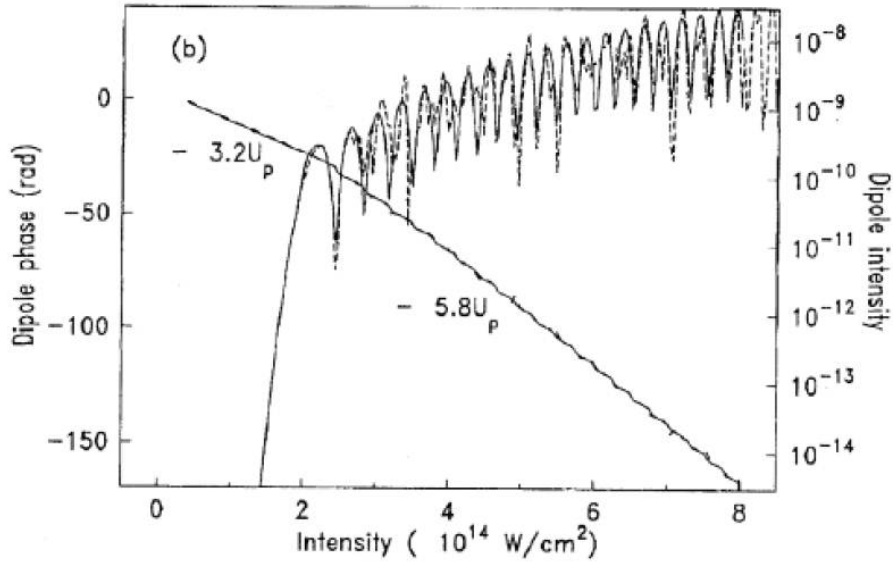


FIGURE 1.7 – Phase et amplitude du dipôle harmonique en fonction de l'intensité laser pour l'harmonique 45 générée dans le néon. Les valeurs sont obtenues par la méthode de la phase stationnaire et résultent de la contribution des deux chemins quantiques prédominants [Pascal Salieres 1995b].

La figure 1.7 représente la variation de la phase et de l'amplitude du dipôle harmonique en fonction de l'intensité laser pour l'harmonique 45 générée dans le néon, cette figure est extraite de la référence [Pascal Salieres 1995b]. Les valeurs obtenues sont les résultats d'un calcul basé sur la méthode de la phase stationnaire du dipôle [Pascal Salieres 1995b]. A une intensité donnée, l'harmonique passe de la zone de coupure à la zone du plateau dans le spectre harmonique.

L'intensité du dipôle croît rapidement dans un premier temps jusqu'à saturation dans la région du plateau. Quand l'harmonique est dans la région du plateau, l'intensité du dipôle varie comme une loi de puissance de l'intensité laser (ordre entre 3 et 6). On observe bien la transition plateau - coupure et le fait que la phase accumulée lors du passage de l'électron dans le continuum est très importante (elle peut valoir plusieurs dizaines de radians même à des intensités relativement faibles). La transition plateau-coupure correspond à une intensité de l'ordre de $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. En ce qui concerne la phase, elle évolue d'une façon linéaire en fonction de l'intensité I (voir l'équation 1.4). Quand l'harmonique est dans la région de coupure elle varie comme $-3.2 U_P$ et comme $-5.8 U_P$ dans la région de plateau.

1.3 Aspects macroscopiques et accord de phase

Un aspect aussi important que l'aspect microscopique est l'aspect macroscopique (l'effet de propagation). Le champ harmonique macroscopique à l'ordre (q impairs) résulte de la superposition cohérente des champs rayonnés à la fréquence $q\omega$ par tous les dipôles atomiques existant dans le volume d'interaction. Comme nous l'avons vu précédemment, le dipôle est caractérisé par une amplitude et une phase. Pour obtenir un signal maximal il faut que les dipôles harmoniques interfèrent constructivement tout au long de la propagation dans le milieu de génération (voir la figure 1.8). C'est donc un problème d'accord de phase entre la polarisation non-linéaire et le champ harmonique qui doivent se propager avec la même vitesse de phase dans le milieu générateur.

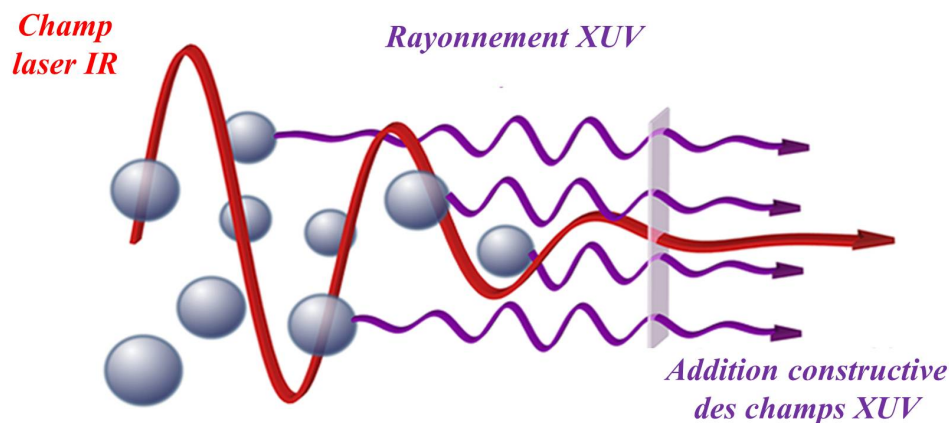


FIGURE 1.8 – Propagation des dipôles harmoniques générés à différentes phase du champ infrarouge jusqu'à la sortie du milieu générateur.

1.3.1 Cadre général de l'accord de phase

Suivant les équation de Maxwell, l'expression générale d'un champ électromagnétique E de fréquence ω se propageant dans un milieu de polarisation $P^{NL}(\omega)$ et d'indice $n(\omega)$ s'écrit :

$$\nabla^2 E(\omega) + n^2(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} E(\omega) = \frac{-\omega^2}{\varepsilon c^2} P^{NL}(\omega) \quad (1.23)$$

On obtient dans le cadre de l'approximation paraxiale avec $E(\omega) = E_0 e^{-ikz}$, avec $k = \frac{n\omega}{c}$ le vecteur d'onde :

$$2ik(\omega) \frac{\partial E_0}{\partial z} = \frac{\omega^2}{\varepsilon_0 c^2} P(\omega) e^{ik(\omega)z} \quad (1.24)$$

L'intégrale de l'équation 1.24 donne l'expression du champ de l'harmonique q rayonné par la polarisation atomique à la pulsation q ω :

$$\varepsilon_q = \frac{q\omega}{2i\varepsilon_0 c n_q} \int P_q e^{ik_q z} dz \quad (1.25)$$

La polarisation P_q correspond au produit de la densité du milieu par le dipôle d_q présenté dans la partie précédente. Comme nous l'avons déjà mentionné, la phase totale du champ harmonique est la somme de la phase propre et de la phase due à la propagation. Le déphasage entre le faisceau harmonique et le faisceau fondamental s'écrit en tout point z de l'axe de propagation comme :

$$\phi(z) = (k_q - qk_{IR})z - \phi_{at,k} \quad (1.26)$$

Ceci permet d'écrire l'expression du champ harmonique émis par un milieu de longueur l_{med} :

$$E_q \propto \int_0^{l_{med}} \rho |d_q(z)| e^{i\phi(z)} dz \quad (1.27)$$

Où $|d_q(z)|$ est l'amplitude du dipôle harmonique. Il est à noter d'après cette formule que le champ harmonique à chaque position z est le résultat d'interférences entre les champs émis à toutes les positions du milieu génération en amont.

1.3.2 Accord de phase dans un milieu dilué

Dans cette partie, le phénomène de réabsorption des photons XUV par le milieu générateur n'est pas pris en compte. En utilisant l'équation 1.27, le nombre de photons harmoniques suivant l'axe z par unité de temps s'écrit :

$$N_{photons} = \frac{q\omega}{4c\varepsilon_0 \hbar} \left| \int_0^{l_{med}} \rho |d_q(z)| e^{i\phi(z)} dz \right|^2 \quad (1.28)$$

On suppose d'un côté que le milieu est homogène donc que ρ ne dépend pas de z et que l'amplitude du dipôle est la même pour toutes les positions z. Donc en linéarisant la phase ($\phi(z) = z\delta k$), l'expression devient :

$$N_{photons} = \frac{q\omega \rho^2 |d_q(z)|^2}{4c\varepsilon_0 \hbar} \left| \int_0^{l_{med}} e^{i\delta k z} dz \right|^2 \quad (1.29)$$

La résolution analytique de l'équation 1.29 donne :

$$N_{photons} \propto |d_q|^2 l_{med}^2 \frac{1}{\delta k^2} \left(4 \sin^2 \left(\frac{\delta k l_{med}}{2} \right) \right) \quad (1.30)$$

Cette expression est formée de deux parties indépendantes, une partie de propagation et une partie purement atomique exprimée par le module carré du dipôle harmonique. Nous remarquons que dans le cas d'un accord de phase parfait ($\delta k = 0$), le nombre de photons total généré varie d'une façon quadratique avec la longueur de milieu. Pour un nombre d'émetteurs donné, même si la condition d'accord de phase n'est pas totalement satisfaite on évalue le signal harmonique correcte à l'aide du concept de désaccord de phase dans une étude unidimensionnelle (1D) [Ph. Balcou 1997] :

$$\delta k = k_q - qk_{laser} - K \quad (1.31)$$

Les conditions d'accord de phase optimum sont obtenues quand Δk tend vers 0. Lorsque cette condition est atteinte, plus le milieu de génération est long plus le signal harmonique est intense. On introduit la longueur de cohérence l_{coh} qui est la longueur effective du milieu de génération appelée aussi longueur de déphasage sur laquelle l'accord de phase est réalisé. Cette longueur est définie comme la longueur qui sépare deux atomes émettant des rayonnements harmoniques en opposition de phase :

$$l_{coh} = \left| \frac{\pi}{\delta k} \right| \quad (1.32)$$

A ce niveau-là la longueur de milieu est un facteur limitant. Pour avoir un bon accord de phase, il existe donc une condition sur la longueur de milieu. L'idée est d'avoir un compromis entre la longueur de milieu et la longueur de cohérence de façon à avoir des milieux de génération suffisamment longs sans être inférieurs à la longueur de cohérence. Dans le cas contraire, il peut y avoir, dans la direction de propagation, des dipôles harmoniques qui interfèrent de manière destructive. Cette condition se traduit par l'équation suivante :

$$l_{med} \delta k \leq \pi \quad (1.33)$$

Je détaillerai dans le chapitre suivant (chapitre 2) les différents éléments constituant l'expression du vecteur d'onde de désaccord ainsi que le calcul de la longueur de cohérence.

1.3.3 Accord de phase dans un milieu absorbant

Dans un milieu de génération dense, il faut également prendre en considération l'absorption de ce milieu. Si cette absorption est importante le rayonnement émis au début du milieu sera absorbé par ce même milieu au bout d'une certaine longueur appelée longueur d'absorption. La longueur d'absorption est définie comme la longueur au bout de laquelle le signal est atténué par absorption d'un facteur $\frac{1}{e}$. Le signal transmis vaut alors :

$$S_{transmis} = S_0 e^{-l_{med}/l_{abs}} \quad (1.34)$$

Où S_0 est le signal généré en début de milieu et l_{med} la longueur du milieu. Cette longueur d'absorption est calculée à partir de la formule suivante :

$$l_{abs} = -\frac{l_{med}}{\ln(T)} \quad (1.35)$$

Avec T la transmission du milieu générateur que l'on peut trouver sur le site internet du centre CXRO (<http://www-cxro.lbl.gov>). Sachant que pour un milieu absorbant, le champ électrique émis au point z s'exprime comme :

$$E(z) = E_0 e^{\frac{-z}{2l_{abs}}} \quad (1.36)$$

Le calcul précédent du nombre de photons générés donne alors ([KAZAMIAS 2003]) :

$$N_{photons} \propto \frac{l_{abs}^2}{1 + 4\delta k^2 l_{abs}^2} \left(1 + e^{\frac{-l_{med}}{l_{abs}}} - 2\cos(\delta k l_{med}) e^{\frac{-l_{med}}{2l_{abs}}} \right) \quad (1.37)$$

La longueur d'absorption étant d'une grande importance dans la génération d'harmoniques, il faut trouver un bon compromis sur la densité du milieu générateur pour que le nombre d'émetteurs soit suffisant pour obtenir une émission efficace, mais pas trop élevé pour que l'absorption ne soit pas un facteur limitant. E.Constant et al [E. Constant 1999, E. Mével 2000] ont montré que l'optimum de l'émission est obtenu quand la longueur d'absorption, la longueur du milieu et la longueur de cohérence vérifient les conditions suivantes :

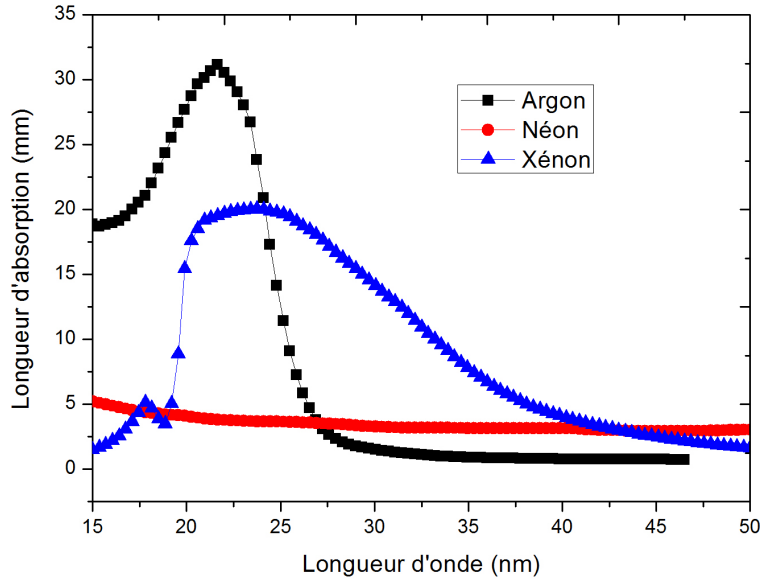


FIGURE 1.9 – Longueur d'absorption pour les trois gaz (argon, néon et xénon) en fonction de la longueur d'onde exprimée en nm. La pression est égale à 15 mbar pour les trois gaz (argon, néon et xénon).

$$l_{med} > 3l_{abs} \quad (1.38)$$

$$l_{coh} > 5l_{abs} \quad (1.39)$$

Pour donner un ordre de grandeur, j'ai présenté sur la figure 1.9 pour les trois gaz les plus couramment utilisés dans la génération d'harmoniques l'évolution de la longueur d'absorption en fonction de la longueur d'onde. Le calcul a été effectué pour une pression égale à 15 mbar pour les trois gaz (argon, néon et xénon).

1.3.4 Accord de phase dans un milieu dispersif

L'intensité de l'émission harmonique est liée au nombre des atomes émetteurs ; un niveau de signal élevé nécessite une densité atomique élevée. C'est à ce niveau que la dispersion du milieu générateur doit être prise en compte, ce qui constitue l'origine physique du déphasage. La dispersion du milieu intervient alors dans le processus d'accord de phase au travers les dispersions atomique δk_{atm} et électronique δk_{elec} qui seront explicités dans le chapitre suivant 2. La dispersion atomique est directement liée au nombre d'atomes neutres susceptibles de générer des photons XUV. La dispersion électronique est due à la densité d'électrons libres dans le milieu, cette densité est produite par l'ionisation des atomes dans le champ laser. En tenant compte de tous ces termes, le vecteur d'onde de désaccord s'écrit :

$$\delta k = \frac{q\omega}{c} \left(\frac{n_{elec}}{2n_c} - \delta n_{at} \right) + \frac{\frac{q}{z_0}}{1 + (\frac{z}{z_0})^2} - \left(\frac{2\alpha I_0 z / z_0^2}{1 + (z/z_0^2)^2} \right) \quad (1.40)$$

Où I_0 est l'intensité pic du laser, z_0 la longueur de Rayleigh du faisceau supposé gaussien, n_c la densité critique du plasma ($n_c = \frac{\omega^2 m_e}{\mu_0 e^2 c^2}$) où ω est la pulsation du laser fondamental et μ_0 la perméabilité du vide. Le premier terme de l'équation 1.40 correspond à la somme des dispersions atomique et électronique qui dépendent de l'ordre harmonique, de la pression et du degré d'ionisation dans le milieu. Le deuxième terme correspond à la dispersion de Gouy dépendant de la taille de la zone de Rayleigh (z_0) et de l'ordre harmonique, le dernier terme correspond à la dispersion propre des harmoniques qui lui dépend de l'intensité laser et de la constante α (des chemins quantiques).

1.4 Optimisation de la génération d'harmonique

Les harmoniques élevées étant une source de rayonnement XUV produite de façon non-linéaire par laser, elle dépendent fortement du laser d'excitation : son amplitude et sa durée d'impulsion notamment. D'un autre côté la nature du gaz utilisé est un autre facteur important dans la génération d'harmoniques. La simple loi de coupure (1.13) permet d'expliquer et d'interpréter le comportement des spectres harmoniques en fonction de ces conditions expérimentales. Je présenterai brièvement dans cette partie la dépendance des harmoniques vis à vis de ces paramètres.

1.4.1 Influence du gaz générateur

Le potentiel d'ionisation est un paramètre important de la génération d'harmonique, lié à la nature du gaz générateur. Les gaz rares les plus légers, présentant les potentiels d'ionisation les plus importants, génèrent les ordres harmoniques les plus élevés. Il est à signaler que plus le gaz est léger plus son ionisation demande une forte intensité. Ceci est montré par la figure 1.10 de la référence [L'Huillier 1993]. Sur cette figure on observe une comparaison du signal harmonique obtenu dans les quatre gaz (xénon, argon, néon et hélium) pour une intensité laser de l'ordre de $1.5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$.

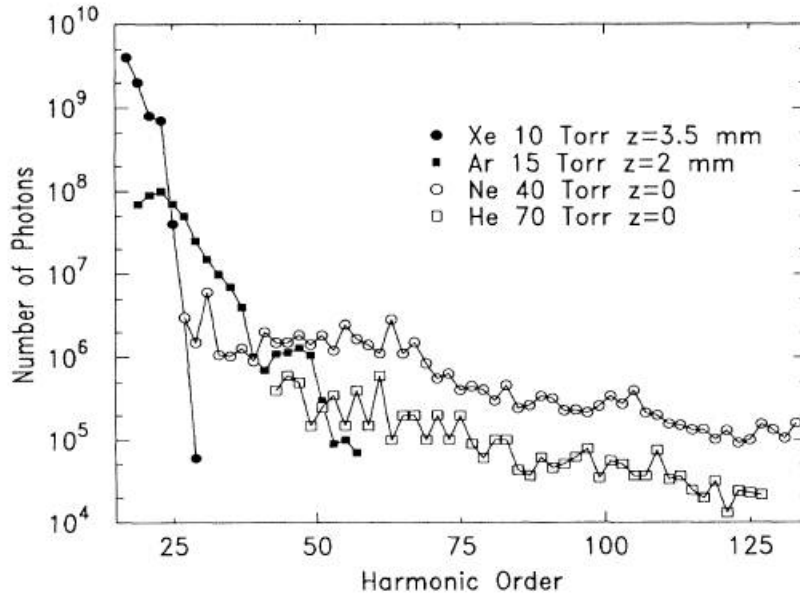


FIGURE 1.10 – Évolution du nombre de photon total généré dans le xénon, l'argon, le néon et l'hélium en fonction de l'ordre harmonique. L'intensité laser est de l'ordre de $1.5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$. Figure extraite de la référence [L'Huillier 1993].

Le xénon, qui a le potentiel d'ionisation le plus faible (12.13 eV), génère seulement quelques ordres harmoniques (typiquement 5), l'intensité du signal harmonique étant quasi constante entre l'harmonique 15 et 23, elle chute brutalement pour disparaître à l'harmonique 29 [Ph. Balcou 1992]. L'argon, présente deux plateaux successifs, le premier jusqu'à l'harmonique 27 et l'autre entre l'harmonique 39 et 49 [A. Maquet 1992], la loi de cutoff n'explique la présence que d'un seul plateau. L'existence d'un deuxième plateau peut être attribuée à une génération dans les ions d'argon sur laquelle nous reviendrons dans le chapitre 5. Pour le néon et l'hélium on observe des plateaux plus longs puisque ces gaz présentent des potentiels d'ionisation élevés.

1.4.2 Influence de l'éclairement

L'intensité laser est un paramètre fondamental pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Elle est liée à la fréquence de coupure du plateau harmonique ((1.5) et (1.13)) et au degré d'ionisation du gaz générateur qui est proportionnel à l'amplitude du dipôle harmonique

[M. Lewenstein 1994]. Wahlstrom et al ont étudié la dépendance du signal harmonique en fonction de l'intensité laser [C.-G. Wahlstrom 1993]. La figure 1.11 présente un exemple de variation du signal de l'harmonique 15 générée dans l'argon en fonction de l'intensité laser. A faible intensité $2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, l'harmonique se situe dans la coupure du spectre et atteint le plateau autour de 10^{14} W/cm^2 . Le signal harmonique atteint la saturation à $I = 2.35 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$; à partir de cette intensité le degré d'ionisation élevé provoque la chute du signal. Les auteurs ont ajusté la variation de l'intensité du signal harmonique avec l'intensité laser par I^η avec $\eta = 14$ avant le plateau puis 5 dans le plateau. Ce comportement est similaire pour tous les ordres harmoniques. En plus de son influence sur le signal harmonique, l'intensité laser modifie aussi l'étendu du spectre harmonique (l'ordre harmonique maximal généré).

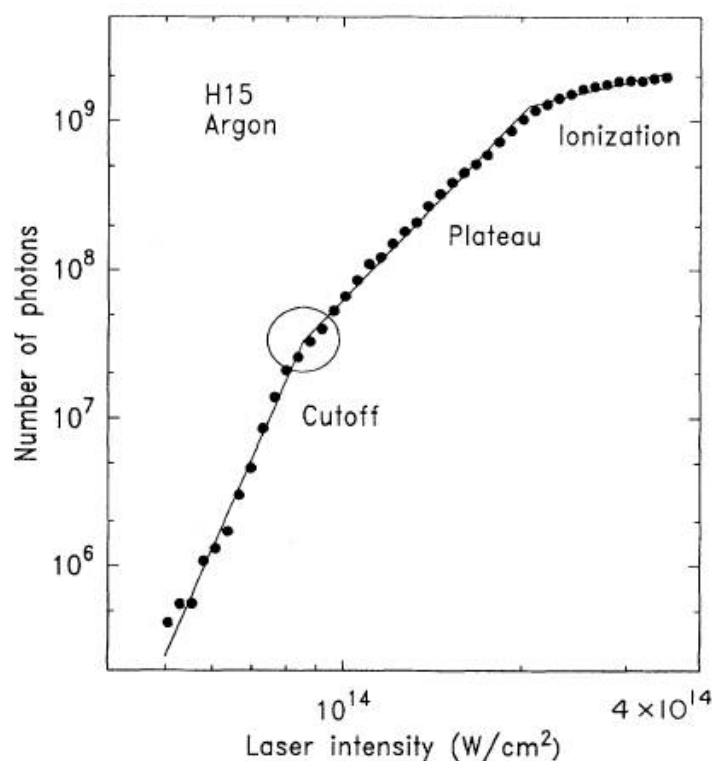


FIGURE 1.11 – Évolution du signal de l'harmonique H15 générée dans l'argon en fonction de l'intensité du laser. Figure extraite de la référence [C.-G. Wahlstrom 1993].

La figure 1.12 représente, pour plusieurs intensités laser, les plateaux harmoniques de l'argon (figure 1.12 (a)) et du néon (figure 1.12 (b)). Dans le cas de l'argon, on observe que l'ordre harmonique maximal généré augmente de l'harmonique 21 à l'harmonique 29 lorsque l'intensité laser passe de 10^{14} W/cm^2 à $1.7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Une intensité plus élevée ($3.4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$) donne lieu à une coupure poussée vers les ordres les plus élevés (l'harmonique maximale générée est l'harmonique 35). Cette augmentation de la coupure est accompagnée d'une augmentation de l'efficacité de conversion. Pour le néon, l'harmonique maximale générée passe de 29 à 79 lorsque l'intensité passe de $1.1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ à $7.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Dans la même étude, Wahlstrom et al

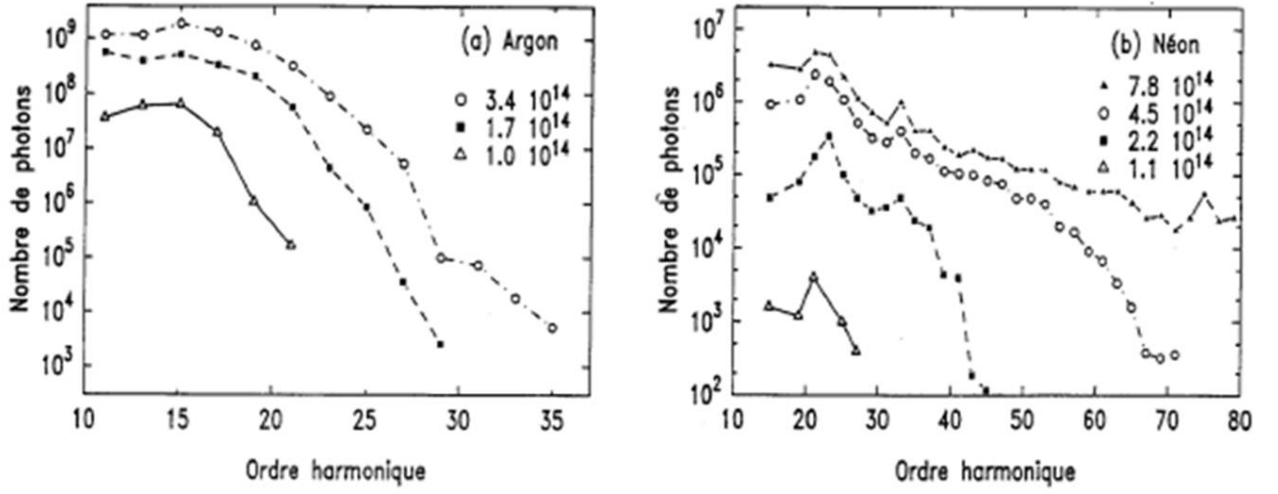


FIGURE 1.12 – Nombre de photons HHG en fonction de l'ordre harmonique. (a) génération dans l'argon, pour des intensités entre 10^{14} W/cm² à $3.4 \cdot 10^{14}$ W/cm². (b) génération dans le néon, pour des intensités entre $1.1 \cdot 10^{14}$ W/cm² à $7.8 \cdot 10^{14}$ W/cm². Figure extraite de la référence [C.-G. Wahlstrom 1993].

montrent que la variation de la coupure du plateau harmonique est affine avec l'intensité laser.

1.4.3 Influence de la durée d'impulsion laser

La figure 1.13 montre une comparaison entre le signal harmonique généré dans l'argon pour trois durées d'impulsion différentes (25 fs, 50 fs et 100 fs) à intensité maximale constante ($4 \cdot 10^{14}$ W/cm²). Sur cette figure on observe que le signal des harmoniques entre 23 et 35 reste le même pour les deux durée d'impulsion 25 et 50 fs. Pour les ordres les plus élevés (au-delà de 35) le signal généré par une impulsion de 25 fs est plus important avec un plateau présentant trois ordres harmonique de plus par rapport au spectre généré par une impulsion de 50 fs.

Pour l'impulsion laser de 100 fs de durée, le signal HHG correspondant est plus faible et l'ordre harmonique maximal généré est 41 contre H53 pour 50 fs et 59 pour 25 fs. L'étendue du plateau pour les impulsions courtes est liée à l'ionisation qui varie au cours du temps. Or pour une impulsion longue, l'ionisation quasi-totale du gaz se produit avant le maximum de l'impulsion donc sur le front montant de l'impulsion. Ceci réduit le nombre d'atomes neutres responsables de la génération d'harmoniques et donc diminue le signal harmonique et limite l'ordre maximal généré. Il en est de même pour la figure 1.14 qui montre deux spectres harmoniques générés dans le néon avec deux impulsions de durée différentes (7 fs et 30 fs). On observe que l'énergie harmonique donc la fréquence de coupure ν_{max} augmente lorsque la durée d'impulsion est plus courte.

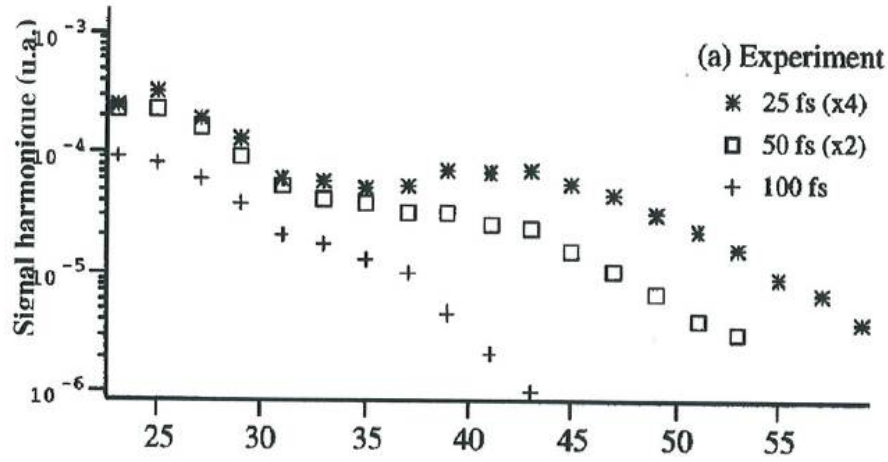


FIGURE 1.13 – Signal harmonique obtenu dans l'argon pour trois impulsions laser de durées différentes (25 fs, 50 fs et 100 fs) à intensité maximale constante ($4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Cette figure est extraite de la référence [Ivan P. Christov 1996].

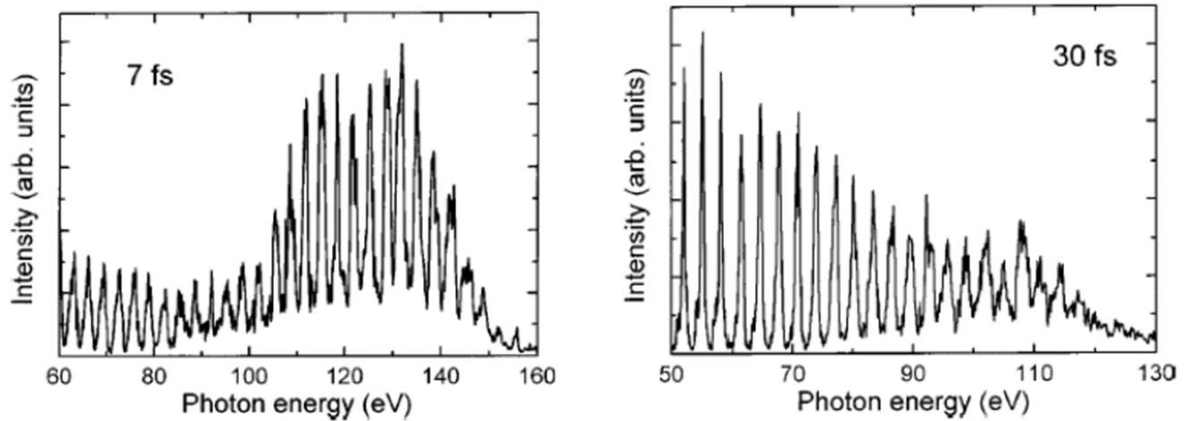


FIGURE 1.14 – Signal harmonique généré dans le néon pour deux impulsions de durées différentes (7 fs et 30 fs). La fréquence de coupure ν_{max} augmente quand la durée d'impulsion τ diminue. Figure extraite de la référence [E.Priori 2000].

1.5 Récapitulatifs des caractéristiques des harmoniques

1.5.1 Caractéristiques spectrales : atome unique

Pour résumer, les caractéristiques spectrales du rayonnement harmonique sont :

- L'efficacité de génération est maximale avec une polarisation linéaire du faisceau d'excitation.

- Les harmoniques sont générées sous forme d'un spectre discontinu ne présentant que les fréquences impaires :

$$\hbar\omega_q = (2n + 1)\hbar\omega \quad (1.41)$$

Avec ω_q et ω les pulsations de l'ordre harmonique et de l'impulsion du faisceau d'excitation.

- Le spectre harmonique présente trois régions spectrales différentes : perturbatif, plateau et coupure.
- L'ordre harmonique maximal généré augmente avec le potentiel d'ionisation et avec l'intensité laser à condition qu'elle reste inférieure à une intensité de saturation propre à chaque gaz.
- Plus la durée d'impulsion du faisceau d'excitation est courte plus la fréquence de coupure est élevée.

1.5.2 Caractéristiques spatiales

- Rayonnement synchronisé avec le faisceau fondamental.
- Faisceau cohérent spatialement.
- Faisceau Co-propageant avec le faisceau fondamental.
- Faisceau peu divergent. L'étude de la divergence du faisceau harmonique et l'aspect spatial sont présentés dans le chapitre 3.

1.5.3 Efficacités typiques

Le tableau suivant résume les efficacités de conversion typiques pour les gaz rares couramment utilisés pour la génération d'harmoniques ainsi que l'ordre maximal généré pour une longueur d'onde fondamentale de 800 nm :

Gaz	Efficacité de conversion	q_{max}
Krypton	$2.5 \cdot 10^{-5}$	21
Xénon	$2.5 \cdot 10^{-5}$	21
Argon	10^{-5}	35
Néon	10^{-7}	81
Hélium	10^{-8}	301

TABLE 1.2 – Ordre harmonique maximal généré et efficacités typiques de conversion pour différents gaz. La longueur d'onde du fondamental est de 800 nm.

1.6 Conclusion

Ce chapitre a présenté la physique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Le processus de génération a été expliqué selon les deux aspects microscopique et macroscopique. D'un point de vue microscopique, la génération s'effectue en trois étapes : l'ionisation par effet tunnel, l'accélération dans le continuum laser et la recombinaison radiative, qui donne lieu à une harmonique d'énergie égale à la somme du potentiel d'ionisation de l'atome et de l'énergie cinétique

acquise par l'électron pendant son excursion dans le champ laser. Après avoir présenté la théorie de génération harmonique à l'échelle de l'atome unique, nous avons étendu l'étude au domaine macroscopique qui concerne la réponse collective du milieu et introduit la notion d'accord de phase. Un bon niveau de signal harmonique est obtenu quand l'accord de phase est respecté, donc quand les champs harmoniques émis se propagent en phase jusqu'à la sortie du milieu de génération. Nous avons pu voir aussi au cours de ce chapitre les caractéristiques de la source harmonique et l'influence des différents paramètres expérimentaux sur le signal et sur l'étendue du plateau harmonique. Dans le chapitre suivant (chapitre 2), l'étude des différents éléments jouant un rôle dans l'optimisation de l'accord de phase seront étudiés en détails.

Influence de la pression sur l'accord de phase en géométrie de forte focalisation

Sommaire

2.1	Introduction et motivation	31
2.2	Présentation des résultats de Seres et al	32
2.3	Modélisation 1D dépendante du temps	34
2.3.1	Description du modèle 1D	34
2.3.2	Limites et avantages du modèle	34
2.4	Calcul de la longueur de cohérence	35
2.4.1	Vecteur d'onde des harmoniques	35
2.4.2	Gradient de phase propre du dipôle	35
2.4.3	Vecteur d'onde du laser IR	36
2.4.4	Vecteur d'onde de désaccord	40
2.4.5	Longueur d'absorption	40
2.5	Calcul du signal harmonique total	41
2.6	Application et résultats	42
2.7	Dépendance de la longueur de cohérence en fonction de la pression	44
2.7.1	Basse intensité : faible ionisation	44
2.7.2	Dépendance temporelle : prise en compte de l'ionisation	46
2.8	Inflexions du signal pour certaines pressions	49
2.8.1	Cas de faible ionisation	49
2.8.2	Inflexions en présence de l'ionisation	50
2.9	conclusion	52

2.1 Introduction et motivation

Un article sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés a été publié dans le prestigieux journal "Nature Physics" au mois d'avril 2010, trois mois après le début de ma thèse. Cet article a pour titre "Laser-driven amplification of soft X-rays by parametric stimulated emission in neutral gases" [J. Seres 2010a]. En effet une équipe allemande de l'Université de Iena a étudié expérimentalement la variation d'un signal harmonique en fonction de la pression sur deux installations laser différentes. L'observation expérimentale d'une croissance exponentielle - ou plus précisément plus que quadratique - du signal harmonique avec la pression leur a semblé être la preuve que la théorie habituellement admise de la génération d'harmoniques était mise

en défaut. Ils ont donc proposé une nouvelle théorie nommée "XPA" pour X-ray parametric amplification afin de rendre compte de leurs résultats.

De notre côté, peu convaincus par leur démonstration, nous nous sommes fixé comme objectif de comprendre et d'expliquer les résultats de Seres et al [J. Seres 2010a] dans le cadre de la théorie de la génération d'harmoniques telle que présentée dans le chapitre 1. Dans ce chapitre 2, nous montrerons qu'une étude détaillée de l'accord de phase permet de reproduire et d'expliquer l'influence de la pression sur la variation du signal harmonique. Nous analyserons plus spécifiquement le rôle de l'ordre harmonique, de l'intensité laser et du régime de focalisation. Nous détaillerons aussi l'explication d'effets fins observés dans les résultats expérimentaux, effets qui n'ont été ni relevés ni expliqués par les auteurs de l'article original.

2.2 Présentation des résultats de Seres et al

La spécificité des conditions expérimentales utilisées par l'équipe de Seres et al est un régime de forte focalisation imposé par la faible énergie et surtout la grande durée d'impulsion du laser infrarouge de pompe. Dans ce cas, la forte focalisation est nécessaire pour atteindre l'intensité de saturation permettant une bonne intensité du dipôle harmonique donc une génération d'harmonique efficace [M. Lewenstein 1994]. Pour ce régime de génération, la longueur de la zone de Rayleigh est réduite. L'inconvénient majeur de cette technique réside dans la faible efficacité de génération donc la faible énergie XUV extraite.

En 1999, M. Schnürer et al [M. Schnürer 1999] ont utilisé la technique de forte focalisation pour générer les harmoniques dans le néon (10-13 nm) avec une efficacité de conversion de l'ordre de $3\text{-}4 \cdot 10^{-8}$ et dans l'argon (30 nm) avec une efficacité de conversion de 10^{-6} . Le laser utilisé était un Ti :Sa délivrant des impulsions de 0.7 mJ d'énergie, d'une durée inférieure à 10 fs. Pour étudier la génération d'harmoniques, ce laser a été focalisé sur un jet de gaz ($2 w_0 \simeq 60 \mu\text{m}$) résultant en une intensité au foyer de $5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

Or, pendant ces 20 dernières années, les systèmes laser ultracourts ont fortement progressé en termes d'énergie, de durée d'impulsion et également de taux de répétition. Cette réserve d'énergie supplémentaire a soulevé la question de son utilisation pour atteindre un niveau d'énergie XUV plus élevé. En théorie, il n'y a pas de limite d'énergie pour une génération efficace de rayonnement XUV mais plutôt une limite d'intensité. Comme présenté dans le chapitre 1, lorsque l'intensité focalisée atteint l'intensité de saturation, l'efficacité de la génération s'effondre à cause d'une trop forte ionisation qui décime la population de neutres et détruit l'accord de phase.

Si l'intensité augmente, il faut donc que la zone d'interaction avec le gaz générateur augmente d'une manière adaptée. C'est le principe de la technique de focalisation dite douce, « loose focussing » en anglais (grande zone de Rayleigh pour assurer une longue zone d'interaction entre le gaz et le laser, intensité un peu élevée, faible pression). Pour ces conditions expérimentales la génération du rayonnement XUV est beaucoup plus efficace, comme le montrent J.Hergott [J.-F. Hergott 2002] et Tamaki [Yusuke Tamaki 2000] dans leurs travaux de recherche où ils annoncent avoir atteint une meilleure efficacité de conversion à des énergies de pompe élevées à l'aide de longues focales. Ainsi quand les caractéristiques laser le permettaient la forte focalisation a été abandonnée depuis plusieurs années pour être remplacée par un régime de focalisation douce donnant une meilleure efficacité de conversion.

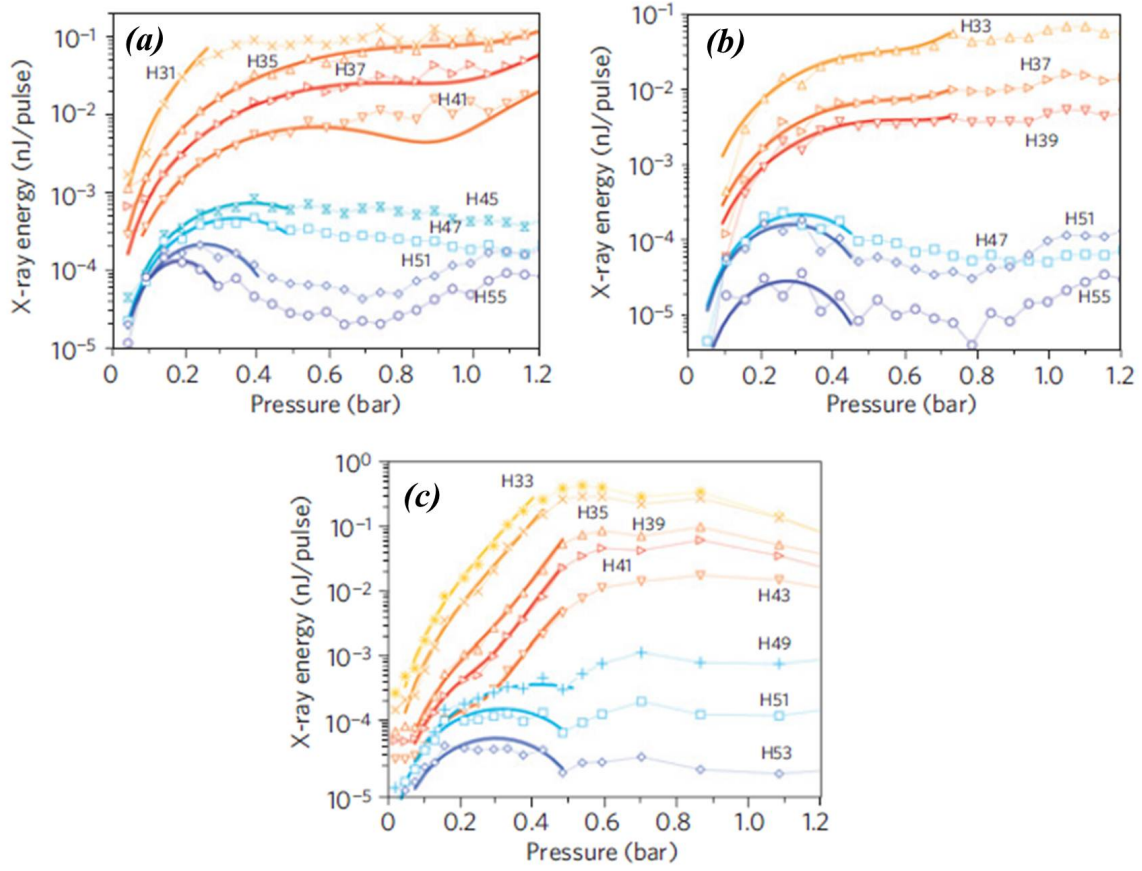


FIGURE 2.1 – Variation du signal harmonique en nJ / impulsion en fonction de la pression d'argon pour une impulsion centrée à 1054 nm et de durée 350 fs. L'intensité laser est égale à (a) $4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, (b) $3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, (c) $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Figure extraite de la référence [J. Seres 2010a].

L'expérience de Seres et al a été effectuée avec le système laser infrarouge de PHELIX qui délivre des impulsions de 350 fs de durée avec un taux de répétition de 10 Hz. La longueur d'onde est centrée à 1054 nm et l'énergie est de l'ordre de 10 mJ par impulsion. Le laser a été focalisé par une lentille de courte distance focale ($z_0 = 5 \text{ mm}$) dans une cellule de 2 mm de longueur, cette cellule est connectée à une valve pour l'injection du gaz [J. Seres 2010b].

Les figures 2.1 et 2.2 montrent en échelle logarithmique les courbes d'évolution du signal XUV généré dans l'argon en fonction de la pression de gaz pour cinq valeurs d'intensités laser différentes. Sur ces figures, les auteurs de l'article ont présenté les courbes expérimentales et les ajustement effectués en utilisant leur modèle à multiples paramètres ajustables.

On observe effectivement une augmentation plus que quadratique du signal harmonique en fonction de la pression, cette croissance est suivie d'une saturation dans le cas des intensités élevées et d'une diminution lente dans le cas des faibles intensités laser. Notre analyse de ces

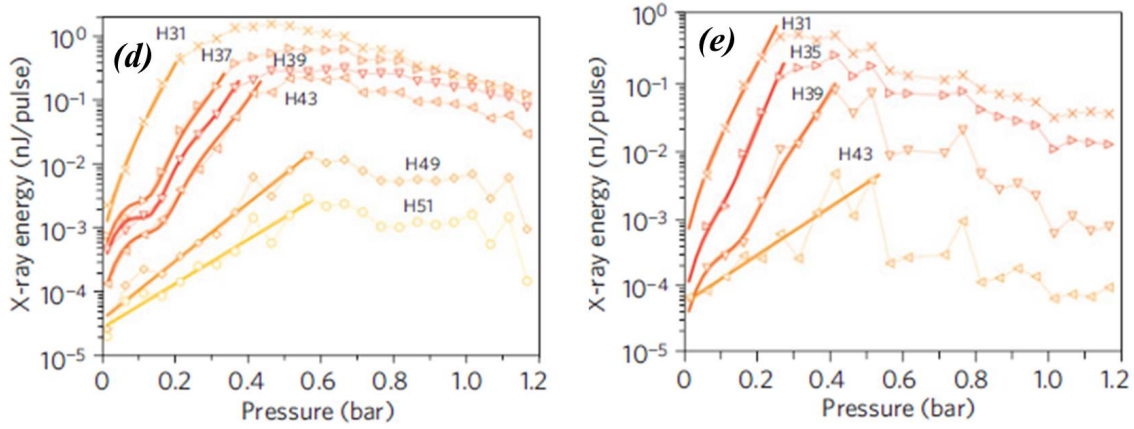


FIGURE 2.2 – Variation du signal harmonique en nJ / impulsion en fonction de la pression d'argon pour une impulsion centrée à 1054 nm et de durée 350 fs. L'intensité laser est égale à (d) $1.5 \cdot 10^{14}$ W/cm², (e) $1.1 \cdot 10^{14}$ W/cm². Figure extraite de la référence [J. Seres 2010a].

comportements est basée sur un code d'accord de phase unidimensionnel (1D) dépendant du temps, développé dans le cadre de la thèse de Sophie Kazamias [S. Kazamias 2003b].

2.3 Modélisation 1D dépendante du temps

2.3.1 Description du modèle 1D

La génération d'harmoniques est un processus qui varie fortement avec le temps. Cette dépendance temporelle est induite par la variation du dipôle harmonique avec l'intensité [M. Lewenstein 1994] et par la dépendance temporelle de l'accord de phase provoquée par l'ionisation progressive du milieu. Le code 1D que nous avons utilisé permet d'étudier cette dépendance temporelle de l'accord de phase en fonction des paramètres de génération d'harmoniques. Ce code fonctionne en plusieurs étapes, il commence par le calcul de la fraction ionique en utilisant les taux Ammosov, Delone et Krainov (ADK) [N.P. Delone 1998]. L'étape suivante est le calcul de la longueur de cohérence puis du signal harmonique instantané, et finalement son intégration sur toute la durée de l'impulsion. Les paramètres entrant en jeu dans ce calcul sont les paramètres du gaz (nature du gaz, potentiel d'ionisation I_p , pression P , la longueur d'absorption l_{abs}), les paramètres du milieu (longueur du milieu l_{med} , position de la cellule par rapport au foyer z_{cell}) et les paramètres laser (zone de Rayleigh z_R , durée d'impulsion, intensité).

2.3.2 Limites et avantages du modèle

Ce code est écrit en langage Matlab, il est partagé en plusieurs sous-programmes traitant chacun une partie du calcul global. Il présente l'avantage d'être simple d'utilisation et de donner des réponses quasi instantanées. J'ai adapté le code à la configuration de forte focalisation et aux conditions expérimentales utilisées dans le cadre de l'expérience de Seres et al (longueur

d'onde du laser de pompe plus élevée). Il nous a ainsi permis de reproduire en les expliquant les résultats de l'article et de comprendre d'autres effets plus fins. Une de ses limites est le fait qu'il ne tient pas compte de la dépendance transverse du signal, ni de l'effet de la défocalisation du laser par l'ionisation pour le cas de fortes intensités. En revanche, l'approximation d'enveloppe lentement variable utilisée est appropriée pour les longues impulsions de l'expérience de Seres et al.

2.4 Calcul de la longueur de cohérence

Dans le cadre de la génération d'harmoniques d'ordres élevés, la longueur de cohérence (l_{coh}) est définie comme la longueur dans le milieu de génération qui sépare deux dipôles harmoniques dont les champs interfèrent destructivement. La différence de phase entre les deux ondes harmoniques est alors égale à π . Cette longueur est d'une grande importance dans l'étude et la compréhension de l'accord de phase et de l'optimisation de la génération d'harmoniques. Elle est définie par $l_{coh} = \frac{\pi}{|\delta k|}$, avec δk le vecteur de désaccord entre le faisceau de pompe infrarouge et le faisceau XUV émis [S. Kazamias 2003b]. Dans une représentation unidimensionnelle, ce vecteur est donné pour l'ordre q par :

$$\delta k = k_q - qk_{laser} - K \quad (2.1)$$

Avec k_q le vecteur d'onde du faisceau correspondant à l'harmonique q , k_{laser} le vecteur d'onde du faisceau laser infrarouge de pulsation ω et K le vecteur d'onde propre induit par les harmoniques. Nous nous intéressons juste aux modules des vecteurs d'onde k dans notre étude unidimensionnelle. Nous allons par la suite expliciter les différents termes dont dépend la longueur de cohérence.

2.4.1 Vecteur d'onde des harmoniques

Le vecteur d'onde du faisceau harmonique est défini par : $k_q = qn \frac{\omega}{c}$. Or pour les harmoniques, les dispersions atomique et électronique sont négligeables par rapport à l'effet sur l'infrarouge, l'indice vu par les harmoniques est donc proche de 1. Le vecteur d'onde est égal à : $k_q = q \frac{\omega}{c}$.

2.4.2 Gradient de phase propre du dipôle

Le gradient de phase propre du dipôle est un terme propre aux harmoniques, il vient de la dépendance en intensité de la phase atomique du dipôle. Ce terme s'exprime pour le cas d'un faisceau gaussien comme suit :

$$K = -\alpha \frac{dI}{dz} = \frac{2\alpha I_{max} \frac{z}{z_0^2}}{(1 + (\frac{z}{z_0})^2)^2} \quad (2.2)$$

Avec I_{max} l'intensité maximale du laser au foyer et α égal à $2 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ pour le premier chemin quantique et $22 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ pour le deuxième chemin quantique [Ph. Balcou 1999]. Le signe de ce terme dépend de la position du milieu de génération, il est positif pour un milieu placé avant le foyer et négatif quand on focalise après. Quand il est placé au foyer du laser, ce terme s'annule.

2.4.3 Vecteur d'onde du laser IR

2.4.3.1 Taux d'ionisation ADK

La longueur de cohérence dépend fortement de l'ionisation à travers les termes de dispersions atomique et électronique que nous allons expliciter par la suite. La première étape du code est le calcul de la fraction ionique effectué avec les taux ADK. La figure 2.3 montre l'évolution des fractions ioniques calculées dans l'argon avec les taux ADK pour une impulsion de durée 350 fs et d'intensité variable, le maximum se situant à 500 fs. Pour $I = 1.1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ l'ionisation est pratiquement nulle, elle atteint un degré de 23 % pour $I = 1.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Dès que l'intensité laser devient supérieure à $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ elle devient presque totale. L'ionisation des états de charges supérieures peut avoir lieu quand $I > 4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

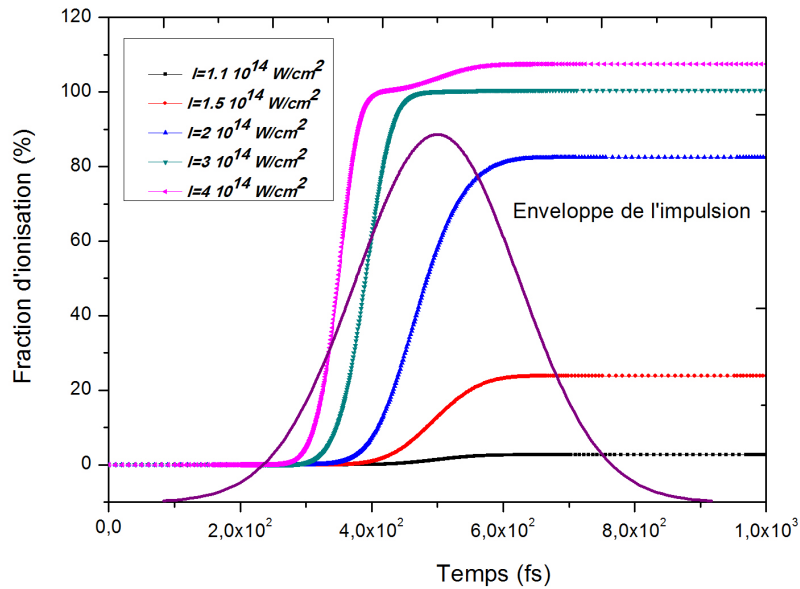


FIGURE 2.3 – Évolution de la fraction ionique en fonction du temps pour des valeurs d'intensité variable de $1.1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ jusqu'à $4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. La durée d'impulsion est 350 fs et le maximum de l'impulsion se situe à 500 fs. Le degré d'ionisation est quasiment nul pour $I = 1.1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, dès que $I > 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, l'ionisation est pratiquement totale. Les états de charge supérieurs peuvent être ionisés quand $I > 4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

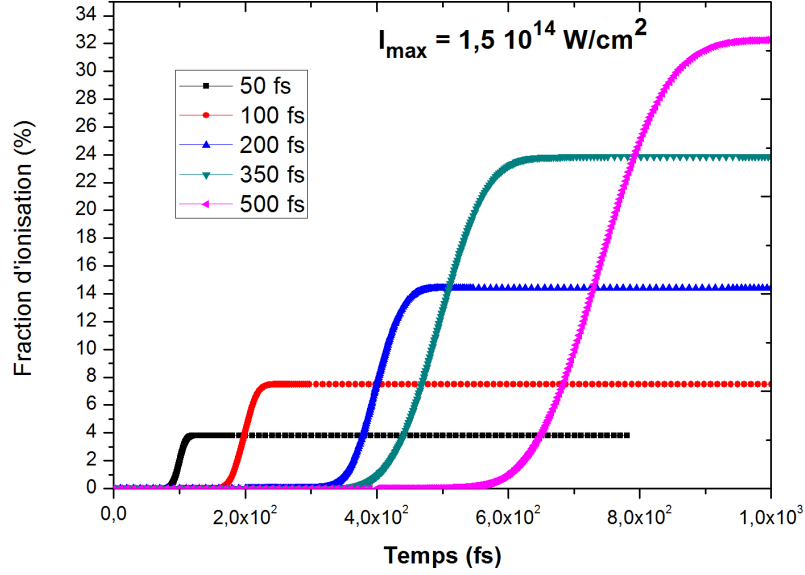


FIGURE 2.4 – Évolution de la fraction ionique au cours du temps pour cinq durées d'impulsions différentes (50, 100, 200, 350 et 500 fs). Pour les cinq cas, l'intensité maximale est fixée à $1.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

La figure 2.4 présente l'évolution de la fraction d'ionisation en fonction du temps pour cinq durées d'impulsions différentes (50, 100, 200, 350 et 500 fs). Pour les cinq cas étudiés, l'intensité maximale est fixée à $1.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Il est à remarquer que pour la même intensité maximale, la fraction d'ionisation est d'autant plus élevée que l'impulsion est longue. Le milieu est ionisé à 32 % pour une impulsion qui dure 500 fs alors que lorsque la durée est de 50 fs l'ionisation du milieu est de l'ordre de 3,9 %.

2.4.3.2 Dispersion de Gouy

La phase géométrique est une notion très importante pour l'étude de l'accord de phase dans la génération d'harmoniques d'ordres élevés. La focalisation du laser infrarouge introduit un déphasage géométrique dû au changement de signe de la taille du faisceau laser au passage par le foyer. Cette phase est acquise sur la longueur de Rayleigh, elle est connue sous le nom de « phase de Gouy » [Born 1959]. Dans le cas d'un faisceau gaussien elle vaut : $\phi(z) = \arctan(z/z_0)$.

La modification du vecteur d'onde k induite par la focalisation du laser s'écrit :

$$\delta k_{\text{Gouy}} = \frac{d}{dz} \left(-\arctan\left(\frac{z_{\text{cell}}}{z_0}\right) \right) = \frac{\frac{-1}{z_0}}{1 + \left(\frac{z_{\text{cell}}}{z_0}\right)^2} \quad (2.3)$$

Où z_0 est la longueur de Rayleigh égale à 5 mm dans le cas de l'expérience de Seres et al et $z_{\text{cell}} = 2 \text{ mm}$ correspond à la position de la cellule par rapport au foyer. Il est à noter que la

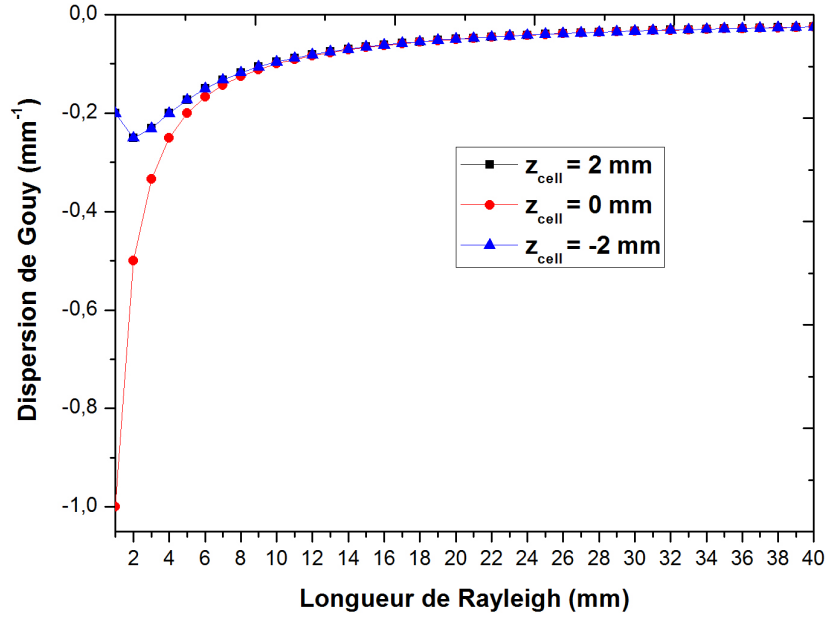


FIGURE 2.5 – Évolution de la dispersion de Gouy en fonction de la longueur de la zone de Rayleigh. Le calcul est effectué pour trois valeurs de position de la cellule par rapport au foyer du laser (2 mm avant, 2 mm après et au foyer). Cette dispersion correspond à la modification du vecteur d'onde du laser, elle est due la focalisation du laser de pompe.

dispersion de Gouy est un terme négatif quelle que soit la position de la cellule par rapport au foyer (avant ou après), elle atteint sa valeur maximale quand le milieu de génération est placé au foyer. Elle varie inversement proportionnellement avec la longueur de Rayleigh. Or pour les conditions expérimentales de Seres et al (forte focalisation), la dispersion de Gouy est importante vue la faible longueur de Rayleigh (5 mm). La figure 2.5 montre l'évolution de la dispersion de Gouy en fonction de la longueur de la zone de Rayleigh. La valeur absolue de la dispersion de Gouy varie bien inversement avec la taille de la zone de Rayleigh.

2.4.3.3 Dispersion atomique

La relation qui lie l'indice du milieu au module du vecteur d'onde est $k = n \frac{\omega}{c}$. L'interaction entre le laser et les atomes du gaz entraîne une modification de cet indice du milieu via l'ionisation. Cette modification est totalement due au changement de la dispersion atomique (dépendante du temps) à cause de la diminution du nombre des neutres dans le milieu. Dans ce chapitre nous nous intéressons au cas de l'argon neutre dont la dispersion atomique à 1054 nm vaut d'après la thèse de Romain Haroutunian[Haroutunian 2001] :

$$\delta k_{atm}(mm^{-1}) = 1.6610^{-3} \times P(mbar)(1 - \tau) \quad (2.4)$$

Avec τ la fraction d'ionisation dépendante du temps, calculée avec les taux ADK.

Cette contribution de la modification du vecteur d'onde de désaccord est positive et d'autant plus grande que le gaz est lourd : $\delta k_{atm}(\text{Xe}) > \delta k_{atm}(\text{Ar}) > \delta k_{atm}(\text{He}) > \delta k_{atm}(\text{Ne})$.

2.4.3.4 Dispersion électronique

Par ailleurs, des électrons libres sont générés suite à l'interaction entre le laser et le gaz au cours du processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés (voir chapitre 1). Ces électrons modifient l'indice de réfraction du milieu par l'intermédiaire de la densité électronique n_e :

$$n_\omega = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c(\omega)}} \quad (2.5)$$

Avec n_c la densité critique du plasma et n_e la densité électronique, elles sont respectivement données par :

$$n_c = \frac{\omega^2 m_e}{\mu_0 c^2 e^2} \quad (2.6)$$

et

$$\delta n_e = \frac{\tau P}{k_B T} \quad (2.7)$$

Où ω est la pulsation du laser, μ_0 et c les constantes fondamentales du vide, m_e et e respectivement la masse et la charge de l'électron, P la pression du gaz, k_B la constante de Boltzmann et T la température ambiante. La densité critique correspond à la densité électronique pour laquelle le faisceau laser ne peut plus se propager dans le plasma. Elle varie inversement proportionnellement avec la longueur d'onde du laser et vaut $1.01 \cdot 10^{27} \text{ m}^{-3}$ pour $\lambda = 1054 \text{ nm}$. Dans le cas où $n_e < n_c$ la dispersion électronique s'écrit :

$$\delta k_{elec} = \delta n_{elec} \frac{\omega}{c} = -\frac{n_e \omega}{2c n_c} \quad (2.8)$$

$$\delta k_{elec}(\text{mm}^{-1}) = \frac{-\lambda P(\text{mbar}) 0.1 \tau \mu_0 e^2}{4\pi m_e k_B T} \quad (2.9)$$

$$\delta k_{elec}(\text{mm}^{-1}) = -0.072 \times \tau \times P(\text{mbar}) \quad (2.10)$$

La dispersion électronique est une composante négative du vecteur d'onde de désaccord de phase. Elle dépend du temps dans le cas où le degré d'ionisation dans le milieu est notable. Pour un faible degré d'ionisation correspondant à une intensité laser faible, la dispersion électronique devient une fonction qui ne dépend que de la pression du gaz.

2.4.4 Vecteur d'onde de désaccord

Une fois les différents termes entrant en jeu dans le calcul du vecteur d'onde de désaccord déterminés, son expression devient (équation 2.1) :

$$\delta k = q \frac{\omega}{c} - q \left(\frac{\omega}{c} (1 + \delta n_{atm} + \delta n_{elec}) + \delta k_{Gouy} \right) - K \quad (2.11)$$

$$\delta k = -q(\delta k_{atm} + \delta k_{elec} + \delta k_{Gouy}) - K \quad (2.12)$$

Pour les conditions expérimentales de Seres et al, le calcul de ce vecteur d'onde donne :

$$\delta k = q \frac{1}{z_0 + \frac{z_{cell}^2}{z_0}} - q 10^{-3} P(1.66 - 73.66 \times \tau) - K \quad (2.13)$$

On peut en déduire l'expression de la longueur de cohérence :

$$l_{coh}(t) = \frac{\frac{\pi}{q}}{\left| \frac{1}{z_0 + \frac{z_{cell}^2}{z_0}} - 10^{-3} P(1.66 - 73.66 \times \tau) - K/q \right|} \quad (2.14)$$

2.4.5 Longueur d'absorption

On rappelle que la longueur d'absorption est définie comme la longueur de propagation dans le gaz au bout de laquelle le signal XUV est atténué par absorption d'un facteur 1/e. Cette longueur vaut $l_{abs} = -l_{med}/Ln(T)$ avec T la transmission du milieu générateur (voir chapitre 1). Sur la figure 2.6 nous avons représenté la variation de la longueur d'absorption en mm pour 100 mbar d'argon en fonction de l'ordre harmonique q. La longueur d'absorption est un facteur fondamental dans la génération d'harmoniques, il faut trouver un bon compromis sur la densité du milieu générateur pour que le nombre d'émetteurs soit suffisant afin d'obtenir une émission efficace mais pas trop élevée pour que l'absorption ne soit pas un facteur limitant.

E.Constant et al [E. Constant 1999] ont montré que l'optimum de l'émission est obtenu quand la longueur d'absorption, la longueur du milieu et la longueur de cohérence vérifient les conditions suivantes :

$$l_{med} > 3l_{abs} \quad (2.15)$$

$$l_{coh} > 5l_{abs} \quad (2.16)$$

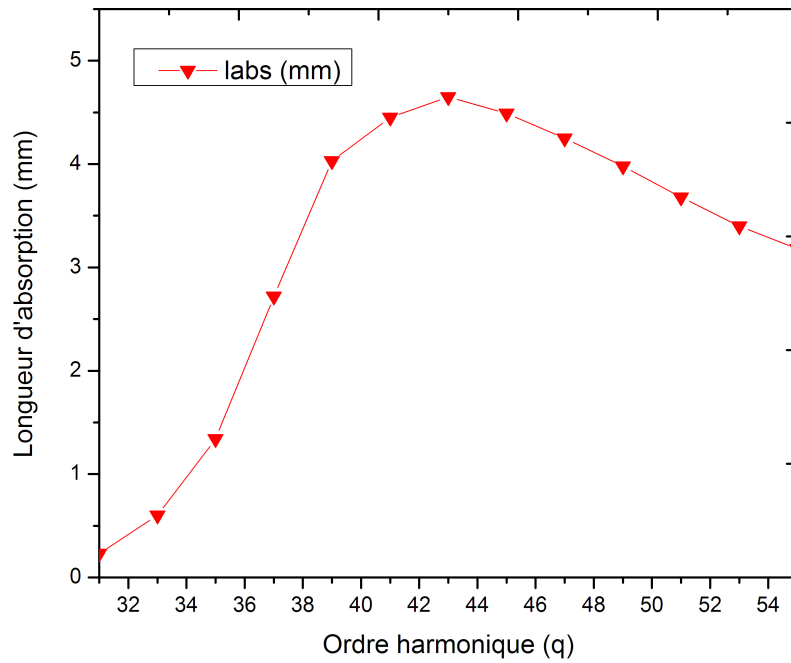


FIGURE 2.6 – Longueur d'absorption en mm pour 100 mbar d'argon en fonction de l'ordre harmonique.

2.5 Calcul du signal harmonique total

Pour un ordre harmonique q donné, le signal résultant du champ harmonique instantané dépend de la longueur d'absorption l_{abs} et de la longueur de cohérence l_{coh} selon la loi suivante [E. Constant 1999] :

$$S_{HHG}(t) \propto \frac{4l_{abs}^2 P^2 A_q(t)^2}{1 + 4\pi^2 \left(\frac{l_{abs}^2}{l_{coh}(t)^2}\right)} \times \left[1 + e^{-\frac{l_{med}}{l_{abs}}} - 2\cos\left(\pi \frac{l_{med}}{l_{coh}(t)}\right) e^{-\frac{l_{med}}{2l_{abs}}}\right] \quad (2.17)$$

Avec A_q l'amplitude du dipôle harmonique. Elle dépend fortement du temps via une variation non linéaire avec l'intensité laser [M. Lewenstein 1994]. Quand $I > I_{cutoff}$, l'amplitude du dipôle

A_q varie comme une fonction de $(\frac{I}{I_{cutoff}})^{4.6}$. Dans le cas contraire, elle varie comme une loi de $(\frac{I}{I_{cutoff}})^{10.6}$ avec I_{cutoff} l'intensité minimale permettant de générer une harmonique q donnée. En plus de sa dépendance temporelle, l'amplitude du dipôle harmonique dépend de la densité des atomes neutres dans le milieu ($P(1 - \tau)$). Nous pouvons également remarquer à partir de l'équation 2.17 que le signal harmonique dépend bien de trois longueurs, la longueur du milieu fixée l_{med} , la longueur d'absorption (qui ne dépend que de l'ordre q et de la pression) et la longueur de cohérence (qui dépend elle fortement de l'ionisation du milieu, fixant à son tour les dispersions atomique et électronique introduites en section 2.4.3).

2.6 Application et résultats

Nous avons calculé le signal des harmoniques H31 et H55 pour l'argon en utilisant comme paramètres d'entrée dans le code l'intensité laser variant de 1 à $4 \cdot 10^{14}$ W/cm², la durée d'impulsion (350 fs), la longueur d'onde du laser ($\lambda = 1054$ nm), la longueur de Rayleigh ($z_0 = 5$ mm) et la longueur du milieu ($l_{med} = 2$ mm). Après avoir calculé les taux d'ionisation avec les taux ADK, le code utilise ces paramètres d'entrée pour calculer en fonction du temps la valeur de $l_{coh}(t)$ et du signal harmonique instantané. Le signal est ensuite intégré sur toute la durée d'impulsion séparément pour les chemins quantiques 1 et 2. Le signal total S_{HHG} est alors la somme de ces deux contributions. Notons toutefois que notre modèle ne permet pas de modéliser une éventuelle défocalisation du laser qui pourrait intervenir à haute pression et haute intensité.

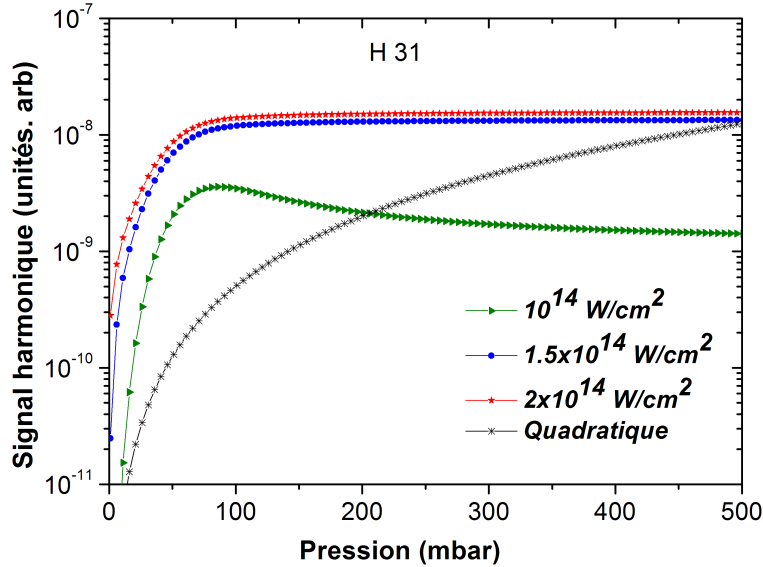


FIGURE 2.7 – Variation du signal harmonique calculé avec le code 1D en fonction de la pression d'argon pour l'harmonique H31. L'intensité laser est égale à $1 \cdot 10^{14}$ W/cm², $1.5 \cdot 10^{14}$ W/cm² et $2 \cdot 10^{14}$ W/cm².

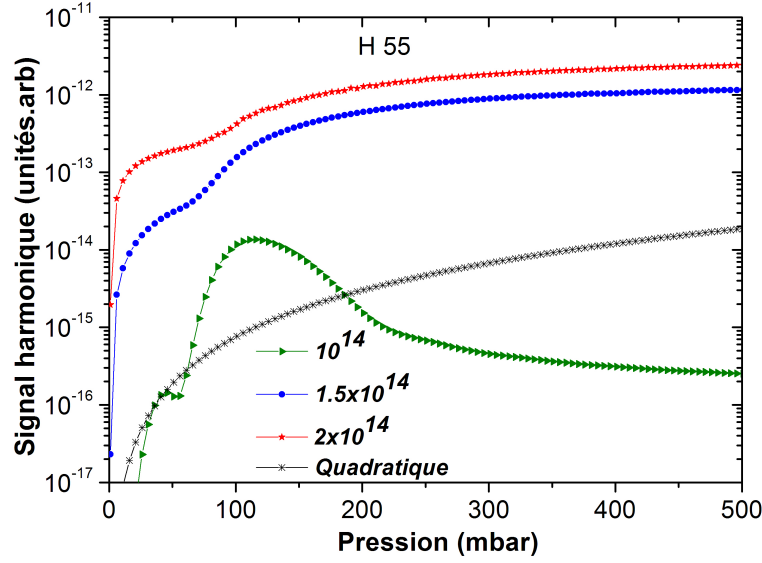


FIGURE 2.8 – Variation du signal harmonique calculé avec le code 1D en fonction de la pression d’argon pour l’harmonique H55. L’intensité laser est égale à $1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $1.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

Les figures 2.7 et 2.8 présentent en coordonnées semi-logarithmique la variation du signal total des harmoniques H31 et H55 en fonction de la pression pour trois valeurs d’intensité laser : 1, 1.5 et $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Nous avons rajouté sur ces deux figures une courbe d’évolution quadratique du signal en fonction de la pression : en effet Seres et al appuient toute leur démonstration sur le fait que d’après eux la théorie habituelle de génération d’harmoniques ne peut pas expliquer une croissance du signal plus que quadratique avec la pression. Ces deux figures montrent que nos simulations sont en bon accord avec les résultats expérimentaux publiés dans [J. Seres 2010a], le signal harmonique croît d’une façon plus que quadratique avec la pression pour une large gamme d’intensité, et sur plusieurs ordres de grandeur, jusqu’à une valeur d’environ 100 mbar. Le modèle reproduit également les deux comportements différents observés à hautes pressions :

- à hautes intensités : saturation du signal en pression (voir figure 2.1).
- à basses intensités : chute du signal en pression (voir figure 2.2).

On constate que notre modèle permet également de reproduire les inflexions observées expérimentalement dans le signal harmonique à basses intensités et basses pressions comme le montre la courbe d’évolution du signal de l’harmonique H55 pour une intensité de $1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (figure 2.8)). Cet effet fin présent dans les résultats expérimentaux n’a pas été explicité dans l’article de Seres et al [J. Seres 2010a]. Nous reviendrons sur l’explication et la compréhension de cet effet dans la section 2.8.2.

Une remarque importante doit être faite concernant les courbes expérimentales (2.1 et 2.2), les signaux de différents ordres harmoniques (q) saturent en effet pour la même valeur de pression. Ceci semble indiquer qu’il s’agit d’un effet indépendant de la réabsorption du signal, puisque cette

dernière dépend de l'ordre harmonique. Pour comprendre ces deux comportements, une étude plus détaillée de la dépendance de la longueur de cohérence dans la génération d'harmoniques d'ordres élevés a été effectuée. Elle fait l'objet de la partie suivante du chapitre.

2.7 Dépendance de la longueur de cohérence en fonction de la pression

La longueur de cohérence est le paramètre clé de l'accord de phase pour la génération d'harmoniques. Nous expliquons dans cette section les comportements décrits précédemment (l'augmentation plus que quadratique du signal avec la pression, la saturation du signal pour les hautes pressions et hautes intensités, et la chute du signal à faibles intensités et hautes pressions). Nous avons donc étudié l'évolution de la longueur de cohérence dans les deux cas de basses et de hautes intensités laser.

2.7.1 Basse intensité : faible ionisation

Pour une faible intensité laser ($I = 1.1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$), l'ionisation et le gradient de phase atomique peuvent être négligés. Dans ce cas, on peut calculer analytiquement la longueur de cohérence en fonction de la pression. Pour ces conditions, la longueur de cohérence s'exprime comme :

$$l_{coh}(\tau \simeq 0) \simeq \frac{\pi/q}{|\delta k_{Gouy} + \delta k_{atm}|} \quad (2.18)$$

$$l_{coh}(\tau \simeq 0) \simeq \frac{\pi/q}{\left| \frac{1}{z_0 + \frac{z_{cell}^2}{z_0}} - 10^{-3} P 1.66 \right|} \quad (2.19)$$

$$l_{coh}(\tau \simeq 0) \simeq \frac{1}{1.6610^{-3}} \times \frac{\pi/q}{\left| \frac{1}{(1.6610^{-3})(z_0 + \frac{z_{cell}^2}{z_0})} - P \right|} \quad (2.20)$$

$$l_{coh}(\tau \simeq 0) \simeq 600 \frac{\pi/q}{|P_{opt}(\tau \simeq 0) - P|} \quad (2.21)$$

Avec :

$$P_{opt}(\tau \simeq 0) = \frac{1}{(1.6610^{-3})(z_0 + \frac{z_{cell}^2}{z_0})} \simeq \frac{600}{z_0 + \frac{z_{cell}^2}{z_0}} \simeq 103 \text{ mbar} \quad (2.22)$$

La longueur de cohérence l_{coh} croît en fonction de la pression jusqu'à atteindre une valeur maximale pour une pression optimale $P_{opt}(\tau \simeq 0)$. Cette pression optimale correspond à une valeur infinie de la longueur de cohérence atteinte par compensation entre la dispersion atomique et la dispersion de Gouy. D'après l'équation 2.22, la pression optimale ne dépend pas de l'ordre harmonique (q) mais varie comme l'inverse de la longueur de Rayleigh. Plus la focalisation est forte, plus la pression qui donne la meilleure efficacité de conversion est grande.

Lorsque le gaz demeure presque neutre pendant l'impulsion (350 fs), la longueur de cohérence reste constante en fonction du temps et le signal harmonique maximal est atteint au maximum de l'impulsion laser pour une l_{coh} infinie. La connaissance de la longueur de cohérence pour un taux d'ionisation nul (2.19) permet de calculer analytiquement le signal harmonique en fonction de la pression (2.17). La figure 2.9 présente la variation analytique de l_{coh} et du signal harmonique S_{HHG} pour H31 ($\tau \simeq 0$) en fonction de la pression. Les conditions expérimentales sont celle de Seres et al c'est à dire : $z_0 = 5$ mm et $z_{cell} = 2$ mm. Une courbe quadratique est rajoutée pour comparaison.

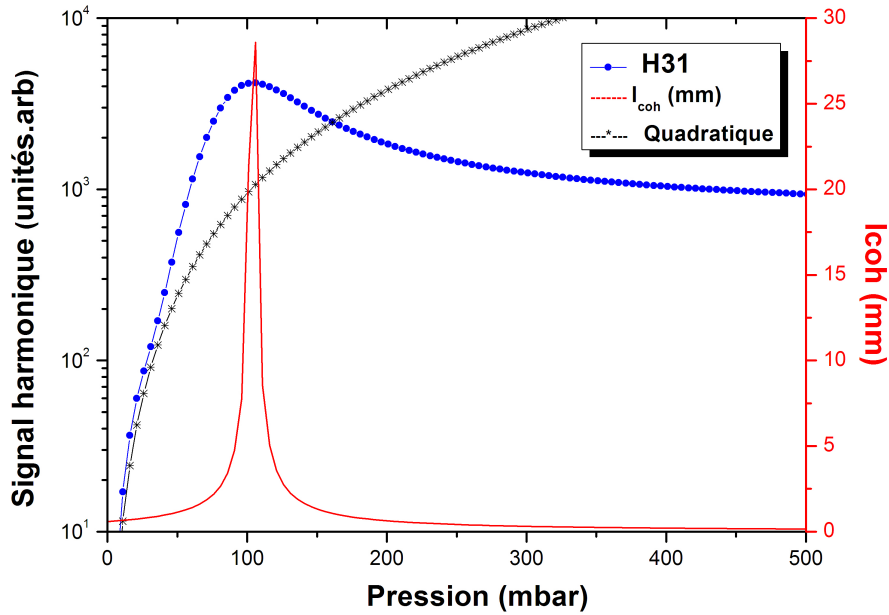


FIGURE 2.9 – Variation du signal de l'harmonique H31 en fonction de la pression (courbe bleu), courbe de croissance quadratique (*), longueur de cohérence en mm (courbe rouge). La durée de l'impulsion est 350 fs et la longueur d'onde est égale à 1054 nm.

Une augmentation importante de l_{coh} est observée jusqu'à $P \simeq 100$ mbar suivie d'une forte décroissance. Ce comportement dû à la dispersion atomique explique parfaitement les résultats expérimentaux observés. En effet, le signal harmonique résultant croît avec la pression et atteint sa valeur maximale pour une même pression égale à 100 mbar, pression pour laquelle la dispersion atomique compense la phase de Gouy, d'où le meilleur accord de phase. Pour des valeurs de

pression plus élevées, le signal décroît suite à la décroissance de l_{coh} . Il est à noter que cet effet demeure valide pour tous les ordres harmoniques sachant que la pression optimale ne dépend pas de q . En comparant la figure (2.2 (e)) présentant les résultats expérimentaux pour une faible intensité laser et nos simulations (figure 2.9), nous pouvons constater qu'on arrive à bien reproduire l'effet observé.

Maintenant que les résultats correspondant aux cas de faibles intensités (faibles ionisations) sont expliqués et interprétés, nous allons pouvoir complexifier les simulations en introduisant la dépendance en temps (négligée pour la première partie de ce chapitre). Les prochaines parties de ce chapitre en présentent les résultats.

2.7.2 Dépendance temporelle : prise en compte de l'ionisation

2.7.2.1 Position du problème

L'approximation de l'indépendance temporelle appliquée aux paramètres de l'accord de phase fonctionne bien pour les cas où les intensités laser sont faibles. Or sachant que la génération d'harmoniques d'ordres élevés est un processus hautement non-linéaire, un minimum d'intensité laser est donc indispensable pour générer efficacement une harmonique (q) [Jeffrey L. Krause 1992]. Cette intensité est appelée "Intensité de cutoff" (I_{cutoff}), elle augmente avec l'ordre harmonique et correspond à un certain degré d'ionisation dans le milieu surtout pour le cas d'une impulsion longue (350 fs) comme dans le cas de l'article de Seres et al [J. Seres 2010a]. En contrepartie, l'augmentation des intensités laser introduit un problème sur l'accord de phase lié au degré d'ionisation dans le milieu de génération. Ce degré d'ionisation passe de 1 % quand l'intensité laser est de l'ordre de 10^{14} W/cm² et à 80 % pour $I = 2 \cdot 10^{14}$ W/cm² (voir figure 2.3). Dans ce cas, l'étude de l'accord de phase nécessite de prendre en compte des effets temporels et devient ainsi beaucoup plus compliquée qu'une simple étude analytique où on néglige l'ionisation. Pour un certain taux d'ionisation non-négligeable et considérant seulement le premier chemin quantique pour lequel la phase du dipôle atomique est presque nulle, la longueur de cohérence devient :

$$l_{coh} \simeq \frac{\pi/q}{|\delta k_{Gouy} + \delta k_{atm} + \delta k_{elec}|} \quad (2.23)$$

L'équation 2.14 donne :

$$l_{coh}(t) \simeq \frac{\pi/q}{\left| \frac{1}{z_0 + \frac{z_{cell}^2}{z_0}} - 10^{-3}P(1.66 - 73.66 \times \tau(t)) \right|} \quad (2.24)$$

$$l_{coh}(t) \simeq \frac{\pi/q}{\left| 1.6610^{-3} \frac{1}{(1.6610^{-3})(z_0 + \frac{z_{cell}^2}{z_0})} - P(1 - 44 \times \tau(t)) \right|} \quad (2.25)$$

En utilisant l'équation 2.22 on obtient :

$$l_{coh}(t) \simeq 600 \frac{\pi/q}{|P_{opt}(\tau(t) \simeq 0) - P(1 - 44 \times \tau(t))|} \quad (2.26)$$

En présence de l'ionisation dans le milieu, l'accord de phase est atteint lorsque :

$$P_{opt}(\tau(t) \simeq 0) = P(1 - 44 \times \tau(t)) \quad (2.27)$$

Par ailleurs, le degré d'ionisation optimal s'exprime en fonction de la pression par :

$$\tau_{opt} = \frac{1}{44} \left(1 - \frac{P_{opt}(0)}{P}\right) \quad (2.28)$$

Avec $P_{opt}(\tau \simeq 0) = 103$ mbar, la pression optimale pour le cas d'un milieu presque non ionisé. En regardant l'équation 2.28, nous nous apercevons que l'ionisation optimale (dépendante du temps) est une fonction de la pression. On peut distinguer trois solutions pour cette équation :

- Lorsque $P = P_{opt}(0)$, le degré d'ionisation optimal est égal à zéro. L'accord de phase peut donc opérer quand la génération a lieu au début du front montant de l'impulsion laser (intensité laser plutôt faible). L'étude de ce cas a fait l'objet de la section précédente.
- Pour des pressions inférieures à 103 mbar, il ne peut jamais y avoir un accord de phase (pas de solution à l'équation 2.28).
- Lorsque la pression est supérieure à $P_{opt}(0)$, il existe un degré d'ionisation optimal donc une intensité dans le front montant de l'impulsion qui conduit à un accord de phase. Ces deux derniers cas font l'objet de les sections suivantes de ce chapitre.

2.7.2.2 Comportement pour des pressions inférieures à la pression $P_{opt}(0)$

Si la pression est très basse (inférieure à la pression optimale ($P_{opt}(0)$)), aucun degré d'ionisation ne permet à la longueur de cohérence d'atteindre sa valeur maximale. Dans ce cas, un bon accord de phase n'est pas compatible avec une intensité laser élevée. La génération efficace peut avoir lieu seulement au début de l'impulsion (sur le front montant de l'impulsion) pour lequel τ est le plus faible possible. Ceci a été observé en comparant les données expérimentales des figures 2.1 et 2.2 présentant le signal harmonique en unité absolue pour différentes intensités laser.

Prenons le cas de l'harmonique H31 correspondant à une forte intensité $I = 4 \cdot 10^{14}$ W/cm² (a), et le cas où l'intensité laser est faible $I = 1.1 \cdot 10^{14}$ W/cm² (d). Contrairement aux ordres harmoniques les plus élevés, l'harmonique H31 exige seulement une faible intensité pour être générée efficacement, ce qui correspond à un taux d'ionisation faible. Lorsque la pression varie entre 0 et 0.2 bar, le signal harmonique (dans le cas (d)) gagne 3 ordres de grandeurs au cours de sa croissance plus que quadratique. Pour la même gamme de pression, H31 augmente seulement de 2 ordres de grandeurs dans le cas d'une forte intensité laser (a) : cela aboutit à un optimum de signal en pression qui décroît avec l'intensité. On comprend alors également que pour les ordres harmoniques les plus élevés qui ne peuvent être générés en l'absence d'un minimum de taux d'ionisation, la croissance du signal avec la pression soit moins impressionnante.

Ce comportement du signal harmonique en fonction de l'intensité laser montre en quoi la compensation du gradient de phase de Gouy par la dispersion atomique est seulement possible pour le cas d'une faible intensité laser. A forte intensité laser, le seul moyen pour avoir un bon accord de phase est d'augmenter la longueur de la zone de Rayleigh (z_0), pour augmenter τ_{opt} . Ceci revient à travailler dans le régime de focalisation douce décrit dans les parties précédentes [S. Kazamias 2003b, S. Kazamias 2002].

2.7.2.3 Comportement pour des pressions supérieures à la pression $P_{opt}(0)$

A pression supérieure à $P_{opt}(0)$, il existe un degré d'ionisation optimal pour lequel l'accord de phase est atteint. La figure 2.10 présente la variation de ce degré d'ionisation optimal en fonction de la pression calculée à l'aide de l'équation 2.28. Cette courbe montre une croissance entre 0 et 2.27 % pour une variation de la pression de 100 à 500 mbar environ. Dans ce cas, l'accord de phase est atteint par un jeu de compensation entre la contribution positive de la dispersion atomique et les contributions négatives de la dispersion de Gouy et de la dispersion électronique. Par contre, si le degré d'ionisation devient supérieur à 2.27 %, aucune valeur de pression ne permet d'avoir un bon accord de phase.

Ainsi, dans le cas où la pression est supérieure à la pression $P_{opt}(0)$ et où l'intensité laser est suffisamment élevée, il existe un degré d'ionisation dans le front montant de l'impulsion qui donne un bon accord de phase correspondant au passage de la longueur de cohérence par une valeur infinie. Cette conclusion, permet d'expliquer le comportement observé sur la figure 2.1 où le signal harmonique ne diminue pas pour les pressions supérieures à P_{opt} mais sature voire continue à croître doucement.

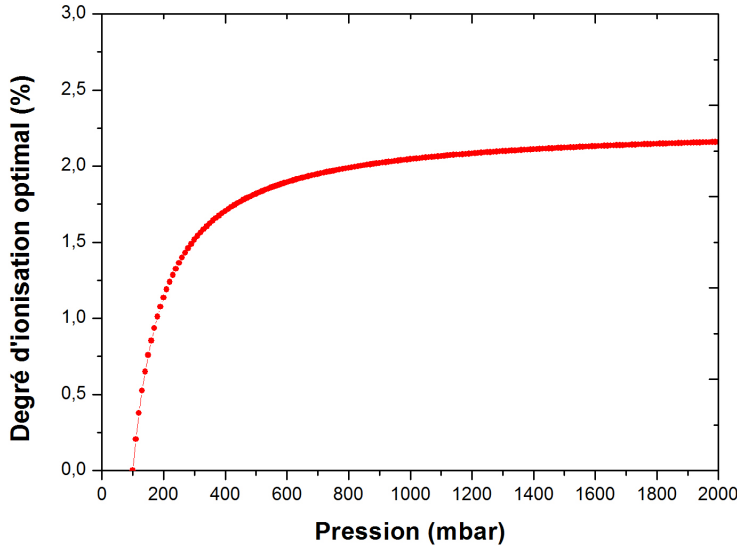


FIGURE 2.10 – Évolution du degré d'ionisation optimal en fonction de la pression du gaz générateur.

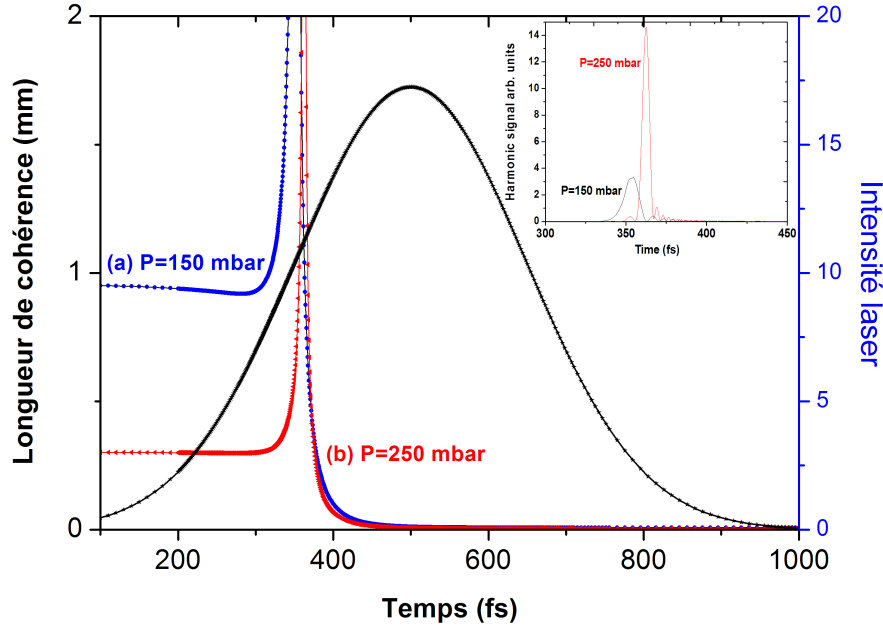


FIGURE 2.11 – L'évolution temporelle de la longueur de cohérence en mm et du signal harmonique (en unités arbitraires) pour deux valeurs de pression $P = 150$ mbar et $P = 250$ mbar. L'harmonique étudiée est l'harmonique H43. La courbe noire représente l'enveloppe temporelle du laser IR, $I = 2 \cdot 10^{10} \text{ W/cm}^2$.

Pour illustrer cela, nous avons calculé pour deux valeurs de pressions supérieures à la pression $P_{opt}(\tau = 0)$ la longueur de cohérence et le signal harmonique de l'harmonique H43 en fonction du temps. La figure 2.11 montre l'évolution temporelle de la longueur de cohérence pour $P = 150$ mbar et $P = 250$ mbar. On remarque que le passage à l'infini de la longueur de cohérence est atteint plus tôt pour le cas d'une pression de gaz de 150 mbar que pour 250 mbar, ceci correspond à un dipôle atomique plus faible. L'évolution temporelle du signal de l'harmonique H43 pour ces deux valeurs de pression montre que l'accord de phase est atteint dans les deux cas mais à des instants différents. Le signal harmonique est plus important pour $P = 250$ mbar, ce qui justifie l'observation de l'augmentation du signal avec la pression.

2.8 Inflexions du signal pour certaines pressions

2.8.1 Cas de faible ionisation

Après avoir étudié et reproduit les effets au premier ordre observés dans les résultats de Seres et al, passons à l'analyse et l'interprétation des effets plus fins. Pour le cas de faible intensité, si on observe la figure 2.2 (extraite de la référence [J. Seres 2010a]), on peut remarquer qu'autour de la pression 100 mbar il existe des inflexions dans les courbes d'évolution du signal harmonique. Cet effet n'a pas été étudié par Seres et al et n'a pas été expliqué par la théorie "XPA" introduite dans

leur article. Ces inflexions ont lieu pour plusieurs ordres harmoniques et paraissent beaucoup plus prononcées pour les faibles intensités. En comparant les courbes expérimentales avec nos simulations représentées dans la figure 2.8 pour l'harmonique H55, on constate que notre modèle permet de reproduire les inflexions observées dans le signal harmonique à basse intensité et basse pression (comme le montre la figure 2.8 pour H55 et pour une ionisation dans le milieu $\tau \simeq 0$). Ces inflexions peuvent être interprétées selon la théorie classique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés par la présence d'interférences destructives des champs harmoniques produits tout au long du milieu de génération. Dans ce cas, les dipôles harmoniques sont séparés par une distance égale à la longueur de cohérence [S. Kazamias 2003a].

Au cours de son augmentation avec la pression, la longueur de cohérence passe par des valeurs pour lesquelles elle devient un sous multiple pair ou impair de la longueur du milieu. Or en regardant le terme $\cos(\frac{l_{med}}{l_{coh}})$ de l'équation 2.17, on remarque que le flux harmonique se renforce pour les longueurs de cohérence qui sont des sous multiples impairs de l_{med} et s'affaiblit pour les sous multiples pairs [S. Kazamias 2003a]. L'étude de l'évolution analytique de la longueur de cohérence montre que pour une certaine valeur de pression l_{coh} passe par la valeur 1 mm (la longueur du milieu étant $l_{med} = 2$ mm). Pour cette valeur de pression il se produit des interférences destructives entre les champs produits des dipôles harmoniques, ce qui arrête l'augmentation du signal. Dès que la pression ré-augmente, la longueur de cohérence s'éloigne de la valeur 1 mm et donc le signal reprend sa croissance exponentielle.

Nous pouvons aussi remarquer sur la figure 2.2 que les inflexions dépendent de l'ordre harmonique et varient avec la pression. Plus l'ordre harmonique est faible, plus la pression pour laquelle l'inflexion produite sur les courbes est faible. Ceci peut être expliqué en utilisant l'équation 2.18 qui montre la dépendance en $1/q$ de longueur de cohérence. Cependant, comme nous l'avons expliqué dans le paragraphe précédent, pour tous les ordres harmoniques, l'interférence destructive a lieu quand la longueur de cohérence passe par la valeur 1 mm. Nous appelons donc $P_{inflexion}(q)$ la pression pour chaque ordre q pour laquelle l'inflexion est observée sur la courbe du signal harmonique, elle s'exprime comme :

$$P_{inflexion}(q)(\tau \simeq 0) = \frac{1}{1.6610^{-3}} \left(\frac{1}{z_0 + \frac{z_{cell}^2}{z_0}} - \frac{\pi}{q} \right) \quad (2.29)$$

Cette équation montre bien que pour un ordre harmonique plus élevé, la pression donnant lieu aux interférences destructives augmente. Cet effet est bien visible sur les données expérimentales de [J. Seres 2010a].

2.8.2 Inflexions en présence de l'ionisation

Lorsque l'intensité est plus élevée, la dépendance temporelle de la longueur de cohérence devient le paramètre clé pour la compréhension des effets physiques dans le cadre de l'accord de phase, mais l'interprétation en terme d'interférences destructives reste la même que pour le cas de faible intensité.

Nous avons calculé pour trois valeurs de pression ($P = 30, 85$ et 150 mbar) l'évolution temporelle de la longueur de cohérence (en mm) et du signal harmonique de l'harmonique H55. Les valeurs de pressions ont été choisies autour de la valeur 100 mbar pour laquelle l'inflexion se

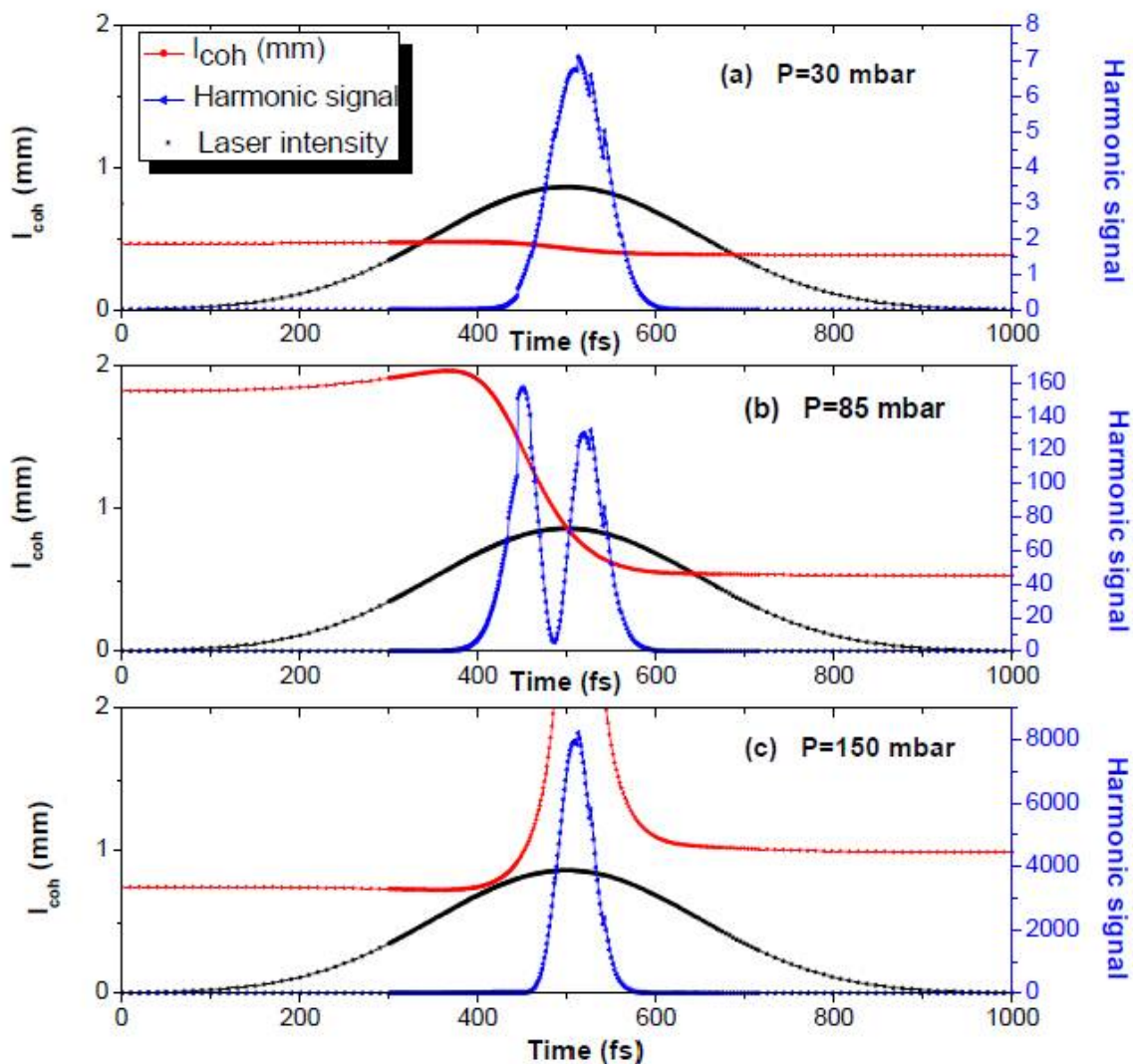


FIGURE 2.12 – Évolution temporelle de la longueur de cohérence en mm (cercles) et du signal harmonique de H55 (triangles) pour trois valeurs de pression : $P = 30, 85$ et 150 mbar. L'enveloppe de l'impulsion est représentée par la courbe noire, avec $I = 10^{14}$ W/cm².

produit. Dans le cas présent, nous avons fixé l'intensité laser à 10^{14} W/cm², le taux d'ionisation atteint 1.2 %. La figure 2.12 représente le résultat de ces simulations.

Comme le montre la figure 2.12 pour une pression égale à 85 mbar, la valeur de la longueur de cohérence est supérieure à 1 mm, mais au cours du temps, quand l'ionisation augmente, cette longueur passe par la valeur destructive donnant lieu à une inflexion (cas b). Ceci est réalisé sur la courbe du signal harmonique passant au maximum de l'impulsion par un minimum pour cette valeur de l_{coh} . Pour une pression égale à 30 mbar (cas a), la longueur de cohérence est inférieure à 1 mm durant tout le processus d'ionisation. Le signal croît au cours du temps et atteint son

maximum au maximum de l'impulsion. Quand la pression est supérieure à la pression d'inflexion, la longueur de cohérence est inférieure à 1 mm au début du processus. Elle atteint sa valeur infinie au maximum de l'impulsion, l'accord de phase est donc atteint, puis quand elle diminue le signal chute. La question apparaissant dans ce cas est la suivante : à hautes intensités, pourquoi l'inflexion est observée pour des pressions plus élevées ? Pour répondre à cette question, prenons l'équation de la longueur de cohérence dans le cas de présence d'ionisation 2.24. La pression d'inflexion est liée au degré d'ionisation suivant :

$$P_{inflexion}(\tau) = 10^{-3} \frac{\frac{1}{z_0 + \frac{z_{cell}}{z_0}} - \frac{\pi}{q}}{1.66 - 73.66 \times \tau} \quad (2.30)$$

Comme le montre cette équation, l'inflexion peut avoir lieu à hautes intensités pour des hautes pressions. Ce résultat est bien visible sur les résultats expérimentaux de Seres et al. En observant le comportement du signal l'harmonique H39 présenté dans la figure 2.2, on peut remarquer que pour l'intensité $1.1 \cdot 10^{14}$ W/cm², l'inflexion se produit pour une pression inférieure à 0.1 bar, alors qu'elle intervient à une pression proche de 0.2 bar pour l'intensité $1.5 \cdot 10^{14}$ W/cm². Pour des intensités et des pressions beaucoup plus élevées cet effet d'inflexion disparaît car la longueur de cohérence est trop faible (conditions loin de l'accord de phase).

2.9 conclusion

Dans ce travail, nous avons montré que la théorie classique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés permet de reproduire et d'expliquer parfaitement la croissance plus que quadratique du signal harmonique en fonction de la pression dans les conditions expérimentales présentées dans la référence [J. Seres 2010a]. En utilisant un code 1D dépendant du temps, nous avons expliqué les rôles de la pression, de la forte focalisation et de l'intensité laser comme paramètres d'accord de phase.

L'augmentation avec la pression fait croître la dispersion atomique qui vient à son tour compenser la forte focalisation ($z_0 = 5$ mm) ; d'où l'augmentation de la longueur de cohérence, signe d'accord de phase dans le milieu. Ceci provoque ainsi l'augmentation du nombre de photons harmoniques [S. Kazamias 2010, S. Kazamias 2011]. L'optimum est alors obtenu d'une manière transitoire avec la présence d'une forte densité atomique et l'accord de phase dépend majoritairement de la phase de Gouy.

Nous avons également expliqué tous les comportements observés dans les courbes de signal harmonique dans l'argon présentées par Seres et al concernant la saturation pour des hautes pressions et hautes intensités, ainsi que la chute du signal dans le cas de basses intensités et hautes pressions. Tous ces effets n'ont pas été analysés ni interprétés par la théorie proposée par Seres et al. Une étude plus poussée nous a permis d'expliquer ces effets fins observés dans les résultats expérimentaux. Nous avons montré comment se comportent les interférences destructives des champs harmoniques ayant lieu à faibles pressions en fonction de l'ordre harmonique et de l'ionisation dans le milieu de génération.

A l'issue de ce travail de simulation et de compréhension théorique, nous avons pu publier un commentaire dans le journal "Nature physics" [S. Kazamias 2010]. Limités par un nombre de mots (500 mots), nous n'avons pas pu y expliquer et montrer tous nos résultats. Nous avons par

la suite publié une version allongée afin d'expliquer nos résultats et les confronter aux résultats expérimentaux [S. Kazamias 2011].

Notre modèle 1D présente toutefois des limitations ; il n'est pas possible de prédire des résultats de spectres ou de distribution spatiale, mais une hypothèse peut toutefois être proposée sur les résultats de spectre présentés dans cette référence. Les auteurs ont présentés des spectres obtenus après une optimisation de la pression, montrant une très faible divergence et une réduction de largeur spectrale. Ce résultat a été interprété par les auteurs en termes d'amplification d'harmonique. Nous pensons de notre côté que l'accord de phase et sa dépendance en temps, et potentiellement l'existence du deuxième chemin quantique, pourraient rendre compte de ces effets.

Dans notre travail, nous nous sommes concentrés sur le cas de l'argon bien que dans l'article [J. Seres 2010a], les auteurs ont également obtenu des résultats dans l'hélium. Notre modèle ne tient pas compte de l'effet de défocalisation du laser due à la forte ionisation dans le milieu (puisque l'intensité laser est très élevée de l'ordre de 10^{16} W/cm²) ni de la rapide variation de l'intensité. Pour comprendre les résultats dans l'hélium, il conviendrait d'utiliser un code plus complexe qui utilise l'équation de Schrödinger dépendante du temps (TDSE) avec une propagation tridimensionnelle du laser dans un milieu fortement ionisé.

Mise en place et développement de la ligne harmonique de la station LASERIX

Sommaire

3.1 Généralités sur LASERIX	56
3.2 Caractéristiques du laser Pilote	56
3.3 Installation de la ligne harmonique de LASERIX	59
3.3.1 Rôle et intérêt de la ligne harmonique	59
3.3.2 Schéma d'ensemble	60
3.4 Systèmes de caractérisation des harmoniques	60
3.4.1 Spectromètre à transmission	60
3.4.2 Caractérisation spatiale bidimensionnelle du faisceau XUV	62
3.4.3 Photodiode XUV calibrée	63
3.5 Estimation de l'énergie harmonique par impulsion	63
3.5.1 Transmission du filtre	64
3.5.2 Estimation de l'énergie harmonique avec la caméra XUV	65
3.5.3 Estimation de l'énergie harmonique avec la photodiode XUV	66
3.5.4 Comparaison entre les estimations du flux de photon avec la photodiode et avec la caméra CCD XUV	67
3.6 Optimisation et caractérisation de la source de rayonnement harmonique de LASERIX	68
3.6.1 Étude des spectres	69
3.6.2 Effet de l'énergie IR	72
3.6.3 Effet de la diaphragmation du faisceau d'excitation	72
3.6.4 Effet de la pression	74
3.7 Récapitulatif des caractéristiques de la source harmonique	76
3.8 Étude de l'aspect spatial des harmoniques	77
3.8.1 Importance de la divergence du faisceau harmonique	77
3.8.2 Paramètres influençant la divergence harmonique	77
3.8.3 Effet de la diaphragmation du faisceau IR sur la divergence des harmoniques	79
3.8.4 Effet de la pression du gaz sur la divergence des harmoniques	84
3.9 Application : Mesure de la résolution temporelle d'une caméra à balayage de fente	86
3.9.1 Enjeu et principe	86
3.9.2 Caméra à balayage de fente	86

3.9.3	Résultat de mesure temporelle obtenu	89
3.9.4	Perspectives	90
3.10	Conclusion	90

3.1 Généralités sur LASERIX

La station LASERIX est une installation de l'Université Paris Sud 11 rattachée à la fédération de recherche Lumière et Matière (LUMAT). Cette installation est dirigée par David ROS et située dans le bâtiment P de l'ENSTA-Palaiseau. L'objectif de LASERIX est de mettre à la disposition d'une large communauté scientifique française et internationale une infrastructure de recherche basée sur des sources de rayonnement infrarouge IR et XUV (correspondant à des longueurs d'onde allant de 10 à 70 nm). Ces sources vont permettre d'étudier l'interaction laser-matière (expériences pompe-sonde) avec des impulsions de courtes durées et à courtes longueurs d'onde. L'installation LASERIX est composée de deux grandes parties disposées dans deux salles différentes comme le montre la figure 3.1. La première partie est formée d'une chaîne laser IR qui fournit actuellement un faisceau de 2.5 J d'énergie à une cadence de 10 Hz. Dans les mois à venir, cette chaîne délivrera 40 J d'énergie à une cadence de 0.1 Hz. La deuxième partie est la zone expérimentale, située dans une seconde salle, et composée de deux lignes de génération de rayonnement XUV, la ligne laser X et la ligne de rayonnement harmonique sur laquelle j'ai travaillé pendant ma thèse.

Ce chapitre est consacré à la caractérisation expérimentale de la ligne harmonique de la station LASERIX. Après avoir présenté brièvement le système laser infrarouge utilisé pour la génération, puis explicité la mise en place des différents éléments qui la constituent, nous étudierons l'effet des paramètres d'optimisation expérimentale. Une utilisation de cette source harmonique dans une expérience d'application fera l'objet de la dernière partie du chapitre.

3.2 Caractéristiques du laser Pilote

Le laser pilote de l'installation LASERIX est basé sur la méthode de l'amplification à dérive de fréquence dans des cristaux de Saphir dopés au Titane. Cette méthode d'amplification est appelée CPA pour (Chirped Pulse Amplification) [Strickland 1985]. Elle est communément utilisée sur les chaînes laser de puissance en régime femtoseconde. La chaîne d'amplification du laser pilote de LASERIX délivre des impulsions de 2.5 J et de durée étirée de 500 ps à une cadence de 10 Hz, ces impulsions sont polarisées linéairement et centrées sur la longueur d'onde de 800 nm.

Le schéma 3.2 permet de mieux décrire le fonctionnement de cette chaîne laser. L'injecteur du laser pilote est un oscillateur Ti :Sa à blocage de mode (FS20-Femtolaser), qui émet à une cadence de 74 MHz un train d'impulsions d'énergie de 7 nJ d'une durée de 20 fs, dont le spectre est centré à 800 nm. Cet oscillateur est pompé par un laser Nd :YAG continu pompé par diode, doublé en fréquence (Coherent VERDI V5), réglé à une puissance de 3 Watts. A la sortie de l'oscillateur, les impulsions passent par une cellule de Pockels qui sélectionne une impulsion toutes les 100 ms pour s'adapter à la cadence de 10 Hz des étages d'amplification. L'impulsion



FIGURE 3.1 – Vue d’ensemble de la salle contenant la chaîne du laser pilote IR de la station LASERIX et de la salle expérimentale où nous avons installé les deux lignes de lumière XUV.

sélectionnée est directement amplifiée en régime femtoseconde jusqu’à $1 \mu\text{J}$ dans un « booster » amplificateur qui permet d’améliorer le contraste temporel en fin de chaîne ($> 10^9$) ; ce contraste peut être encore augmenté d’un ordre de grandeur par l’ajout d’un absorbant saturable en sortie du « booster ».

L'impulsion est ensuite étirée temporellement avec un étireur de Öffner jusqu'à 500 ps, puis est injectée dans quatre étages amplificateurs basés sur des cristaux de Ti :Sa pompés par des lasers Nd :YAG doublés en fréquence fonctionnant à 10 Hz. Le premier amplificateur est un amplificateur régénératif qui permet d'atteindre une énergie de 1 mJ ; c'est l'étage d'amplification le plus susceptible d'altérer le contraste temporel du faisceau par la production de pré ou post-impulsions. L'amplificateur régénératif est suivi par un pré-amplificateur 5 passages à la sortie duquel l'impulsion a une énergie de 30 mJ.

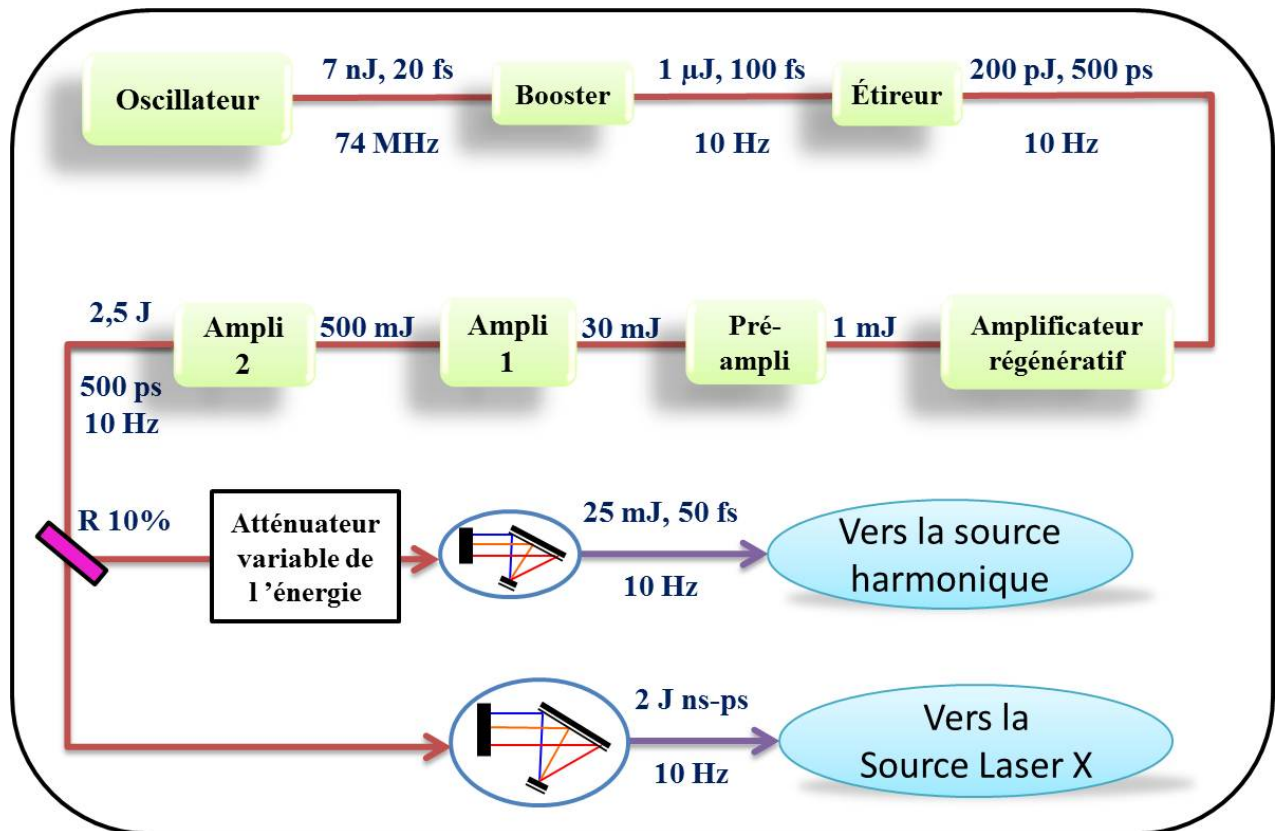


FIGURE 3.2 – Schéma de principe de la chaîne laser Ti :Sa de la station LASERIX..

Ensuite, l'impulsion traverse deux amplificateurs à 4 passages. Le premier permet d'atteindre une énergie de 500 mJ et le deuxième une énergie finale de 2.5 J. Entre chaque amplificateur, le diamètre du faisceau est agrandi pour limiter la fluence sur les cristaux, tout en extrayant le maximum d'énergie en dépassant la fluence de saturation du Ti :Sa (environ $800 \text{ mJ} / \text{cm}^2$). Le cristal du premier étage d'amplification de puissance (amplificateur saturé) est refroidi par eau, le second est refroidi par un système cryogénique à une température de -80°C afin de minimiser l'effet de lentille thermique et d'altération du front d'onde dû au pompage à forte puissance moyenne (60 W) [Ferre 2002]. L'impulsion est ensuite propagée vers la salle expérimentale via des lignes de transport de faisceau. Lors du transport, le faisceau est séparé en deux à l'aide d'une séparatrice (R 10 % - T 90 %). Les 10 % de signal réfléchis sont destinés à la génération

d'harmoniques d'ordres élevés. Les 90 % du faisceau transmis sont utilisés pour le pompage du laser X.

Ces deux faisceaux sont finalement comprimés dans deux compresseurs indépendants. Le premier servant au pompage du laser X est installé dans une chambre sous-vide, alors que le compresseur utilisé pour les harmoniques dans le cadre de ma thèse est un compresseur à l'air, ce qui limite l'énergie à son entrée à 60 mJ. La transmission de ce compresseur est de l'ordre de 60 %, de sorte que les impulsions disponibles en sortie contiennent une énergie potentiellement supérieure à 36 mJ.

Je rappelle ici que le laser pilote de LASERIX sert de laser de pompe pour les deux lignes de lumière XUV. Or pour la génération du laser X en configuration DGRIP « Double-Pulse single beam Grazing Incidence Pumping » [Daniel Zimmer 2010] qui est une des spécificités de l'installation, le même faisceau contient les deux impulsions nécessaires à la génération du laser X (l'impulsion longue qui crée le plasma et l'impulsion courte qui excite la transition du laser X). Lorsque les deux lignes de lumière fonctionnent en parallèle, nous avons vérifié que la pré-impulsion, générée pour le Laser X, ne présente pas d'effet délétère sur la génération d'harmoniques. En fait, la pré-impulsion qui est limitée à 20 % de l'énergie de l'impulsion principale et dure 250 ps (en sortie du compresseur harmonique), a une très faible intensité (de l'ordre de quelques 10^9 W/cm²), donc ne perturbe pas le gaz générateur. Le retard entre l'impulsion principale et la pré-impulsion varie, selon le besoin, entre 100 ps et 1 ns.

3.3 Installation de la ligne harmonique de LASERIX

3.3.1 Rôle et intérêt de la ligne harmonique

La figure 3.3 présente le schéma de principe de la ligne de génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG en abréviation anglaise) que nous avons mise en oeuvre. En sortie du compresseur le faisceau laser est diaphragmé par un iris afin d'ajuster le diamètre de la tâche focale et l'intensité au foyer. Il est ensuite focalisé avec une lentille de focale 1 m au centre d'une cellule de gaz placée sous vide. La lentille utilisée est en fluorure de magnésium (MgF₂) pour limiter les effets non-linéaires d'autofocalisation et de génération de continuum pouvant se produire à la traversée du matériau par l'impulsion laser intense ; l'indice non linéaire du MgF₂ étant trois fois inférieur à celui de la silice ($9.1 \cdot 10^{-17}$ cm²/W pour MgF₂ contre $2.7 \cdot 10^{-16}$ cm²/W pour SiO₂). Le faisceau XUV produit dans la cellule de gaz se propage alors colinéairement au faisceau laser sur une distance d'environ 2 m avant de traverser un filtre d'aluminium qui bloque l'infrarouge. Une enceinte de caractérisation du rayonnement harmonique est placée 1 m après le filtre. Elle contient deux systèmes de diagnostics XUV, une mesure spectrale et une mesure spatiale. Ces deux dispositifs sont détaillés dans ce chapitre.

Nous avons par ailleurs mis en oeuvre une mesure d'énergie utilisant une photodiode XUV calibrée, installée dans un cube placé entre le filtre et l'enceinte de caractérisation. Nous avons principalement utilisé en tant que cible une cellule de gaz de 10 mm de longueur, mais nous avons aussi testé des capillaires de différentes dimensions. Les résultats obtenus seront présentés dans le chapitre (5). La cellule présente plusieurs avantages (alignement simple, peu de fuite de gaz...) alors que les capillaires exigent en revanche un alignement très précis et présentent un taux de fuite plus important.

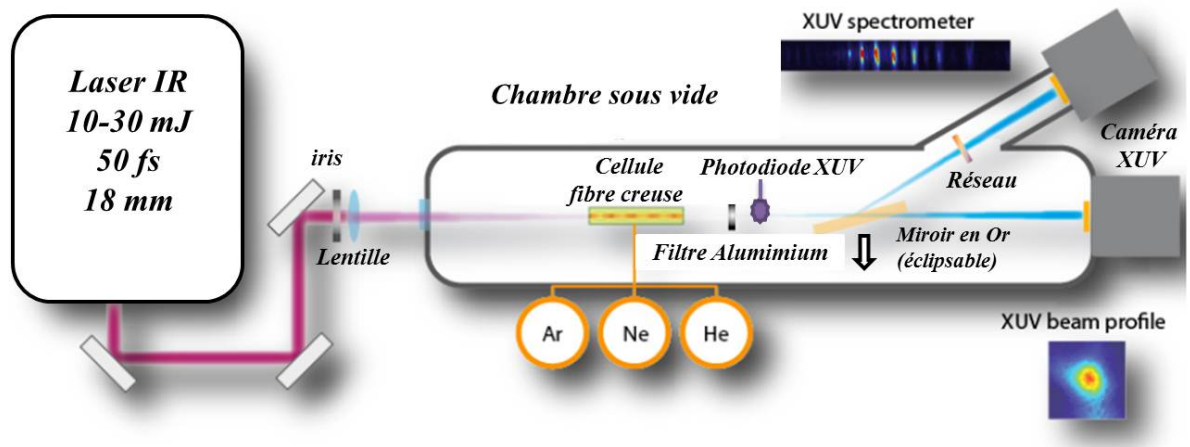


FIGURE 3.3 – Schéma du dispositif de génération d'harmoniques d'ordres élevés mis en oeuvre sur LASERIX.

3.3.2 Schéma d'ensemble

La disposition expérimentale de la station LASERIX a subi plusieurs évolutions pendant ma thèse. Je suis arrivée en janvier 2010 pendant l'emménagement de LASERIX dans le bâtiment P. A cette époque, la salle expérimentale était complètement vide comme le montre la photo (a) de la figure 3.4 prise quelques jours seulement après le début de ma thèse. J'ai donc eu le privilège de participer au montage de la ligne harmonique de LASERIX sur laquelle j'ai effectué par la suite mes travaux de thèse. Nous avons pu observer les premières harmoniques mi-juin 2010 sur le spectromètre ! Les deux autres diagnostics ont ensuite été installés. A partir du mois de juillet 2010, la source de lumière de LASERIX était opérationnelle (voir la photo (b) de la figure 3.4). Parallèlement à cette installation, nous avons aussi travaillé sur le montage de la ligne de génération du laser X, qui a été opérationnelle un mois après.

3.4 Systèmes de caractérisation des harmoniques

3.4.1 Spectromètre à transmission

Le système de diagnostic spectral que nous avons utilisé est un spectromètre à réseau par transmission, celui-ci est schématisé en détails sur la figure 3.5. Ce dispositif est constitué d'un miroir sphérique traité or, d'un réseau à transmission et d'une caméra CCD XUV rectangulaire. Le miroir sphérique a un rayon de courbure de 50 cm et un diamètre de 5 cm. Il est utilisé en incidence rasante ($i = 67.5^\circ$) pour imager chaque composante spectrale de la source sur le plan du détecteur et laisser diverger le faisceau dans la dimension spatiale. Le réseau par transmission est un réseau gravé en or de 1000 traits/mm et de dimension 1 cm x 1 cm. Le détecteur utilisé est une caméra CCD XUV 16 bits Princeton PIXIS-XO : 400B avec un capteur rectangulaire de

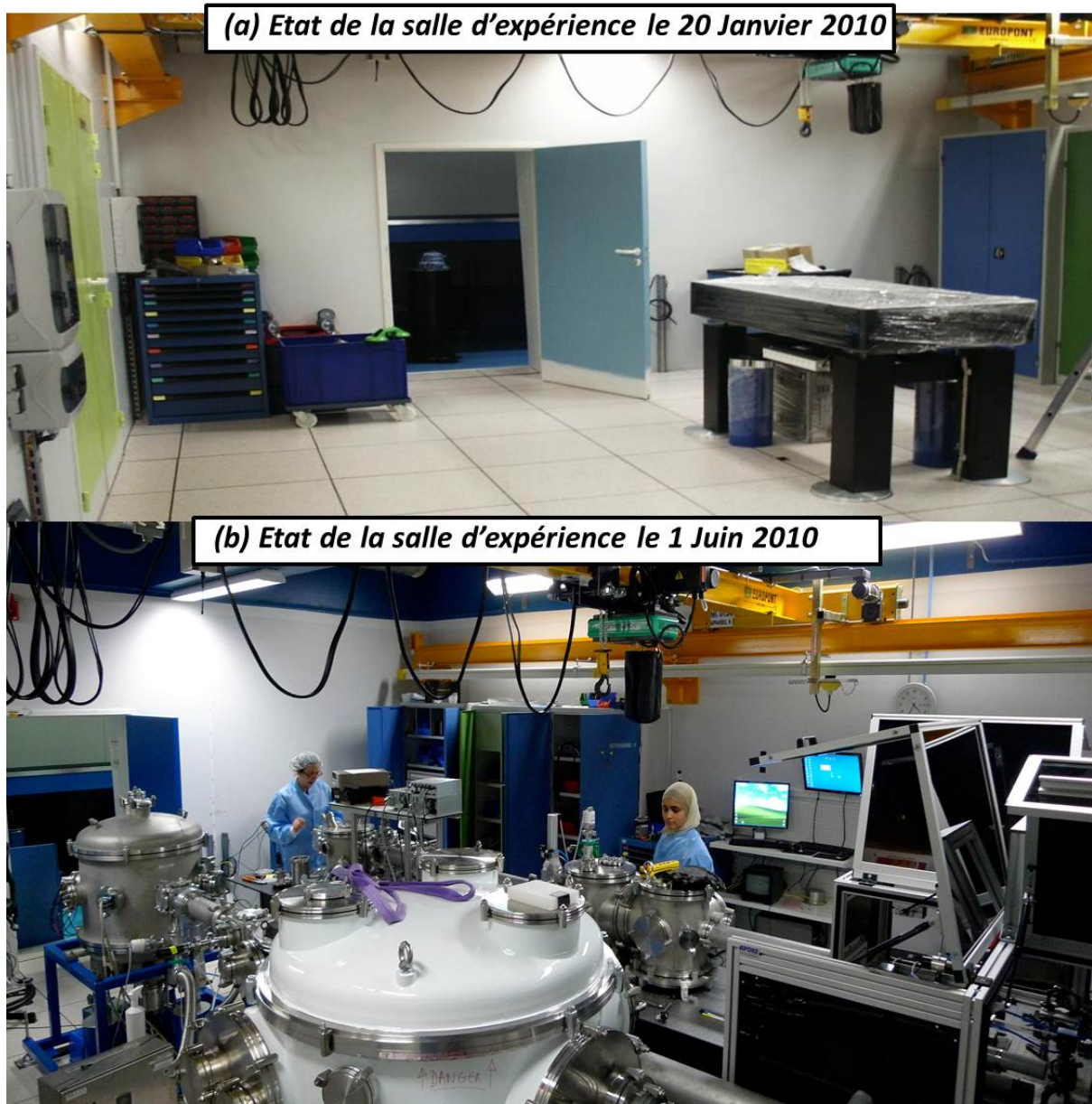


FIGURE 3.4 – Photographies de la salle d’expérience prises respectivement au mois de janvier 2010 (photo (a)) et au mois de juin 2010 (photo (b)).

dimension $26.8 \text{ mm} \times 8 \text{ mm}$, ce qui correspond à 1340×400 pixels de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$. Si le miroir est en position retirée, le faisceau passe directement vers le diagnostic spatial.

Dans ce paragraphe, nous expliquons la méthode d’analyse des spectres enregistrés par ce dispositif. Les informations utiles à extraire d’un spectre sont les ordres harmoniques générés et l’énergie relative de chaque ordre. Compte tenu de la transmission du filtre aluminium utilisé, nous ne pouvons pas observer les ordres harmoniques de longueurs d’onde inférieures à 17.05

nm.

Quand le faisceau harmonique arrive orthogonalement à la surface du réseau, la relation de dispersion du réseau s'écrit sous la forme suivante :

$$a \sin(\alpha) = n\lambda_q \quad (3.1)$$

avec dans notre cas, $a=1 \mu\text{m}$ le pas du réseau, $n=1$ l'ordre du réseau, α l'angle entre l'ordre 0 du réseau et l'harmonique à étudier contenue dans l'ordre 1 et λ_q la longueur d'onde exprimée en μm de l'ordre harmonique étudié. Les longueurs d'onde étudiées étant très inférieures au pas du réseau, l'angle α est suffisamment faible pour que l'on puisse écrire :

$$\sin(\alpha) \simeq \alpha = \frac{\Delta x_q}{D} \quad (3.2)$$

avec Δx_q la distance qui sépare l'ordre 0 du réseau et l'harmonique q (cette distance est déterminée en pixel puis convertie en μm) et D la distance entre le réseau et la caméra. Les équations (3.1) et (3.2) donnent la formule utilisée pour la détermination des ordres harmoniques générés :

$$\lambda_q = \frac{a \times \Delta x_q}{D} \quad (3.3)$$

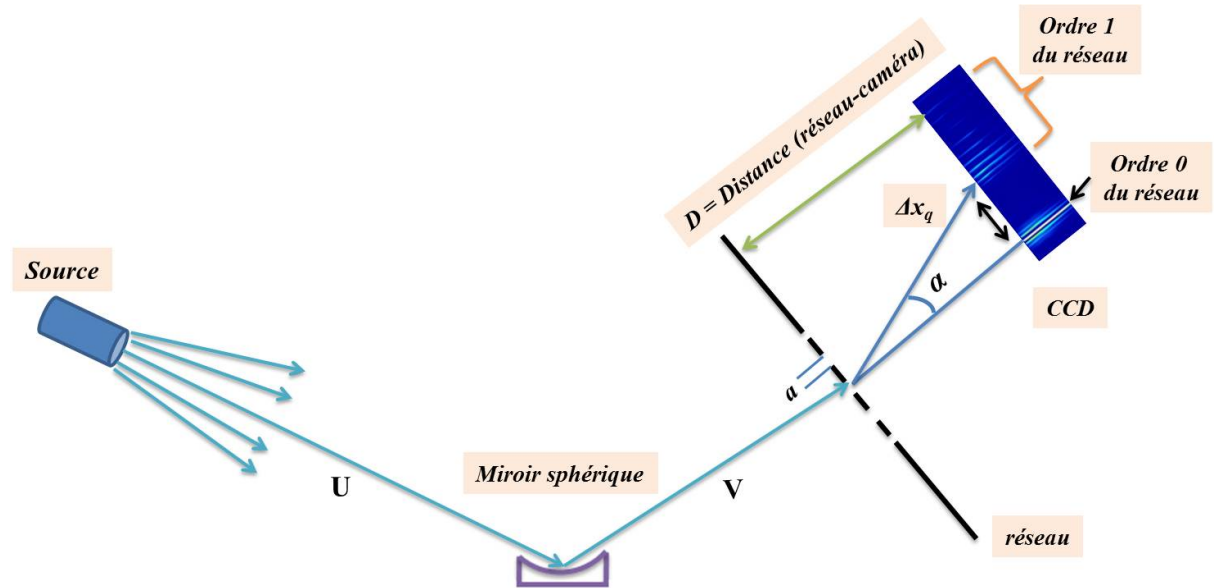


FIGURE 3.5 – Schéma complet du spectromètre par transmission utilisant une optique rasante. Méthode de détermination des ordre harmoniques générés.

3.4.2 Caractérisation spatiale bidimensionnelle du faisceau XUV

Pour étudier la divergence des harmoniques et pour mesurer la distribution d'énergie totale du faisceau XUV, nous avons utilisé un dispositif composé d'un filtre en aluminium de 200 nm

d'épaisseur et d'une caméra CCD XUV 16 bits Princeton PIXIS-XO : 1024 B équipée d'un capteur de dimension 13.3 mm x 13.3 mm ce qui correspond à 1024 x 1024 pixels mesurant chacun $13 \times 13 \mu\text{m}^2$. Ce dispositif permet de collecter l'émission avec une ouverture angulaire de l'ordre de $4.5 \times 4.5 \text{ mrad}$. Nous avons présenté un schéma de principe de la mesure sur la figure 3.6. Les directions horizontales (x) et verticales (y) présentées sur cette figure représentent les deux dimensions spatiales transverses.

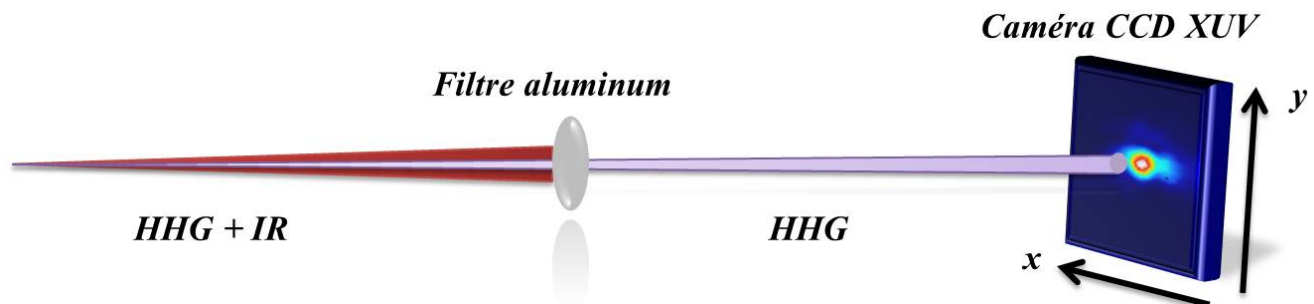


FIGURE 3.6 – Schéma de principe de mesure bidimensionnelle du faisceau XUV..

Nous avons principalement utilisé ce dernier diagnostic en raison de sa simple utilisation. Excepté le filtre aluminium, il n'y a aucun élément entre la source et détecteur, ce diagnostic nous permet donc de faire une interprétation directe des résultats.

3.4.3 Photodiode XUV calibrée

Nous avons également employé une photodiode XUV calibrée (NIST Al_2O_3 , numéro de série 411) pour estimer l'énergie du faisceau harmonique transmise par le filtre aluminium de 200 nm utilisé pour couper le faisceau infrarouge. La photodiode située 50 cm après le filtre peut être manuellement éclipée, au besoin, à l'aide d'un doigt poussoir afin de laisser le faisceau harmonique propager vers les autres diagnostics. Les photons XUV incidents sur la surface sensible d'oxyde d'aluminium génèrent des photoélectrons qui sont accélérés vers l'anode directement reliée à la terre. Le courant mesuré est donc proportionnel aux nombres de photons incidents. Les courants mesurés sont très faibles, de l'ordre du pico-ampère, compte tenu de la faible efficacité quantique de la photodiode et du faible nombre de photons incidents. Il est donc nécessaire d'éviter toutes sources de bruit pouvant perturber les mesures. Ces mesures de photocourants ont été effectuées avec un pico-ampèremètre Keithley (modèle 6485). Pour améliorer le rapport signal/bruit, la photodiode est alimentée sur pile avec une tension de l'ordre de 65.5 V pour désolidariser le dispositif des sources de bruit électrique du secteur. Les signaux et l'alimentation électrique étant transférés via un câble triaxial blindé.

3.5 Estimation de l'énergie harmonique par impulsion

Dans cette partie, nous nous intéressons à l'estimation de l'énergie XUV à partir de la photodiode et de la caméra XUV. Il est à noter que vu la faible transmission du réseau de

diffraction, et le fait que son efficacité n'était pas donnée par le constructeur, nous n'avons pas utilisé le spectromètre comme moyen de détermination de l'énergie harmonique. La précision de la mesure d'énergie dépend de plusieurs paramètres ; la transmission spectrale du filtre, l'efficacité quantique de la caméra ou de la photodiode.

3.5.1 Transmission du filtre

Un des problèmes techniques rencontrés pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés est d'éliminer le faisceau laser infrarouge qui se propage colinéairement au faisceau harmonique produit. Ce rayonnement infrarouge intense peut notamment endommager les détecteurs utilisés pour la caractérisation des harmoniques. La solution la plus simple que nous avons choisie de mettre en œuvre consiste à installer un filtre aluminium dans l'axe de propagation du faisceau XUV. L'épaisseur du filtre doit être bien adaptée pour couper totalement le rayonnement infrarouge tout en transmettant efficacement le faisceau harmonique.

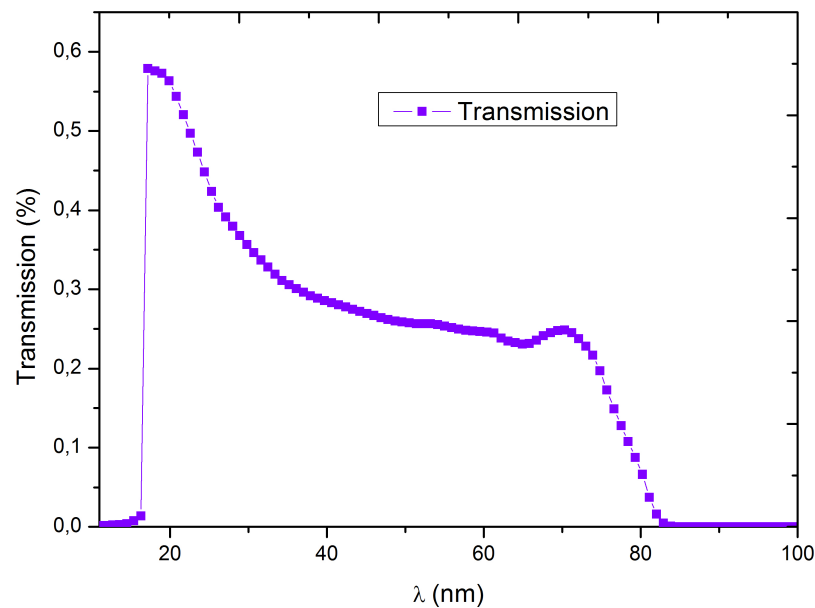


FIGURE 3.7 – Transmission théorique calculée pour 200 nm d'épaisseur d'aluminium et 10 nm d'oxyde d'aluminium (Al_2O_3) (source : www.cxro.lbl.gov).

Pour éviter son endommagement par la forte intensité infrarouge, il est indispensable de l'installer suffisamment loin de la source harmonique, elle-même située au foyer du faisceau d'excitation. Nous avons utilisé pour les deux diagnostics le même filtre en aluminium de $2 \times 0,1 \mu\text{m}$ d'épaisseur. La transmission théorique du filtre aluminium en fonction de la longueur d'onde est représentée sur la figure 3.7. Cette transmission est calculée à partir du site CXRO pour une épaisseur de 200 nm d'aluminium et de 10 nm d'oxyde d'aluminium (Al_2O_3). Cette courbe montre une transmission de l'ordre de 25-30 % pour les longueurs d'onde comprises entre

30 et 50 nm. Le filtre coupe les longueurs d'onde situées en dessous de 17.05 nm et au dessus de 80 nm.

3.5.2 Estimation de l'énergie harmonique avec la caméra XUV

Nous avons utilisé les profils transverses des faisceaux harmoniques pour estimer le nombre de photons XUV correspondant au signal intégré sur la zone éclairée du capteur. Il est donné par la formule suivante :

$$N_{photons} = \frac{N_{coups} \times 3,65}{E_{photons} \times E_{effq} \times T_{filtre} \times N_{tirs} \times g} \quad (3.4)$$

avec N_{coups} le nombre de coups intégrés sur le chip de la caméra XUV CCD (numérisés sur 16 bits : $2^{16}=65536$ coups au maximal), T_{filtre} la transmission du filtre, N_{tirs} le nombre de tirs laser, E_{effq} est l'efficacité quantique de la caméra et g le gain de la caméra. Pour nos mesures, nous avons moyenné sur l'énergie de l'harmonique 23 (35.65 eV), qui a été choisie en fonction du spectre observé avec le spectromètre. Pour convertir le nombre de coups total sur l'empreinte harmonique, on doit tenir compte de tous ces paramètres. Une fois le nombre de photons $N_{photons}$ déterminé, on détermine l'énergie totale du faisceau XUV.

L'efficacité quantique du capteur de la caméra XUV utilisée est donnée par le constructeur (figure 3.8), elle est de l'ordre de 40 % pour les longueurs d'onde situées entre 30 et 50 nm. Seule une partie du rayonnement incident est absorbée par le capteur de la caméra. De plus, 3.65 eV sont alors nécessaires pour créer une paire électron-trou (énergie du gap du semi-conducteur).

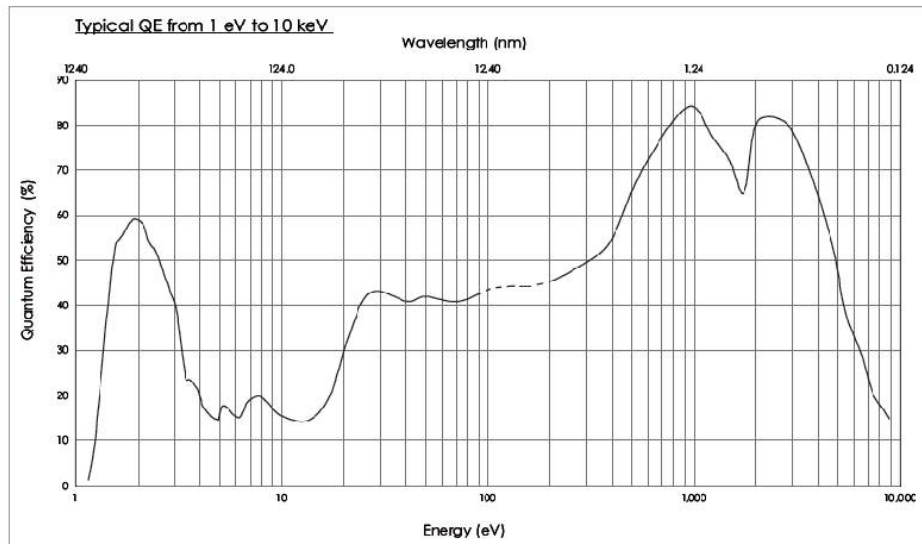


FIGURE 3.8 – Courbe d'évolution de l'efficacité quantique de la caméra XUV Princeton PIXIS-XO : 1024 B.

3.5.3 Estimation de l'énergie harmonique avec la photodiode XUV

Le flux de photons est déterminé à partir du courant produit par la photodiode. Il est proportionnel au nombre de photons incidents sur la surface sensible. Le flux de photoélectrons, proportionnel au flux de photons, dépend du rendement quantique de la photodiode, de la transmission du filtre, et du nombre des harmoniques générées avec la même efficacité. Le flux de photons ainsi produit par raie harmonique s'écrit donc :

$$N_{photons} = \frac{I \times \Delta t}{e \times QE \times T_{al} \times 5} \quad (3.5)$$

avec $e = 1.6 \cdot 10^{-19}$ C la charge électronique, QE l'efficacité quantique de la photodiode XUV, T_{al} la transmission du filtre, 5 le nombre d'harmoniques générées avec la même efficacité de conversion et I est le courant de moyen en pA. Δt correspond au temps d'intégration fixé à 20 ms pour nos mesures. Le résultat est exprimé en photons/tir/harmonique. Nous pouvons ainsi en déduire l'énergie par harmonique/tir.

La photodiode que nous avons utilisée a été calibrée en 2009 par une comparaison avec une autre photodiode XUV de référence. L'efficacité quantique de la photodiode est représentée sur la figure 3.5. Pour la longueur d'onde de 35 nm qui correspond à l'harmonique 23, elle est égale à 0,123 électron/photon avec une incertitude relative de l'ordre de 5 %. On doit ici admettre que la photodiode n'a pas perdu en efficacité lors de son stockage ou des expériences. Le chiffre ainsi donné sous-estime probablement un peu le nombre de photons réellement incidents.

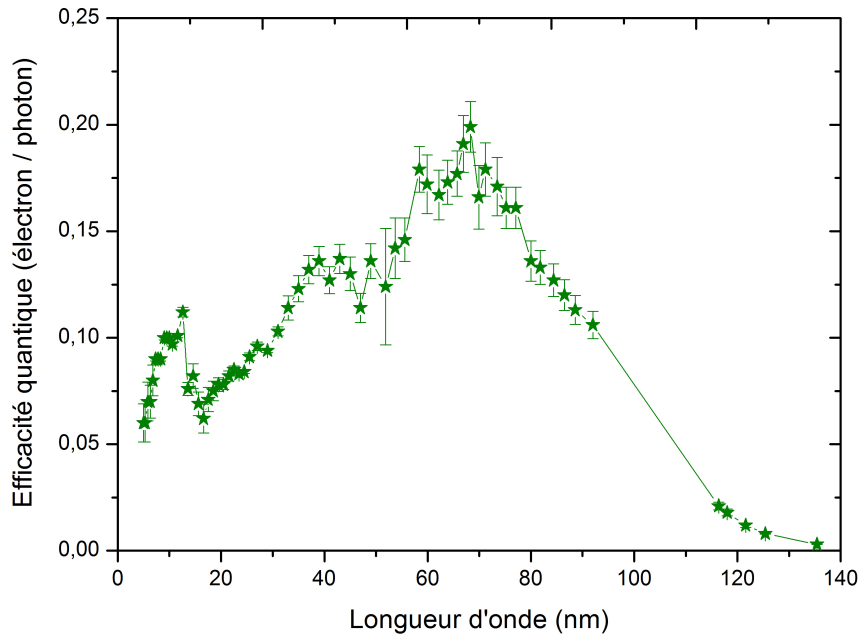


FIGURE 3.9 – Efficacité quantique de la photodiode calibrée NIST SN411 Al₂O₃.

3.5.4 Comparaison entre les estimations du flux de photon avec la photodiode et avec la caméra CCD XUV

Nous avons effectué une comparaison entre les estimations du nombre de photons mesuré avec la caméra CCD XUV et la photodiode XUV calibrée. Les harmoniques sont générées au centre d'une cellule de 10 mm de longueur, remplie d'argon à une pression de 14 mbar, le diamètre du faisceau d'excitation est fixé par l'ouverture de l'iris à 12 mm. Tout d'abord, nous avons enregistré des empreintes de faisceau XUV avec la caméra CCD en fonction de l'énergie IR entre 1 et 8 mJ ; pour chaque image 10 tirs ont été envoyés. Dix minutes après, la même expérience a été reproduite en utilisant cette fois-ci la photodiode XUV.

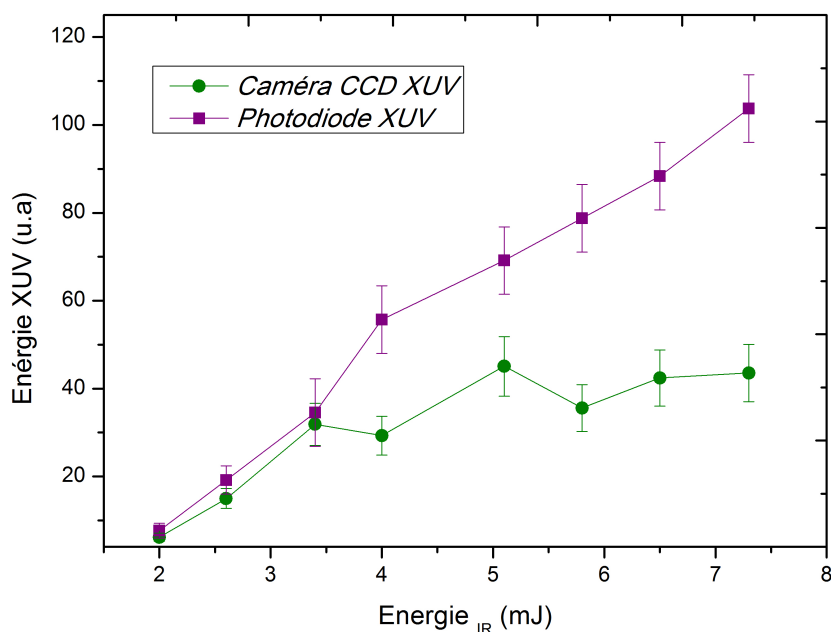


FIGURE 3.10 – Comparaison entre les mesures du signal harmonique effectuées avec la photodiode XUV et la caméra CCD XUV.

La figure 3.10 montre le résultat pour les deux diagnostics. L'énergie harmonique mesurée, intégrée spectralement et spatialement, croît linéairement avec l'énergie d'excitation. Pour de faibles énergies laser (jusqu'à 3.5 mJ) les deux diagnostics de mesure montrent la même tendance. Pour des énergies laser plus élevées, nous constatons un écart entre les deux estimations effectuées. Cet écart est attribué à une saturation de la caméra XUV.

3.6 Optimisation et caractérisation de la source de rayonnement harmonique de LASERIX

Après avoir mis en place la ligne harmonique, nous avons commencé par la caractériser et l'optimiser afin de résoudre les problèmes techniques rencontrés et de maîtriser son utilisation. Les paramètres intervenant dans la génération d'harmoniques sont les paramètres du milieu (longueur de la cellule, type de gaz, pression du gaz...) et les paramètres laser (durée d'impulsion qui est contrôlée en ajustant la distance entre les deux réseaux, l'énergie, le diamètre du faisceau en champ proche fixé par l'ouverture de l'iris, la focale et la position de la lentille...).

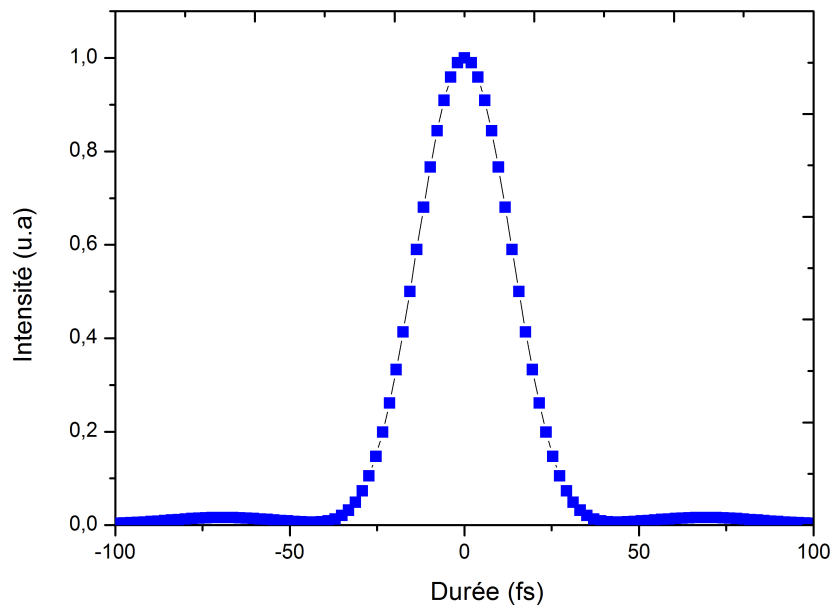


FIGURE 3.11 – Allure temporelle de l'impulsion laser de la station LASERIX utilisée pour la génération d'harmoniques.

La figure 3.11 présente l'allure temporelle de l'impulsion laser mesurée au spider « Spectral Phase Interferometer for Direct Electric Field Reconstruction », cette mesure tient compte de la dispersion de la lentille de focalisation et du hublot installés en entrée de la ligne harmonique. La durée d'impulsion varie entre 40 et 50 fs. La méthode « SPIDER » est une mesure de la phase spectrale de l'impulsion laser.

Le choix de la longueur de la cellule a été effectué suivant plusieurs critères. Pour obtenir une génération limitée par absorption il faut choisir un milieu de génération dont la longueur est au moins égale à l_{abs} , voire plusieurs l_{abs} [E. Constant 1999]. Or, pour une pression de 25 mbar d'argon, la longueur d'absorption varie en fonction de la longueur d'onde entre 0.5 et 3.5 mm. Par ailleurs, pour le régime de focalisation que nous avons choisi, les longueurs de la zone de

Rayleigh sont de l'ordre de 20 mm ; il est donc possible de choisir une longueur de cellule de l'ordre du centimètre. La défocalisation induite par une modification spatio-temporelle du champ fondamental favorisant la génération dans des milieux longs est un argument supplémentaire [Yusuke Tamaki 1999]. Ainsi, une longueur de 10 mm est donc suffisamment grande pour pouvoir assurer une bonne amplitude du champ harmonique macroscopique et est bien adaptée à nos conditions de génération.

Cette cellule est fermée par un enroulement de bande téflon afin de contenir le gaz, le laser vient ensuite percer directement celui-ci. La cellule constitue un milieu de génération robuste, stable et de simple utilisation. La configuration de focalisation adaptée est la focalisation douce (longue zone de Rayleigh). Nous avons utilisé une focale de 1100 mm donnant lieu à des diamètres de taches focales assez élevés. Le tableau 3.1 montre l'évolution de la taille de tache focale mesurée en fonction du diamètre de l'iris. Cette étude a été effectuée expérimentalement en utilisant une imagerie du foyer. Nous avons travaillé avec deux différents gaz, l'argon et le néon, donnant lieu chacun à une optimisation distincte. Nous présentons dans cette partie du chapitre les résultats d'optimisation dans les conditions standard de fonctionnement de la ligne harmonique en fonction du gaz, de la pression, de l'énergie et du diamètre de l'iris.

ϕ_{iris} en mm	W_0 en μm	FWHM en μm
8	96.40	112.30
9	90	105.20
10	86.25	101.50
11	79.01	93.03
12	78.50	92.43
ouvert	67.62	79.61

TABLE 3.1 – Caractérisation des taches focales pour une lentille de 1100 mm de focale. Le waist W_0 correspond à la demi-largeur en $1/e^2$ de la tache focale.

3.6.1 Étude des spectres

3.6.1.1 Génération dans l'argon

La figure 3.12 montre un spectre obtenu dans l'argon après optimisation des paramètres de génération. La pression d'argon a été fixée à 15 mbar, le diamètre de l'iris à 11 mm, l'énergie après l'iris à 2 mJ. On observe à gauche l'ordre 0 du réseau et à droite l'ordre 1 du réseau contenant les différents ordres harmoniques transmis par le filtre.

La figure 3.13 présente, en fonction de la longueur d'onde, l'intensité des harmoniques (en unité arbitraire) obtenues dans le spectre 3.12. Le spectre s'étend de l'harmonique 15 à l'harmonique 29, ce qui correspond à la gamme spectrale entre 27 nm et 53 nm. L'harmonique maximale que nous avons pu générer dans l'argon est l'harmonique 31 (25.8 nm).

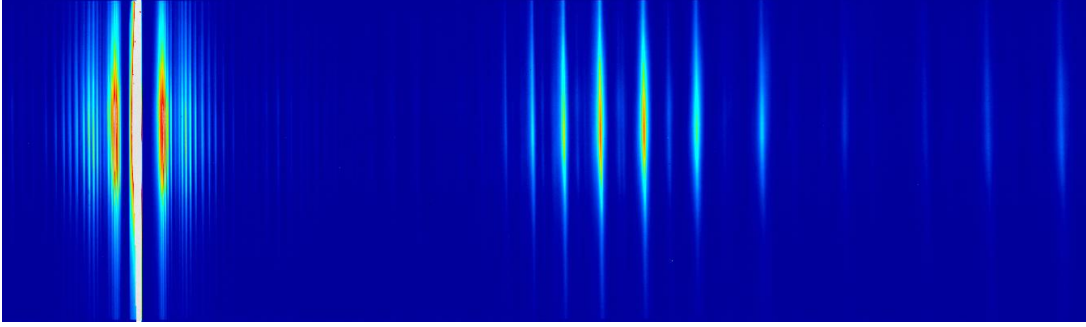


FIGURE 3.12 – Spectre harmonique généré dans l'argon mesuré après un filtre Al de $0.2 \mu\text{m}$ d'épaisseur pour les conditions d'optimisation suivantes : $P = 15 \text{ mbar}$, $\phi_{iris} = 11 \text{ mm}$, $E_{iris} = 2 \text{ mJ}$.

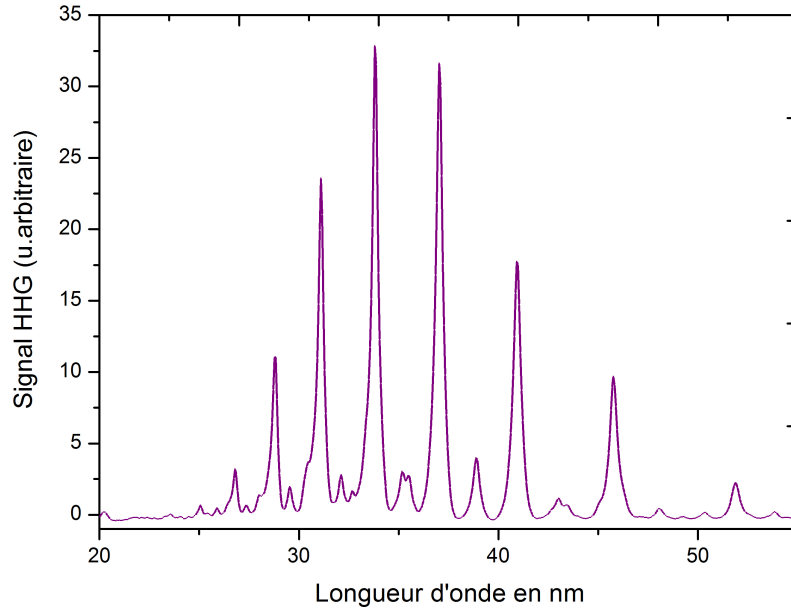


FIGURE 3.13 – Intensité relative des raies harmoniques obtenues dans l'argon déduites du spectre de la figure 3.12. On y voit les harmoniques entre 15 et 29, ce qui correspond à une fenêtre spectrale qui s'étend de 27 nm à 53 nm.

3.6.1.2 Génération dans le néon

La figure 3.14 montre un spectre obtenu dans le néon suite à une optimisation des paramètres de génération. La pression était de 30 mbar, le diamètre de l'iris de 14 mm, l'énergie mesurée après l'iris de 6 mJ. Sur la figure 3.15 nous avons représenté en unité arbitraire l'intensité des harmoniques déduites du spectre de la figure 3.14 en fonction de la longueur d'onde. Le spectre s'étend de l'harmonique 23 à l'harmonique 47 ce qui correspond à la gamme spectrale entre

17.1 nm et 35 nm. La fenêtre spectrale allant vers les courtes longueurs d'onde est limitée à sa borne inférieure par la coupure du filtre aluminium située à 17.05 nm. Cette gamme spectrale correspond cependant aux photons XUV les plus énergétiques.



FIGURE 3.14 – Spectre harmonique généré dans le Néon pour les conditions d'optimisation suivantes : $P = 30$ mbar, $\phi_{iris} = 14$ mm, $E_{iris} = 6$ mJ.

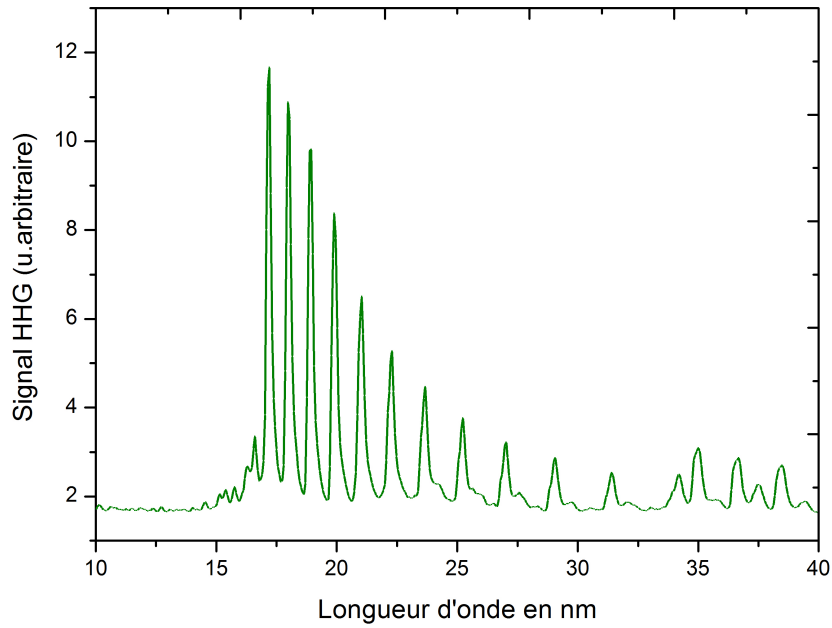


FIGURE 3.15 – Spectre harmonique construit à partir du spectre 3.14. On voit les harmoniques entre 23 et 47, ce qui correspond à une fenêtre spectrale qui s'étend de 17 nm à 35 nm. La coupure spectrale autour de 17.05 nm due à la présence du filtre aluminium est bien nette sur ce spectre.

3.6.2 Effet de l'énergie IR

La figure 3.16 rend compte de l'influence de l'énergie d'excitation sur le signal total intégré, spectralement et spatialement, sur toutes les harmoniques générées dans 15 mbar d'argon. Il faut noter que l'énergie est mesurée après un iris fermé à 10 mm. Trois régimes différents peuvent être observés sur cette courbe : tout d'abord une croissance exponentielle d'environ 5 ordres de grandeur entre 0.5 mJ et 2 mJ, suivie d'une saturation jusqu'à $E_{IR} = 4.5$ mJ, puis le signal harmonique entame une lente décroissance. Pour une énergie de pompe de 4.5 mJ, et un diamètre d'iris égale à 10 mm, l'intensité laser est de l'ordre de $2.87 \cdot 10^{14}$ W/cm², ce qui est supérieur à l'intensité de suppression de barrière dans l'argon $I_{ISB} = 2.47 \cdot 10^{14}$ W/cm². L'augmentation rapide du signal est expliquée par la loi du cutoff, l'énergie nécessaire pour générer une harmonique dépend de l'intensité du laser donc de l'énergie IR pour une focalisation donnée [L'Huillier 1993]. Le régime de saturation traduit le fait que les harmoniques rentrent dans le plateau, elles sont donc générées efficacement et le signal est maintenu constant. La chute du signal observée pour des énergies supérieures à 4.5 mJ peut s'expliquer par une éventuelle dégradation de l'accord de phase due à une augmentation de l'ionisation dans le milieu de génération.

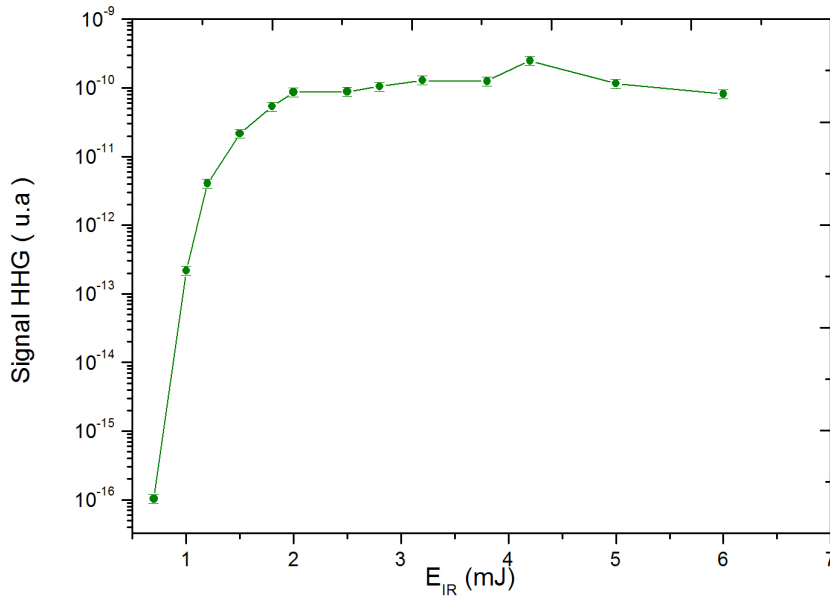


FIGURE 3.16 – Évolution du signal total intégré sur la caméra CCD XUV en fonction de E_{IR} . L'énergie IR est mesurée après un iris fermé à 10 mm, $P_{Ar} = 15$ mbar.

3.6.3 Effet de la diaphragmation du faisceau d'excitation

Un des paramètres permettant d'optimiser efficacement le flux harmonique est l'ouverture du diaphragme situé avant la lentille de focalisation par un contrôle du diamètre du faisceau

en champ proche, relié à la taille du foyer par la relation d'Airy $\frac{1.22\lambda f}{D}$. L'optimisation de ce paramètre permet d'atteindre un compromis entre l'intensité au foyer et la taille de la zone focale (zone de Rayleigh) qui varie proportionnellement avec l'inverse du diamètre de l'iris [S. Kazamias 2002]. L'influence de la variation de l'ouverture de l'iris sur la génération du signal harmonique est présentée sur la figure 3.17. Il s'agit du signal généré dans 15 mbar d'argon et intégré sur les harmoniques entre 15 à 29.

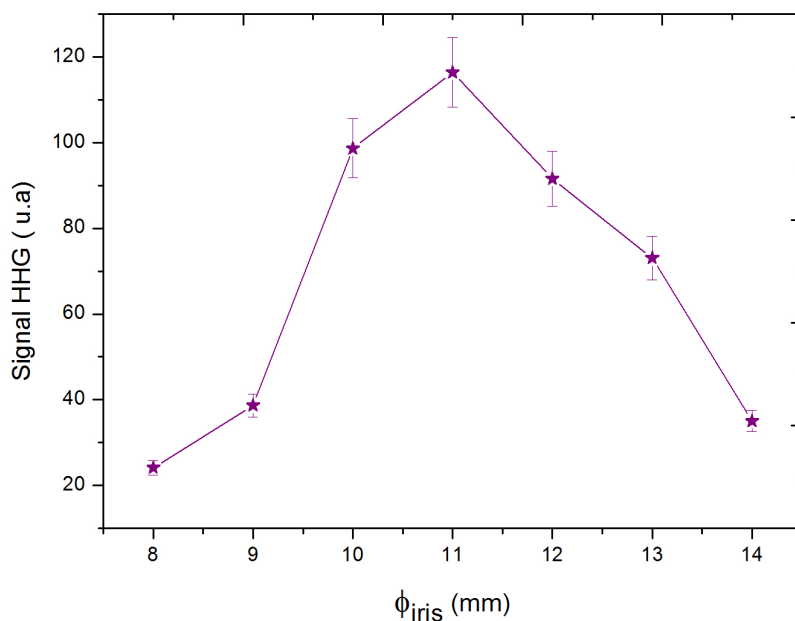


FIGURE 3.17 – Évolution du signal total intégré sur la caméra CCD XUV en fonction de ϕ_{iris} pour une pression de l'argon fixée à 15 mbar.

Le signal harmonique croît rapidement en fonction de ϕ_{iris} entre 8 et 11 mm. Le maximum du signal est atteint pour $\phi_{iris} = 11$ mm, puis le signal décroît à mesure que l'on continue à ouvrir l'iris jusqu'à $\phi_{iris} = 14$ mm. Cette tendance montre l'existence d'une ouverture optimale à laquelle correspond une taille de tache focale adaptée à l'énergie, ceci afin d'avoir un bon accord de phase et donc une génération efficace. Lorsque le diaphragme est trop fermé, l'énergie transmise à travers l'iris est insuffisante pour assurer une génération efficace. Dans le cas contraire, les énergies de pompes élevées induisent une forte ionisation du milieu et donc une perturbation de la génération.

Dans le but de confronter nos résultats à ceux de la littérature, nous avons montré sur la figure 3.18 une courbe d'optimisation du signal harmonique en fonction de l'ouverture du diaphragme extraite de la référence [S. Kazamias 2002]. Elle présente la variation du signal de l'harmonique H21 générée dans 10 torr d'argon, le laser a été dans ce cas focalisé à l'entrée d'une cellule de 2 mm de longueur. L'énergie focalisée est de 6 mJ donnant une intensité maximale de l'ordre de

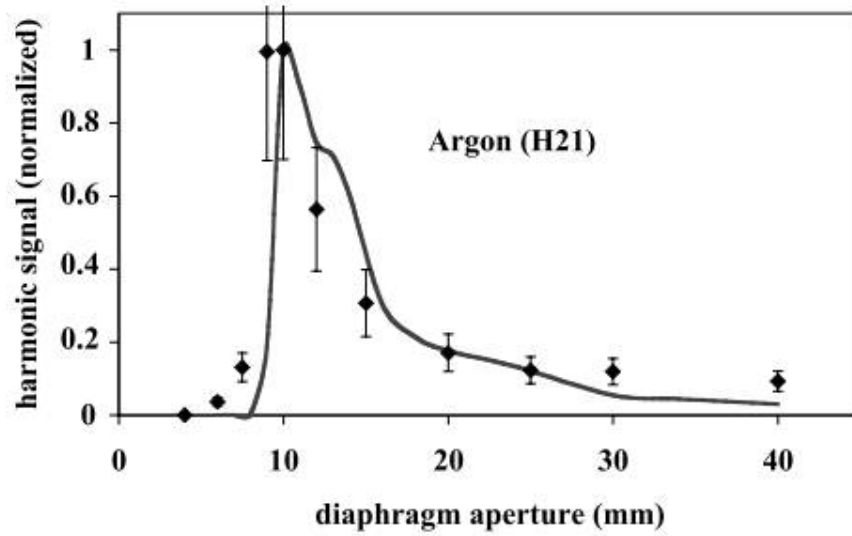


Fig. 4. Black squares: experimental harmonic signal for the 21st harmonic in argon as a function of diaphragm aperture. Thick line: theoretical simulations with the same generation conditions (10 torr, 2 mm long cell, focus at the entrance, 6 mJ total laser energy).

FIGURE 3.18 – Évolution du signal de l’harmonique H21, générée dans l’argon, en fonction du diamètre de l’iris. Évolution du signal harmonique calculé pour les mêmes conditions expérimentales (ligne continue). Image extraite de la référence [S. Kazamias 2002].

$2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$. On voit sur cette courbe que le signal harmonique est également optimisé pour une ouverture du diaphragme autour de 11 mm.

3.6.4 Effet de la pression

Comme nous l’avons vu dans le chapitre précédent, la pression du gaz générateur a un rôle primordial dans le processus d’optimisation de la génération d’harmoniques d’ordres élevés. Nous allons donc présenter ici une étude de son influence sur le signal harmonique intégré dans le cas de deux gaz (l’argon et le néon).

La figure 3.19 montre l’évolution du signal harmonique intégré sur les harmoniques entre 15 et 29 générées dans l’argon en fonction de la pression. L’ouverture de l’iris est maintenue à 11 mm, cette ouverture correspond à l’ouverture optimale. Nous avons fixé l’énergie IR après l’iris à 2 mJ, énergie pour laquelle les ordres harmoniques considérés sont dans le plateau comme le montre la figure 3.16.

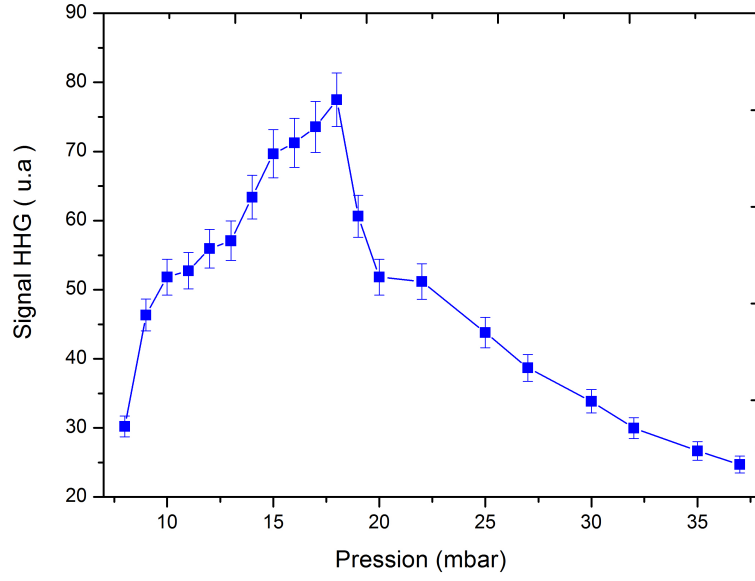


FIGURE 3.19 – Évolution du signal total intégré sur la caméra CCD XUV en fonction de la pression d'argon, $\phi_{iris} = 11$ mm et l'énergie mesurée après l'iris est $E_{IR} = 2$ mJ.

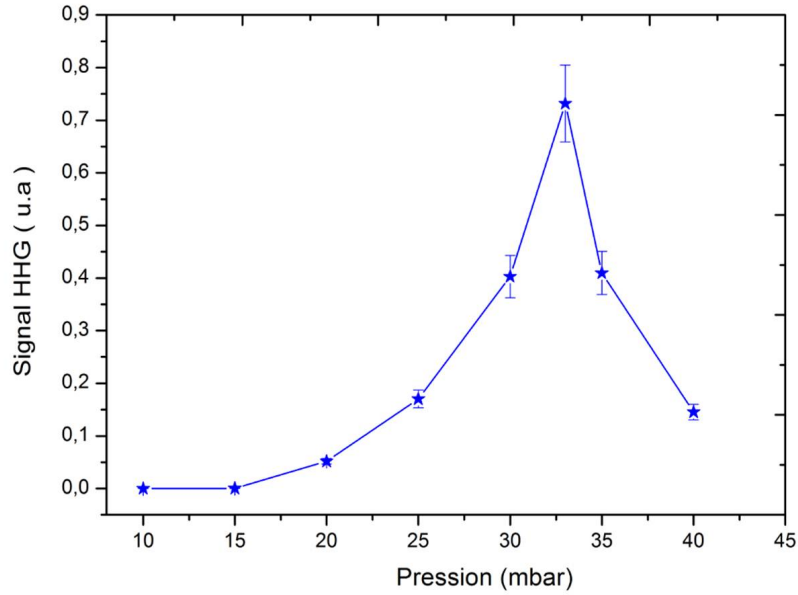


FIGURE 3.20 – Évolution du signal total intégré sur la caméra CCD XUV en fonction de la pression de néon, $\phi_{iris} = 14$ mm et l'énergie mesurée après l'iris est $E_{IR} = 6$ mJ.

Le signal croît rapidement jusqu'à une pression de 18 mbar correspondant à l'optimum pour ces conditions de génération. Les longueurs d'absorption dans l'argon varient entre 5 et 1 mm

pour les longueurs d'ondes entre 30 et 50 nm et sont donc conformes à la relation d'optimisation de constant (équation 2.15). Lorsque la pression continue à augmenter le signal décroît lentement jusqu'à s'éteindre complètement pour 35 mbar. Dans ce cas, la longueur de cohérence subit une chute brutale et limite par conséquent l'émission harmonique.

Pour le néon, nous avons pu constater que les conditions d'optimisation n'étaient pas les mêmes que pour l'argon. L'ouverture du diaphragme optimal correspond à un iris plus ouvert autour de 14 mm et l'énergie nécessaire (6 mJ) est plus élevée puisque le potentiel d'ionisation du néon (21.56 eV) est plus élevé que celui de l'argon (15.75 eV) (gaz plus léger donc plus d'ur à ioniser). La longueur d'absorption dans la gamme spectrale 20-50 nm varie entre 3 et 1 mm pour une pression de néon de 20 mbar. L'ordre harmonique maximal théorique que nous pourrions générer peut atteindre l'ordre 135 [L'Huillier 1993], mais notre système de détection avec filtre aluminium nous limite à l'harmonique 47. La figure 3.20 montre l'évolution en fonction de la pression du signal harmonique généré dans le néon. Dans le cas du néon, la pression optimale est égale à 33 mbar, plus élevée que celle de l'argon. Les énergies harmoniques estimées pour le néon sont plus faibles que pour l'argon, ce qui traduit une efficacité de génération plus faible.

3.7 Récapitulatif des caractéristiques de la source harmonique

Pour résumer, nous allons rappeler les caractéristiques de la source harmonique de la station LASERIX après optimisation des paramètres de la génération. Les gaz étudiés sont l'argon et le néon :

- Pour l'argon : 9 ordres harmoniques sont observés à l'aide du spectromètre, entre 15 et 29 (27 et 53 nm). L'harmonique maximale générée correspond à l'ordre 31.
- Pour le néon : 13 ordres harmoniques sont observés à l'aide du spectromètre, entre 23 et 47 (17.1 et 35 nm). L'étendue de la fenêtre spectrale de détection est limitée par la coupure du filtre aluminium.

Les caractéristiques de cette source robuste et stable sont récapitulés dans le tableau 3.2 :

Gaz	Argon	Néon
P_{opt} (en mbar)	$\simeq 15$	$\simeq 30$
q_{max} (observé)	31	47
ϕ_{iris} (en mm)	11	14
E (en eV)	48	73
E_{XUV}	quelques nJ	dizaines de pJ

TABLE 3.2 – Résumé des caractéristiques de la source harmonique de la station LASERIX pour des conditions d'optimisation standards. Les harmoniques sont générées dans une cellule de gaz de 10 mm de longueur avec des impulsions de 50 fs de durée.

L'énergie mesurée, intégrée spectralement et spatialement, dans l'argon est cent fois plus grande que celle dans le néon. Dans l'argon l'énergie mesurée, intégrée spectralement et spatia-

lement, est de l'ordre de quelques nJ. On retrouve l'estimation de l'énergie harmonique effectuée par Jean-Philippe Goddet sur la source harmonique de la salle Jaune [GODDET 2009]. Pour le néon, l'énergie est cent fois plus petite que celle dans l'argon ce qui est compatible avec les résultats expérimentaux des autres équipes travaillant sur le sujet.

3.8 Étude de l'aspect spatial des harmoniques

3.8.1 Importance de la divergence du faisceau harmonique

Le diagnostic de type foot-print que nous avons utilisé en configuration simple tir nous a permis d'avoir accès à la divergence du faisceau harmonique XUV moyennée sur tous les ordres du spectre. Si la divergence des faisceaux harmoniques a été relativement peu étudiée dans la littérature, tant d'un point de vue théorique que expérimental [C. G. Durfee 1999, Xinkui He 2009], elle est d'une grande importance pour les applications. D'une part, la divergence harmonique étant en général plus faible que la divergence du faisceau infrarouge qui la génère (en raison de la plus courte longueur d'onde), on peut imaginer des trous de filtrage sélectif du rayonnement XUV. C'est le cas de la configuration de focalisation forte [C.M.Heyl 2012] ou annulaire [A.Paul 2003]. De plus, une connaissance précise de la divergence du faisceau XUV permet de calibrer d'éventuels trous de filtrage différentiel à placer sur le trajet du faisceau pour améliorer le niveau de vide dans les enceintes [L. Meng 2012].

D'autre part, la divergence est le critère qui permet d'estimer les dimensions de taches focales attendues lors de la focalisation du faisceau XUV en vue d'applications. Dans le cas de la limite de diffraction, une forte divergence peut être favorable à une tache focale réduite, à condition de ne pas être limité par la taille des optiques focalisantes ou par des aberrations du système optique [S. Kazamias 2006].

3.8.2 Paramètres influençant la divergence harmonique

Dans ce qui suit, nous allons confronter nos résultats expérimentaux de divergence harmonique mesurée à la formule proposée par l'équipe de Lund dans la référence [Xinkui He 2009]. La divergence θ_j du faisceau XUV peut être estimée par l'expression (3.6) proposée par Xinkui et al [Xinkui He 2009], où w_q et w_{IR} sont respectivement les waists du faisceau harmonique et du fondamental.

$$\theta_{j,q} = \frac{\lambda_q}{\pi w_q} \sqrt{1 + 4\alpha_j^2 I_{IR}^2 \frac{w_q^4}{w_{IR}^4}} \quad (3.6)$$

La divergence $\theta_{j,q}$ de la q^{ieme} harmonique est imposée par la contribution de deux termes : le premier terme est donné par la limite de diffraction, inversement proportionnelle à la taille de la source (w_q), et le deuxième est dû au gradient de phase atomique du dipôle en supposant une propagation gaussienne. La phase atomique $\phi_{j,q} = \alpha_j I_{IR}$ est ainsi sensible à la variation transverse d'intensité du faisceau laser infrarouge, tout en dépendant également du chemin quantique j considéré.

En ne considérant que la limite de diffraction, l'ordre de grandeur de la divergence harmonique est le mrad, car la longueur d'onde harmonique est de quelques dizaines de nanomètres et

la taille de source harmonique de quelques dizaines de microns. Cependant, le terme de gradient de phase atomique ne peut être négligé compte tenu de la valeur de α , y compris pour le chemin quantique 1. Le tableau ci-dessous récapitule les valeurs de α pour les deux chemins quantiques et pour différents ordres harmoniques tels que stipulés dans la référence [K. Varju 2005].

Ordre	α_1 (10^{-14} cm ² /W)	α_2 (10^{-14} cm ² /W)	θ_1 (mrad)	θ_2 (mrad)
19	-1.0	-22.9	0.3	6.1
21	-1.8	-22.2	0.4	5.4
23	-2.7	-21.5	0.6	4.8
25	-3.8	-20.5	0.8	4.2
27	-5.1	-19.2	1.0	3.6
29	-6.9	-17.5	1.2	3.1
31	-9.8	-14.8	1.6	2.4

TABLE 3.3 – Constante α calculée par Xinkui et al pour les deux chemins quantiques en fonction des ordres harmoniques entre 19 et 31 générés dans l'argon. L'intensité laser utilisée pour le calcul est de l'ordre de $1.5 \cdot 10^{14}$ W/cm² [Xinkui He 2009].

α étant de l'ordre de quelques 10^{-14} cm²/W et I étant de l'ordre de quelques 10^{14} W/cm², le produit $\alpha_j I_{IR}$ est plus grand que 1, tandis que le rapport des surfaces de sources infrarouge et XUV peut en première approximation être considéré égal à 1 comme l'ont fait les auteurs de la référence [Xinkui He 2009]. On obtient alors dans ce cas l'expression approchée pour la divergence, proportionnelle à la limite de diffraction, qui confirme bien que le chemin 2 est largement plus divergent que le chemin 1 [Pascal Salieres 1995b] :

$$\theta_j \simeq |\alpha_j| I_{IR} \frac{\lambda_q w_q}{\pi w_{IR}^2} \quad (3.7)$$

Pour se confronter plus quantitativement aux résultats expérimentaux, nous avons cherché à évaluer précisément la valeur du rapport des waists du laser IR et du faisceau harmonique, ce dernier étant logiquement inférieur à 1 en raison de la loi de coupure et de la réponse hautement non-linéaire du dipôle harmonique [M. Lewenstein 1994]. Nous supposons dans tous nos calculs que le faisceau IR présente un profil gaussien. Dans ce cas l'intensité du faisceau IR et l'amplitude du dipôle harmonique s'expriment comme :

$$I_{IR} \propto \exp\left(\frac{-2x^2}{w_{IR}^2}\right) \quad (3.8)$$

et

$$I_{HHG} \propto \left(\frac{I_{IR}}{I_{cutoff}}\right)^{4.6} \quad (3.9)$$

Nous obtenons dans le cas où $I_{IR} > I_{cutoff}$:

$$I_{HHG} \propto \exp\left(\frac{-9.2x^2}{w_{IR}^2}\right) \quad (3.10)$$

Par conséquent le lien entre les waists IR et HHG est :

$$w_q \simeq 0.47 w_{IR} \quad (3.11)$$

Le rapport de ces deux termes à la puissance 4 (équation 3.6) chute alors considérablement : de 1 à 0.05. Ce rapport jouant un rôle crucial sur la valeur finale de la divergence apparaît comme très sensible à la géométrie du faisceau focalisé.

3.8.3 Effet de la diaphragmation du faisceau IR sur la divergence des harmoniques

3.8.3.1 Prédiction des modèles

Dans cette partie, nous présentons une étude de l'effet de la diaphragmation du faisceau IR sur la divergence des harmoniques que nous confrontons au modèle présenté par Xinkui et al, mais en travaillant avec des tailles de source harmonique plus réalistes. A l'aide de l'équation 3.6, nous avons calculé séparément pour chacune des deux trajectoires courte et longue la divergence en fonction de l'ordre harmonique pour plusieurs valeurs d'ouverture du diaphragme. Pour effectuer ces calculs, nous avons utilisé les valeurs calculées de la constante α [K. Varju 2005] ainsi que nos données expérimentales du faisceau IR détaillées dans le tableau 3.4.

ϕ_{iris} (mm)	E_{iris} (mJ)	w_0 (expérimental) (μm)	I_{IR} (estimée) (10^{14} W/cm ²)
8	1.93	96.40	1.33
9	2.01	90.00	1.58
10	2.20	86.25	1.89
11	2.63	79.01	2.69
12	2.71	78.50	2.80
13	2.90	76.00	3.20
14	3.10	75.50	3.56
15	3.29	71.00	4.16
16	3.48	69.50	4.60

TABLE 3.4 – Tableau récapitulatif des valeurs mesurées de l'énergie IR derrière l'iris et de la taille du waist en fonction de l'ouverture de l'iris. I_{IR} est l'intensité maximale au foyer calculée en utilisant ces données, la durée d'impulsion étant égale à 50 fs.

La figure 3.21 montre le résultat du calcul de divergence pour la trajectoire courte (chemin quantique 1) de la divergence des ordres harmoniques entre 19 et 31, pour un diamètre d'iris variant de 8 à 16 mm. Pour une ouverture d'iris donnée, la divergence augmente avec l'ordre harmonique, ceci est expliqué par l'augmentation de la valeur absolue de la constante α_1 qui compense largement la diminution de la longueur d'onde. Sur cette figure, on voit clairement que pour des diamètres d'iris relativement fermés (inférieurs ou égales à 10 mm), la divergence de tous les ordres harmoniques entre 19 et 31 reste inférieure à 1.5 mrad, alors que pour des

ouvertures d'iris supérieures à 11 mm elle atteint 5 mrad pour q 29 et 31. Ceci s'explique par le rapport $\frac{I_{IR}}{w_q}$ qui augmente considérablement quand l'iris est ouvert, tant par l'augmentation de I_{IR} que par la diminution de w_q (voir l'équation 3.6).

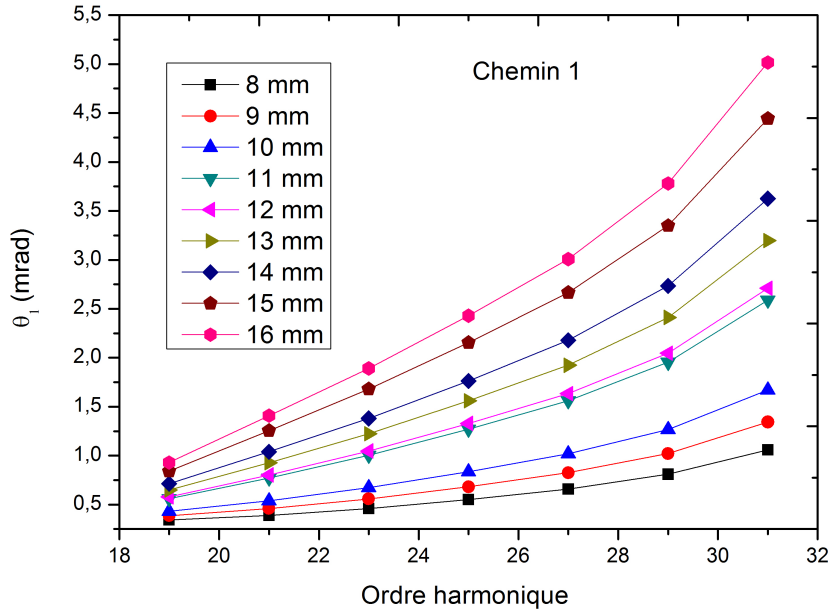


FIGURE 3.21 – Variation de la divergence calculée en fonction de l'ordre harmonique pour plusieurs ouvertures de l'iris. Le calcul est effectué pour le premier chemin quantique. La divergence des harmoniques augmente avec l'ordre harmonique et avec l'ouverture de l'iris.

Cette étude a également été appliquée dans le cas de la trajectoire longue (chemin quantique 2). Le résultat est présenté sur la figure 3.22. Contrairement au chemin 1, la divergence décroît en fonction de l'ordre harmonique à cause de la décroissance de la valeur absolue de la constante α_2 . Pour un ordre harmonique donné, la divergence présente un comportement en fonction de la taille d'ouverture de l'iris identique à celui du chemin 1.

Pour les ordres harmoniques entre 19 et 27, la divergence (θ_2) varie entre 3 et 19 mrad. Pour les ordres 29 et 31, elle est comprise entre 1 et 8 mrad. On retrouve bien que la divergence du chemin 2 est bien supérieure à celle du chemin 1. La figure 3.23 résume d'une manière quantitative la divergence attendue pour les deux chemins quantiques en fonction de l'ouverture de l'iris. Chaque point correspond à la valeur moyenne de la divergence sur toutes les harmoniques comprises entre 19 et 31. Dans les deux cas la divergence augmente avec le diamètre de l'iris.

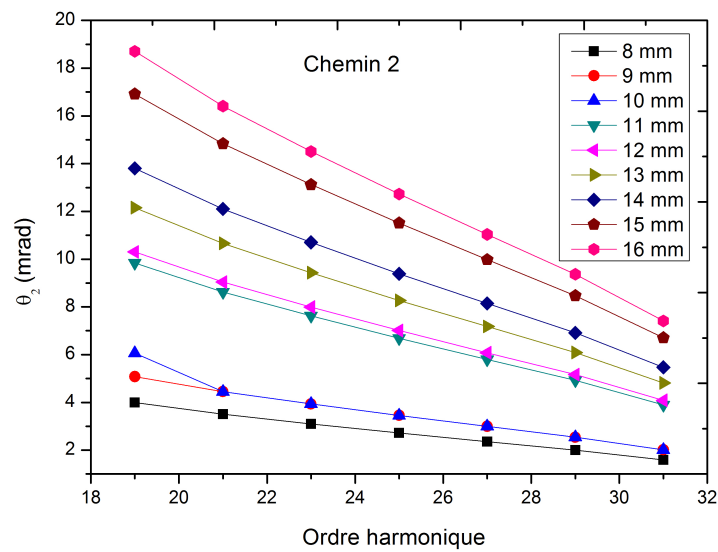


FIGURE 3.22 – Variation de la divergence calculée en fonction de l'ordre harmonique pour plusieurs ouvertures de l'iris. Le calcul est effectué pour le second chemin quantique. La divergence des harmoniques diminue avec l'ordre harmonique mais augmente avec l'ouverture de l'iris.

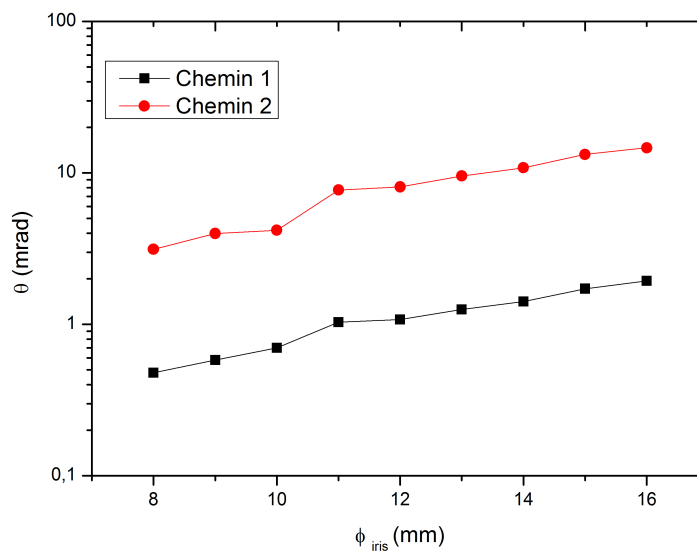


FIGURE 3.23 – Évolution de la divergence moyenne des ordres harmoniques entre 19 et 31 en fonction de l'ouverture de l'iris. On observe une faible divergence du chemin 1 contre une divergence plus importante du deuxième chemin quantique.

3.8.3.2 Comparaison avec les résultats expérimentaux

La figure 3.24 présente une mesure de la distribution spatiale typique du faisceau harmonique total. Les harmoniques ont été générées dans 20 mbar d'argon avec un diamètre d'iris de 11 mm et une intensité d'environ $2.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. L'empreinte harmonique est homogène et intense. On voit un pic relativement étroit et un très faible piédestal. En général, la présence d'un piédestal peut être attribuée à la somme des contributions des deux chemins quantiques dans la génération d'harmoniques [Xinkui He 2009].

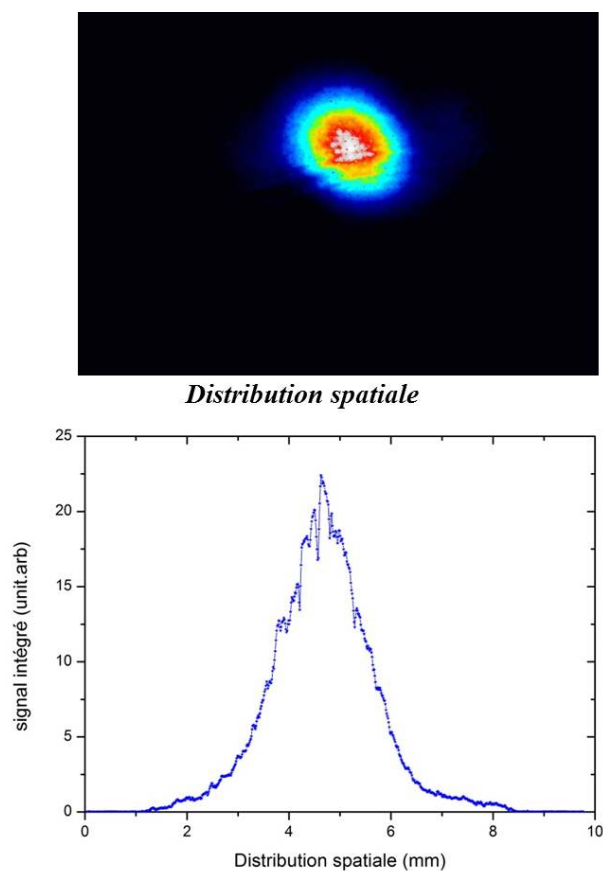


FIGURE 3.24 – Profil spatial du faisceau harmonique total transmis par le filtre aluminium et mesuré après 3 m de propagation.

La largeur à mi-hauteur de cette empreinte est de 1.9 mm, elle présente un profil légèrement elliptique avec des divergences horizontale et verticale respectivement de l'ordre de 0.75 mrad et 0.81 mrad. Cette forme elliptique peut être causée par l'astigmatisme introduit par un possible léger désalignement de la lentille de focalisation. Cette divergence est définie comme la demi-largeur en $\frac{1}{e^2}$ du profil spatial divisée par la distance de propagation de 3.3 m (distance séparant la cellule de génération et le détecteur). On remarque une très faible divergence totale de l'empreinte harmonique, indication d'une forte contribution du chemin court peu divergent.

Le comportement du signal total intégré et de la divergence des harmoniques en fonction de la diaphragmation du faisceau infrarouge sont présentés sur la figure 3.25 (a) et (b). La divergence mesurée en fonction de ϕ_{iris} croît lentement entre 8 et 13 mm (autour de 0.8 mrad). En continuant à ouvrir l'iris, la divergence du faisceau XUV augmente rapidement mais reste tout de même inférieure 1.5 mrad. Ceci est le signe que la contribution des trajectoires courtes est suffisamment importante pour imposer la faible divergence.

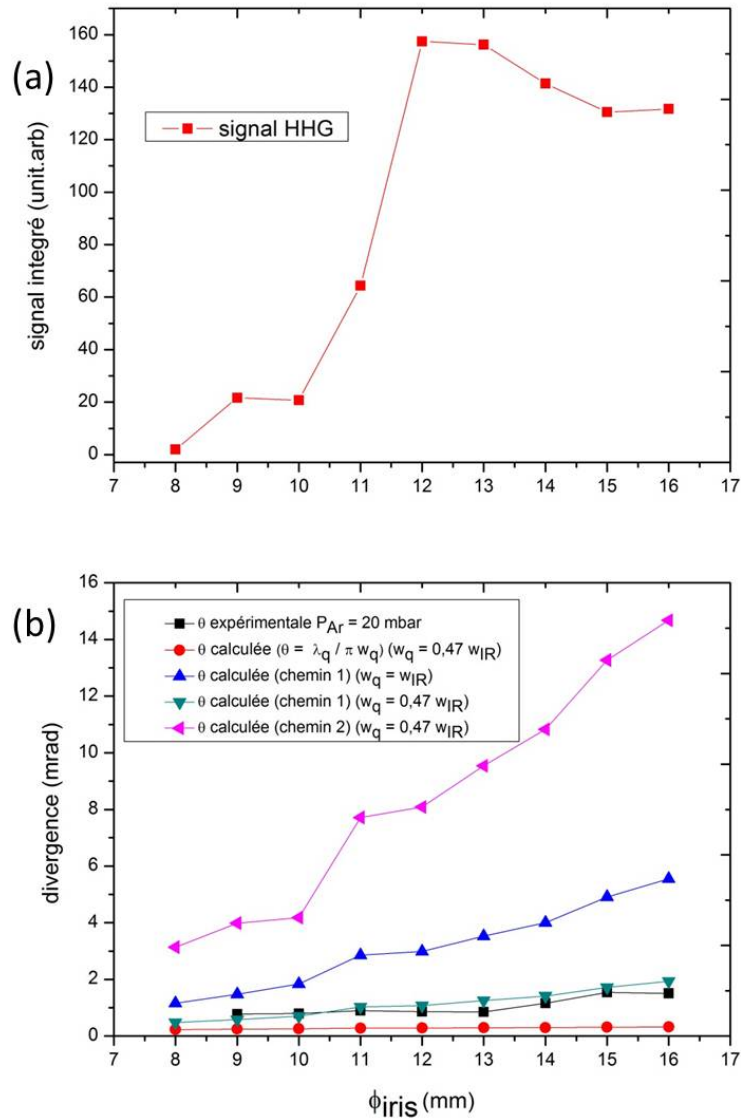


FIGURE 3.25 – (a) Évolution du signal harmonique total intégré en fonction du diamètre de l'iris. (b) Divergence du faisceau XUV en fonction de l'iris pour tous les ordres harmoniques. La pression est fixée à 20 mbar d'argon.

On note également sur cette figure (3.25 (b)) un bon accord entre la tendance d'évolution de courbe en noir expérimentale et la courbe verte calculée. Comme attendu, le signal XUV du chemin 1 seul est presque nul pour $\phi_{iris} = 8$ mm. Il croît ensuite rapidement entre 8 mm jusqu'à 12 mm, valeur pour laquelle se trouve l'optimum du signal XUV en fonction du diamètre de l'iris. Puis, il décroît lentement entre 12 mm et 16 mm. Cette décroissance lente peut être expliquée par l'augmentation de la divergence. Dans ce cas, le rayonnement harmonique de faible intensité est étalé sur tout l'écran du détecteur. Le niveau de signal total intégré est comparable avec le niveau de signal d'un faisceau très peu divergent généré pour un iris plus fermé.

3.8.4 Effet de la pression du gaz sur la divergence des harmoniques

Nous avons montré dans le paragraphe précédent qu'il y a un bon accord entre l'étude expérimentale et le modèle théorique utilisé pour l'étude de l'effet de la diaphragmation du faisceau IR sur la divergence des harmoniques. Dans cette partie, nous allons évoquer l'effet d'un deuxième paramètre, la pression du gaz, sur l'évolution de la divergence totale du faisceau harmonique. Pour ce faire, nous avons enregistré des séries d'évolution de la divergence en fonction de l'ouverture de l'iris pour quatre pressions différentes. Le résultat est présenté sur la figure 3.26.

La première figure 3.26 (a) montre une comparaison entre les courbes obtenues avec les calculs pour chacun des deux chemins et les courbes expérimentales enregistrées pour les pressions 10, 20, 30 et 40 mbar. On constate bien que la forte dominance sur la divergence vient de la contribution du chemin 1. La contribution de la deuxième trajectoire dans la génération d'harmoniques est si faible qu'elle n'impose aucun effet.

Nous avons alors présenté sur la figure 3.26 (b) un zoom entre 0 et 2.5 sur l'axe de la divergence. D'après cette figure, il est clair que pour les quatre valeurs de pressions la divergence présente le même comportement en fonction de la taille du diamètre de l'iris; il n'y a pas d'effet de la pression sur la divergence à signaler. Ce résultat est aussi cohérent avec le modèle utilisé dans la référence [Xinkui He 2009] puisque la pression n'y figure pas dans l'expression permettant de calculer la divergence.

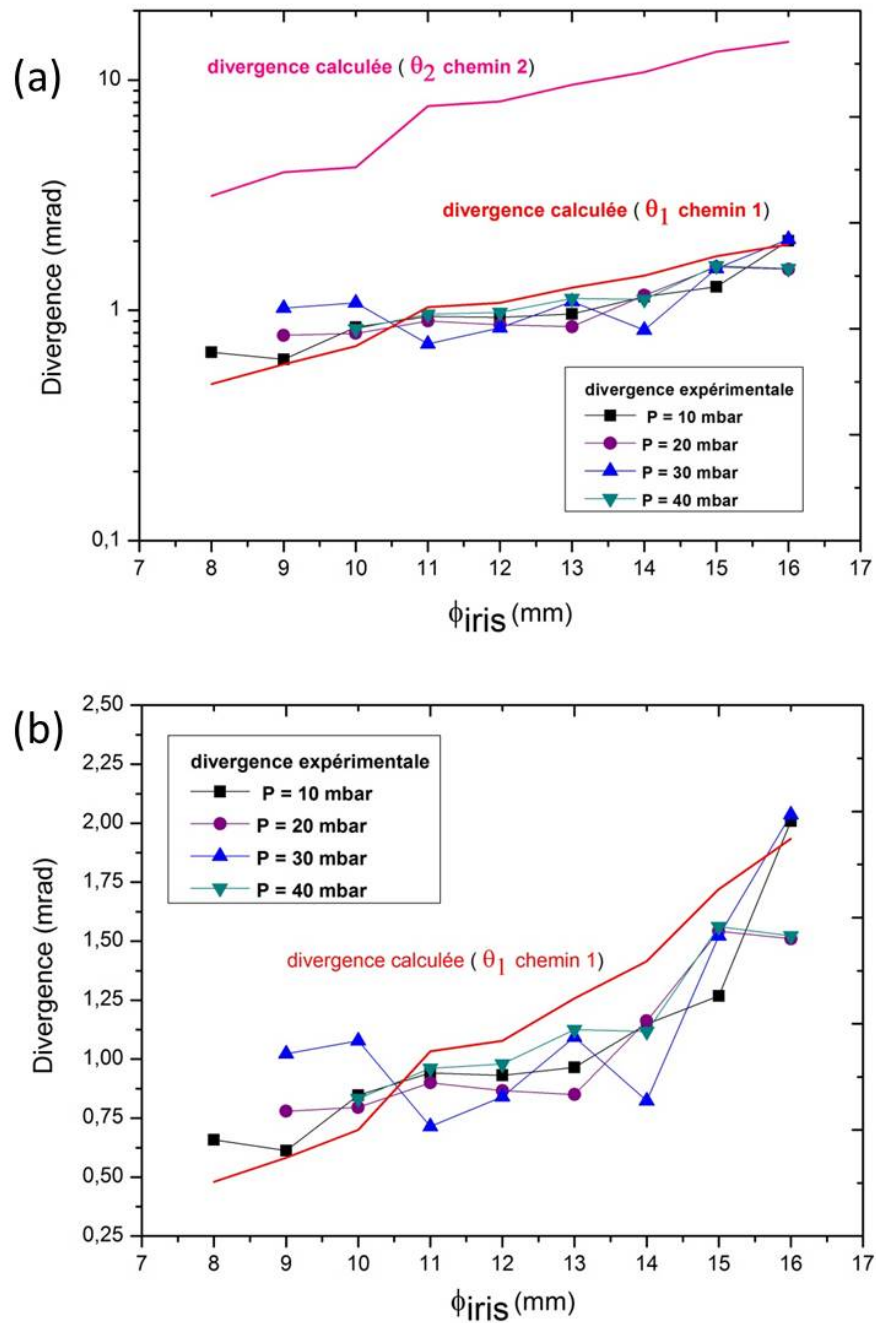


FIGURE 3.26 – Divergence du faisceau harmonique en fonction de l'iris pour des pressions d'argon de 10, 20, 30 et 40 mbar. Les courbes en rose et rouge présentent respectivement les divergences calculées pour le second et le premier chemin quantique.

3.9 Application : Mesure de la résolution temporelle d'une caméra à balayage de fente

3.9.1 Enjeu et principe

Après avoir obtenu les premiers photons XUV sur la source harmonique, nous avons commencé à accueillir des utilisateurs de faisceau pour exploiter cette source dans le cadre d'expériences appliquées. Nous avons effectué la première expérience d'application en collaboration avec une équipe du Laboratoire d'Utilisation des Lasers Intenses (LULI)(Serena Bastiani et Anne-claire Bourgaux) et de l'Institut de Sciences Moléculaires d'Orsay (ISMO)(Annie Klisnick et Limin Meng). Cette expérience avait pour but de mesurer la résolution temporelle d'une caméra à balayage de fente (streak camera) XUV possédant une résolution temporelle limitée à quelques fractions de picosecondes. Après avoir présenté le principe de fonctionnement de la caméra à balayage de fente, je vais présenter les résultats obtenus.

3.9.2 Caméra à balayage de fente

3.9.2.1 Présentation et description

Une caméra à balayage de fente ou «streak camera» est un dispositif permettant de visualiser l'évolution de l'intensité d'un signal lumineux en fonction du temps. La résolution temporelle de cet instrument s'étend de la microseconde à quelques centaines de femtosecondes. Suivant la photocathode utilisée, la caméra à balayage de fente peut être sensible aux domaines spectraux qui vont du proche infrarouge aux rayons X. La caméra Axis Photonique que nous avons utilisée est équipée d'une photocathode KBr (Luxel) et a une résolution temporelle théorique de l'ordre de la picoseconde.

3.9.2.2 Principe de fonctionnement et limitations

La caméra à balayage de fente (figure 3.27) est tout d'abord composée d'une photocathode ayant pour rôle de transformer les photons incidents en électrons. Ces électrons sont ensuite accélérés par une électrode à un potentiel de l'ordre de quinze kiloVolts. Ils sont ensuite focalisés par un système de deux optiques électroniques qui imagent la photocathode sur l'écran phosphore. Lorsque la rampe de haute tension est appliquée entre les deux électrodes (figure 3.28), les électrons seront d'autant plus déviés spatialement que leurs instants d'arrivée seront tardifs.

Elle permet ainsi de convertir le délai temporel Δt qui sépare deux impulsions lumineuses en une distance Δx sur l'écran. Un système de synchronisation de la rampe de tension sur l'arrivée de l'impulsion est indispensable pour obtenir une trace. Par ailleurs, dans le but d'augmenter la sensibilité, l'image obtenue sur l'écran à phosphore est amplifiée par une galette de micro-canaux (Micro Channel Plate en anglais, MCP). Une caméra CCD accolée aux MCPs enregistre l'image qui sera traitée numériquement par la suite. Cette image contient une information spatiale suivant la direction horizontale (celle de la fente) et temporelle suivant la direction verticale (de déviation des électrons).

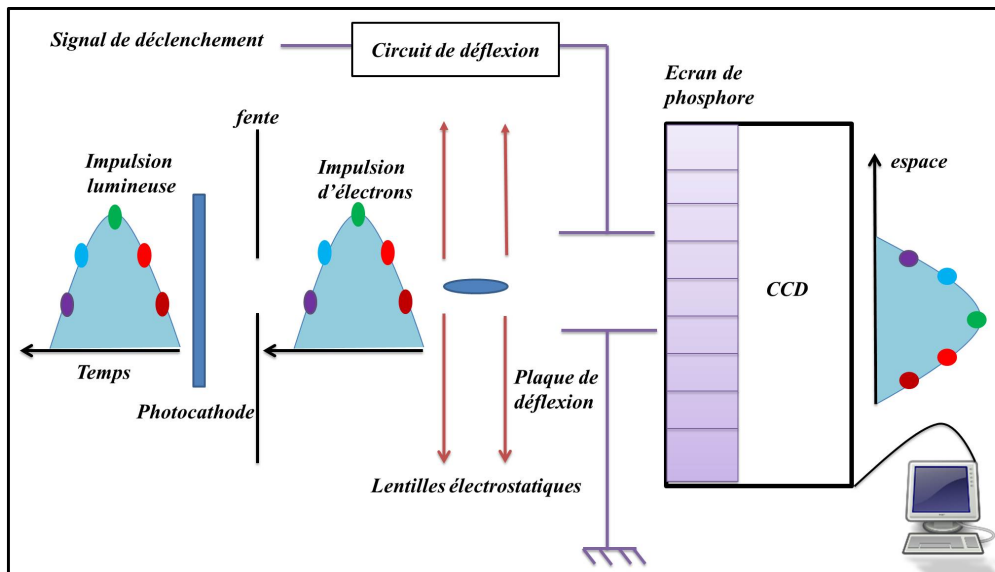


FIGURE 3.27 – Schéma d'un tube cathodique d'une caméra à balayage de fente.

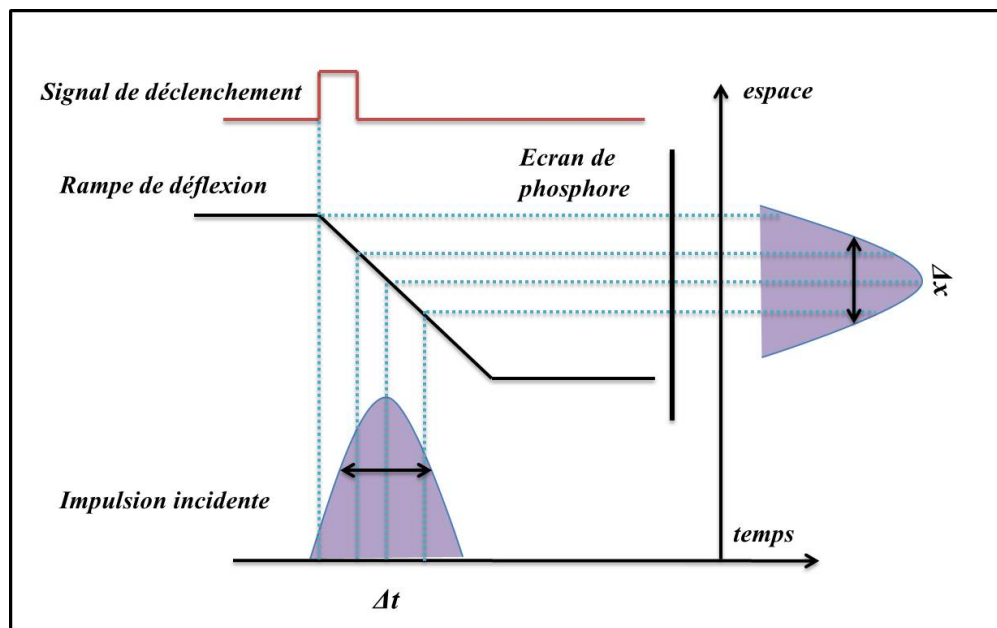


FIGURE 3.28 – Rampe de balayage.

Les performances de la caméra à balayage de fente sont caractérisées par la résolution temporelle, le jitter, la fenêtre temporelle et la dynamique. Ces limitations en terme de résolution temporelle proviennent principalement des aberrations de l'imagerie électronique, de la limite du champ électrique d'extraction à cause du risque du claquage de la photocathode, de la charges d'espace des électrons et de la dispersion en vitesse des électrons venant de la photocathode [P. Gallant 2000].

3.9.2.3 Schéma d'ensemble de l'expérience

La figure 3.29 montre un schéma d'ensemble de l'expérience. En sortie du compresseur, le faisceau IR arrive jusqu'à une lame séparatrice où une partie est consacrée à la génération du rayonnement harmonique et une fuite du faisceau est focalisée à l'entrée d'une fibre optique. La fuite est utilisée dans le système de synchronisation. Pour contrôler cette synchronisation, une boîte de retard électronique a été utilisée juste après le «Switch Auston» responsable de la transformation du signal optique en signal électrique à front de montée raide. Celui-ci garantit une synchronisation avec un faible jitter (25 ps).

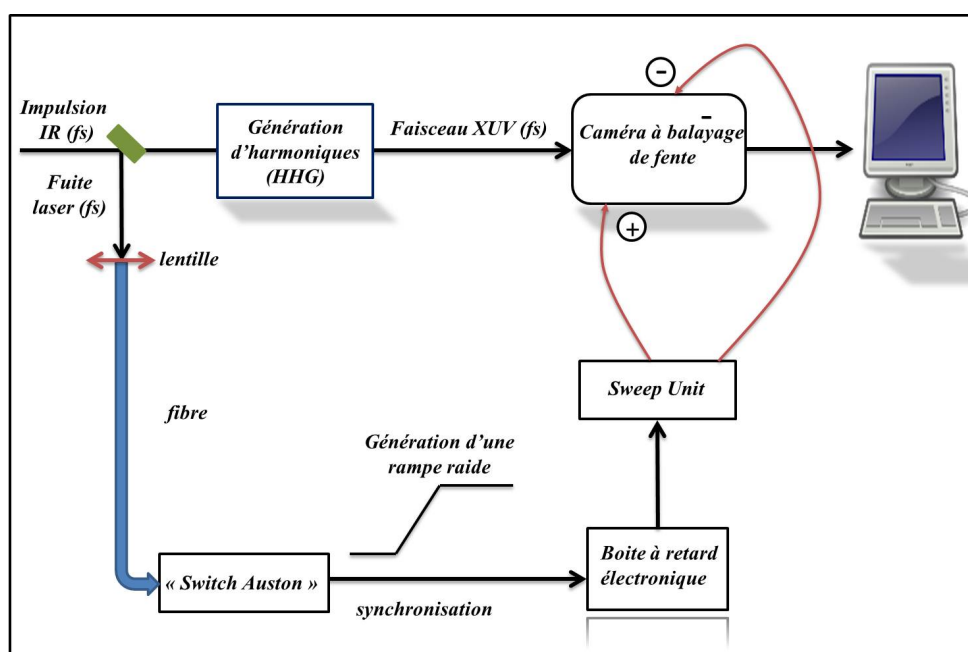


FIGURE 3.29 – Schéma de l'expérience de mesure de la résolution temporelle de la caméra à balayage de fente.

L'utilisation d'une caméra à balayage de fente sur la ligne harmonique exige un très bon vide, de l'ordre de 10^{-6} mbar ; or à cause de l'injection du gaz pour la génération d'harmoniques, le vide atteignable par notre système de pompage est de 10^{-4} mbar. Nous avons donc installé deux trous de pompage différentiel d'un même diamètre de 1 cm et séparés d'une distance de 2 m environ. Le diamètre des trous a été choisi en fonction de la faible divergence des harmoniques, en revanche une partie du faisceau IR est coupée par les trous, permettant ainsi de diminuer l'énergie infrarouge résiduelle. L'utilisation du pompage différentiel est certes utile, mais pas suffisante pour pousser le vide à la valeur désirée. Nous avons donc utilisé un refroidissement supplémentaire à azote liquide par un doigt froid placé au niveau de l'enceinte sur laquelle la caméra à balayage est installée.

3.9.3 Résultat de mesure temporelle obtenu

D'une façon générale, le profil du signal mesuré sur l'écran d'une caméra à balayage de fente est le résultat d'un produit de convolution entre le signal XUV que l'on veut étudier et la réponse de cet instrument de mesure. Cette réponse est généralement une information fournie, mais sa valeur théorique varie et change avec la photocathode utilisée et avec sa durée de vie. Si l'on utilise une source de lumière avec une durée d'impulsion beaucoup plus faible que la résolution temporelle théorique, la durée mesurée sera équivalente à la résolution temporelle propre de cette caméra. Ayant une durée temporelle très courte, inférieure à quelques dizaines de fs, le rayonnement harmonique est un candidat idéal pour mesurer la limite de la résolution temporelle d'une caméra streak.

Cette expérience a été effectuée en deux étapes, la première ayant pour but de générer et d'optimiser au mieux le signal harmonique. Les harmoniques fournies ont été générées dans l'argon. Puis, la détection avec la caméra à balayage de fente fait l'objet de la deuxième partie.

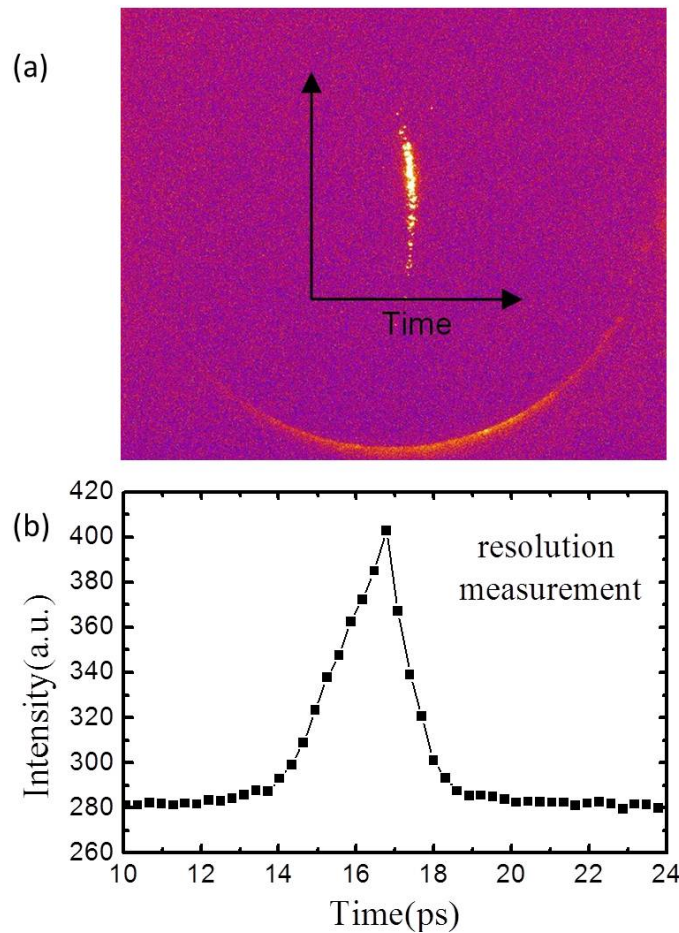


FIGURE 3.30 – Résolution temporelle d'une caméra à balayage de fente mesurée à l'aide d'une source harmonique femtoseconde. La résolution temporelle est de 2.00 ± 0.18 ps.

La figure 3.30 (a) présente une résolution temporelle du signal harmonique détecté par la caméra. La partie (b) de la figure montre le profil de l'impulsion harmonique résolue en temps. La largeur à mi hauteur (FWHM) correspond à la résolution temporelle de l'appareil, celle-ci a été déterminée égale à 2.00 ± 0.18 ps [L. Meng 2012].

3.9.4 Perspectives

La caméra à balayage de fente est un instrument de mesure qui permet de visualiser le comportement d'un phénomène lumineux selon trois dimensions. La réponse en intensité de l'écran de phosphore correspond à l'intensité du signal lumineux étudié, et le balayage apporte lui la dimension temporelle à travers la position de la trace sur l'écran. La troisième dimension correspond à la dimension spatiale. Il serait donc intéressant comme perspective de ce travail de mesurer la résolution spatiale de cette caméra à balayage de fente. Elle correspond à la résolution de la caméra dans la dimension perpendiculaire à la dimension temporelle.

Pour effectuer cette mesure, nous proposons deux idées d'expériences. La première consiste à refaire l'expérience en positionnant un objet opaque (un fil ou une grille...) juste derrière la cellule harmonique (milieu de génération du rayonnement). Une deuxième idée plus compliquée à mettre en œuvre consiste à générer deux impulsions harmoniques colinéaires mais légèrement décalées spatialement. Lorsque les deux faisceaux divergent, ils vont interférer en champ lointain. Les franges d'interférences sur l'écran de la caméra à balayage de fentes, nous permettraient de déterminer la résolution spatiale. Il est à signaler, que la mesure de la réponse temporelle n'a de sens que si l'on connaît très précisément la vitesse de balayage. La présence de deux impulsions harmoniques séparées par un délai temporel Δt permettrait de mesurer précisément cette dernière.

3.10 Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai présenté le travail de diagnostic et de développement effectué sur la source harmonique de la station LASERIX. Ces travaux ont permis de déterminer les conditions de génération optimales pour les deux gaz utilisés (argon et néon). Une campagne d'optimisation de la génération dans une cellule à gaz de 10 mm de longueur a été lancée. Les paramètres d'optimisation sont ; la pression du gaz, l'ouverture de l'iris et l'énergie laser. Dans l'argon, l'énergie harmonique intégrée spectralement et spatialement, est de l'ordre de quelques nano Joule, tandis qu'avec le néon, elle est de l'ordre de quelques dizaines de pico Joule.

Nous avons également observé expérimentalement puis évalué quantitativement l'effet de la variation de l'ouverture du diaphragme sur la divergence d'un faisceau harmonique. Nos estimations à partir de formules issues de la littérature montrent un effet dominant du premier chemin quantique, chemin le moins divergent.

La source harmonique a été utilisée pour une expérience d'application dans le cadre d'une collaboration avec les laboratoires LULI (de l'école polytechnique) et ISMO (de l'université Paris sud). Cette expérience avait pour but de mesurer la résolution temporelle d'une caméra streak.

Le résultat obtenu donne une résolution de 2.00 ± 0.18 ps et a permis la calibration de données expérimentales sur la mesure de durée d'un laser X récemment publiées. Maintenant que la source est bien diagnostiquée et fonctionne en routine, nous allons pouvoir commencer le travail de la génération d'une double impulsion harmonique, ce travail fait l'objet du chapitre suivant.

Génération d'une double impulsion harmonique avec une structure picoseconde

Sommaire

4.1	Introduction	93
4.2	Position du problème	94
4.3	Processus de génération quasi-colinéaire	96
4.4	Dispositif expérimental	98
4.4.1	Interféromètre infrarouge	98
4.4.2	Approche de génération suivie	100
4.4.3	Systèmes de caractérisation des faisceaux XUV	102
4.5	Effet du délai temporel	104
4.5.1	Travail expérimental	104
4.5.2	Estimations théoriques du temps caractéristique de recombinaison du plasma	110
4.6	Discussion des spectres harmoniques en double impulsion	112
4.7	Accord de phase dans la génération de double impulsion XUV	114
4.7.1	Influence de l'énergie de la première impulsion infrarouge	114
4.7.2	Influence de la pression	117
4.8	Génération d'harmoniques avec un délai temporel nul	122
4.8.1	Résultats expérimentaux obtenus	123
4.8.2	Modélisation de la génération d'harmoniques à délai nul	124
4.9	Conclusion	129

4.1 Introduction

Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, la source harmonique présente plusieurs avantages qui ont fait d'elle un outil puissant pour un certain nombre d'applications telles que l'holographie [A.S.Morlens 2006], l'optique non-linéaire [N.A.Papadogiannis 2003], la physique atomique et moléculaire [M.Drescher 2002] et la physique du solide et des surfaces [J.Gaudin 2004]. Les sources harmoniques, du fait de leur compacité, leur brièveté et leur qualité spatiale peuvent servir d'injecteur dans d'autres types de sources de même longueur d'onde mais fonctionnant en régime d'amplification d'émission spontanée (ASE). On peut citer : les

lasers à plasma (ASE) [P.Zeitoun 2004, Y.Wang 2008] et les lasers à électrons libres (SASE) [G.Lambert 2008] qui sont des sources présentant des limitations en termes de propriétés optiques et spatio-temporelles [O. Guilbaud 2006a, O. Guilbaud 2006b].

La technique d'injection d'un faisceau d'harmoniques d'ordre élevé dans un plasma de laser (SXRL) permet ainsi de combiner les forts gains contenus dans les plasmas des lasers XUV et les qualités temporelle (courte durée) et optiques (cohérence spatiale et temporelle élevées, faible divergence et polarisation linéaire) des harmoniques [J.P. Goddet 2009, M. Berrill 2010].

Pour une expérience d'injection, il faut donc assurer d'un côté une bonne caractérisation du faisceau harmonique et d'un autre côté un niveau de signal assez élevé pour dominer l'émission spontanée du laser X.

Dans le but de faire une étude approfondie de l'aspect temporel du gain [T. Mocek 2005] et de la polarisation [E. Oliva 2011] d'un laser à plasma, nous avons d'abord travaillé sur la réalisation d'un système de génération d'une double impulsion harmonique avec un délai temporel variable dans la gamme picoseconde. Dans ce système, la polarisation relative des deux faisceaux de pompe doit pouvoir être ajustée pour être parallèle ou perpendiculaire.

La première impulsion harmonique agirait comme pompe en provoquant la déplétion du gain et la seconde comme sonde du gain résiduel et du comportement de la polarisation du milieu amplificateur suite au pompage par la première impulsion. Pour le type d'expériences accessibles sur la station LASERIX, la gamme temporelle d'intérêt varie de 500 fs à 10 ps, compte tenu de la durée du gain déduite de précédentes mesures de durée d'impulsion en régime ASE. Ces durées, qui sont de l'ordre de quelques picosecondes, ont été mesurées à l'aide d'une caméra à balayage de fente [A.Klisnick 2002] ou avec des techniques de cross-correlation (corrélation croisée) [T.Mocek 2004]. Pour cette raison, il est important d'élaborer notre étude temporelle de la double impulsion harmonique dans la gamme temporelle picoseconde.

Ce chapitre a pour but de présenter le travail de développement expérimental effectué pour la génération d'une double impulsion harmonique. Dans un premier temps nous nous intéresserons à la production, l'optimisation et la caractérisation de deux impulsions XUV avec un délai positif ajustable de 500 fs à 100 ps entre les deux impulsions laser IR. Dans un deuxième temps, nous présenterons les résultats obtenus pour un délai nul (impulsions temporellement superposées).

4.2 Position du problème

La génération d'harmoniques d'ordre élevé pompée par deux impulsions IR séparées temporellement dans la gamme picoseconde n'a, à notre connaissance, pas été étudiée auparavant en raison de problèmes techniques et fondamentaux. Sur le plan technique, pour générer deux impulsions XUV, il faut disposer de deux faisceaux IR de pompe énergétiques (voir la figure 4.1). Si ces deux impulsions sont issues d'un interféromètre de Mach-Zehnder, il faut un minimum d'énergie IR de l'ordre de 10 mJ à l'entrée de l'interféromètre ; cette réserve d'énergie n'est pas disponible sur la majorité des installations laser KHz dédiées à la génération d'harmoniques et aux applications. D'un autre côté, comme la génération d'harmoniques est un processus en champ fort, un certain taux d'ionisation dans le milieu actif est indispensable pour une génération efficace [Corkum 1993]. Or l'ionisation introduit une dispersion électronique qui perturbe l'accord de phase [S. Kazamias 2003b] et donc contrarie le processus de génération efficace du rayonnement

harmonique. Toutes ces contraintes rendent non triviale la génération de la deuxième impulsion XUV intense à partir d'un milieu pré-ionisé par l'interaction avec la première impulsion.

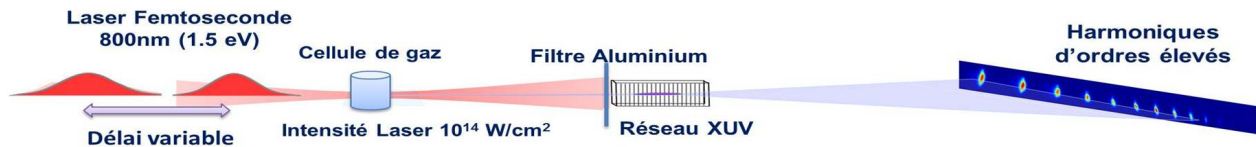


FIGURE 4.1 – Schéma de principe de la génération de double impulsion harmonique. Les deux impulsions IR issues de l'interféromètre sont focalisées sur une cellule remplie de gaz. Les harmoniques générées se propagent colinéairement avec l'IR qui sera bloqué par un filtre Aluminium.

Pour une expérience d'interférométrie, S.Dobosz et al [S. Dobosz 2009] ont utilisé la technique de génération de deux impulsions harmoniques à partir de deux milieux générateurs séparés. Dans ce travail, les auteurs ont introduit un nouveau schéma d'interféromètre XUV qui présente l'avantage d'être moins coûteux grâce à la diminution du nombre d'optiques XUV utilisées. La méthode de génération de deux impulsions harmoniques à partir de deux milieux spatialement séparés réside dans la possibilité d'effectuer une imagerie 2D du plasma avec une résolution micrométrique de l'ordre de $10\ \mu\text{m}$, ce qui constitue leur motivation pour l'utilisation de la technique de génération à partir de deux milieux spatialement séparés.

Cette expérience a été effectuée avec le laser LUCA du CEA Saclay qui délivre à 800 nm des impulsions de 50 fs de durée à un taux de répétition de 20 Hz. Le faisceau IR a été focalisé avec une lentille de 1 m puis séparé en deux parties identiques contenant chacune une énergie de 1 à 2 mJ. Les deux milieux de générations ont été ensuite séparés latéralement. Les deux impulsions XUV générées ont été recombinaison vers le détecteur par réflexion sur les deux faces d'un prisme (figure 4.2). Cette méthode de recombinaison de deux faisceaux XUV après la génération présente l'inconvénient d'introduire trop de pertes de signal pour les ramener sur le même axe. Cette méthode de génération de deux impulsions XUV a été choisie pour une application spécifique qui n'est pas favorable à une utilisation courante d'un schéma double pulse.

Dans notre cas, étant donné que le but final est d'utiliser ces deux impulsions XUV dans des expériences plus courantes, de type pompe-sonde ou pour des expériences d'injection d'harmoniques dans un laser X, il est important que les deux impulsions XUV puissent être colinéaires avec peu de pertes liées à la gestion de la propagation du faisceau. Nous avons pour cela choisi d'utiliser la technique de génération à partir d'un seul milieu générateur. Notre système présente l'avantage d'être moins coûteux et simple à utiliser puisque nous gérons les faisceaux à partir du laser d'excitation, en laissant ensuite les impulsions XUV en propagation libre.

Comme la station LASERIX sur laquelle j'ai effectué mes travaux de thèse a pour but de développer et de fournir aux utilisateurs des sources XUV, nous avons trouvé utile et prometteur de générer deux faisceaux harmoniques colinéaires. Ceci nous permettra d'un côté de profiter de la simplicité d'alignement du système puisque les deux impulsions résident dans le même

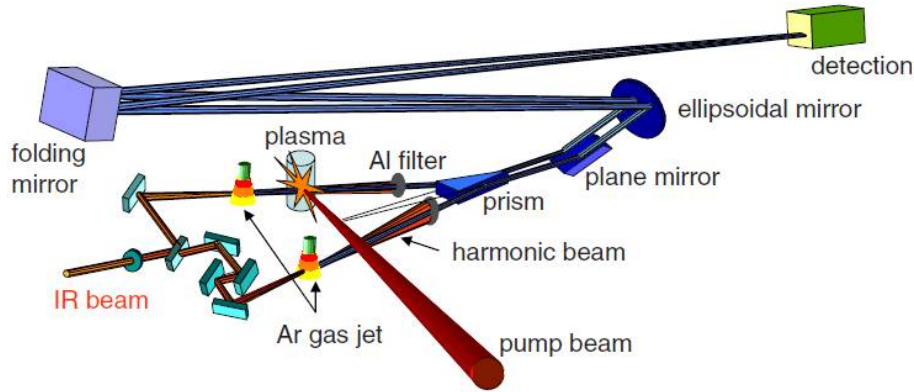


FIGURE 4.2 – Dispositif expérimental de l'expérience de conversion de fréquence à l'aide de l'interférométrie de deux faisceaux XUV. Figure extraite de la référence [S. Dobosz 2009].

faisceau et de fournir également aux utilisateurs une double impulsion harmonique avec un délai temporel variable entre elles. Le défi est donc de maintenir l'approche de génération de double impulsion à partir d'un seul milieu et de trouver le moyen de générer deux impulsions équilibrées en termes d'énergie XUV. Je présenterai dans ce chapitre une étude complète du problème de la génération de double impulsion harmonique du point de vue de la réponse temporelle du milieu et de l'accord de phase [S.Daboussi 2012].

4.3 Processus de génération quasi-colinéaire

Après avoir présenté les motivations de notre travail, je présente ici l'étape de réalisation. Il est indispensable de caractériser séparément les deux impulsions XUV en termes de spectre, d'énergie totale intégrée et de géométrie de faisceau. Il fallait donc trouver un moyen pour distinguer les deux faisceaux XUV générés avec un court délai dans la gamme temporelle picoseconde. Pour ce faire, nous avons pensé à utiliser une caméra à balayage de fente dont la résolution peut atteindre la gamme temporelle désirée. Cependant, à cause des conditions de travail complexes que ce type de matériel impose, tel qu'un vide poussé exigé de l'ordre de 10^{-6} mbar, et à cause de sa faible dynamique, nous avons pensé à utiliser une autre approche qui est la technique de génération quasi-colinéaire.

Cette technique a déjà été utilisée pour plusieurs types d'applications dans le cas d'un délai nul fixe entre les deux faisceaux IR. On peut citer le travail effectué par A.Ozawa et al [A.Ozawa 2008] qui ont utilisé la génération non-colinéaire d'harmoniques. Dans le cadre de cette expérience, les auteurs ont utilisés un laser Ti : Sa délivrant des impulsions d'une durée de 150 fs, de 1 mJ d'énergie, à un taux de répétition 1 KHz. Les deux impulsions ont été focalisées dans une cellule remplie de xénon grâce à deux miroirs sphériques identiques de 300 mm de distance focale. L'angle de non-colinéarité était important (entre 30 et 45 mrad). Les auteurs ont montré d'une part la faisabilité de la génération non-colinéaire d'harmoniques d'ordres élevés, et d'autre part l'utilisation de cette méthode de génération comme un moyen

prometteur d'extraction d'énergie pour des cavités XUV.

Un autre type d'application a été récemment introduit dans le cadre d'une expérience de mélange d'onde en génération non-colinéaire d'harmonique où l'angle était de l'ordre de 14 mrad [J.B.Bertrand 2011]. Pendant cette expérience, les auteurs ont utilisé un interféromètre de Mach-Zehnder qui sépare le faisceau infrarouge incident (800 nm, 35 fs de durée, 50 Hz, 10 mJ par impulsion, $I = 1.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$) en deux bras dont l'un a été doublé en fréquence (400 nm) avec intensité variable. Ces deux faisceaux ont été focalisés avec une lentille de 500 mm de distance focale dans un jet de gaz. Le but de cette expérience était de montrer que la superposition non-colinéaire d'un faisceau laser fondamental avec sa deuxième harmonique permet d'identifier la contribution de chaque faisceau dans l'émission XUV.

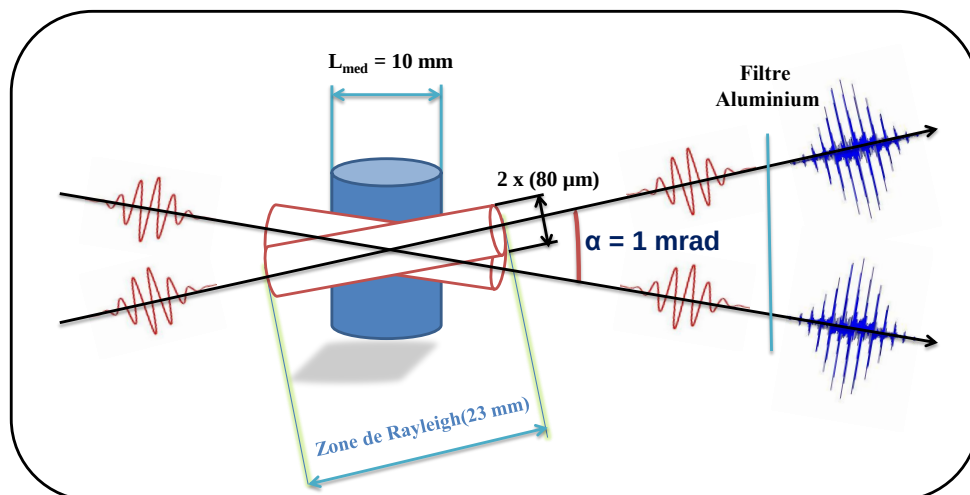


FIGURE 4.3 – Dimensionnement des deux faisceaux IR au sein de la cellule de 10 mm de longueur. Le rayon de la tache focale en $1/e^2$ est de l'ordre de $80 \mu\text{m}$, la zone de Rayleigh est donc de 23 mm.

L'approche que nous avons mise en œuvre consiste à utiliser un interféromètre de Mach-Zehnder pour produire les deux faisceaux IR, mais en les séparant latéralement au niveau de la lame de recombinaison. Ces deux faisceaux sont ensuite focalisés sur la même cible avec la même lentille, avec un léger angle comme le montre la figure 4.3 (l'angle est donné par le rapport entre la distance de séparation et la focale). Une fois générés, les deux faisceaux XUV se propagent colinéairement aux faisceaux d'excitations (sauf dans le cas particulier du délai nul comme discuté dans la dernière partie de ce chapitre). Après une libre propagation de 2 m, les

faisceaux traversent un filtre en aluminium de 200 nm d'épaisseur qui bloque les deux faisceaux IR et toutes les longueurs d'ondes inférieures à 17 nm correspondant aux harmoniques d'ordres q supérieurs à 47. Les deux impulsions XUV se propagent encore sur une distance d'environ 1 m jusqu'à arriver dans l'enceinte de mesures.

Pour choisir l'angle à introduire entre les deux faisceaux IR, nous avons fait face à plusieurs contraintes. Il était, d'un côté, indispensable de générer les deux faisceaux harmoniques dans des conditions proches de la colinéarité, sachant que le choix du processus de génération quasi-colinéaire avait pour but essentiel de pouvoir distinguer spatialement les deux faisceaux harmoniques. Nous étions, d'un autre côté, limités par la taille du chip de la caméra XUV (1 cm x 1 cm) qui doit contenir les deux empreintes de faisceaux harmoniques sans qu'elles se chevauchent. Cette caméra étant située à 3 m de la source de génération, il fallait imposer un angle de l'ordre de 1 mrad (voir chapitre 3). Les deux faisceaux IR se comportent comme s'ils étaient colinéaires tout au long de la longueur de la cellule (10 mm), car la zone de Rayleigh faisait 23 mm de longueur et que la tache focale avait un rayon en $1/e^2$ de l'ordre de 80 μm . Nous considérerons ainsi qu'avec un angle aussi faible nous sommes dans une condition de génération quasi-colinéaire.

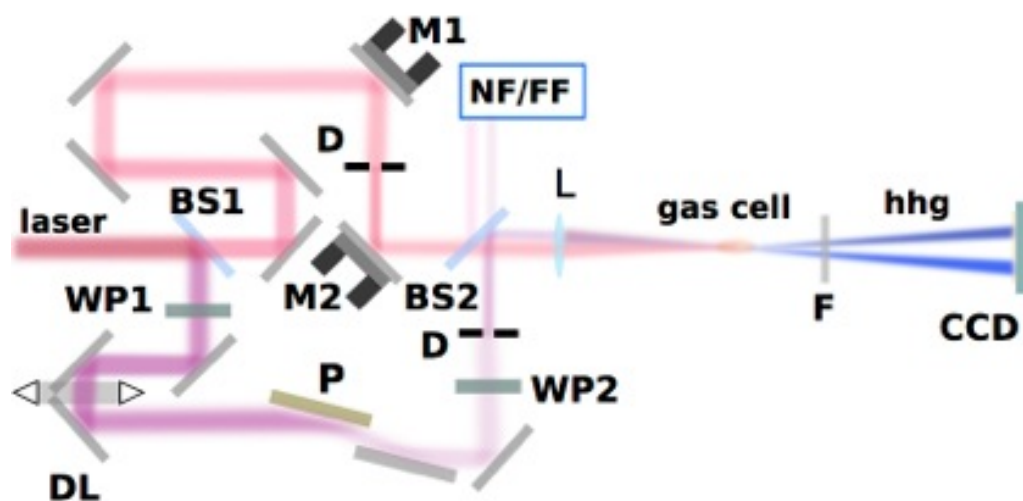
4.4 Dispositif expérimental

4.4.1 Interféromètre infrarouge

La figure 4.4 représente le schéma du montage expérimental réalisé pour la génération quasi-colinéaire d'une double impulsion harmonique. L'impulsion étirée, provenant d'un prélèvement de 10% en sortie de la chaîne laser, passe dans le compresseur à l'air. L'énergie injectée dans le compresseur est limitée à 25 mJ à l'aide d'un système d'atténuation basé sur l'association d'une lame demi-onde et d'un cube polariseur. En sortie du compresseur, l'impulsion, qui a une durée de l'ordre de 50 fs, est envoyée dans un interféromètre de Mach-Zehnder (voir la photo 4.5).

Dans l'interféromètre, l'impulsion est séparée en deux bras, respectivement réflexion et transmission d'une lame séparatrice (BS1) 50/50 (en polarisation P) placée à l'entrée de l'interféromètre. Sur le bras réfléchi, une lame demi-onde et un polariseur (WP1+P) sont utilisés pour contrôler l'énergie de l'impulsion. Une ligne à retard motorisée (DL :delay line) est également installée sur ce bras pour ajuster le délai entre les deux impulsions dans la gamme temporelle allant de -100 ps jusqu'à +100 ps. Les deux voies peuvent ainsi être utilisées de façon symétrique pour s'affranchir d'un comportement qui serait fonction des caractéristiques intrinsèques des deux faisceaux plutôt que de leur délai relatif. Le pas minimal de la platine utilisée est 1 μm , ce qui se traduit en terme de résolution temporelle par une précision de l'ordre de 6.5 fs. Les deux impulsions passent par deux diaphragmes (D) afin de contrôler la géométrie des faisceaux aux foyers via leur diamètre en champ proche avant focalisation.

La polarisation relative entre les deux faisceaux IR peut être réglée soit parallèle (P) soit perpendiculaire (S) à l'aide de la lame demi onde WP2. En sortie de l'interféromètre, les impulsions sont recombinaées par une lame séparatrice (BS2) 50/50. Sur le trajet du faisceau transmis, nous avons installé deux miroirs (M1 et M2) sur des montures à friction piézoélectrique (Newpot, Agilis) permettant respectivement un ajustement fin de la séparation



verticale des deux faisceaux lors de la recombinaison (ajustement en champ proche) et d'optimiser la superposition avec le faisceau réfléchi (correction du champ lointain). L'angle de non-colinéarité dépend de la distance de séparation verticale entre les deux faisceaux sur la lame de recombinaison. Les deux faisceaux sont ensuite focalisés dans une cellule à gaz de 10 mm de longueur via une lentille (L) de 1100 mm. L'angle entre les deux faisceaux est de l'ordre de 1 mrad (soit 1 mm entre les 2 faisceaux en CP). Compte tenu de leur faible divergence, de l'ordre de 1 mrad (voir chapitre 3), et grâce à la géométrie de génération quasi-colinéaire, nous pouvons distinguer les deux faisceaux harmoniques sur un détecteur situé à une distance de 3 m de la cible de génération. Dans ces conditions le recouvrement des deux taches focales au sein de la cellule de gaz est de l'ordre de 90 %.

Nous disposons de deux diagnostics de caractérisation actuellement utilisables non simultanément. On peut choisir de faire propager les faisceaux jusqu'à une caméra XUV Princeton qui constitue une caractérisation spatiale des faisceaux XUV en champ lointain, ou bien jusqu'à un spectromètre imageur pour la caractérisation spectrale bidimensionnelle. Dans ces conditions, un alignement laser précis est indispensable pour optimiser la superposition spatiale des faisceaux au foyer, au milieu de la cellule de gaz. Un contrôle en temps réel des champs proche et lointain (figure 4.4, NF : (near field) / FF : (far field)) permet de contrôler que l'écart en champ proche et la superposition au foyer ne varient pas lorsqu'on fait varier le délai. La figure 4.25 montre un

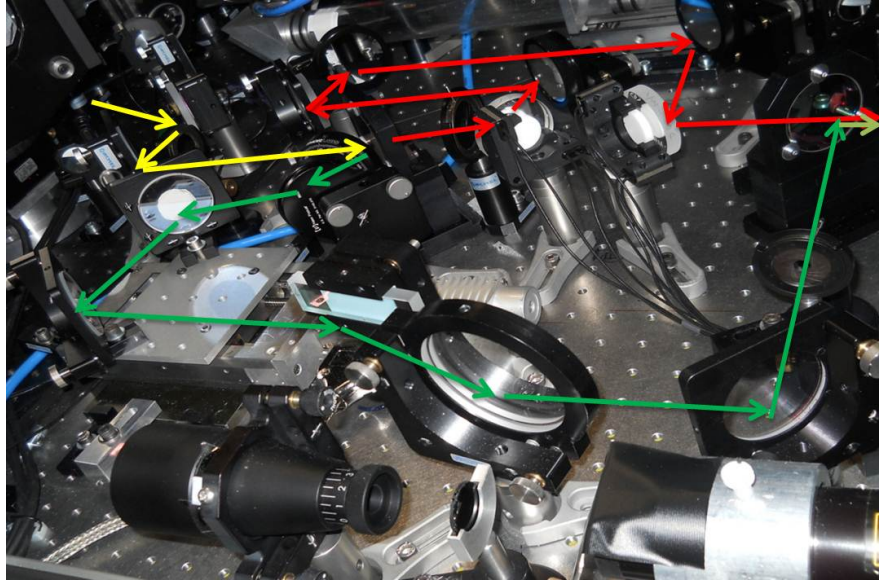


FIGURE 4.5 – Photo de l'interféromètre de Mach-Zehnder utilisé pour toute la campagne d'expériences de la génération de double impulsion harmonique. La platine motorisée constitue la ligne à retard utilisée pour changer le délai entre les impulsions IR. Les miroirs actifs M1 et M2 sur la voie transmise permettent de contrôler la superposition des deux taches focales lors de la recombinaison.

exemple des champs proche et lointain enregistrés à l'aide d'un programme LABVIEW. On voit sur la figure 4.25 (a), le champ proche à droite de l'image et le champ lointain à gauche pour un des deux faisceaux. Les figures 4.25 (b) et (c) montrent respectivement les CL et CP lorsque des deux faisceaux sont séparés et superposés au foyer. L'originalité de notre montage réside dans la simplicité des alignements par rapport au système double cible utilisé par S.Dobosz et al [S. Dobosz 2009]. Il présente l'avantage d'introduire un délai temporel contrôlable et une énergie variable sur l'un des deux bras.

4.4.2 Approche de génération suivie

Avant d'étudier la réponse temporelle et l'effet de l'accord de phase sur la double impulsion harmonique, il faut d'abord caractériser et optimiser chaque impulsion isolément. Nous avons pour cela bloqué l'un des bras de l'interféromètre et optimisé la génération d'harmoniques avec le bras actif. A l'issue de ce travail d'optimisation, seulement une petite portion de l'énergie disponible s'est révélée nécessaire, soit 10 mJ à l'entrée de l'interféromètre. Deux jeux de paramètres d'optimisation ont été étudiés, donnant les résultats suivants :

- Les paramètres du milieu de génération (type de gaz et pression) : le gaz que nous avons étudié est l'argon avec une pression d'optimisation égale à $P_{opt} = 15$ mbar.
- Les paramètres laser : durée des impulsions = 50 fs, énergie des impulsions après l'iris $E_{iris} = 2$ mJ, diamètre de l'iris $\phi_{iris} = 11$ mm, rayon de la tache focale en $1/e^2 = 80\mu\text{m}$. Ceci donne une intensité au foyer estimée à $1.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

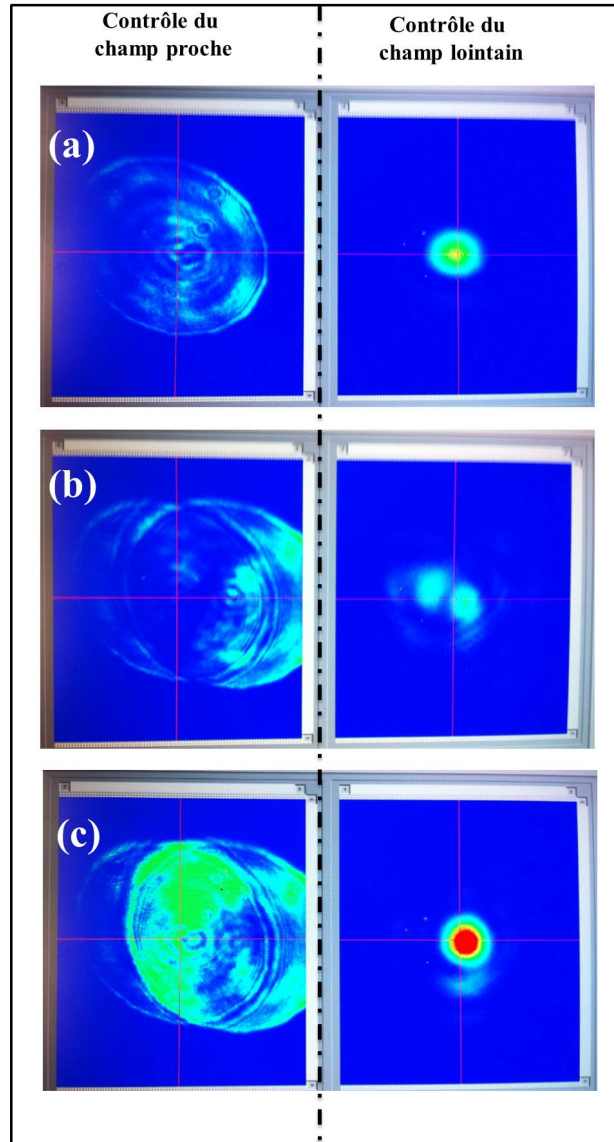


FIGURE 4.6 – Enregistrement des champs proches et lointains pour le contrôle des deux faisceaux de pompe au foyer. (a) Champ proche et lointain d'un des deux faisceaux IR. (b) Champ proche et lointain pour deux faisceaux IR séparés au foyer. (c) Champ proche et lointain pour deux faisceaux IR superposés au foyer.

Cette optimisation donne lieu à des faisceaux XUV très peu divergents (de l'ordre de 1 mrad) contenant chacun quelques dizaines de pJ par tir sur sept harmoniques. La figure 4.7 montre une présentation simplifiée des 3 étapes suivies pendant chaque série d'expérience. La première et la deuxième étape consistent à bloquer l'un des deux bras réfléchi (a) ou transmis (b) de l'interféromètre et d'optimiser la génération de l'impulsion venant de l'autre bras. Ensuite, pour un délai fixe, nous avons généré pour le même tir les deux impulsions XUV (c).

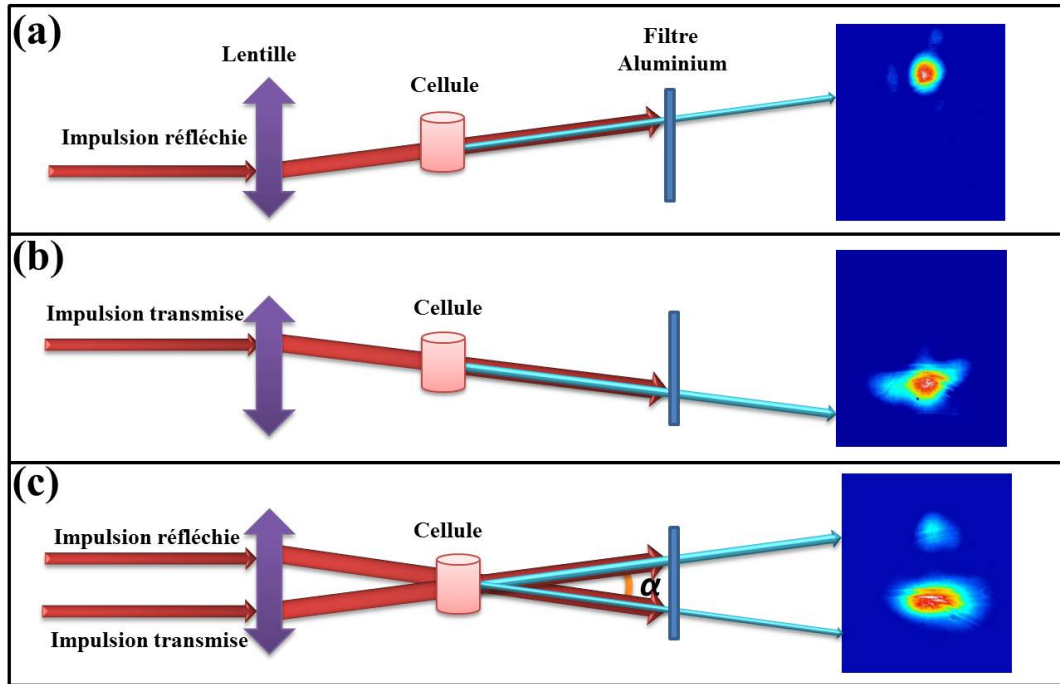


FIGURE 4.7 – Étapes suivies pour la génération de double impulsion : (a) optimisation de la première impulsion harmoniques (impulsion réfléchie), (b) optimisation de la deuxième impulsion harmoniques (impulsion transmise), (c) génération de la double impulsion XUV.

4.4.3 Systèmes de caractérisation des faisceaux XUV

Dans cette partie, je vais présenter les systèmes de caractérisation spectrale, spatiale et énergétique des harmoniques mis en œuvre pour la génération d'une double impulsion harmonique. Ils ont été décrits plus en détail dans le chapitre 3.

4.4.3.1 Caractérisation spectrale

Nous avons aligné les deux faisceaux IR en sortie de l'interféromètre de façon à obtenir deux spectres harmoniques séparés verticalement sur la caméra avec une dispersion spectrale horizontale. Les spectres harmoniques obtenus des deux faisceaux sont résolus spatialement et spectralement. La figure 4.8 présente un schéma de principe de caractérisation des spectres dans le cas de génération de double impulsion harmonique.

La figure 4.9 montre un spectre harmonique généré dans 15 mbar d'argon avec un faisceau d'excitation diaphragmé à 11 mm de diamètre et 2 mJ d'énergie focalisée. L'axe horizontal correspond à la dimension spectrale et l'axe vertical correspond à la dimension spatiale. Sur ce spectre on observe le premier ordre de diffraction du réseau qui contient les harmoniques 15 à 27 (voir le 3). On observe deux spectres décalés verticalement ; en haut (a) (respectivement en bas (b)) le spectre harmonique généré par l'impulsion IR de la voie réfléchie (respectivement transmise). Ces spectres ont été enregistrés en un seul tir pour un délai de 5 ps ; je reviendrai sur ce point dans la suite de ce chapitre. L'ordre zéro du réseau n'apparaît pas sur ce spectre, une

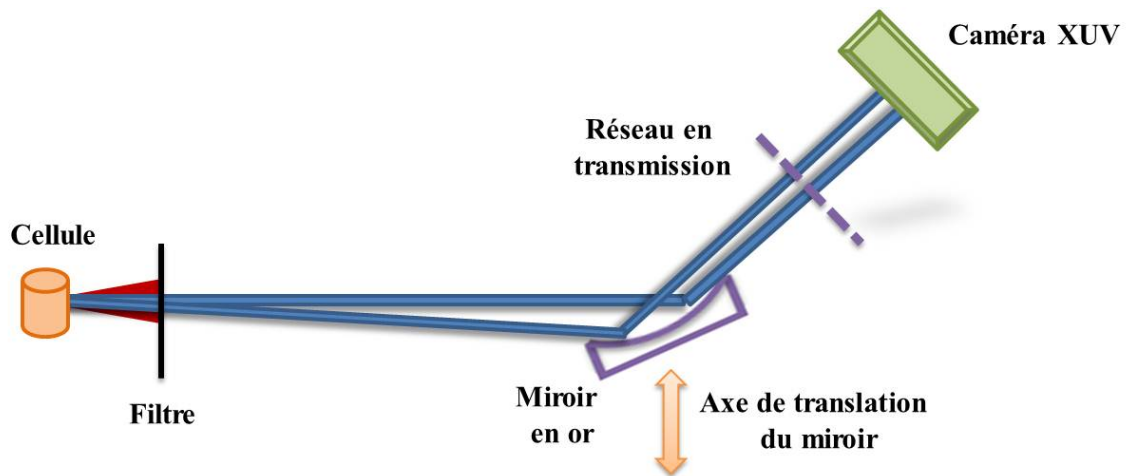


FIGURE 4.8 – Schéma de principe du spectromètre à réseau pour la caractérisation spectrale des harmoniques. Le miroir est monté sur une platine de translation pour pouvoir envoyer le faisceau vers la caméra de caractérisation spatiale.

flèche indique sa position. Précisons que l'aspect "penché" des spectres, après vérification, est dû à un léger désalignement de l'expérience et non pas à un hypothétique chirp harmonique. Cette configuration permet également de mesurer un éventuel décalage spectral entre les harmoniques générées par les deux impulsions. Cette information sur l'accordabilité des longueurs d'onde générées est indispensable dans le cas des expériences d'injection d'harmoniques dans un laser X ou des expériences pompe-sonde XUV. Ce diagnostic donne aussi une information sur le niveau de signal relatif par ordre harmonique.

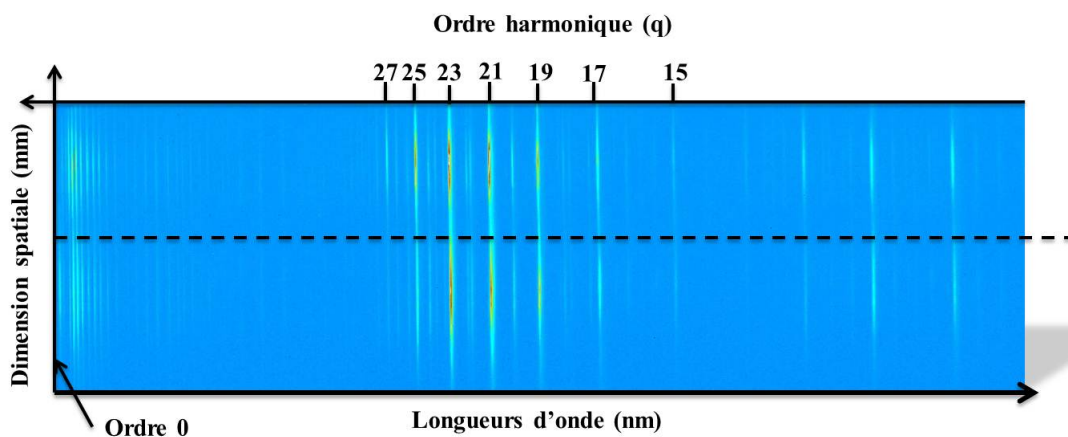


FIGURE 4.9 – Spectres des harmoniques générées dans 15 mbar d'argon par 2 faisceaux croisés diaphragmés par un iris de 11 mm d'ouverture et de même énergie focalisée 2 mJ. L'axe horizontal correspond à la dimension spectrale et l'axe vertical correspond à la dimension spatiale.

4.4.3.2 Caractérisation spatiale bidimensionnelle

Nous avons également utilisé le diagnostic des empreintes de faisceaux pour nous renseigner sur la divergence et l'énergie totale intégrée par impulsion (champ lointain XUV). Pour l'utiliser, le miroir en or est retiré du spectromètre pour laisser propager les faisceaux jusqu'à la caméra CCD XUV de détection installée sur un autre piquage de la même enceinte que le spectromètre. Elle est située après un filtre en aluminium de 200 nm d'épaisseur et à une distance de 3 m par rapport à la cellule de génération. La figure 4.10 présente les enregistrements des empreintes des deux faisceaux séparés de quelques mm.

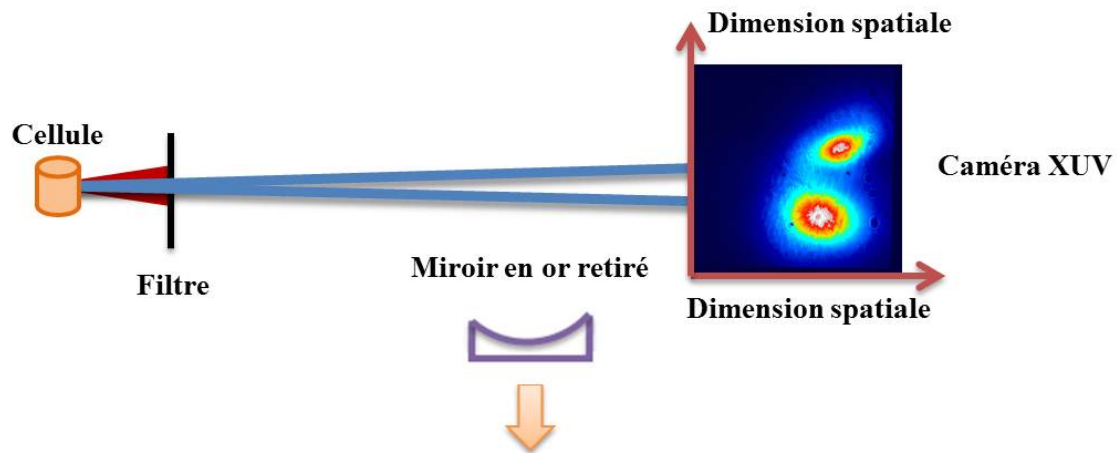


FIGURE 4.10 – Schéma de principe du système de caractérisation spatiale des harmoniques. Le miroir du spectromètre est retiré pour permettre aux harmoniques de se propager jusqu'à la caméra XUV. Un filtre d'aluminium de 200 nm d'épaisseur est installé pour bloquer l'infrarouge et transmettre les harmoniques.

4.5 Effet du délai temporel

4.5.1 Travail expérimental

Pour notre expérience, il était nécessaire de vérifier en temps réel la superposition des deux taches focales au centre de la cellule. Dans ce but, nous avons installé trois systèmes d'imageries : deux systèmes d'imagerie en champ proche et un en champ lointain derrière une fuite de la lame de recombinaison en sortie de l'interféromètre (voir NF/FF figure 4.4). L'imagerie en champ proche assurée par un objectif imageant la surface de recombinaison de la séparatrice (BS2), elle sert de repère pour séparer latéralement les deux faisceaux. L'imagerie du champ lointain est effectuée à l'aide d'un microscope (x 40) imageant les taches focales des deux faisceaux, et leur superposition au foyer d'une lentille.

Le troisième diagnostic que nous avons utilisé est une caméra munie d'un objectif (x 10) imageant le foyer du laser à travers la cellule. Cette caméra a été installée sur une platine motorisée située dans l'enceinte de génération, et une fois utilisée, elle a été retirée de la direction

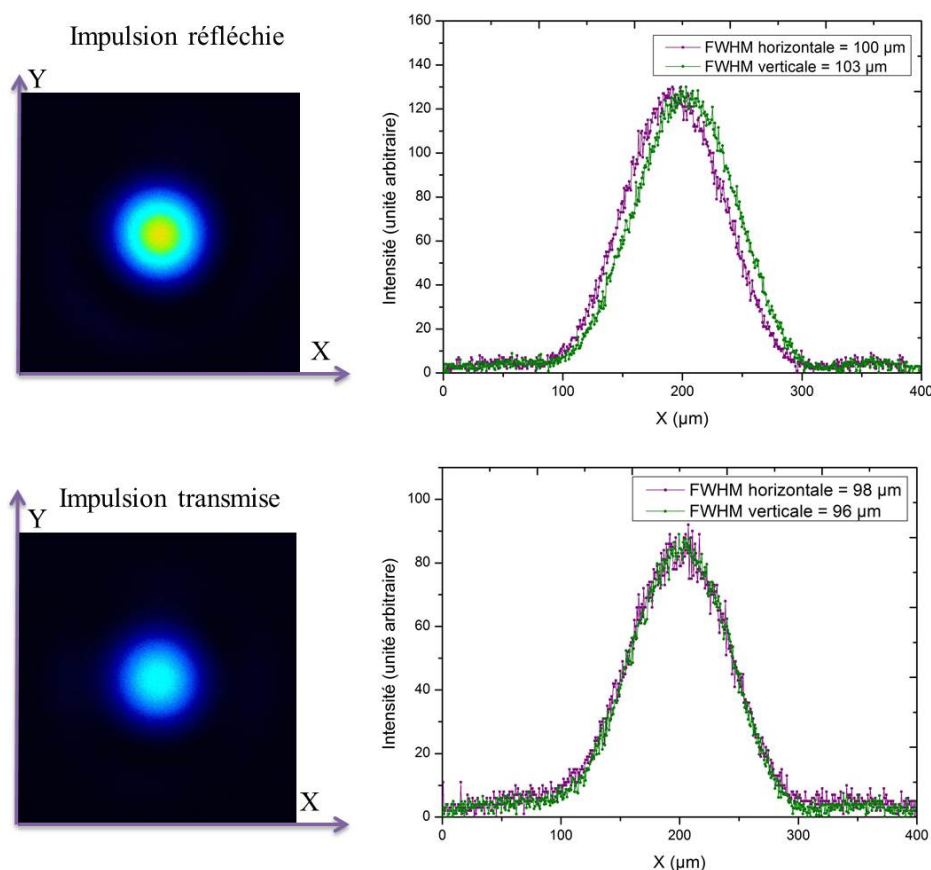


FIGURE 4.11 – Profil expérimental de tache focale pour les deux faisceaux réfléchi et transmis obtenus par le système d'imagerie au foyer. L'iris est de 10 mm de diamètre pour chacun des deux faisceaux.

du faisceau. En plus de son rôle de diagnostic fin de superposition, nous avons utilisé cette caméra comme système d'imagerie de tache focale. La figure 4.11 montre les profils de taches focales du faisceau IR obtenues avec le système d'imagerie au foyer pour un iris fermé à 10 mm de diamètre. Les taches focales du faisceau transmis et réfléchi sont symétriques, elles ont une largeur à mi-hauteur de l'ordre de $100\ \mu\text{m}$.

Les résultats que nous allons présenter ici, proviennent de deux séries d'expériences réalisées avec quelques dizaines de minutes d'intervalle. La première série enregistrée était consacrée à l'optimisation standard de chacun des deux faisceaux indépendamment l'un après l'autre en fonction de l'énergie IR, du diamètre de l'iris et de la pression du gaz (voir chapitre 3). Les conditions d'optimisation pour les deux faisceaux étant identiques, nous avons tout d'abord ajusté les diamètres des iris et l'énergie IR des deux faisceaux préalablement superposés au foyer pour qu'ils aient des intensités comparables ($E_{IR} = 2\ \text{mJ}$, $\phi_{iris} = 10\ \text{mm}$, $W_0 = 80\ \mu\text{m}$). Ensuite, nous avons optimisé la pression du gaz. La figure 4.12 montre les courbes d'optimisation en pression pour chaque bras quand l'autre reste bloqué.

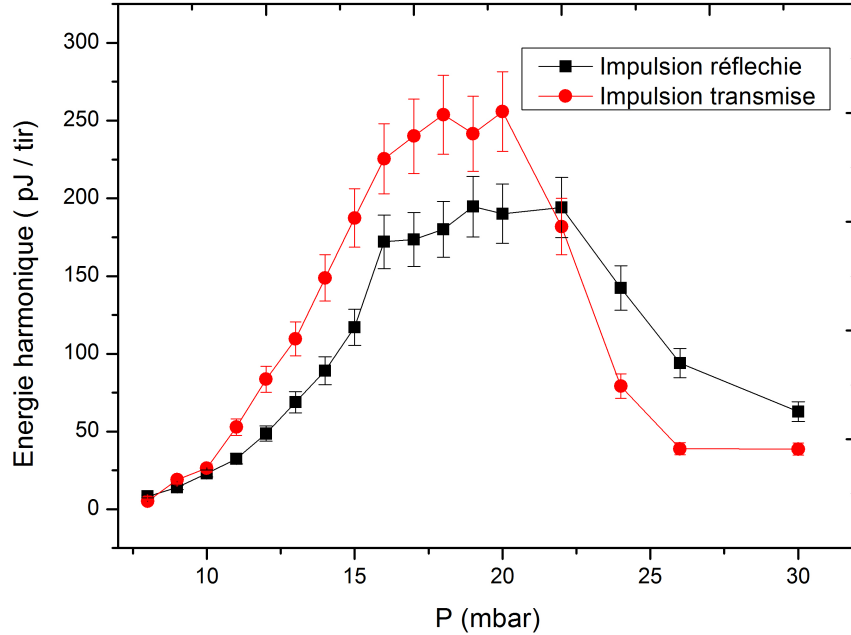


FIGURE 4.12 – Courbes d’optimisation des faisceaux XUV générés par les faisceaux réfléchi et transmis en fonction de la pression d’argon. Pour chaque optimisation, l’un des deux bras est bloqué.

Le signal croît jusqu’à un maximum situé entre 15 et 23 mbar pour lequel les conditions optimales sont atteintes. Dans ces conditions, la pression et la longueur du milieu sont bien adaptées, et l’absorption qui varie inversement avec la pression ne limite pas la génération. La figure 4.13 présente l’évolution de la longueur d’absorption pour 15 mbar d’argon en fonction de la longueur d’onde. On observe que pour la gamme de longueur d’onde qui nous intéresse (entre 32 et 50 nm), la longueur d’absorption l_{abs} varie entre 3 et 0.5 mm ce qui permet d’après l’équation 2.15 d’avoir un bon accord de phase. Quand la pression d’argon continue à augmenter, le signal chute. Nous pouvons remarquer qu’à conditions équivalentes de focalisations des deux faisceaux IR, le signal harmonique généré est optimisé pour les mêmes valeurs de pression. Pour des raisons détaillées ultérieurement, nous avons choisi de fixer la pression de l’argon à 15 mbar dans la suite de notre étude.

Pour l’acquisition de la deuxième série, nous avons varié le délai temporel entre les deux impulsions pompe. Afin de s’assurer de la reproductibilité des mesures et de résoudre un certain nombre de problèmes techniques sur le système utilisé, nous avons étalé cette étude de l’effet du délai sur plusieurs jours et avec au moins deux essais par journée. La dérive lente de pointé du laser qui est principalement due à l’ajustement de la ligne à retard a été vérifiée et corrigée avant chaque acquisition.

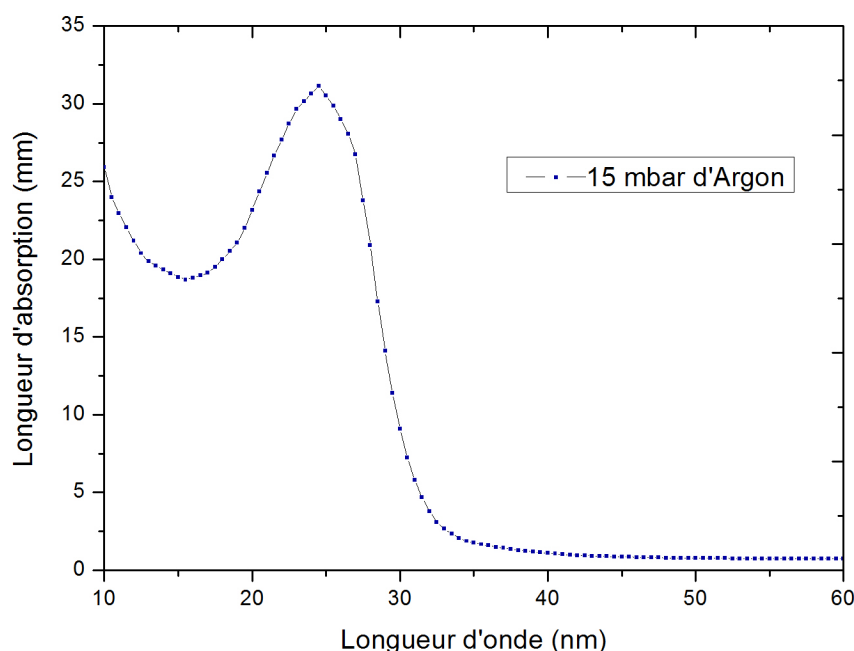


FIGURE 4.13 – Longueur d'absorption dans l'argon pour une pression de 15 mbar en fonction de la longueur d'onde.

Parmi les difficultés que nous avons rencontrées, on peut citer le problème de superposition des deux taches focales dû aux instabilités des montures d'optiques, au mouvement non reproductible de la platine motorisée utilisée comme ligne à retard, et à la faible précision de nos diagnostics de superposition que nous avons bien améliorés par la suite.

Aujourd'hui, nous disposons d'un système de génération de double impulsion fiable. Ce paragraphe ouvre la discussion sur la réponse temporelle du milieu dans le cas de génération de deux impulsions harmoniques. Nous évoquerons la première et la deuxième impulsion quelque soit la voie de l'interféromètre utilisée car cela ne semble jouer qu'un rôle mineur dans les faisceaux produits. La figure 4.14 montre l'évolution du flux de photon total détecté par la caméra CCD XUV de la première (cercle) et de la deuxième (carré) impulsion en fonction du délai entre les deux impulsions IR. Les deux faisceaux sont polarisés P, l'intensité au foyer pour chacun des deux est de l'ordre de $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et nous varions le délai entre 500 fs et 100 ps. Nous avons normalisé le signal de chaque impulsion générée en configuration double impulsion (figure 4.15 (c)) par le signal de la même impulsion générée dans le cas où l'autre bras de l'interféromètre est bloqué (figure 4.15 (a et b)). Chaque point expérimental représenté fait l'objet d'une statistique sur 5 images et chaque image a été enregistrée pour 5 tirs laser. Les barres d'erreurs représentées sont attribuées aux variations du niveau de signal harmonique dues aux fluctuations tir à tir du laser et aux instabilités mécaniques de la ligne à retard. On voit logiquement sur la figure 4.14

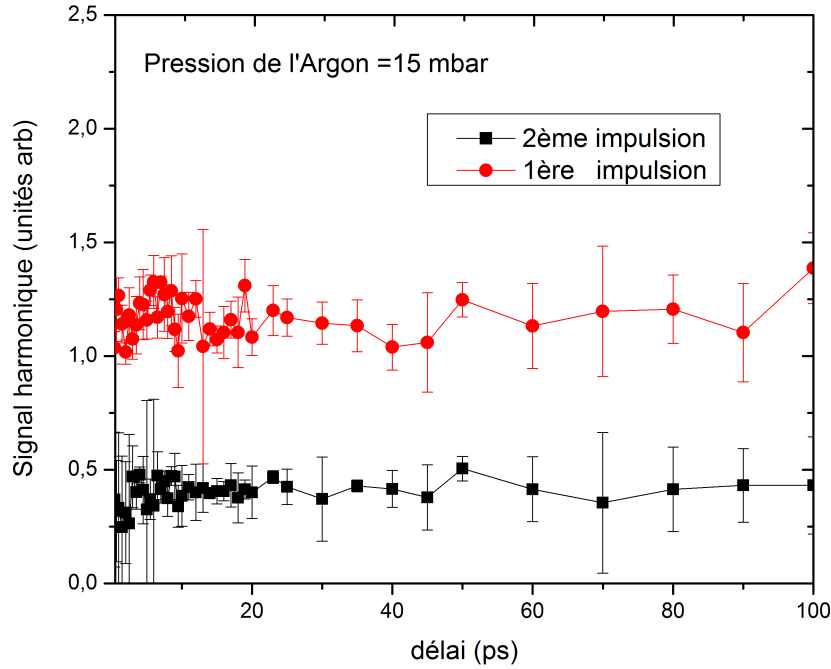


FIGURE 4.14 – Signal harmonique mesuré pour la première (cercle) et la deuxième impulsion (carré) en fonction du délai en ps pour une pression de 15 mbar d'argon. Les signaux sont normalisés par rapport au maximum de signal généré par chaque faisceau seul. Ces mesures correspondent à l'intensité totale intégrée sur la caméra XUV CCD.

que le signal généré par l'impulsion qui arrive en premier sur le gaz dans le cas d'une double impulsion est pratiquement égal à son signal dans le cas où l'autre faisceau est bloqué. La valeur du rapport de normalisation légèrement supérieure à 1 vient du fait que les deux séries (a,b) et (c) ont été enregistrées avec un intervalle de temps de quelque dizaines de minutes pendant lequel une dérive lente en énergie peut avoir lieu.

Pour la deuxième impulsion, la valeur normalisée varie autour de 0.5, ce qui traduit une diminution significative de l'ordre de la moitié de son signal par rapport au signal qu'elle génère dans le cas où la première impulsion est bloquée. Cette diminution peut s'expliquer par une dégradation de l'accord de phase due à l'augmentation du taux d'ionisation dans le milieu de génération, ceci suite à son interaction avec la première impulsion. Cette perturbation demeure constante en fonction du délai jusqu'à une valeur de 100 ps. Le milieu ionisé, suite au passage du premier faisceau ne se recombine pas jusqu'à 100 ps de délai temporel. Nous avons également étudié l'influence du délai dans le cas de polarisation croisée entre les deux faisceaux tout en suivant la même démarche de génération. Un comportement identique au cas de polarisation parallèle a été observé.

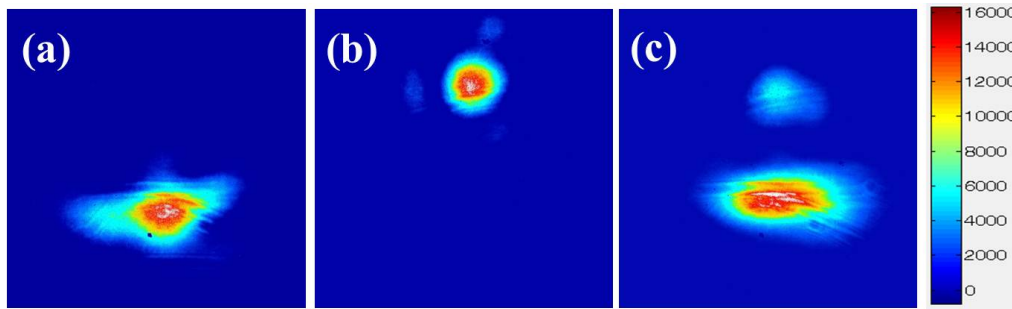


FIGURE 4.15 – Images des empreintes du faisceau harmonique généré isolément par l'impulsion transmise (a) et réfléchi (b), (c) Empreinte des faisceaux harmoniques générées simultanément par les deux faisceaux de pompe (délai 10 ps).

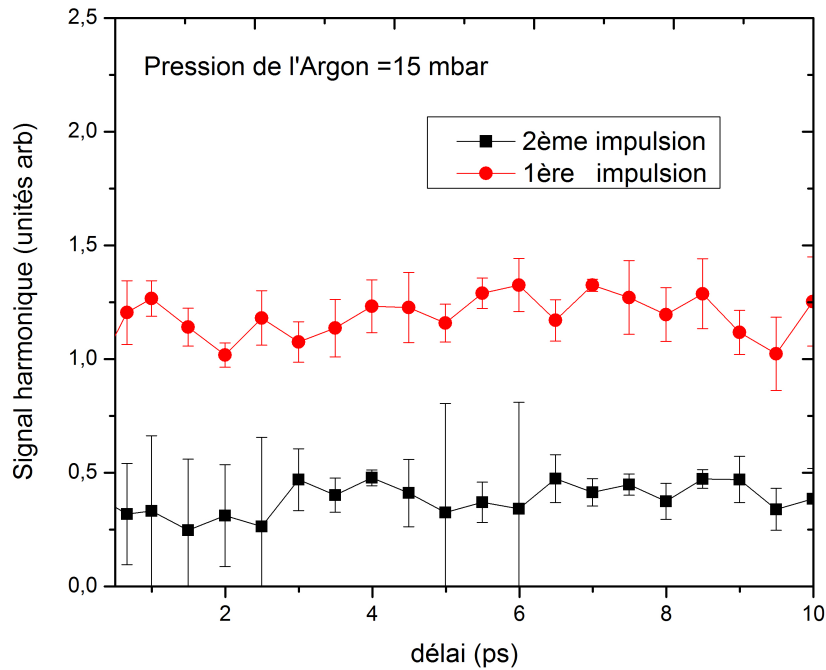


FIGURE 4.16 – Signal harmonique mesuré pour la première (cercle) et la deuxième impulsion (carré) en fonction du délai en ps pour une pression d'argon de 15 mbar. Les signaux sont normalisés par rapport aux signaux générés par chaque faisceau seul. Ces mesures correspondent à l'intensité totale intégrée sur la caméra XUV CCD.

La figure 4.16 montre un zoom effectué sur la gamme temporelle entre 500 fs et 10 ps correspondant à la gamme temporelle d'intérêt pour l'expérience d'injection d'harmonique. Pour des délais plus courts que 500 fs, nous avons observé une fluctuation plus importante du signal liée à d'éventuelles interférences entre les deux impulsions.

4.5.2 Estimations théoriques du temps caractéristique de recombinaison du plasma

L'indépendance vis-à-vis du délai du niveau de signal obtenu avec la deuxième impulsion a été étudiée théoriquement pour estimer le temps caractéristique de recombinaison du plasma d'argon généré par le passage de la première impulsion. Dans ce cadre, des estimations numériques ont été effectuées par Gilles Maynard sur la cinétique plasma-argon générée par OFI (optical field ionization). Les calculs ont été effectués en utilisant un code zéro dimension (0D) OFI. Ce code permet de prédire la distribution d'énergie des électrons dans le plasma. Ce modèle est par ailleurs couplé à un modèle collisionnel-radiatif. L'ionisation due à l'interaction avec la première impulsion a été étudiée en utilisant les taux ADK [N.P.Delone 1998]. Pour 25 mbar d'argon, elle a été estimée par 5 % pour une intensité laser maximale de $1.5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Le calcul de la température des électrons en fonction de l'intensité laser donne des valeurs qui varient de 0.53 à 0.66 eV pour une intensité laser allant de 1.2 à $1.4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Pour le reste du calcul la température utilisée sera de l'ordre de 1 eV.

Expansion hydrodynamique :

La vitesse d'expansion hydrodynamique peut être estimée en utilisant l'expression ambipolaire :

$$V_a = \sqrt{kT_e/M_{Ar}} \quad (4.1)$$

Avec V_a la vitesse d'expansion hydrodynamique, T_e la température des électrons et M_{Ar} la masse d'un atome d'argon.

Pour 1 eV, cette vitesse d'expansion est estimée à $0.15 \mu\text{m}$ en 100 ps, ce qui est totalement négligeable par rapport aux dimensions transverse et longitudinale du plasma.

Refroidissement des électrons :

- **Transfert d'énergie élastique électron-neutre :**

Nous supposons les atomes neutres comme étant froids par rapport aux électrons, et dans leur état fondamental. Même à des pressions de l'ordre de 100 mbar, le chauffage de neutres par collision binaire avec les électrons est négligeable. Ainsi en 100 ps, le refroidissement des électrons par ce mécanisme n'est que de 0.01 %, donc négligeable.

- **Transfert d'énergie élastique électron-ion :**

Pour une pression de 1 mbar et un taux d'ionisation de 1 %, le transfert d'énergie électron-ion est beaucoup plus efficace que le transfert électron-neutre, il reste cependant faible, avec un effet observable aux pressions et pour les ionisations les plus fortes. A 25 mbar, $T_e = 1 \text{ eV}$ et 5 % d'ionisation, le taux de relaxation d'énergie électron-ion est de $2.5 \cdot 10^{-7}$, soit un temps caractéristique de 40 ns. En 100 ps de délai, le transfert d'énergie électron-ion ne peut pas avoir lieu de façon significative.

- **Excitation, dés-excitation :**

Le taux inverse qui permet de dépeupler les états excités vers l'état fondamental se calcule à partir de la micro-réversibilité. A $T_e = 1$ eV, ce taux vaut $4 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$, et il doit être comparé au taux radiatif. Les taux de collision, d'ionisation et d'excitations sont totalement négligeables

Recombinaison du plasma :

- **Recombinaison diélectronique :**

Dans le cas d'un gaz rare, l'énergie d'excitation requise étant très grande, l'énergie d'un état doublement excité est très élevée. La recombinaison diélectronique est négligeable, d'autant plus que l'excitation se produit à basse température (1 eV).

- **Recombinaison à trois corps :**

La recombinaison à trois corps est le processus inverse de l'ionisation ; il est connu que la recombinaison peuple essentiellement les états excités. Considérons l'état fondamental, à $P = 25$ mbar et 5 % d'ionisation, le temps caractéristique de la recombinaison à trois corps est de l'ordre de la milliseconde.

- **Recombinaison radiative :**

Le taux de recombinaison radiative est légèrement plus faible que le taux de recombinaison à trois corps. Le processus de recombinaison est principalement due à la recombinaison à 3 corps, qui va peupler essentiellement les états excités, avec des taux qui restent faibles. La recombinaison directe sur le niveau fondamental à un taux de l'ordre de 10^3 , soit un temps caractéristique de la milliseconde. Ainsi en 100 ps, seuls 10^{-5} % se recombinent.

Seule la recombinaison sur des états très excités peut avoir une contribution non-négligeable. Cependant, durant 100 ps de délai, la dés-excitation radiative n'a pas le temps de se produire. Pour les premiers niveaux excités, le taux de recombinaison est plus élevé que sur le niveau fondamental, mais ceci est compensé par un temps de vie du niveau de l'ordre de 2 ns. En 100 ps, seuls 5 % ont eu le temps de se désexciter. Finalement la recombinaison sur les états excités donne également une contribution similaire à celle de l'état fondamental, c'est à dire négligeable.

Étude de l'ionisation des états excités :

Dans le cas des gaz rares, l'énergie d'excitation est proche de l'énergie d'ionisation. Ainsi pour l'argon, l'énergie d'ionisation de l'état fondamental est de 15.75 eV, alors que le premier état excité à une énergie de 11.55 eV a donc une énergie d'ionisation de 4.15 eV. La comparaison de l'évolution de l'état d'ionisation entre un état excité et fondamental montre que l'ionisation OFI du niveau excité s'effectue sur un temps très court, dès le début de l'impulsion. Ceci sera d'autant plus vrai pour les états de plus haute énergie. La génération d'harmoniques se faisant près du maximum d'intensité de l'impulsion, on peut considérer que les états excités se comportent comme des atomes ionisés. Du point de vue de l'émission XUV, seule compte la densité d'états dans l'état fondamental, tous les autres se comportent comme des états ionisés. Une variation d'émission XUV correspondra soit à l'ionisation du fondamental soit à la recombinaison sur le

fondamental. Les états excités ne peuvent alors pas participer à la génération d'harmonique par la deuxième impulsion.

En résumé, ces estimations théoriques montrent que le temps de recombinaison effective du plasma est de l'ordre de quelques nanosecondes. Une fois perturbé par la première impulsion, le milieu de génération ne peut sensiblement pas évoluer pour quelques nanosecondes. Le comportement de la deuxième impulsion harmonique demeure donc stable pendant des dizaines de picosecondes. Nous avons expérimentalement confirmé cette estimation théorique jusqu'à 100 ps. Étant limités par le montage expérimental nous ne pouvons pas étudier des délais plus grands que 100 ps.

4.6 Discussion des spectres harmoniques en double impulsion

Ce paragraphe concerne l'étude des spectres harmoniques en double impulsion. Rappelons que l'émission XUV produite par la seconde impulsion reste stable pendant plus de 100 ps. Nous avons choisi de fixer arbitrairement le délai temporel entre les deux impulsions d'excitation à 10 ps. La figure 4.17 présente un spectre des deux impulsions XUV enregistré en une seule image pour 15 mbar d'argon. L'énergie infrarouge dans chacune des deux impulsions de pompe est de l'ordre de 2 mJ, elle a été mesurée pour une ouverture de diaphragme de 11 mm de diamètre. Les spectres (a) et (b) correspondent respectivement aux spectres générés par la première et la deuxième impulsion.

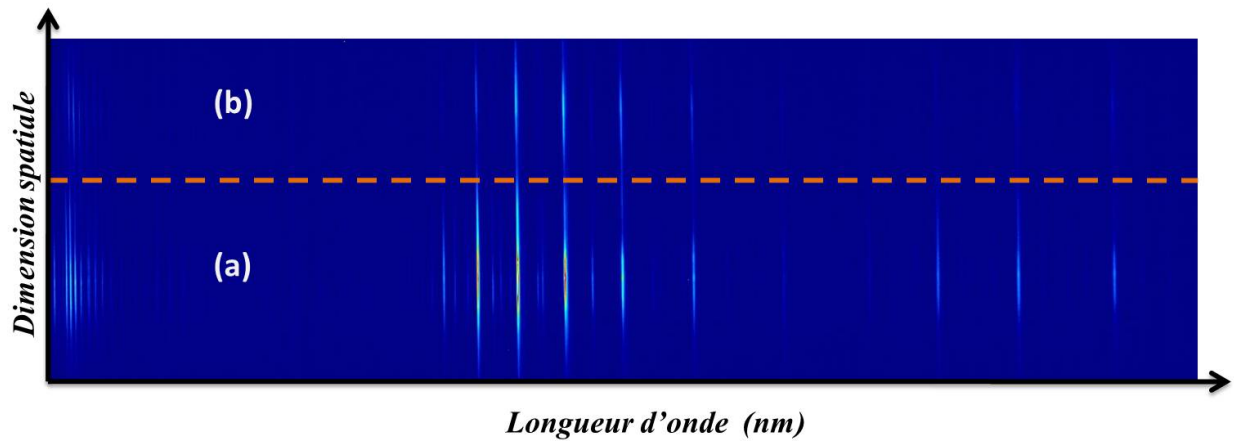


FIGURE 4.17 – Spectre harmonique généré par la première (a) et la deuxième (b) impulsion IR, pour un délai fixé à 10 ps. La mesure des deux spectres est obtenue sur la même image en un seul tir..

La figure 4.18 montre les spectres d'intensité des deux impulsions XUV. Nous observons sur ces deux spectres, les mêmes pics harmoniques entre 15 et 27 correspondant au même cutoff situé dans la gamme spectrale qui s'étale de 29.6 nm à 53.3 nm. Aucun décalage ni élargissement spectral n'a été observé sur le spectre de la deuxième impulsion XUV par rapport à celui de

la première (correspondant à un spectre d'émission non perturbée). Nous pouvons également remarquer que les raies harmoniques de deux spectres de la figure 4.17 sont spatialement bien confinées, ce qui correspond à une faible divergence (de l'ordre du mrad). Ceci traduit une contribution dominante de la trajectoire courte, donc du chemin 1 (voir chapitre 1). Le premier terme de l'équation 4.2 est donc très faible.

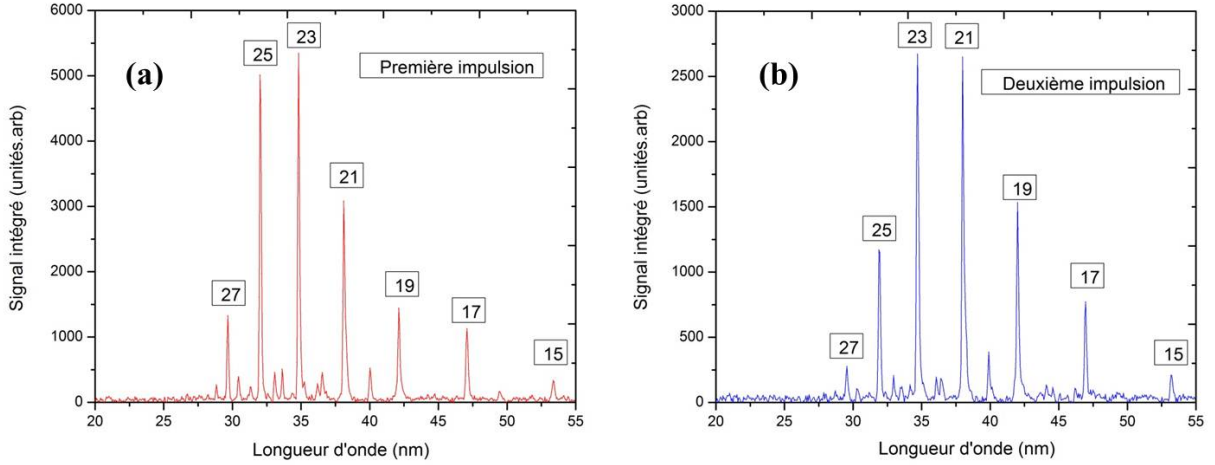


FIGURE 4.18 – Spectre d'intensité du signal harmonique déduit de la mesure de la figure 4.18 par intégration des différentes raies. Ces spectres ont été générés dans 15 mbar d'argon par la première (a) et la deuxième (b) impulsion IR. Pour les deux spectres on observe les ordres harmoniques de 15 à 27.

Sur le plan théorique, lorsque le décalage spectral par rapport à la longueur d'onde centrale existe, il est donné par [David H. Reitze 2004] :

$$\delta\omega = \alpha \frac{\delta I}{\delta t} + \frac{q\omega(t)}{c} z \left(\frac{1}{2n_c} \frac{\delta n_e}{\delta t} - \frac{\delta}{\delta t} \delta n_{at} \right) \quad (4.2)$$

Avec $\alpha = 2 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ pour le premier chemin quantique et $\alpha = 22 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ pour le deuxième chemin quantique.

Ce décalage spectral pourrait apparaître pour la deuxième impulsion XUV si une variation temporelle du gradient de la phase atomique ($\alpha \frac{\delta I}{\delta t}$) ou de la dispersion atomique (δk_{at}) ou encore de la dispersion électronique (δk_{elec}) était induite par la première impulsion. Or, après interaction du gaz avec la première impulsion, les conditions de génération ne sont évidemment pas les mêmes que pour la première impulsion mais l'ionisation dans le milieu ne varie pas au cours du temps puisqu'aucun effet cohérent entre les deux impulsions laser IR ne peut apparaître pour les retards considérés dans cette étude (500 fs, 100 ps) bien supérieurs à la durée intrinsèque de chacune des impulsions (50 fs).

Les dispersions électroniques et atomiques sont donc modifiées, mais aucune modification de leur dérivée temporelle ne peut avoir lieu compte tenu de l'échelle de temps caractéristique d'évolution du plasma. Cela explique le fait qu'il n'y ait pas de modification spectrale dans le spectre de la deuxième impulsion harmonique. Nous n'avons pas pu mesurer la durée des deux impulsions harmoniques faute de diagnostic approprié. Mais nous avons pu conclure à partir du spectre de la seconde impulsion qu'aucune modification de sa durée ne s'est produite puisqu'aucun élargissement spectral n'a été observé.

4.7 Accord de phase dans la génération de double impulsion XUV

D'après la section précédente, pour des conditions d'optimisation équivalentes, la première impulsion génère un signal harmonique dans des conditions normales d'un milieu à l'équilibre, alors que la deuxième, qui « voit » pourtant un milieu perturbé, génère un signal atténué, de l'ordre de 50 %. Cette réponse temporelle du milieu de génération demeure la même pour tous les délais de mesure entre 500 fs et 100 ps. Passée l'interaction avec la première impulsion, il faut au minimum un délai de l'ordre de 2 ns pour que le milieu ionisé soit totalement recombiné et prêt pour une génération d'harmoniques efficace avec la deuxième impulsion. Nous n'avons pas pu vérifier expérimentalement cette estimation théorique par encombrement de la table de distribution des faisceaux, mais cette mesure est prévue dans l'avenir.

Comme nous cherchons à produire deux faisceaux harmoniques équilibrés en intensité pour des applications spécifiques (injection, pompe-sonde...), nous avons étudié les effets de différents paramètres d'excitation des harmoniques sur la balance d'énergie des deux impulsions XUV, tels que l'énergie IR de chaque impulsion et la pression du gaz, le délai entre les deux impulsions étant arbitrairement fixé à 10 ps.

4.7.1 Influence de l'énergie de la première impulsion infrarouge

La figure 4.19 montre l'énergie XUV totale intégrée par tir produite par les deux impulsions laser. Elle rend compte de l'influence de l'énergie de la première impulsion sur le niveau de signal XUV induit par la deuxième. La première l'impulsion correspond au bras réfléchi de l'interféromètre qui dispose d'un système de contrôle d'énergie. La pression du gaz pour la mesure est fixée à 15 mbar et les diamètres des deux iris, fixés à 11 mm, donnent un diamètre $W(1/e^2) = 80 \mu\text{m}$ pour chaque tache focale. Nous avons fait varier l'énergie du premier faisceau entre 0 et 2 mJ, avec une énergie fixe de 1.5 mJ pour le second.

D'après la figure 4.19, on constate que l'énergie XUV générée par la première impulsion augmente avec l'énergie infrarouge comme le prédit le modèle de l'atome unique [Corkum 1993]. Par ailleurs, la figure 4.19 montre trois zones de comportement différents de l'évolution du signal harmonique généré par la deuxième impulsion en fonction de l'énergie de pompe de la première :

- A faible énergie d'excitation du premier faisceau (< 0.8 mJ), l'énergie harmonique est élevée (stable autour de 70 pJ).
- Pour des énergies intermédiaires (0.8 à 1.2 mJ) : diminution de l'énergie harmonique avec un croisement à 40 pJ pour 1mJ.
- Très faible niveau du signal harmonique puis extinction du signal à partir de 1.5 mJ.

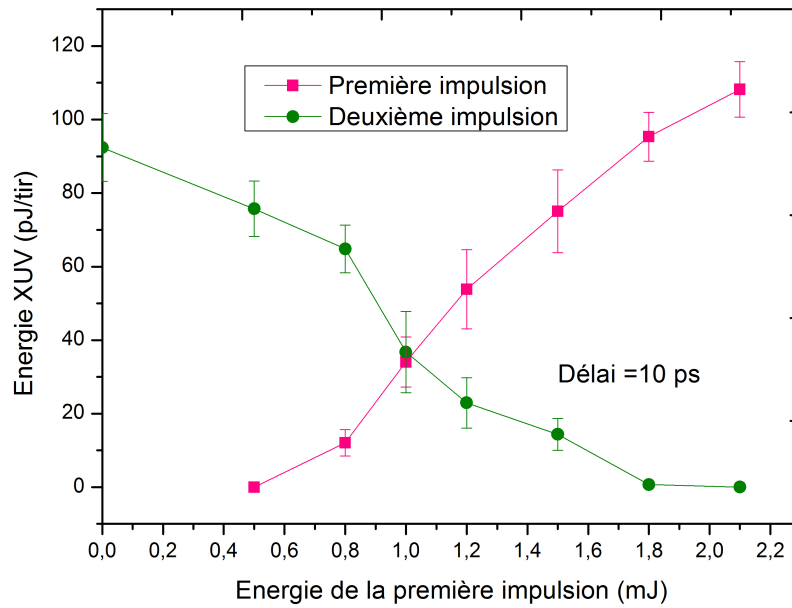


FIGURE 4.19 – Évolution des signaux XUV induits de la première et de la deuxième impulsion harmonique dans l'argon en fonction de l'énergie IR du premier faisceau. Le délai entre les 2 impulsions est fixé à 10 ps et la pression de gaz de 15 mbar.

L'effet de l'ionisation sur l'évolution du signal harmonique de la deuxième impulsion a été étudié en utilisant le code 1D dépendant du temps présenté dans le chapitre 2. Ce code a été adapté ici pour respecter les conditions expérimentales de notre expérience. Nous avons étudié l'évolution temporelle du taux d'ionisation dans le milieu générateur après l'interaction avec la première impulsion de pompe seule, puis après interaction avec les deux impulsions IR. L'évolution temporelle de la longueur de cohérence, qui est la longueur caractéristique de l'accord de phase dans la génération d'harmoniques d'ordres élevés a également été étudiée. Nous avons considéré le cas de deux impulsions IR consécutives ayant la même intensité, de l'ordre de $1.2 \cdot 10^{14}$ W/cm² pour 1.5 mJ d'énergie. Nous avons ainsi calculé l'évolution du degré d'ionisation dans l'argon pour une impulsion de 50 fs de durée, le maximum est situé à 100 fs.

On voit sur la figure 4.20 qu'après interaction avec la première impulsion, le taux d'ionisation dans le milieu générateur passe de 0 à 2.5 %, ce qui se traduit par une diminution de la longueur de cohérence de 6.7 à 3.5 mm. Ces valeurs, permettent d'atteindre un bon niveau d'énergie XUV.

Cela peut expliquer le niveau élevé du signal harmonique de la deuxième impulsion harmonique quand l'énergie de la première impulsion est faible.

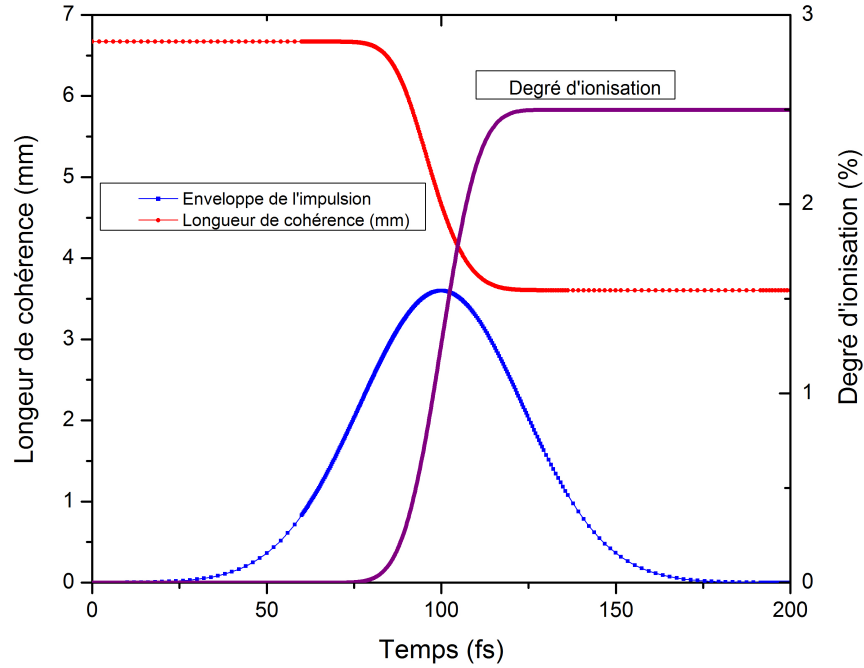


FIGURE 4.20 – Évolution de l'intensité et du degré d'ionisation calculé dans l'argon avec les taux ADK pour une première impulsion de durée 50 fs et d'intensité $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Le maximum est situé à 100 fs.

Nous avons aussi étudié le cas d'une configuration double impulsion. Rappelons que dans la gamme temporelle de notre étude (500 fs à 100 ps), le plasma d'argon créé suite à l'interaction avec la première impulsion n'a pas le temps de se recombiner. Il est donc raisonnable de considérer que le milieu générateur n'évolue pas au cours du temps après le passage de la première impulsion, la deuxième impulsion interagissant alors avec un milieu déjà ionisé avec un taux fixe. Comme le montre la figure 4.21, à partir d'un taux d'ionisation initial de 2.5 % induit par la première impulsion, ce taux passe à 4,9 % après le passage de la seconde impulsion. Par conséquent, la longueur de cohérence diminue de 3.2 mm à 2.5 mm. Ces valeurs, qui sont beaucoup plus faibles que la longueur du milieu (10 mm), se traduisent par une réduction considérable du signal XUV produit par la seconde impulsion.

Compte tenu de l'accord de phase, pour une valeur de pression fixe, les taux d'ionisation élevés ne sont pas favorables à une génération XUV efficace [S. Kazamias 2011]. Ceci s'explique par le fait que, dans ces conditions, la contribution positive de la dispersion atomique n'est pas en mesure de compenser la dispersion électronique induite par l'ionisation. Donc, pour faire en sorte que la deuxième impulsion puisse être générée efficacement, il est nécessaire de limiter le taux d'ionisation dans le milieu après l'interaction avec le premier faisceau IR. Pour une pression

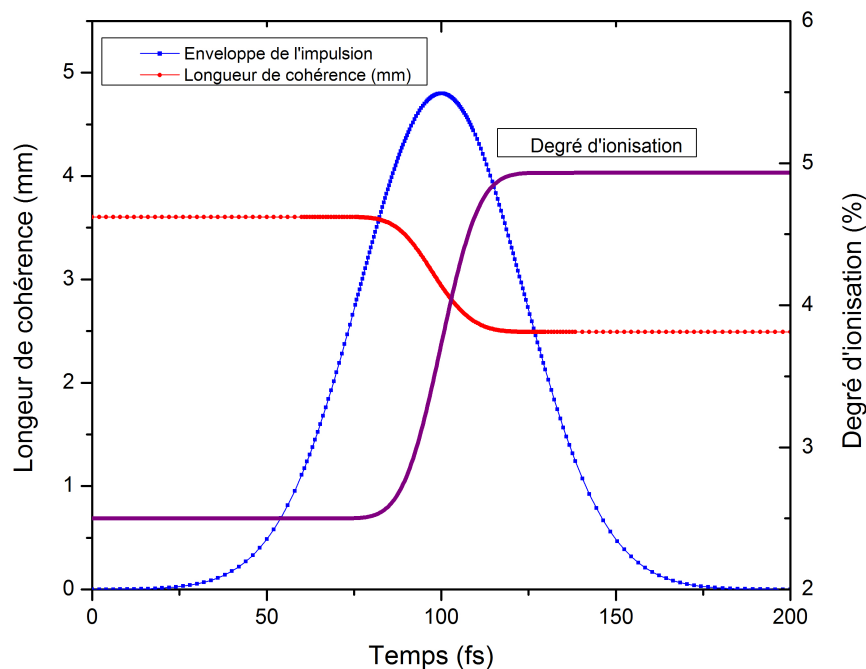


FIGURE 4.21 – Évolution de l'intensité et du degré d'ionisation calculé dans l'argon avec les taux ADK pour la deuxième impulsion de durée 50 fs et d'intensité $1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Le maximum est situé à 100 fs.

donnée, il est donc nécessaire d'utiliser moins d'énergie pour le premier faisceau de pompe que dans le deuxième. Une éventuelle solution est d'utiliser simplement une optique de recombinaison 40/60 au lieu de 50/50.

4.7.2 Influence de la pression

Nous étudions maintenant le rôle de la pression de gaz dans la balance en énergie des faisceaux harmoniques générés par les deux impulsions excitatrices. Nous avons pour cela utilisé le code 1D de génération d'harmonique décrit dans les chapitres précédents. Nous rappelons que ce code permet de calculer le déphasage entre les faisceaux IR et XUV et de calculer le signal harmonique en fonction des différents paramètres d'optimisation. Pour la gamme spectrale 30-50 nm, la longueur d'absorption varie entre 3.7 et 0.7 mm pour 15 mbar d'argon et entre 2.8 et 0.5 mm pour 25 mbar d'argon. Sachant que la longueur du milieu générateur est de 10 mm, on voit donc que pour ces deux valeurs de pressions, la condition de limite d'absorption reliant la longueur du milieu et la longueur de cohérence $l_{med} > 3 l_{abs}$ est vérifiée ([E. Constant 1999]). Les termes entrant en jeu dans ce calcul sont :

- La dispersion atomique :

$$\delta k_{atom}(mm^{-1}) = q \times 2.19 \times 10^{-3} \times P \times (1 - \tau) \quad (4.3)$$

- La dispersion électronique :

$$\delta k_{elec}(mm^{-1}) = -q \times 0.0548 \times \tau \times P \quad (4.4)$$

- La dispersion de Gouy (sachant que nous avons installé la cellule au foyer, donc $z_{cell}=0$) :

$$\delta k_{Gouy}(mm^{-1}) = \frac{-1}{z_0 + \frac{z_{cell}^2}{z_0}} = \frac{-1}{z_0} \quad (4.5)$$

- Le gradient de phase propre (avec $\alpha = 2 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{w}$ pour le chemin quantique 1 et $\alpha = 22 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{w}$ dans le cas du chemin quantique 2) :

$$\delta k_{\phi at}(mm^{-1}) = -\alpha \times \nabla I \quad (4.6)$$

Le bilan final alors correspondant au vecteur d'onde de déphasage entre le faisceau IR et le faisceau harmonique est (avec P en mbar et δk en mm^{-1}) :

$$\delta k_{tot} = q \times (\delta k_{atom} + \delta k_{elec} + \delta k_{Gouy}) + \delta k_{\phi at} \quad (4.7)$$

Afin d'étudier et de déterminer numériquement la pression optimale dans les deux cas de faible et forte ionisation, nous avons utiliser l'expression de la longueur de cohérence :

$$l_{coh}(\tau) = \frac{\frac{\pi}{q}}{\delta k_{tot}} \quad (4.8)$$

$$l_{coh}(\tau) = \frac{\frac{\pi}{q}}{|\frac{1}{z_0} - \times (2.19 \cdot 10^{-3} \times P) + (57 \times 10^{-3} \times P \times \tau) + q \times \delta k_{\phi at}|} \quad (4.9)$$

Vue la très faible divergence des faisceaux harmoniques en champ lointain (de l'ordre du mrad), on peut ne considérer que le premier chemin quantique. Dans ce cas, le gradient de phase propre, et ainsi sa contribution, devient négligeable. L'expression de la longueur de cohérence devient :

$$l_{coh}(\tau) = \frac{\frac{\pi}{q}}{|\frac{1}{z_0} - 10^{-3} \times P(2.19 - 57\tau)|} \quad (4.10)$$

D'après l'équation (4.10), la longueur de cohérence dépend des deux paramètres que sont la pression du gaz et le taux d'ionisation. Nous allons ainsi étudier leur effet dans deux cas différents. Commençons par le cas où l'intensité laser est faible, c'est à dire pour laquelle le degré d'ionisation est faible ; on peut alors négliger la contribution de la dispersion électronique et la longueur de cohérence devient

$$l_{coh}(\tau \simeq 0) = \frac{\frac{\pi}{q}}{|\frac{1}{z_0} - P \times 2.19 \times 10^{-3}|} \quad (4.11)$$

Dans ce premier cas , la dispersion électronique étant négligée, l'accord de phase est atteint suite à une compensation entre la dispersion atomique et la dispersion de Gouy. Or, dans le cas de notre expérience, la dispersion de Gouy est faible vu l'importante valeur de la zone de Rayleigh ($z_0 = 23$ mm) :

$$\delta k_{Gouy}(mm^{-1}) = -0.043mm^{-1} \quad (4.12)$$

Pour cette valeur de dispersion de Gouy, nous avons calculé la pression pour laquelle le meilleur accord de phase est atteint :

$$P_{opt}(\tau \simeq 0) = \frac{1}{z_0 \times 2.19 \times 10^{-3}} \simeq \frac{457}{z_0} \simeq 19mbar \quad (4.13)$$

Le deuxième cas étudié correspond au cas d'un taux d'ionisation plus élevé dans le milieu générateur, la pression optimale s'exprime dans ce cas en fonction de la dispersion de Gouy, la dispersion atomique et la dispersion électronique :

$$P_{opt}(\tau) = \frac{\frac{457}{z_0}}{(1 - 26 \times \tau)} \quad (4.14)$$

D'après cette expression, nous pouvons déterminer la valeur limite du taux d'ionisation, qui correspond à la valeur au delà de laquelle le milieu devient très ionisé et la génération n'est plus efficace :

$$\tau_{limite} = \frac{1}{26} \simeq 4\% \quad (4.15)$$

Ce rôle de la pression a été ensuite expérimentalement étudié. La figure 4.22 montre en coordonnées logarithmique l'évolution relative des signaux de la première et de la deuxième impulsion XUV en fonction de la pression. Dans ce cas, les faisceaux de pompe IR au foyer avaient une intensité équivalente (de l'ordre 1.2×10^{14} W/cm²). Le degré d'ionisation estimé est ici de l'ordre de 2.25 % après le passage de la première impulsion et de 4.9 % après l'interaction successive du milieu gazeux avec les deux impulsions de pompe.

En regardant la courbe d'optimisation de l'énergie XUV des deux impulsions en fonction de la pression dans la figure 4.22 pour laquelle l'intensité laser est faible (faible degré d'ionisation), on voit que le signal de la première impulsions XUV est optimisé pour une pression d'argon de 19 mbar, ce qui confirme les estimations théoriques (4.13). Le signal de la deuxième impulsion est optimisé pour une pression légèrement plus faible (17 mbar).

Pour le cas d'une simple impulsion, où l'intensité est de l'ordre de 1.2×10^{14} W/cm², nous avons vu sur la figure 4.20 que le degré d'ionisation passe de 0 % sur le front montant de l'impulsion jusqu'à atteindre la valeur 2.25 % à la fin du passage de l'impulsion. Cette fraction reste inférieure à la valeur limite de 4 % que nous avons calculée. Le signal harmonique de la première impulsion augmente donc avec la pression jusqu'à une valeur pour laquelle la contribution positive de la dispersion atomique compense les deux contributions négatives de la dispersion électronique et de Gouy. Lorsque la pression dépasse la pression optimale, le signal harmonique chute (4.20). Le deuxième cas qu'on cherche à comprendre correspond à celui où les deux impulsions sont

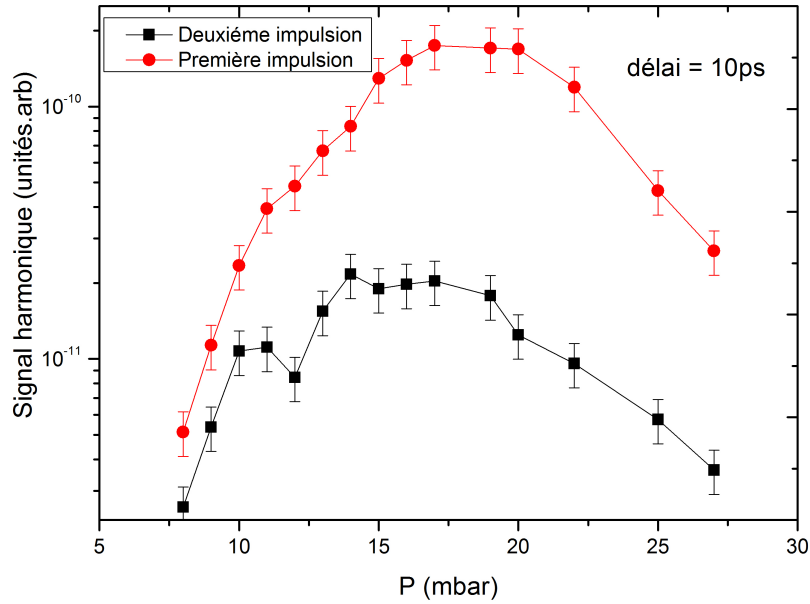


FIGURE 4.22 – Évolution du signal généré par chacune des impulsions en fonction de la pression pour un délai fixé à 10 ps. L'intensité au foyer des deux faisceaux est de l'ordre de $I = 1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

présentes. Le milieu interagit d'abord avec la première impulsion et son ionisation monte à environ 2.25 %, puis 10 ps plus tard la deuxième impulsion traverse le gaz et génère ses propres harmoniques. Pendant la génération de la deuxième impulsion, le gaz voit son ionisation croître jusqu'à 4 %. Dans ce cas, vu la faible valeur de la dispersion de Gouy (régime de focalisation douce), une légère augmentation de l'ionisation sera compensée par la dispersion atomique.

Nous avons donc étudié dans quels paramètres la génération de la deuxième impulsion est optimisée. Nous avons effectué des calculs analytiques de l'évolution de la longueur de cohérence en fonction de la pression pour cinq valeurs de longueur de la zone de Rayleigh. Le taux d'ionisation est ici de l'ordre de 2.25 % après le passage de la première impulsion, ces calculs ont été effectués pour l'harmonique H25 et sont présentés sur la figure 4.23. Ils rendent compte du meilleur compromis d'optimisation à choisir entre la pression et la géométrie de focalisation. On voit sur cette courbe, qu'à pression fixe, plus la longueur de la zone de Rayleigh est grande plus la longueur de cohérence est importante. La meilleure valeur de la longueur de cohérence, donc le meilleur accord de phase, est obtenue pour une dimension élevée de la zone de Rayleigh. Ceci montre que la meilleure géométrie de focalisation pour une bonne efficacité de génération d'une double impulsion est la géométrie focalisation douce car un bon accord de phase peut être obtenu même en présence d'un certain degré d'ionisation.

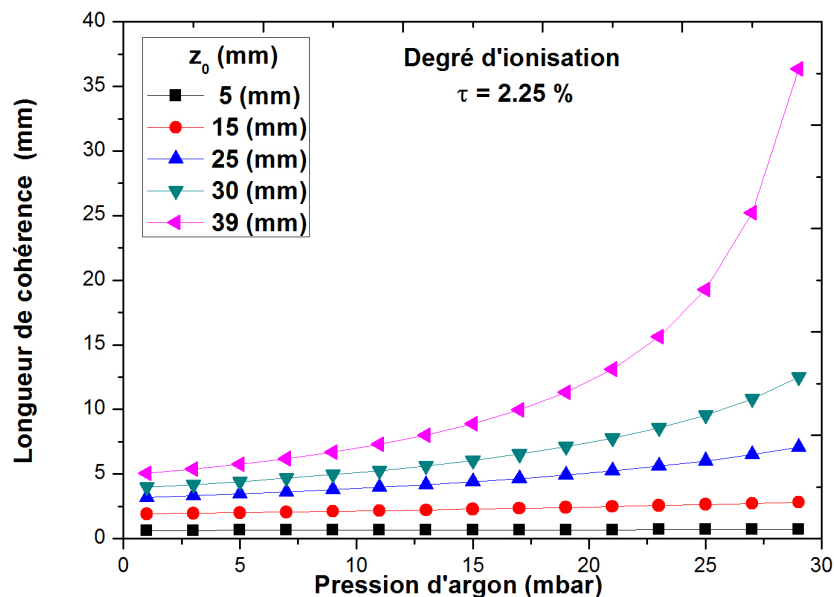


FIGURE 4.23 – Évolution de la longueur de cohérence pour l'harmonique H25 générée dans l'argon en fonction de la pression pour cinq valeurs de longueur de la zone de Rayleigh. Le taux d'ionisation est fixé à 2.25 % et la pression varie de 3 à 30 mbar.

Nous avons également effectué cette étude en utilisant des impulsions plus énergétiques. La figure 4.24 présente l'évolution des signaux de la première et la deuxième impulsion XUV en fonction de la pression. Nous avons fixé le délai à 10 ps. Nous nous intéressons donc dans ce cas à des valeurs d'intensités IR élevées pour chaque faisceau (de l'ordre de $1.75 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Le degré d'ionisation correspondant est alors très élevé, il est largement supérieur 15 %. Pour ce taux d'ionisation aucune valeur de pression ne peut donner un bon accord de phase.

Nous pouvons remarquer sur la figure 4.24 que le signal des deux impulsions croît avec la pression jusqu'à un maximum situé autour de 20 mbar, puis le signal entame une décroissance lente quand la pression continue à augmenter. Pour des faibles pressions les deux faisceaux harmoniques sont équilibrés à des valeurs inférieures à l'optimum ; alors que pour des hautes pressions, le niveau de signal du premier faisceau est beaucoup plus important que celui du deuxième. D'après les deux courbes en pression (4.22 et 4.24), on peut conclure que la pression n'est un paramètre critique et ne présente un effet important dans la génération d'une double impulsion que dans le cas d'une forte intensité d'excitation. En effet à faible intensité, la pression semble ne pas jouer un rôle important dans la balance du signal harmonique entre les deux impulsions. En optimisant la pression du gaz, on perd beaucoup plus en signal par rapport à l'optimisation de l'énergie car il n'est pas possible d'avoir deux pressions différentes pour chacune des deux impulsions.

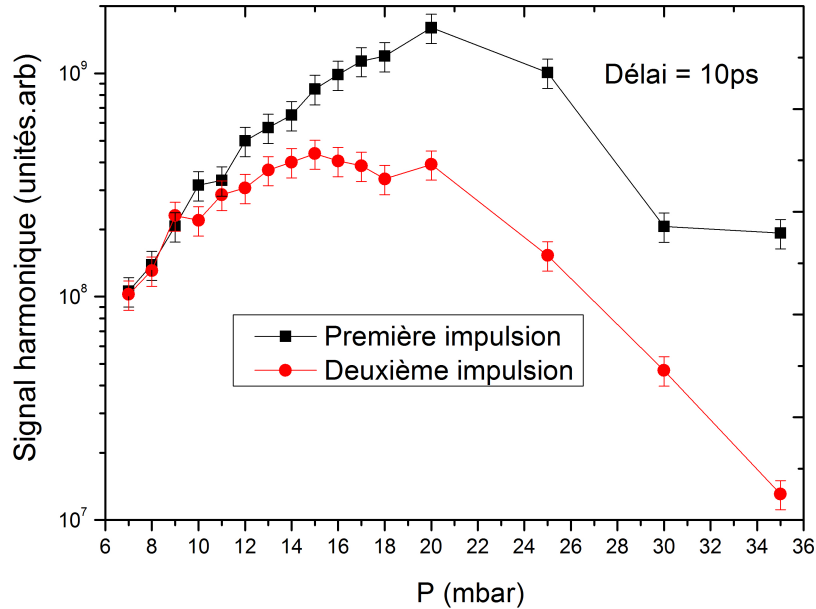


FIGURE 4.24 – Évolution du signal généré par chacune des impulsions en fonction de la pression pour un délai fixé à 10 ps. L'intensité au foyer des deux faisceaux est plus importante, de l'ordre de $1.75 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

Nous avons poussé plus loin cette expérience en utilisant des impulsions IR beaucoup plus énergétiques, le milieu étant alors très ionisé. Dans ce cas le signal XUV varie à l'inverse de la pression et de l'ionisation. Le signal généré est alors systématiquement très faible, à cause de la forte ionisation dans le milieu. Nous n'avons pas pu ni optimiser ni balancer l'énergie entre les deux faisceaux XUV. Pour conclure cette partie, malgré l'ionisation élevée dans le milieu dans le cas de double impulsion, nous avons pu optimiser et équilibrer les deux faisceaux harmoniques grâce aux conditions de focalisation douce que nous avons choisies pour notre expérience. La pression n'est un paramètre important que dans le cas de fortes intensités IR.

4.8 Génération d'harmoniques avec un délai temporel nul

Comme déjà introduit au début de ce chapitre, la technique de génération non-colinéaire d'harmoniques d'ordres élevés avec deux impulsions de pompe interférant dans le milieu de génération a été étudiée pour plusieurs types d'applications. Dans cette expérience les deux faisceaux sont superposés spatialement et arrivent au foyer commun avec un délai temporel nul. Plusieurs dispositifs expérimentaux utilisent la génération non-colinéaire comme moyen de séparation entre les harmoniques et le fondamental pour ne pas avoir à utiliser de réseau de diffraction [J.Peatross 1994] ou de filtre. Cette technique a été également utilisée pour augmenter l'efficacité de plusieurs processus de mélange d'onde [A.V.Birulin 1996a] [A.V.Birulin 1996b].

Contrairement à ces deux dernières expériences utilisant deux faisceaux contre-propageant, S.V.Fomichev et al ont croisé sous un angle faible deux faisceaux de pompes co-propageant dans un jet de gaz (argon, xénon) [S.V.Fomichev 2002]. Dans ce cas, les deux types de génération colinéaire et non-colinéaire ont été observés. L'effet de l'angle de non-colinéarité sur l'émission des harmoniques a été étudié. Dans le cas de deux faisceaux croisés dans un foyer commun, des simulations numériques ont prédit la possibilité de la réalisation de l'accord de phase dans une direction non colinéaire à la direction du faisceau laser. Ceci dépendrait de la densité atomique, de l'angle de croisement et des intensités de pompes [S.V.Fomichev 2002].

Dans ce cadre, lors de l'expérience de A.Ozawa et al [A. Ozawa 2008] décrite précédemment, les auteurs ont observé une émission de plus de 9 ordres harmoniques dans la direction de la bissectrice des deux faisceaux de pompe se croisant à délai nul dans une cellule remplie de xénon. A l'issue de ce travail, les auteurs ont publié la dépendance de la direction d'émission harmonique en fonction de l'intensité relative des deux faisceaux. Lorsque l'intensité d'un des deux faisceaux est atténuée, la direction d'émission change et dérive vers la direction du faisceau non atténué jusqu'à ce que l'émission devienne complètement colinéaire.

4.8.1 Résultats expérimentaux obtenus

Lors de la réalisation de l'expérience de génération d'une double impulsion harmonique, une émission du rayonnement harmonique dans la direction de la bissectrice des deux faisceaux de pompe a été observée. Cette génération a eu lieu à délai nul et lorsque les deux faisceaux étaient bien superposés au niveau du foyer. L'observation dans le domaine infrarouge et en temps réel des franges d'interférences des deux faisceaux d'excitation sur les diagnostics champs proche et lointain a permis de vérifier la superposition spatiale des deux taches focales et également d'ajuster finement le délai pour le fixer à 0 fs plus ou moins la précision de la platine motorisée, c'est-à-dire 6 fs.

La figure 4.25 présente les images des empreintes du faisceau harmonique générées respectivement dans 15 mbar d'argon et dans 30 mbar de néon. La même approche de génération que celle suivie pour la double impulsion a été utilisée. On voit de gauche à droite respectivement l'empreinte du faisceau produit par l'impulsion réfléchie, transmise et par les deux impulsions à délai nul. Il faut souligner que les mesures sont des mesures « monotir ». Cette figure montre que, pour les deux types de gaz (argon et néon), la direction de génération est la bissectrice des deux faisceaux de pompe. La reproduction de cet effet, déjà observé par d'autres équipes, est une preuve de la maîtrise de l'alignement de notre expérience.

Pour le cas de l'argon, à égal niveau de signal XUV pour chacun des deux faisceaux indépendamment l'un de l'autre, le signal harmonique généré par les deux impulsions à délai nul est au minimum deux fois plus important. Nous avons enregistré plusieurs séries de données pour confirmer cette constatation. Pour le cas du néon, lorsque le niveau de signal généré séparément par chacun des deux faisceaux est à peine supérieur au bruit, celui émis dans la direction de la bissectrice des deux axes à délai nul est important (comme le montre la figure 4.25).

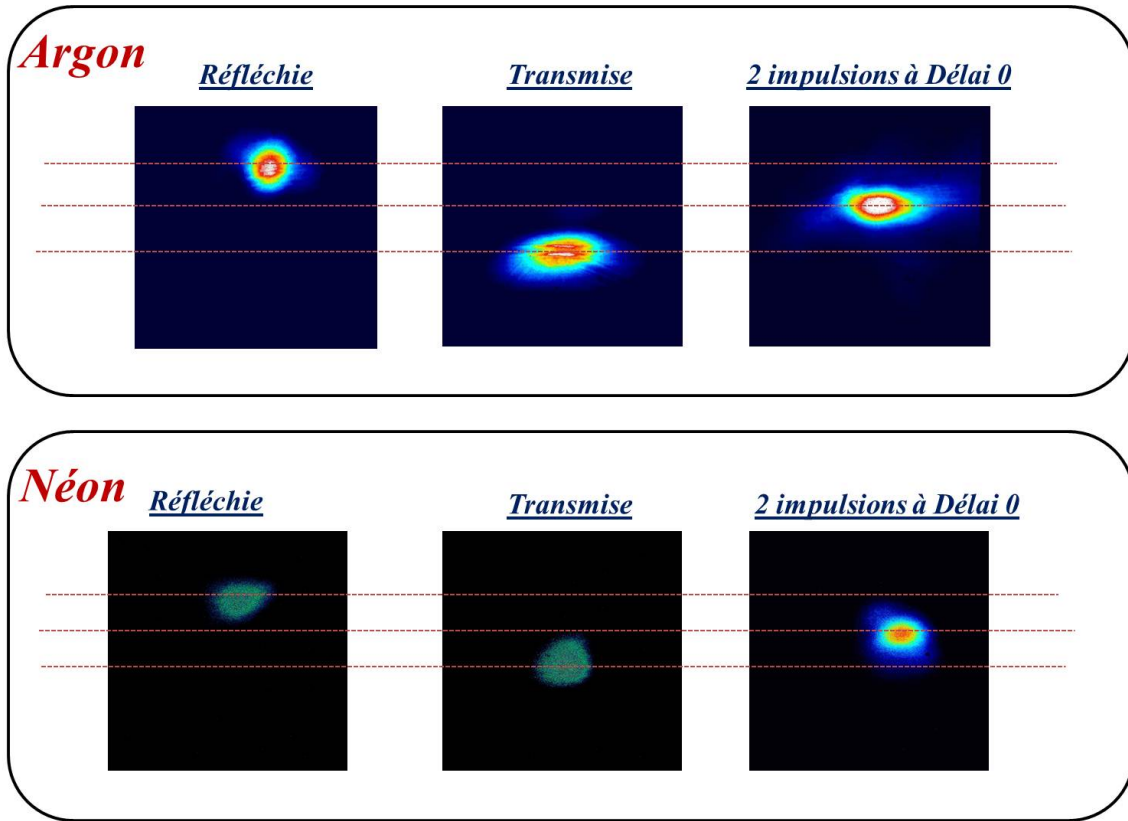


FIGURE 4.25 – Empreintes de faisceaux harmoniques générés respectivement dans 15 mbar d'argon et dans 30 mbar de néon. Les empreintes correspondent à la génération avec l'impulsion réfléchie, transmise et les deux impulsions à délai nul.

4.8.2 Modélisation de la génération d'harmoniques à délai nul

4.8.2.1 Principe et cadre de la modélisation

Dans le but de comprendre l'augmentation de l'émission du rayonnement harmonique dans la co-direction des deux faisceaux de pompe à délai nul, nous avons effectué des simulations basées sur l'étude de l'interférence des deux faisceaux laser infrarouges. Le calcul permet d'étudier la superposition des champs de deux faisceaux afin de calculer la phase du champ laser total, son intensité et le déphasage entre les deux champs. Ce calcul requiert les approximations suivantes :

- Les deux impulsions laser ont des structures spatiales et temporelles identiques.
- Les profils temporels sont gaussiens et limités par Fourier. Dans ce cas, l'intensité laser s'écrit $I(t) = I_{max}e^{-t^2/\sigma_0^2}$, avec I_{max} l'intensité maximale de l'impulsion du faisceau fondamental.
- Les faisceaux sont gaussiens.
- La polarisation des faisceaux lasers est linéaire.

A l'équilibre des voies du Mach-Zehnder, supposé parfait, si I_{max} est l'intensité maximale de l'impulsion entrant dans l'interféromètre, l'intensité pour chaque bras (réfléchi et transmis) en sortie du Mach-Zehnder sera égale à $I_{max}/4$. Si on fait interférer les deux impulsions à énergie équilibrée sur les voies, à déphasage nul entre les deux voies, on obtient en sortie de l'interféromètre une intensité égale à I_{max} . Dans ce cas, l'interféromètre est transparent c'est à dire qu'il y a conservation de l'énergie. Cette conservation est assurée par le fait que sur la voie non utilisée se produisent des interférences destructives. Ceci a été expérimentalement vérifié.

La figure 4.26 montre des cartes d'évolution du profil d'intensité laser au cours de la propagation suivant l'axe Z (Z étant l'axe de propagation dans la cellule et (X,Y) respectivement l'axe horizontal et vertical). Les résultats de calcul présentés dans cette partie ne tiennent pas compte de la présence du gaz dans le milieu générateur. La figure 4.26 (a) correspond au cas de la propagation d'un seul faisceau gaussien d'intensité maximale égale à 10^{14} W/cm², le rayon en $1/e^2$ de la tache focale est de 80 μ m. La deuxième carte (4.26 (b)) correspond au cas de la propagation de deux faisceaux gaussiens de dimensions similaires et d'intensités maximales égales à (10^{14} W/cm²), ces faisceaux se propagent colinéairement (angle de croisement nul) et interfèrent sur une distance de 10 mm (la longueur de la cellule).

Pour évaluer l'effet de la variation d'angle de croisement entre les deux faisceaux de pompe sur l'intensité résultante dans la zone d'interaction, le même type de calcul a été effectué avec des faisceaux non-colinéaires. La figure 4.26 (c, d et e) présente les cartes d'évolution d'intensité pic pour trois valeurs d'angle de croisement différents (1, 5 et 10 mrad). On observe que l'intensité maximale obtenue sur l'axe de propagation est de $4 \cdot 10^{14}$ W/cm² (4.26 (b, c, d et e)), donc quatre fois plus importante que l'intensité maximale de chacun des deux faisceaux (4.26 (a)). L'augmentation de l'intensité laser au foyer est un simple résultat d'interférence constructive entre les deux faisceaux.

Lorsque l'angle de croisement est de 1 mrad (tel est le cas de notre expérience), on ne voit quasiment pas de changement par rapport au cas de deux faisceaux colinéaires (angle = 0 mrad), l'étendue des zones de forte intensité est quasiment identique. Par contre, lorsque l'angle augmente à 5 mrad (4.26 (d)) on commence à voir des franges d'interférence, une frange centrale brillante est observée, cette frange est suivie de deux franges sombres puis de deux franges brillantes d'intensité plus faible. Lorsque l'on augmente l'angle, jusqu'à 10 mrad, nous constatons que les franges d'interférences sont plus nombreuses et plus fines : l'interfrange diminue. Cette étude met en évidence l'évolution de la taille de zone efficace de génération (forte intensité) en fonction de l'angle de non-colinéarité. Plus l'angle est grand plus la frange brillante centrale se rétrécit, donc moins la taille de la zone efficace de génération est importante.

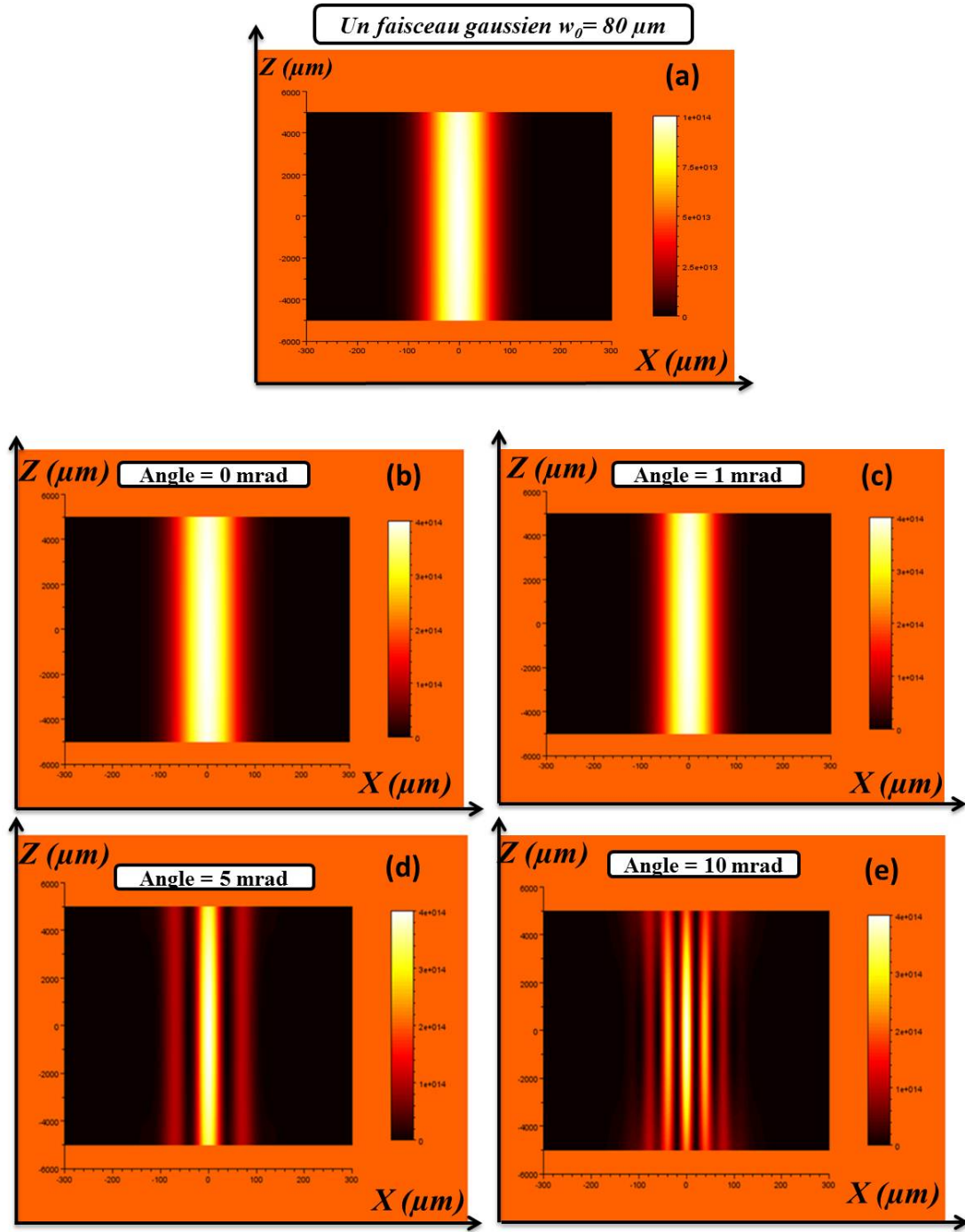


FIGURE 4.26 – (a) Cartes d'évolution de l'intensité pic pour un faisceau gaussien ($w_0 = 80 \mu m$ et $I = 10^{14}$ W/cm²). (b, c d et e) Cartes d'évolution de l'intensité pic résultant de l'interférence entre deux faisceaux équivalents croisés à délai nul sous un angle de : 0, 1, 5 et 10 mrad). Plus l'angle de non-colinéarité est grand plus la taille de la zone efficace de génération est rétrécit.

4.8.2.2 Simulation 1D de la génération d'harmoniques à délai nul

Une fois l'effet de l'angle de non-colinéarité et de l'interférence connus, nous allons pouvoir simuler la génération d'harmoniques résultant de l'interférence de deux faisceaux croisés à délai nul au centre d'une cellule de 10 mm. Le code 1D, décrit dans les chapitres précédents, permet de simuler la génération d'harmoniques induite par un seul faisceau supposé gaussien. Or comme nous l'avons montré dans la section précédente, pour des angles de non-colinéarité relativement faibles, le volume de génération est relativement comparable à celui d'un seul faisceau ayant une intensité maximale quatre fois plus grande. Le profil d'intensité laser est alors aussi régulier que celui d'un seul faisceau laser gaussien, donc de gradient d'intensité comparable. Or, mises à part les dispersions atomique et électronique, l'accord de phase implique la contribution de la phase de Gouy géométrique induite par la focalisation d'un faisceau gaussien. Dans le cas de deux faisceaux croisés, il existe un décalage longitudinal géométrique du second degré dans l'angle, ce décalage est induit par la non-colinéarité. La différence entre la phase de Gouy induite par la focalisation d'un seul faisceau et la phase équivalente induite par la non-colinéarité dans le cas de deux faisceaux est très faible. Nous pouvons ainsi étudier la génération d'harmoniques avec le code 1D (décrit dans les chapitres précédents).

La figure 4.27 (a), montre le résultat de calcul du signal de l'harmonique 25 générée dans 20 mbar d'argon par un seul faisceau gaussien d'intensité 10^{14} W/cm², le waist en $1/e^2$ du faisceau laser est égal à 80 μ m, la génération a lieu au maximum de l'impulsion. La figure 4.27 (b), montre le signal de la même harmonique générée par deux faisceaux croisés, à délai nul, dans une cellule de 10 mm sous un angle de 1 mrad, l'intensité maximale équivalente est de $4 \cdot 10^{14}$ W/cm². La génération se produit sur le front montant de l'impulsion, pour lequel l'ionisation correspondante est optimale. Le niveau de signal intégré sur toute l'harmonique est au moins deux fois plus important lorsque l'on génère avec deux faisceaux.

L'évolution du signal harmonique intégré en fonction de l'ordre harmonique variant entre 15 et 29 est présentée sur la figure 4.28. La courbe rouge (a) de la figure 4.28 correspond au cas d'une génération à l'aide d'un seul faisceau d'excitation ayant une intensité égale à 10^{14} W/cm². Le deuxième cas (courbe rouge (b)), correspond au cas d'un signal harmonique généré par deux faisceaux d'excitation interférant dans une cellule de gaz, l'intensité laser équivalente est $4 \cdot 10^{14}$ W/cm² et l'axe de génération est suivant la bissectrice des deux faisceaux. La pression de l'argon est fixée à 20 mbar. On constate que, pour les faibles ordres harmoniques, l'intensité du signal harmonique émis dans la co-direction des deux faisceaux laser à délai nul est au moins deux fois plus importante que l'intensité du signal émis par un seul faisceau.

Je tiens à rappeler que le but initial de notre expérience était la génération et l'optimisation de la double impulsion harmonique pour la préparation de son injection dans un plasma de laser X. L'observation de l'émission des harmoniques dans la codirection des deux faisceaux de pompe est un résultat qui a été obtenu pendant cette expérience. L'investigation de l'influence des différents paramètres d'optimisation de la génération d'harmoniques (pression, intensités relatives) sur l'évolution de l'intensité des harmoniques générées à délai nul manque ici. Il manque également à cette campagne d'optimisation l'étude expérimentale de l'influence de l'angle sur le signal et sur la direction d'émission XUV.

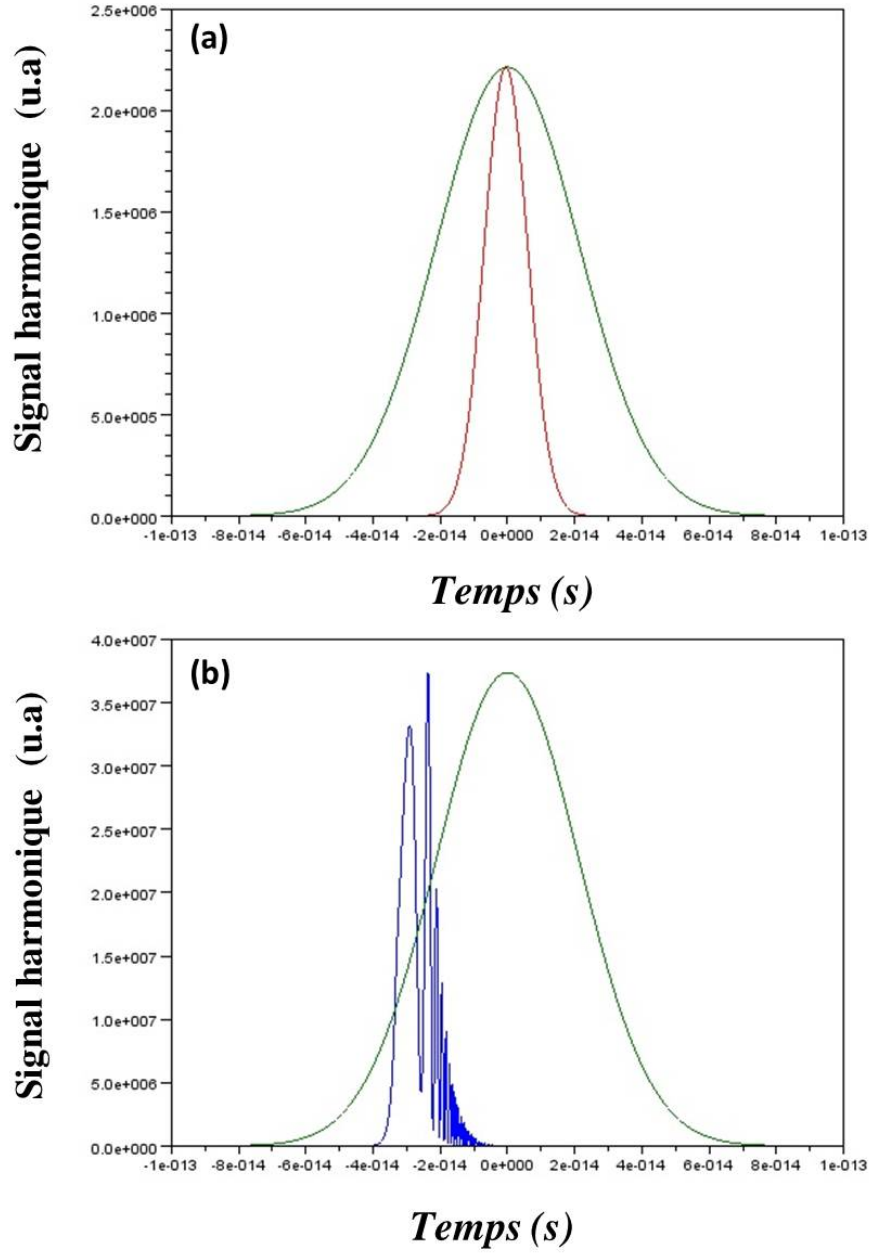


FIGURE 4.27 – (a) Signal de l'harmonique 25 générée dans 20 mbar d'argon par un seul faisceau supposé gaussien ($I = 10^{14}$ W/cm², $w_0 = 80$ μ m). (b) Signal de l'harmonique 25 générée dans 20 mbar d'argon par un deux faisceaux croisés à délai nul sous un angle de 1 mrad ($I = 4 \cdot 10^{14}$ W/cm², $w_0 = 80$ μ m).

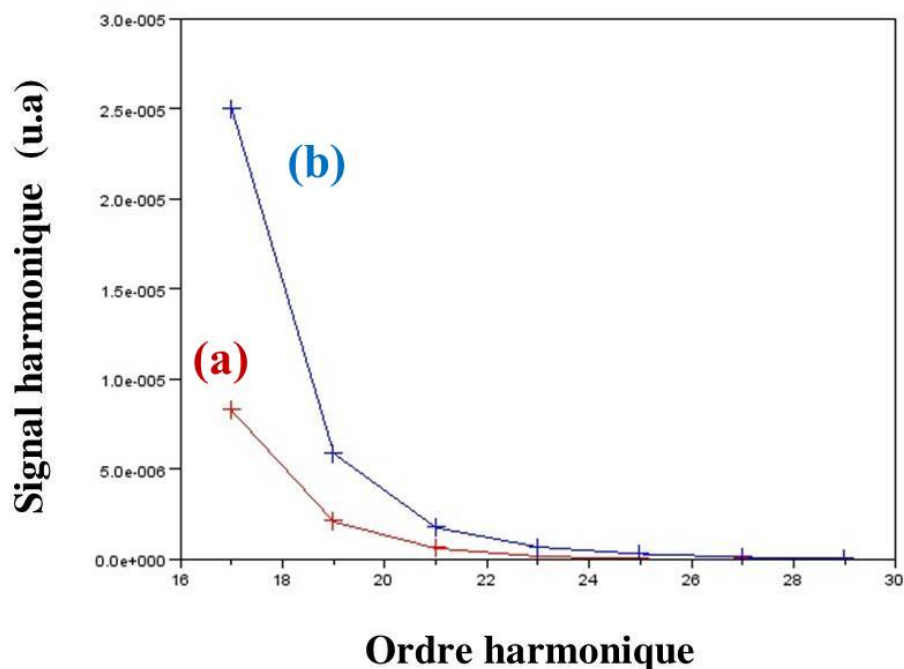


FIGURE 4.28 – (a) Évolution du signal harmonique intégré en fonction de l'ordre harmonique pour le cas d'un seul faisceau laser d'intensité 10^{14} W/cm². (b) Évolution du signal harmonique intégré en fonction de l'ordre harmonique pour le cas de deux faisceaux laser, l'intensité équivalente est $4 \cdot 10^{14}$ W/cm². La pression de l'argon est fixée à 20 mbar pour les deux cas.

4.9 Conclusion

En conclusion, la production de deux impulsions harmoniques quasi-colinéaires séparées par un délai temporel variant de 500 fs à 100 ps a été effectuée. Il s'agit là à notre connaissance des premiers résultats de l'étude temporelle d'une double impulsion harmonique générée à partir d'un même milieu gazeux. Un dispositif expérimental a été mis en place pour produire les faisceaux d'excitation avec un délai temporel accordable. Ce système permet également le contrôle de l'angle de croisement, l'énergie et la polarisation relative des deux faisceaux. L'effet de la première impulsion laser sur l'efficacité de génération de la deuxième a été étudié, il s'est avéré que la première impulsion perturbe le milieu à cause de l'ionisation, modifiant par la suite les conditions de génération de la deuxième impulsion par modification des caractéristiques du milieu générateur.

Lorsque les deux impulsions ne sont pas temporellement superposées, nous avons vérifié expérimentalement que le délai ne joue aucun rôle dans la génération de la double impulsion harmonique et ce jusqu'à 100 ps, ce résultat est cohérent avec les prédictions théoriques sur le temps nécessaire à la recombinaison du plasma. Pour un délai fixe, l'optimisation de l'accord de phase a été effectuée afin d'équilibrer l'intensité du signal harmonique entre les deux impulsions

XUV. L'énergie infrarouge de la première impulsion est le paramètre clé de l'optimisation de la double impulsion tandis que la pression de gaz ne semble jouer un rôle important que dans le cas d'une forte intensité laser puisqu'on travaille dans une configuration de focalisation douce. Par ailleurs, nous avons confirmé que le comportement observé ne dépend pas de la polarisation relative des deux faisceaux laser, de plus les deux spectres harmoniques sont identiques. Ces propriétés sont d'une grande importance pour l'expérience de l'injection d'harmonique dans un plasma de laser X. En raison de la superposition spatiale très bien contrôlée entre les deux faisceaux infrarouges à travers la cellule de gaz, les résultats obtenus peuvent être parfaitement extrapolés au cas de deux impulsions colinéaires.

Lorsque les deux impulsions laser sont temporellement et spatialement superposées, une émission harmonique dans la codirection des deux faisceaux de pompe a été observée. Le faisceau central est au moins deux fois plus intense que chacune des deux impulsions harmoniques optimisées indépendamment l'une de l'autre. Ce travail reste à poursuivre, il serait intéressant d'étudier l'effet des paramètres d'optimisation sur le comportement de la génération suivant la bissectrice. Il faudrait également étudier expérimentalement le cas de différents angles de croisement.

Finalement, une amélioration du dispositif expérimental est envisagée afin de rendre son utilisation plus simple et afin d'éviter la perte de l'énergie laser au niveau de la dernière lame de recombinaison. Nous pouvons imaginer un dispositif utilisant un polariseur à 45 degré comme optique de recombinaison. Cependant, ce dispositif ne fonctionne que dans le cas de deux faisceaux avec des polarisations croisées, le polariseur réfléchit le faisceau de pompe polarisé « S » et transmet le faisceau polarisé « P ». Ceci ne constitue pas un problème pour notre cas grâce au comportement identique de la double impulsion en fonction de la polarisation. Une autre idée prometteuse, consiste à récupérer l'énergie perdue de l'interféromètre au niveau de la lame de recombinaison pour produire une autre source double impulsion. Ceci permettra de réaliser un dispositif pour des expériences pompe-sonde XUV. Il serait également nécessaire d'utiliser une platine de translation (ligne à retard) plus précise et exempte de mouvements parasites.

Génération d'harmoniques en configuration guidée

Sommaire

5.1	Introduction	131
5.2	Propriétés du guidage dans un tube capillaire	132
5.2.1	Tubes capillaires	132
5.2.2	Mode propre d'un tube capillaire	132
5.2.3	Principe du couplage	136
5.2.4	Battements de mode	139
5.3	Génération d'harmoniques dans des tubes capillaires	143
5.3.1	Accord de phase des harmoniques dans un capillaire	143
5.3.2	Limite de l'accord de phase des harmoniques dans un capillaire	145
5.3.3	Quasi accord de phase des harmoniques dans un capillaire	146
5.4	Campagne expérimentale sur LASERIX : juillet 2011	154
5.4.1	Tube capillaire utilisé	154
5.4.2	Dispositif expérimental de génération	156
5.4.3	Technique d'alignement du capillaire	158
5.5	Stabilité de pointé laser sur la ligne harmonique de LASERIX	158
5.5.1	Mesure de la stabilité du pointé	158
5.5.2	Amélioration de la stabilité du pointé	160
5.6	Campagne expérimentale au CELIA : Mars et avril 2012	162
5.6.1	Ligne de lumière harmonique de la salle Éclipse 2	162
5.6.2	Résultats obtenus	165
5.6.3	Conclusion	181

5.1 Introduction

La génération d'harmoniques d'ordres élevés en configuration guidée est la géométrie utilisée pour tout les résultats présentés dans ce chapitre. Cette géométrie a plusieurs avantages par rapport à la géométrie de propagation libre (génération dans une cellule ou dans un jet de gaz). Par rapport à ces deux dernières, le guidage présente l'avantage de maintenir une haute intensité laser sur une longue distance, typiquement sur une distance plus grande que la longueur de Rayleigh pour le cas d'une configuration de propagation libre par un faisceau gaussien. Elle présente aussi l'avantage d'éviter la défocalisation du faisceau laser induite par ionisation dans

le milieu de génération à de fortes intensités laser. On maximise ainsi la longueur d'interaction entre le gaz générateur et le laser. En contrepartie, le guidage de faisceau en capillaire présente l'inconvénient d'un alignement relativement contraignant.

Je m'attacherai dans ce chapitre à présenter les caractéristiques et les propriétés du guidage dans un tube capillaire. Je présenterai ensuite les résultats expérimentaux obtenus sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans un tube capillaire rempli de gaz lors d'une campagne d'expériences effectuée au Centre des Lasers Intenses et Applications (CELIA) à l'Université Bordeaux 1.

5.2 Propriétés du guidage dans un tube capillaire

5.2.1 Tubes capillaires

Un tube capillaire est un guide d'onde cylindrique à section circulaire. Il est constitué d'un cœur creux de rayon R_{cap} entouré d'une gaine en verre et est caractérisé par sa longueur L_{cap} . On peut également appeler ce capillaire fibre creuse à paroi épaisse (FCPE) ou guide d'onde creux cylindrique.

5.2.2 Mode propre d'un tube capillaire

Le laser focalisé à l'entrée du tube capillaire est guidé dans le cœur par réflexion sur l'interface cœur/gaine. Ce guidage se fait avec des pertes par réfraction à l'interface puisque l'indice de réfraction du cœur ($n_c = 1$) est inférieur à celui de la gaine (n_g). Les rayons réfléchis correspondent à l'énergie guidée. On définit la transmission totale (T_{tot}) d'un tube capillaire par le rapport entre l'énergie en sortie de capillaire contenue dans le disque de diamètre ($2R_{cap}$) et l'énergie totale incidente. Le cœur étant un milieu limité, le laser ne peut être guidé dans le tube capillaire que selon des modes propres qu'imposent les conditions de continuité à l'interface cœur/gaine. La géométrie cylindrique du tube permet de repérer un point par sa distance radiale r à l'axe, son angle azimutal ψ et sa position sur l'axe de propagation z . Maracatili et Schmeltzer ont décrit en détail les modes propres de propagation dans les tubes capillaires [E.A.J.Maracatili 1964]. Il existe de nombreux modes que l'on peut classer par familles selon la structure des champs. Les trois grandes familles sont :

- Les modes transverses électriques TE_{0m} , pour lesquels les composantes de champ sont limitées à E_θ , H_r et H_z .
- Les modes transverses magnétiques TM_{0m} , pour lesquels les composantes de champ sont limitées à H_θ , E_r et E_z .
- Les modes hybrides EH_{nm} , pour lesquels les six composantes du champ sont non nulles.

Le mode laser utilisé dans nos expériences est le mode TEM_{00} polarisé linéairement. Il présente un profil d'intensité gaussien au niveau du foyer ($I \propto \exp(-2r^2/w_0^2)$). Lorsque ce faisceau est couplé à un tube capillaire, les modes TE_{0m} et TM_{0m} ne sont pas excités. Seuls les modes de type hybride EH_{nm} le permettent avec $n=1$ (pour une polarisation linéaire) donc EH_{1m} [R.L.Abrams 1972]. L'indice (m) représente le nombre de zéros du champ électrique

perpendiculaire à l'axe du tube capillaire entre le centre et la gaine. Pour la suite de notre travail nous ne nous intéressons qu'aux modes hybrides.

Le laser incident est focalisé selon l'axe (z) et le plan de focalisation est placé sur la face d'entrée du capillaire. Dans ce cas le champ électrique laser au foyer (E_f) s'écrit sous cette forme :

$$\vec{E}_f \simeq E_f(\sin\psi\vec{e}_r + \cos\psi\vec{e}_\psi) \quad (5.1)$$

En le projetant sur les modes propres du tube capillaire décrits auparavant, son expression devient :

$$E_f = \sum_m A_{1m} E_{1m} \quad (5.2)$$

Avec A_{1m} le coefficient de couplage et E_{1m} la partie réelle du champ électrique associée au mode hybride EH_{1m} . A l'intérieur du tube capillaire l'amplitude du champ varie radialement comme :

$$E_{1m}(r) = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} H_{1m} = J_0(u_{1m} \frac{r}{R_{cap}}) \quad (5.3)$$

Où u_{1m} correspond à la m^{ieme} racine de la $(n-1)^{ieme}$ fonction de Bessel ($n=1$). Les valeurs de u_{1m} en fonction du nombre de mode sont récapitulées sur le tableau 5.1.

$$J_{n-1}(u_{1m}) = J_0(u_{1m}) = 0 \quad (5.4)$$

m	u_{1m}
1	2,404825
2	5,520078
3	8,653727
4	11,791534
5	14,930917
6	18,071063
7	21,211636
8	24,352471
9	27,493479
10	30,634606

TABLE 5.1 – Racines de l'équation $J_0(u_{1m})=0$.

Sachant que la longueur d'onde du laser guidée est très faible par rapport au rayon du capillaire ($\lambda \ll R_{cap}$), la constante de propagation γ des modes EH_{1m} s'exprime comme :

$$\gamma_{1m} = \beta_{1m} + i\alpha_{1m} \quad (5.5)$$

$$\gamma_{1m} \simeq k_0 \left(1 - \frac{1}{2} \left(\frac{u_{1m}\lambda}{2\pi R_{cap}} \right)^2 \left(1 - \frac{in_g\lambda}{\pi R_{cap}} \right) \right) \quad (5.6)$$

Avec $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$ β_{1m} est la constante de phase de chaque mode EH_{1m} :

$$\beta_{1m} = \text{Re}(\gamma_{1m}) = \frac{2\pi}{\lambda} \left(1 - \frac{1}{2} \left(\frac{u_{1m}\lambda}{2\pi R_{cap}} \right)^2 \right) \quad (5.7)$$

Et α_{1m} est la constante d'atténuation de chaque mode :

$$\alpha_{1m} = \text{Im}(\gamma_{1m}) = \left(\frac{u_{1m}}{2\pi} \right)^2 \frac{\lambda^2}{R_{cap}^3} \left(\frac{n_0^2 + 1}{2\sqrt{n_0^2 - 1}} \right) \quad (5.8)$$

Pour les modes hybrides EH_{nm} (avec $n \neq 0$) :

$$n_g = \frac{n_0^2 + 1}{2\sqrt{n_0^2 - 1}} \quad (5.9)$$

La partie imaginaire α_{1m} de la constante de propagation varie avec l'inverse de la longueur d'atténuation de l'énergie du mode à cause des pertes créées par les réflexions sur la paroi du tube capillaire. On définit donc la longueur d'atténuation du mode par :

$$L_m^{att} = \frac{8\pi^2 R_{cap}^3 \sqrt{n_0^2 - 1}}{u_{1m}^2 \lambda^2 (n_0^2 + 1)} \quad (5.10)$$

La figure 5.1 montre le résultat obtenu pour $\lambda = 800$ nm du calcul de la longueur d'atténuation sur les dix premiers modes hybrides EH_{1m} et pour quatre rayons de capillaire différents ($R_{cap} = 50, 100, 150$ et $200 \mu\text{m}$). On voit que la longueur d'atténuation varie avec le cube du rayon du capillaire et avec l'inverse du carré des constantes u_{1m} . Pour un R_{cap} donné la longueur d'atténuation est courte pour les modes hybrides de fort indice alors qu'elle est plus grande lorsqu'on couple sur les modes d'ordre plus faible. Pour assurer une propagation sur de plus longues distances il est intéressant de coupler le laser avec le mode fondamental (EH_{11}). Pour un capillaire de $50 \mu\text{m}$ de rayon, la longueur d'atténuation sur le mode fondamental est de 91.63 cm tandis qu'elle devient de l'ordre de 58 m pour un capillaire de $200 \mu\text{m}$ de rayon. Plus le rayon du capillaire est petit, plus la longueur d'atténuation sur un mode m est faible.

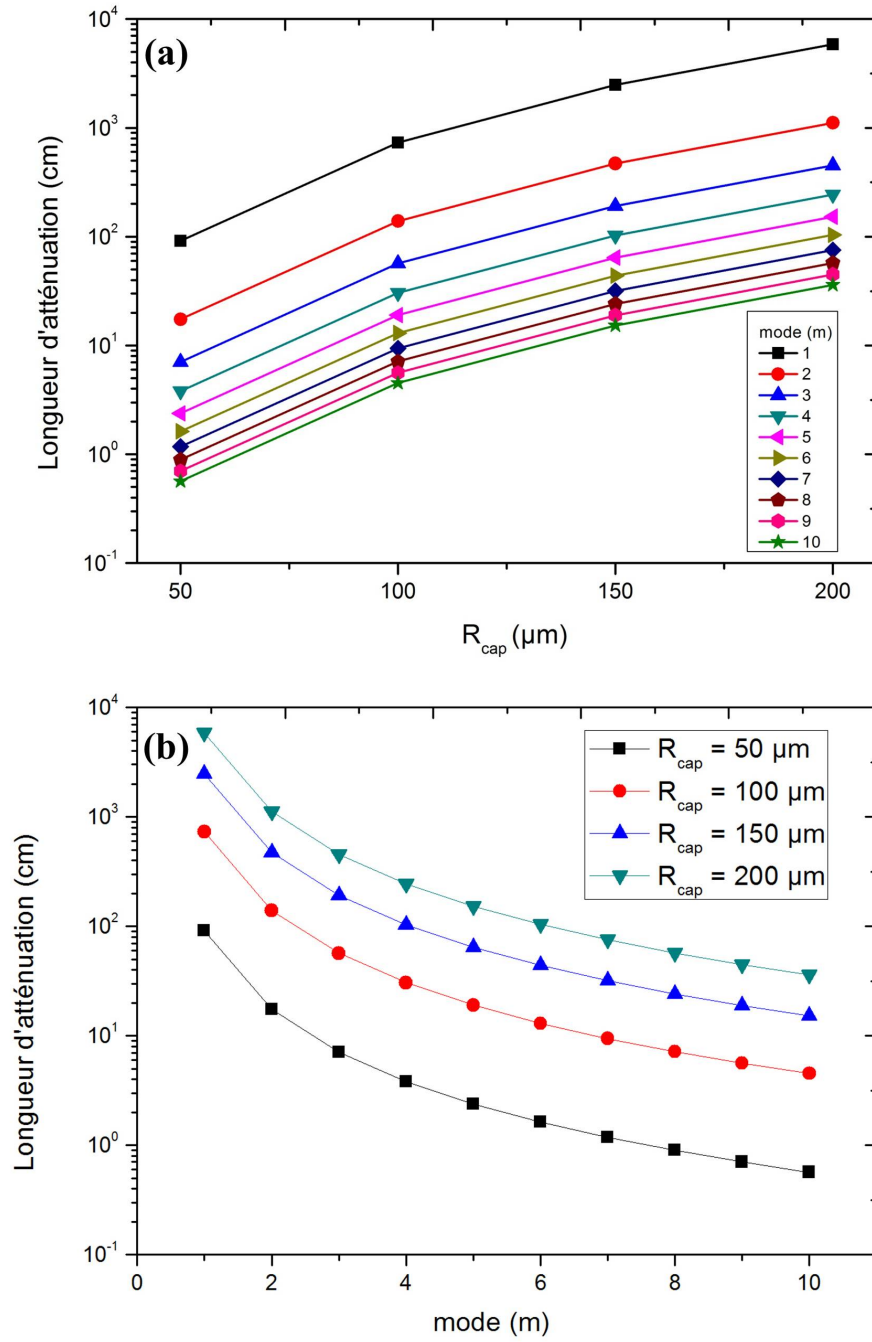


FIGURE 5.1 – (a) Longueurs d'atténuation en fonction du rayon du capillaire pour les modes $m = 1$ à 10 . (b) Longueurs d'atténuation en fonction du mode m pour quatre valeurs de rayon du capillaire $R_{cap} = 50, 100, 150$ et $200 \mu\text{m}$. La longueur d'onde du laser est de 800 nm .

5.2.3 Principe du couplage

Le couplage d'un faisceau laser dans un tube capillaire est essentiel pour avoir une bonne transmission de l'énergie laser incidente à travers ce tube [R.L.Abrams 1972]. Le coefficient de couplage peut être décomposé en deux termes. Le premier terme C_{tube} , décrit la fraction de l'énergie incidente qui rentre vraiment dans le tube capillaire (sans tenir compte des pertes sur la paroi). Le deuxième terme C_{nm} désigne la répartition de cette énergie sur les différents modes (le rapport de l'énergie sur un mode à l'énergie totale guidée). On rappelle que seuls les modes EH_{1m} sont excités ($n=1$). Dans le but de déterminer la répartition de l'énergie incidente sur le mode EH_{1m} , il suffit de multiplier le coefficient de couplage C_{1m} par le coefficient C_{tube} dans le cas $\Delta_r = \delta_0/w_0 = 0$. Avec δ_0 le paramètre caractérisant le déplacement de la tache focale par rapport au centre du capillaire, ce désalignement est responsable de la dégradation du couplage dans le tube capillaire [C. Courtois 2001, COURTOIS 2001].

Les expressions de C_{tube} et C_{1m} s'écrivent :

$$C_{tube} = \frac{\int_0^{2\pi} \int_0^{R_{cap}} |E_f|^2 r dr d\psi}{\int_0^{2\pi} \int_0^\infty |E_f|^2 r dr d\psi} \quad (5.11)$$

$$C_{1m} = \frac{(\int_0^{2\pi} \int_0^{R_{cap}} E_f J_0(u_{1m} \frac{r}{R_{cap}}) r dr d\psi)^2}{\int_0^{2\pi} \int_0^{R_{cap}} |E_f|^2 r dr d\psi \int_0^{2\pi} \int_0^{R_{cap}} J_0^2(u_{1m} \frac{r}{R_{cap}}) r dr d\psi} \quad (5.12)$$

Où $\vec{E}_f \simeq E_f(\sin\psi\vec{e}_r + \cos\psi\vec{e}_\psi)$ est le champ électrique du laser incident à l'entrée du capillaire.

5.2.3.1 Couplage d'un faisceau gaussien aux modes hybrides

Dans le cas d'un faisceau gaussien, le champ électrique au plan focal ($z=0$) s'écrit sous la forme $E_f \propto \exp(-r^2/w_0^2)(\sin\psi e_r + \cos\psi e_\psi)$. L'équation du coefficient C_{tube} et de la fraction d'énergie couplée au mode EH_{1m} pour un laser incident de profil d'intensité gaussien s'écrivent :

$$C_{tube} = \frac{\int_0^1 \exp(-2\frac{t^2}{\chi^2}) t dt}{\int_0^\infty \exp(-2\frac{t^2}{\chi^2}) t dt} \quad (5.13)$$

$$C_{1m} = \frac{8}{\chi^2 J_1^2(u_{1m})(1 - \exp(-2/\chi^2))} \left(\int_0^1 \exp(-\frac{t^2}{\chi^2}) J_0(tu_{1m}) t dt \right)^2 \quad (5.14)$$

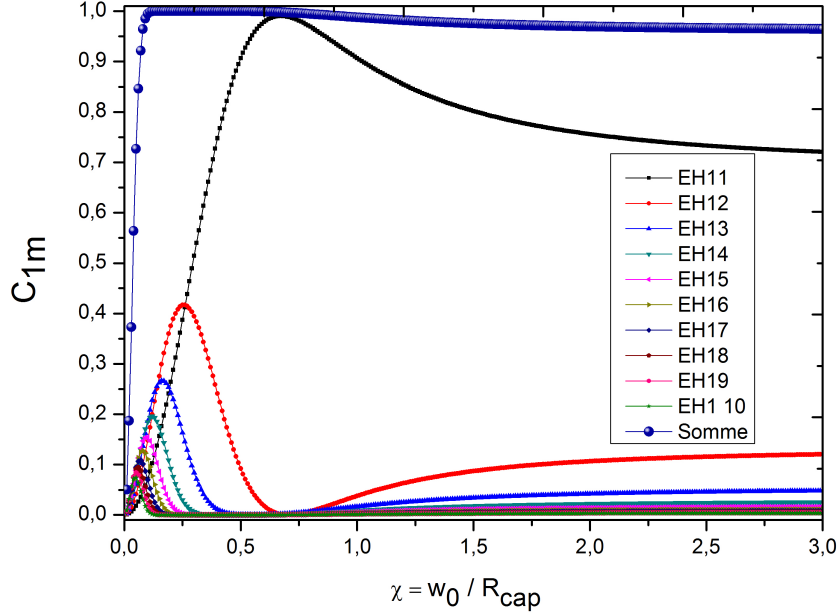


FIGURE 5.2 – Coefficient de couplage C_{1m} ($m=1$ à 10) pour une faisceau gaussien en fonction du paramètre $\chi = \frac{w_0}{R_{cap}}$. La courbe Somme représente la sommation sur m entre 1 et 10 des coefficients C_{1m} ($\sum_{m=1}^{10} C_{1m}$).

Avec $\chi = \frac{w_0}{R_{cap}}$ désignant le facteur de couplage, $t = \frac{r}{R_{cap}}$ et $\Delta_r = \frac{\delta_0}{w_0} = 0$.

La figure 5.2 représente l'évolution du terme du couplage C_{1m} en fonction du paramètre de couplage $\chi = w_0/R_{cap}$ pour les 10 premiers modes ($m = 1$ à 10). L'énergie totale correspond à la somme des énergies guidées sur les 10 modes étudiés ; elle n'est pas exactement égale à 1. Ceci est dû au fait que le nombre de modes choisis est limité. Lorsque $\chi = 0.645$, quasiment seul le mode fondamental EH₁₁ est excité. Ceci correspond à une propagation dans le tube capillaire dite monomode. La répartition de l'énergie incidente ($C_{1m}^* = C_{tube} * C_{1m}$) sur les modes EH_{1m} est représentée sur la figure 5.3. Pour le cas d'un couplage monomode ($w_0/R_{cap} = 0.645$), 98 % de l'énergie incidente est couplée au premier mode, les 2 % qui restent sont contenus dans les modes d'ordres supérieurs. Le mode fondamental reste principalement excité pour des valeurs de χ encore plus grandes. Il est également à noter que la contribution des modes d'ordres supérieurs est plus significative pour $\chi < 0.1$. Pour travailler dans le cas d'un couplage monomode il est donc souhaitable de choisir un $\chi \simeq 0.65$.

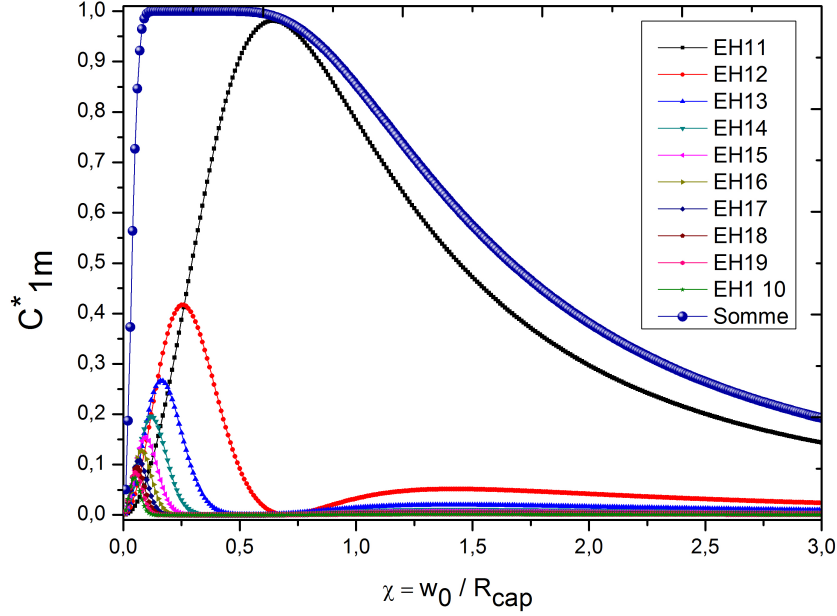


FIGURE 5.3 – Coefficient de couplage C_{1m}^* ($m=1$ à 10) pour une faisceau gaussien en fonction du paramètre $\chi = \frac{w_0}{R_{cap}}$. La courbe Somme représente la sommation sur m entre 1 et 10 des coefficients C_{1m}^* ($\sum_1^{10} C_{1m}^*$).

5.2.3.2 Couplage d'un faisceau diaphragmé aux modes hybrides

Dans le cas d'un faisceau diaphragmé, la tache focale est caractérisée par une largeur r_0 qui correspond au rayon du premier anneau sombre d'une fonction d'Airy. Le profil spatial d'intensité de la tache focale s'écrit $I \propto \left(J_1(u_{21} \frac{r}{r_0}) / u_{21} \frac{r}{r_0} \right)^2$, J_1 est la fonction de Bessel d'ordre 1 et $u_{21} = 3.831705$ correspond au premier zéro de J_1 . Pour un faisceau diaphragmé le paramètre χ devient égal à r_0/R_{cap} . Les expressions des équations de C_{tube} et C_{1m} deviennent :

$$C_{tube} = \frac{\int_0^1 \left(\frac{J_1(u_{21} \frac{t}{\chi})}{u_{21} \frac{t}{\chi}} \right)^2 t dt}{\int_0^\infty \left(\frac{J_1(u_{21} \frac{t}{\chi})}{u_{21} \frac{t}{\chi}} \right)^2 t dt} \quad (5.15)$$

$$C_{1m} = \frac{\left(\int_0^1 \frac{J_1(u_{21} \frac{t}{\chi})}{u_{21} \frac{t}{\chi}} J_0(u_{1m} t) t dt \right)^2}{\left(\int_0^1 \left(\frac{J_1(u_{21} \frac{t}{\chi})}{u_{21} \frac{t}{\chi}} \right)^2 t dt \right) \left(\int_0^1 J_0^2(u_{1m} t) t dt \right)} \quad (5.16)$$

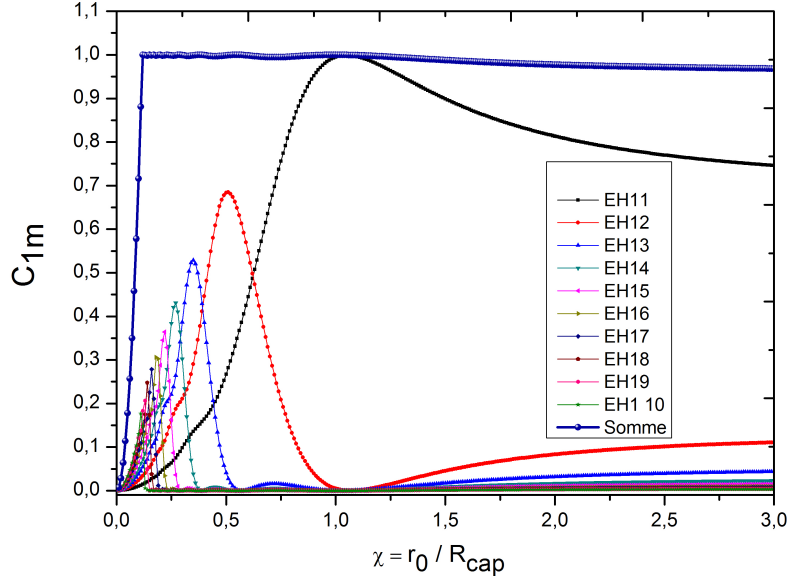


FIGURE 5.4 – Coefficient de couplage C_{1m} ($m=1$ à 10) pour une tache d’Airy en fonction du paramètre $\chi = \frac{r_0}{R_{cap}}$. La courbe Somme représente la sommation sur m entre 1 et 10 des coefficients C_{1m} ($\sum_1^{10} C_{1m}$).

Les figures 5.4 et 5.5 représentent respectivement l’évolution du coefficient de couplage C_{1m} et C_{1m}^* dans le cas d’un faisceau diaphragmé en fonction du paramètre r_0 / R_{cap} pour les 10 premiers modes ($m=1$ à 10). Le couplage monomode est possible dans le cas du couplage d’un faisceau d’Airy avec un tube capillaire seulement pour une valeur 1.05 du paramètre r_0 / R_{cap} mais avec seulement 83 % de l’énergie incidente couplée au mode EH_{11} . Les 17 % restants sont des pertes dues au profil de la tache focale présentant des anneaux filtrés en entrée du capillaire, l’énergie perdue étant alors contenue dans ces anneaux.

5.2.4 Battements de mode

Plusieurs modes sont excités dans le tube capillaire soit à cause du couplage ou suite au processus d’interaction laser-plasma. Comme la constante de phase β_{1m} (équation 5.7) diffère d’un mode à l’autre, au cours de leur propagation suivant l’axe du tube capillaire ces modes vont interférer. A une position z donnée dans le capillaire, l’intensité axiale du faisceau guidé est donnée par :

$$I(z) = \left| \sum_m^{\infty} C_m^* E_{1m} e^{iz\Delta k_m} e^{\left(\frac{z}{L_m^{att}}\right)} \right|^2 \quad (5.17)$$

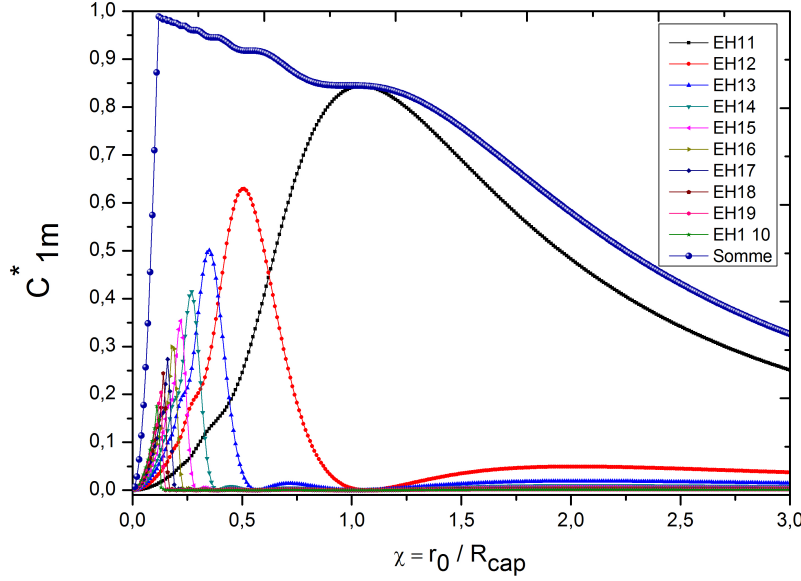


FIGURE 5.5 – Coefficient de couplage C_{1m}^* ($m=1$ à 10) pour une tache d'Airy en fonction du paramètre $\chi = \frac{r_0}{R_{cap}}$. La courbe Somme représente la sommation sur m entre 1 et 10 des coefficients C_{1m}^* ($\sum_1^{10} C_{1m}^*$).

Avec $\Delta k_m = \beta_{11} - \beta_{1m}$.

La figure 5.6 montre le résultat du calcul du profil d'intensité dans un tube capillaire de $101 \mu\text{m}$ de rayon pour le cas d'un couplage monomode ($\chi = 0.64$ pour un profil gaussien et 1.05 pour un profil d'airy). Le calcul a été effectué à l'aide d'un modèle analytique bidimensionnel (2D), l'axe (x) représente l'axe de propagation dans le capillaire et l'axe (y) correspond à l'axe radial. Les figures 5.6 (a) et (b) présentent le résultat du calcul incluant la contribution des deux premiers modes (EH_{11} et EH_{12}), l'énergie incidente du faisceau (I_{in}) est répartie entre ces deux modes.

Par contre, les profils d'intensités présentés sur les figures 5.6 (c) et (d) sont issus d'un calcul incluant la contribution des vingt premiers modes ($m = 1$ à 20). Lorsque le couplage est monomode, dans un cas idéal, l'intensité se couple majoritairement au mode fondamental hybride EH_{11} . On voit un profil d'intensité homogène sur toute la distance de propagation (cf. figures 5.6 (a) et (b)). Dans le cas réel, en tenant compte des faibles contributions des modes d'ordres supérieurs, on voit apparaître des modulations de l'intensité à l'intérieur du capillaire (cf. figures 5.6 (c) et (d)).

La figure 5.7 présente les cartes de profils d'intensité calculées pour les deux cas airy ($\chi=0.7$) et gaussien ($\chi = 0.2$). Le laser se propage dans deux capillaires de rayons respectifs $R_{cap} = 101$ et $150 \mu\text{m}$. Cette figure montre que dans le cas d'une distribution en Airy de l'énergie du laser, lorsque $\chi = 0.7$ une modulation de l'intensité à l'intérieur du capillaire est produite.

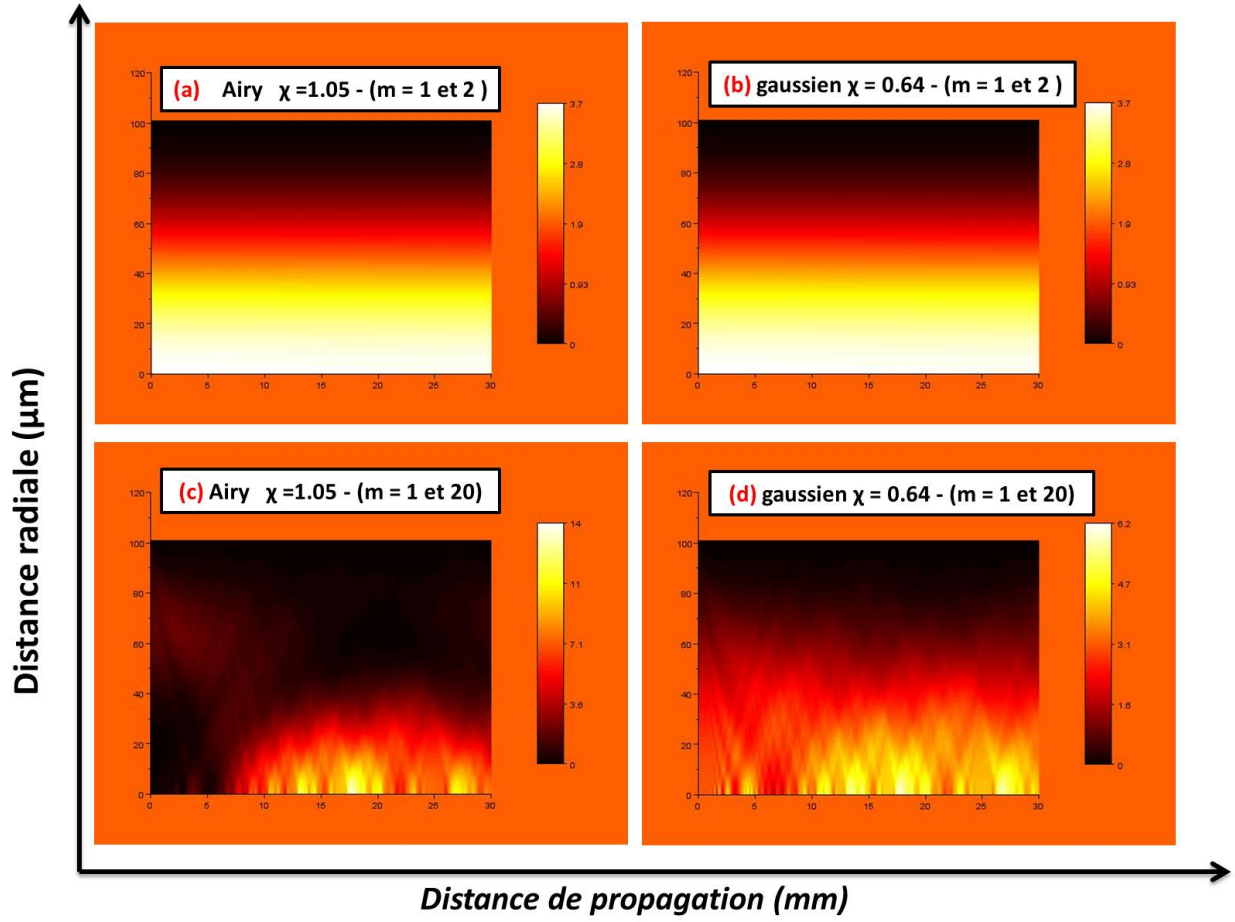


FIGURE 5.6 – Profils d'intensité calculés analytiquement pour un faisceau d'airy et un faisceau gaussien ($\lambda = 800nm$) se propageant dans un capillaire de $101 \mu m$ de rayon. Le paramètre χ étant égal à 1.05 pour le profil d'airy et 0.64 pour un profil gaussien. Les figures (a) et (b) correspondent au cas d'un calcul incluant seulement les contributions des deux premiers modes (EH_{11} et EH_{12}). Les figures (c) et (d) correspondent au cas du calcul incluant les contributions des vingt premiers modes ($m = 1$ à 20).

Cette modulation est caractérisée par une longueur appelée longueur de battement, dans ce cas, de l'ordre de quelques millimètres. Dans le cas d'une distribution gaussienne de l'énergie laser, lorsque $\chi = 0.2$ les modulations sont légèrement plus espacées. On définit la longueur de battement par la longueur qui sépare deux maximums d'intensité successifs, son expression est donnée par :

$$L_B = \frac{2\pi}{\Delta k_m} \quad (5.18)$$

Avec $\Delta k_{1m} = \beta_{11} - \beta_{1m}$

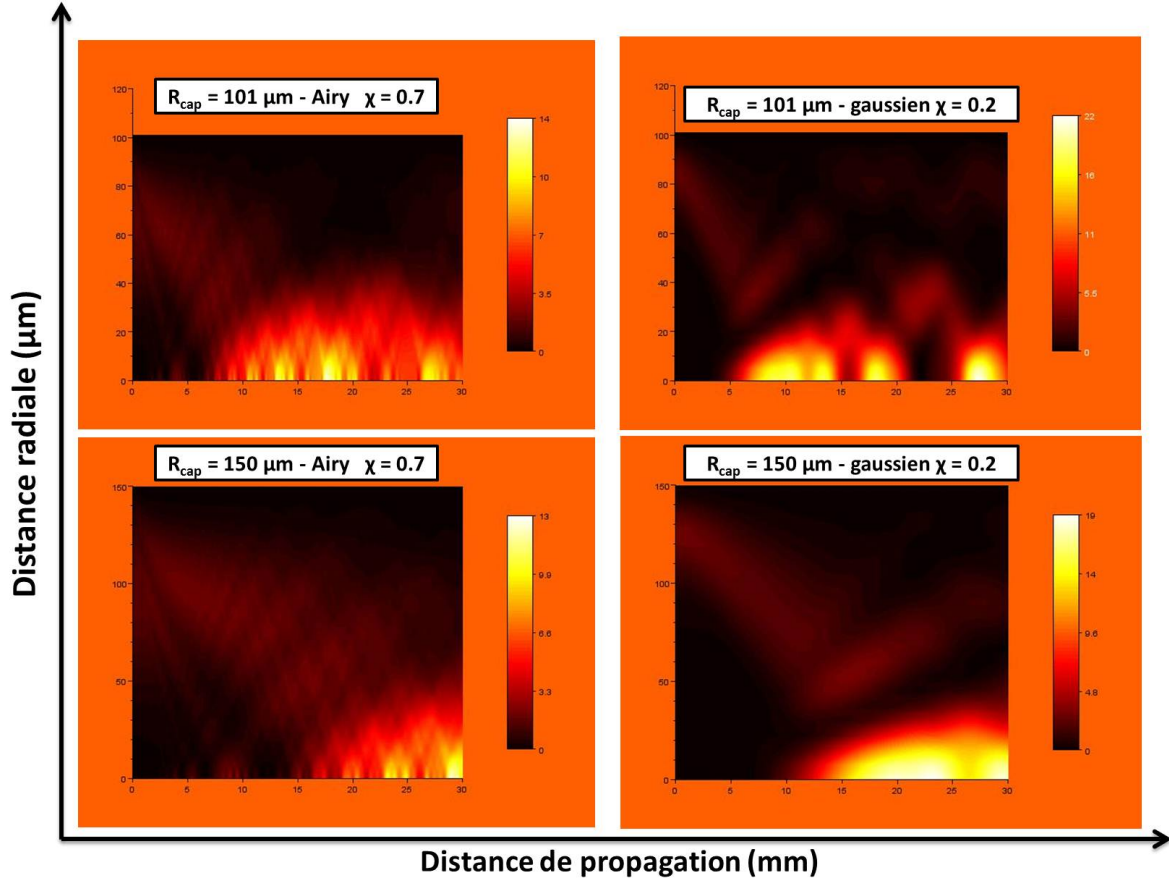


FIGURE 5.7 – Profils d'intensité calculés analytiquement pour un faisceau d'airy et gaussien ($\lambda = 800nm$). Le paramètre χ étant égal à 0.7 pour le profil d'airy et 0.2 pour un profil gaussien. Deux rayons du tubes capillaires différents ont été étudié ($R_{cap} = 101$ et $150 \mu m$).

$$L_B = \frac{8\pi^2 R_{cap}^2}{\lambda(u_{1m}^2 - u_{11}^2)} \quad (5.19)$$

La longueur de battement de modes dépend du rayon du capillaire et du nombre des modes qui interfèrent. Pour le même tube capillaire plus le nombre de modes couplés est grand plus la longueur de battement est faible. La périodicité diminue pour des rayons de capillaires plus grands, cet effet est illustré sur la figure 5.7. Le calcul effectué ci-dessus présente des limitations. D'abord on assume que l'intérieur du tube capillaire est vide. Ceci ne peut être valable que dans le cas où on est à faibles pressions de gaz et à faibles degrés d'ionisation car une forte densité électronique ou atomique peut introduire une modification du profil de l'intensité. Quand l'ionisation est très importante, l'auto-focalisation du laser (effet Kerr) peut avoir lieu. La deuxième limitation du calcul est qu'il ne tient pas compte de la variation temporelle de l'impulsion. L'impulsion initiale qui entre dans le tube capillaire sera divisée en plusieurs impulsions à travers

le couplage, ces impulsions se déplacent avec des vitesses de groupe légèrement différentes. La vitesse de groupe pour les modes hybrides s'exprime comme :

$$V_g = \left(\frac{\partial \beta_{1m}}{\partial \omega} \right)^{-1} = c \left(1 + \frac{1}{2} \left(\frac{u_{1m} \lambda}{2\pi R_{cap}} \right)^2 \right)^{-1} \quad (5.20)$$

Après une certaine distance d_{1m} de propagation dans le capillaire, si les impulsions se séparent d'une durée supérieure à la durée d'impulsion $\Delta\tau$ elles ne peuvent plus interférer. Cette distance est donnée par :

$$d_{1m} = \frac{\Delta\tau (V_{g11} V_{g1m})}{V_{g11} - V_{g1m}} \quad (5.21)$$

d_{1m} (cm) \ R_{cap}	101 μm	150 μm
d_{12}	63.384	142.61
d_{13}	37.497	84.370
d_{14}	25.961	58.412
d_{15}	19.852	44.668

TABLE 5.2 – Distances de propagation qui séparent le mode EH_{11} aux modes EH_{1m} ($m = 2, 3, 4, 5$) par une durée égale à 45 fs.

Le tableau 5.2 résume les valeurs calculées de la distance de propagation qui donne lieu à un décalage temporel de 45 fs entre le mode EH_{11} et les modes EH_{12} , EH_{13} , EH_{14} , EH_{15} . La durée d'impulsion de 45 fs correspond à la durée des impulsions utilisées pour les résultats présentés dans ce chapitre. Les distances d_{1m} ont été calculées pour deux rayons de capillaire $R_{cap} = 101$ et $150 \mu\text{m}$. Il est à noter que les distances au cours desquelles les impulsions des différents modes couplés ne peuvent plus interférer sont relativement grandes par rapport aux longueurs des capillaires que nous avons utilisés pour nos expériences; nous n'en tiendrons pas compte dans les calculs à venir.

Ces distances sont d'autant plus grandes pour des rayons de capillaires plus élevés. Ayant la vitesse de groupe la plus grande (0.999986c, 0.999996c, 0.99999c) respectivement pour ($R_{cap} = 101$ et $150 \mu\text{m}$), le mode EH_{11} est le premier à interagir avec les atomes du gaz.

5.3 Génération d'harmoniques dans des tubes capillaires

5.3.1 Accord de phase des harmoniques dans un capillaire

L'accord de phase dans le cadre de la génération d'harmoniques en propagation libre (cellule ou jet de gaz) se produit quand les photons XUV se propagent en phase, c'est à dire quand il se produit une sommation constructive du signal généré tout au long du milieu générateur. Dans une géométrie de propagation libre, la divergence du faisceau laser limite la zone d'interaction entre les atomes de gaz et le laser. Pour améliorer l'efficacité de conversion on a donc intérêt à augmenter la longueur de Rayleigh tout en maintenant une intensité suffisante dans

les zones d'interaction (voir les chapitres 1 et 2). A la fin des années 1990, cette limitation a été contournée par la génération des harmoniques dans un guide d'onde (tube capillaire) avec des impulsions d'énergies inférieures au mJ [Andy Rundquist 1998]. Dans le cas d'une propagation guidée, la lumière couplée au tube capillaire n'est plus focalisée en un point comme pour la génération en propagation libre mais se guide sur toute la longueur du milieu par réflexion sur la paroi cœur/gaine. Dans ce cas, l'accord de phase est obtenu sur une longueur d'interaction plus étendue suite à la compensation de la dispersion du capillaire et la dispersion électronique par la dispersion atomique. Dans ce cas, le vecteur d'onde de désaccord est donné par $\Delta k = k_q - qk_f$ avec k_f le vecteur d'onde du fondamental et k_q le vecteur d'onde de l'harmonique q. L'expression totale en fonction des trois termes décrits ci-dessus est donnée par :

$$\Delta k = \Delta k_{atm} + \Delta k_{elec} + \Delta k_{guidage} \quad (5.22)$$

L'indice du milieu s'exprime comme :

$$n = 1 + P(\delta(\lambda)(1 - \tau) - \frac{\tau N_{atm} r_e \lambda^2}{2\pi}) + (1 - \tau)n_2 I \quad (5.23)$$

La relation qui lie l'indice du milieu au module du vecteur d'onde est $k = n \frac{\omega}{c}$. Le vecteur d'onde du fondamental se propageant à travers le guide d'onde creux pour le mode d'indice le plus faible est donc donné par cette équation :

$$k \simeq \frac{2\pi}{\lambda} + \frac{2\pi P(1 - \tau)\delta(\lambda)}{\lambda} + (1 - \tau)n_2 I - P\tau N_{atm} r_e \lambda - \frac{u_{11}^2 \lambda}{4\pi a^2} \quad (5.24)$$

où λ est la longueur d'onde de la lumière guidée dans le guide, P est la pression du gaz, τ est la fraction ionisée, $\delta(\lambda)$ est une fonction qui correspond aux caractéristiques de dispersion du gaz utilisé, N_{atm} est la densité des atomes neutres à pression atmosphérique, r_e est le rayon électronique, u_{11} est la première racine de la fonction de Bessel J_0 et R_{cap} est le rayon du guide d'onde [C. G. Durfee 1999].

La contribution de l'indice de réfraction non linéaire n_2 ne peut jouer un rôle que pour des intensités très élevées provoquant des effets non linéaires (effet Kerr [Leonard 1987]). En négligeant sa faible contribution, l'équation 5.24 devient :

$$k \simeq \frac{2\pi}{\lambda} + P \left[\frac{2\pi(1 - \tau)\delta(\lambda)}{\lambda} - \tau N_{atm} r_e \lambda \right] - \frac{u_{11}^2 \lambda}{4\pi R_{cap}^2} \quad (5.25)$$

Pour déterminer les expressions des vecteurs d'onde k_f et k_q il suffit de remplacer λ dans l'équation 5.25 respectivement par λ_f et λ_q . Sachant que $\lambda_q = \frac{\lambda_f}{q}$ et que $q\lambda_0 \gg \lambda_q$ l'expression du vecteur d'onde de désaccord 5.22 devient :

$$\Delta k \simeq \frac{q\lambda_f u_{11}^2}{4\pi R_{cap}^2} + P \left(\tau N_{atm} r_e q \lambda_f - \frac{2\pi(1 - \tau)\Delta(\delta)}{\lambda_q} \right) \quad (5.26)$$

avec $\Delta(\delta) = \delta(\lambda_f) - \delta(\lambda_q)$

L'équation 5.26 montre que les deux termes de dispersion électronique et atomique dépendent de la pression tandis que le terme de guidage est une constante et ne joue pas un rôle sur l'accord de phase en configuration guidée. Les premières études de l'accord de phase des harmoniques d'ordres élevés générées dans des guides d'ondes ont été effectuées par Rundquist et al

[Andy Rundquist 1998] et Durfee et al [C. G. Durfee 1999]. Expérimentalement, l'optimisation du flux harmonique a été effectuée en contrôlant la pression du gaz à l'intérieur du guide d'onde creux. Il est donc à noter que pour un guide d'onde les paramètres permettant de contrôler l'accord de phase sont la pression du gaz et le rayon du capillaire.

5.3.2 Limite de l'accord de phase des harmoniques dans un capillaire

Il y a deux limitations majeures à l'accord de phase en géométrie guidée : l'ionisation et l'absorption [E. Constant 1999]. Pour une faible ionisation, la technique d'optimisation par contrôle de la pression se traduit par une compensation des termes de dispersion électronique et du guidage par le terme de dispersion atomique qui est de signe opposé. Pour des intensités laser élevées, l'ionisation évolue rapidement au cours de l'impulsion induisant à une augmentation de la densité électronique dans le milieu générateur. Dans ce cas, l'accord de phase ne peut être obtenu que pour des fenêtres temporelles limitées dans l'impulsion. Lorsque l'accord de phase est atteint, le signal harmonique augmente quadratiquement avec la longueur de milieu (l_{cap}) jusqu'à ce qu'il soit limité par l'absorption d'harmonique par le milieu gazeux. La résolution du terme dépendant de la pression de l'équation 5.26 donne la fraction d'ionisation limite τ_{limite} . Cette ionisation limite a été déterminée sans tenir compte du terme de déphasage dû au guidage puisqu'il est de même signe que le terme de dispersion électronique donc l'équation 5.27 donne une limite supérieure.

$$\tau_{limite} = \left(\frac{N_{atm} r_e \lambda_f^2}{2\pi \Delta(\delta)} + 1 \right)^{-1} \quad (5.27)$$

Les valeurs typiques de la fraction d'ionisation limite pour les trois gaz rares He, Ne et Ar sont récapitulées dans le tableau 5.3 [A. R. Rundquist 1998]. On suppose que l'ionisation limite est atteinte pour le maximum d'une impulsion de 25 fs de durée et de 800 nm de longueur d'onde. Les fractions d'ionisation sont calculées avec les taux ADK [N.P. Delone 1998].

Gaz	τ_{limite} (%)	q_{max}	E_q (eV)
He	0.5	91	141.05
Ne	1.1	69	106.95
Ar	4.8	35	54.25

TABLE 5.3 – Valeurs limites des fractions d'ionisation pour l'ordre maximale généré dans les trois types de gaz rares. La longueur d'onde du laser fondamentale est 800 nm et la durée d'impulsion est de 25 fs.

Malgré ces nombreux avantages, l'accord de phase de la génération d'harmoniques dans des guides d'onde est limité à des taux relativement faibles d'ionisation. Comme montré sur le tableau 5.3, pour une impulsion de 25 fs, l'émission XUV est limitée à des énergies de l'ordre de 100 eV. Pour des taux d'ionisation plus importants que τ_{limite} , il devient impossible d'atteindre l'accord de phase. Le signal harmonique est donc considérablement réduit à cause des interférences destructives entre des dipôles harmoniques générés dans des positions différentes

du guide d'onde. Il existe deux moyens pour réussir à générer des ordres harmoniques plus élevés sans être limité par le problème de la forte ionisation dans le milieu. La première méthode consiste à utiliser des impulsions de pompe de durées plus courtes que celles utilisées (de 25 à 50 fs). D'un côté, la faible durée d'impulsion présente une faible probabilité d'ionisation avant le maximum de l'impulsion. D'un autre côté, comme la génération ne peut se produire que sur un demi-cycle optique, plus la durée d'impulsion est faible plus le nombre de demi cycle est faible ce qui permet de maintenir un faible degré d'ionisation. L'inconvénient de cette méthode réside dans la difficulté technique de génération des courtes impulsions.

La deuxième méthode part aussi sur le même principe de diminution des demi-cycles optiques mais consiste à utiliser une longueur d'onde fondamentale plus grande [A. Paul 2006] [J. Zhou 1996]. Ceci peut s'expliquer par la loi du cutoff (l'énergie cinétique de l'électron varie comme une puissance carrée de la longueur d'onde) où le fait d'augmenter la longueur d'onde de pompe impose à l'électron de passer plus du temps dans le champ laser et donc d'acquérir une énergie cinétique plus élevée. Lors de sa recombinaison il donne alors lieu à un photon plus énergétique. L'inconvénient de l'utilisation des longueurs d'onde plus grandes réside dans les difficultés des techniques de conversion optique et aussi dans la faible efficacité de génération.

Finalement pour augmenter l'énergie des harmoniques, une possibilité est d'augmenter l'énergie dans le fondamental. Ceci peut éventuellement engendrer des effets non-linéaires d'auto-modulation de phase ou d'effet Kerr [Leonard 1987]) sur la face d'entrée du guide d'onde et sur la paroi cœur/gaine.

5.3.3 Quasi accord de phase des harmoniques dans un capillaire

5.3.3.1 Introduction au quasi accord de phase

Un des principaux thèmes de recherche dans la génération d'harmoniques d'ordres élevés consiste à améliorer l'accordabilité spectrale de cette source et de son flux de photon produit surtout quand le processus est poussé vers les courtes longueurs d'onde. Or comme montré dans la partie précédente, l'accord de phase obtenu par l'optimisation de la pression augmente considérablement l'efficacité de cette source. Cet accord de phase est limité à des fractions d'ionisation relativement faibles. Cependant, il a été démontré que l'utilisation des techniques du quasi accord de phase (Quasi Phase matching, QPM en abréviation anglaise) des harmoniques permet de surmonter cette limitation.

Le quasi-accord de phase a été proposé pour la première fois en 1962 par Armstrong et al [J.A. Armstrong 1962] peu de temps après la naissance de l'optique non linéaire. Ils ont proposé un schéma de correction de phase de façon à ce que le déphasage entre le fondamental et les harmoniques soit périodiquement corrigé par l'introduction d'une périodicité de la non-linéarité du milieu. La longueur de cette périodicité est la longueur de cohérence. Je rappelle que la longueur de cohérence est la longueur pour laquelle le faisceau laser et le faisceau harmonique sont déphasés de π . Le quasi accord de phase peut ainsi améliorer considérablement l'efficacité de conversion. Cette correction périodique peut prendre des formes multiples, mais la technique la plus efficace parmi celles-ci est l'inversion périodique de l'orientation du cristal non linéaire de façon à introduire un déphasage de π pour chaque longueur de cohérence.

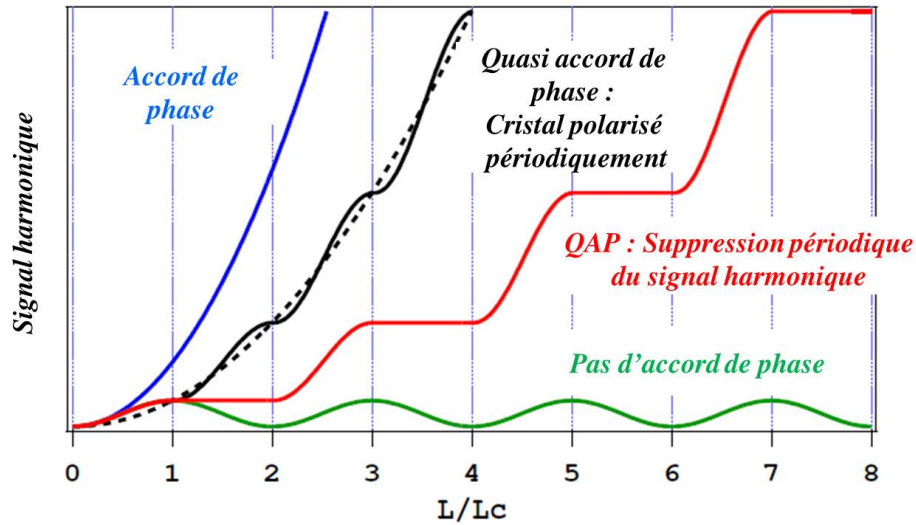


FIGURE 5.8 – Évolution du signal harmonique en fonction de la distance de propagation dans le cas d'un bon accord de phase (courbe bleu), quasi-accord de phase avec une inversion périodique de la structure du matériau non-linéaire (courbe noir), quasi-accord de phase via une suppression du signal (courbe rouge), absence d'accord de phase (courbe verte).

Ceci permet de détruire les interférences destructives ayant lieu pour chaque l_{coh} et donc de cumuler de manière quasi-continue le signal généré sur plusieurs paliers. La démonstration expérimentale du quasi-accord de phase n'a pas eu lieu jusqu'à ce que la technologie associée à la fabrication des matériaux structurés avec précision ait été mise en œuvre [D. Feng 1980, M. M. Fejer 1992]. La figure 5.8 illustre l'évolution du signal harmonique en fonction de la distance de propagation dans le milieu de génération. La courbe bleue montre le cas de l'accord de phase, l'absence de l'accord de phase est illustrée par la courbe verte. La courbe noire correspond à la croissance du signal harmonique pour le cas d'une polarisation périodique du matériau non linéaire. La courbe en pointillé montre que la croissance du signal en fonction de la distance de propagation est quadratique, comme pour le cas d'un bon accord de phase. La courbe rouge montre une version du quasi accord de phase un peu différente, au lieu d'inverser le déphasage pour chaque longueur de cohérence, la génération est supprimée pour les valeurs paires multiples de la longueur de cohérence. Il n'y a que les interférences constructives qui sont maintenues. Il est à noter que l'intensité maximale du signal est atteinte pour le double de la distance de propagation par rapport à la méthode de quasi accord de phase par inversion périodique de la structure des matériaux non-linéaires.

5.3.3.2 Différentes approches du quasi accord de phase

La réalisation du quasi accord de phase à l'aide d'une structure cristalline non linéaire périodique n'est pas applicable pour la génération d'harmoniques à cause de la forte absorption du rayonnement XUV par ces milieux. Plusieurs méthodes de quasi accord de phase des harmo-

niques ont été proposées depuis, mais seulement quelques démonstrations expérimentales sont parues. La première approche s'appuie sur l'utilisation des milieux non linéaires ayant une modulation périodique de la densité de gaz. Shkolnikov et al ont publié une discussion théorique du quasi accord de phase pour ce type de milieu [P. Shkolnikov 1994]. Les simulations numériques prédisent d'importantes améliorations de l'efficacité de conversion. En 2007 Seres et al [J. Seres 2007] ont démontré ce résultat en propagation libre : un certain nombre de jets de gaz ont été associés pour former un milieu de densité modulée. Un facteur 4 d'amélioration du signal a été observé pour de très courtes longueurs d'onde (2-5 nm). Or pour la géométrie de propagation libre, la longueur de milieu est limitée par la longueur de la zone de Rayleigh, ce qui limite par conséquent le nombre de jets de gaz utilisés efficacement pour améliorer le signal XUV produit.

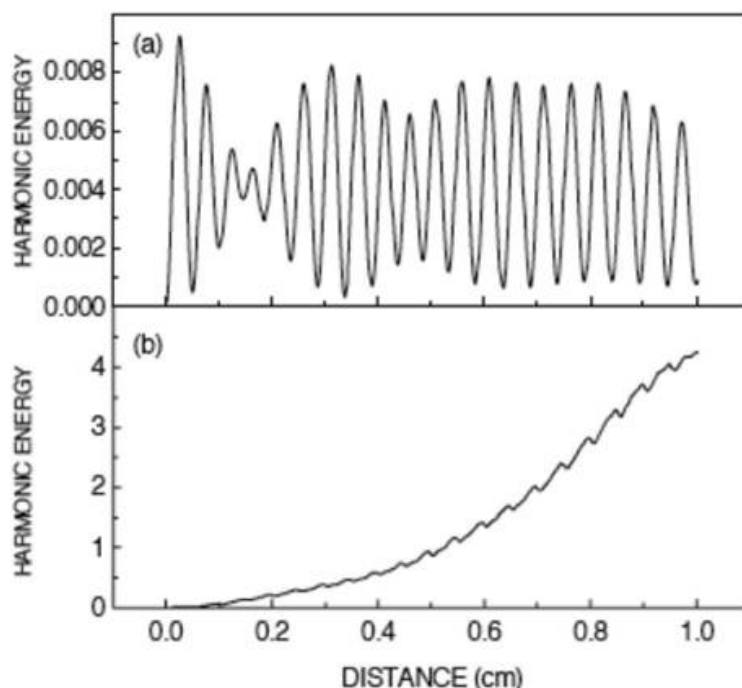


FIGURE 5.9 – Évolution du signal calculé pour l'harmonique 95 générée dans 1 Torr d'argon dans deux structures différentes : (a) structure non modulée et (b) structure modulée. La durée d'impulsion est de 15 fs et l'intensité laser est de l'ordre de $7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. La figure est extraite de la référence [I. Christov 2000].

Une seconde approche basée sur la technique du quasi accord de phase des harmoniques par modulation de l'intensité laser a été proposée pour la première fois en 2000 par Ivan Christov et al [I. Christov 2000]. L'idée de cette technique est d'utiliser des guides d'ondes creux de diamètres intérieurs périodiquement modulés. Une fois le faisceau laser couplé, son intensité est modulée au cours de la propagation à travers la modulation du diamètre intérieur d'un tube capillaire. Les calculs d'Ivan Christov et al ont montré qu'une modulation de période égale à la longueur de cohérence permet au quasi-accord de phase de se produire. La figure 5.9 montre les calculs

effectués du signal de l'harmonique 95 en fonction de la distance de propagation en utilisant une impulsion de 15 fs de durée. L'intensité laser est de l'ordre de $7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et la pression d'argon est de 1.33 mbar. La figure 5.9(a) montre le résultat pour une structure non modulée, les oscillations observées correspondent à la variation de l'accord de phase en fonction de la longueur du milieu. Le signal se construit sur une longueur de cohérence puis se détruit sur la deuxième en raison des interférences destructives. Le cas (b) correspond au calcul effectué du signal de la même harmonique générée cette fois-ci dans un guide d'onde creux avec une modulation sinusoïdale périodique de 0.5 mm du cœur intérieur. La structure modulée engendre une amélioration remarquable du signal harmonique. Cette figure est extraite de la référence [I. Christov 2000]. L'expression du vecteur d'onde Δk dans le cas d'un quasi accord de phase est obtenue par analogie avec la partie précédente où j'ai présenté Δk pour un tube capillaire non modulé (équation 5.26) [A. Paul 2006] :

$$\Delta k = \Delta k_{\text{guidage}} + \Delta k_{\text{elec}} + \Delta k_{\text{atom}} - K_m \quad (5.28)$$

La nouvelle condition d'accord de phase est donc donnée par :

$$\Delta k = \frac{q\lambda_f u_{11}^2}{4\pi R_{\text{cap}}^2} + P \left(\tau N_{\text{atm}} r_{eq} \lambda_f - \frac{2\pi(1-\tau)\Delta(\delta)}{\lambda_q} \right) - \frac{2\pi m}{L_{QPM}} \quad (5.29)$$

Avec $K_m = 2\pi m/L_{QPM}$, où L_{QPM} est la périodicité et « m » correspond à l'ordre du quasi accord de phase. D'après l'équation 5.29 on voit que le signal est optimisé quand $\Delta k = 0$. D'après l'équation 5.29 il apparait que plus la périodicité est grande (grande valeur de k_m) plus des taux d'ionisation élevés sont compensés.

Trois ans plus tard la même équipe a publié la première démonstration expérimentale du quasi-accord de phase dans une structure modulée [A. Paul 2003]. Le laser système laser Ti : saphir utilisé délivrait des impulsions de 1 à 3 mJ d'énergie centrées à 760 nm et de 25 fs de durée. Ce laser a été guidé dans des tubes capillaires de 150 μm de diamètre et de 2.5 cm de longueur maximale.

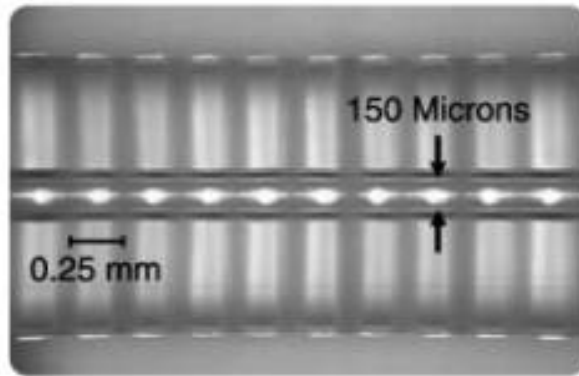


FIGURE 5.10 – Photographie d'un tube capillaire présentant une périodicité de modulation de 2.5 mm. Image extraite de la référence [E. A. Gibson 2003].

Les tubes capillaires utilisés présentaient une structure périodiquement modulée, ces modulations à peu près sinusoïdales avaient une périodicité allant de 0.25 à 1 mm. La figure 5.10, extraite de la référence [E. A. Gibson 2003], montre une photo d'un capillaire modulé avec une périodicité de 0.25 mm. La figure 5.11 montre quelques résultats obtenus à partir de ces expériences par l'équipe de Kapteyn et Murnane. Les figures 5.11 (a), (b) et (c) présentent les spectres harmoniques obtenus respectivement dans l'hélium, le néon et l'argon pour une structure non modulée (courbes bleues) et modulée (courbes rouges). Les spectres du régime du guide d'onde non modulé ont été enregistrés pour de bonnes conditions d'accord de phase. Ces résultats montrent que grâce à la structure modulée (périodicité égale à 0.25 mm) du tube capillaire le flux mesuré est 2 à 5 fois plus grand que celui mesuré dans des tubes capillaires non modulés. L'effet de la variation de la périodicité de modulation a aussi été étudié et illustré sur la figure 5.11 (d). Cette figure montre une comparaison entre le signal XUV généré dans l'hélium pour trois valeurs de périodicité de modulation dans le tube capillaire (1, 0.75 et 0.5 mm), le symbole ($\wedge$) désigne la longueur de quasi accord de phase (L_{QPM}). Plus la longueur d'onde de la modulation est courte et plus l'ordre harmonique observé est élevé. Ceci est expliqué par le fait que plus les modulations sont rapprochées, plus l'ionisation est efficacement compensée.

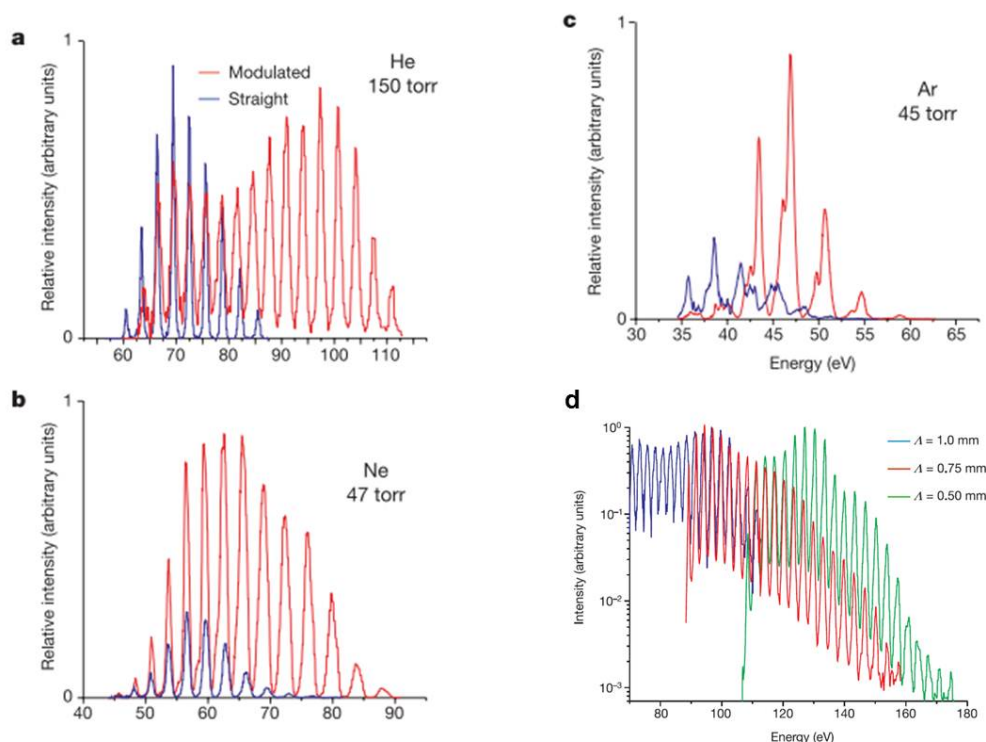


FIGURE 5.11 – Résultats du quasi accord de phase des harmoniques obtenu par [A. Paul 2003] et [E. A. Gibson 2003].

La méthode de génération d'harmoniques avec réalisation d'un quasi accord de phase dans des tubes capillaires de structure modulée est donc un outil prometteur de l'amélioration du flux

de photons harmoniques pour des énergies XUV élevées. Cependant, cette méthode est limitée du point de vue de la variation de la modulation nécessaire ou de l'adaptation des paramètres de génération avec la modulation souhaitée. Un deuxième facteur limitant cette technique est la difficulté rencontrée pour la fabrication de ces structures, d'autant qu'il est souhaitable d'augmenter la fréquence spatiale de la modulation comme indiqué dans le paragraphe précédent. Une solution beaucoup plus intéressante consiste à utiliser des méthodes permettant d'adapter en temps réel la périodicité de modulation souhaitée de l'intensité laser à l'intérieur du tube capillaire. Au sein de la même équipe de Kapteyn et Murnane, une méthode de deux faisceaux contre-propageants à travers le tube capillaires a été réalisée et a montré une bonne amélioration du flux de photons pour des harmoniques de courtes longueurs d'onde [X. Zhang 2007]. Comme les autres techniques, ce type de quasi accord de phase présente l'inconvénient d'un alignement délicat et dangereux pour le système laser dans le cas où une fuite du faisceau se contre-propageant pourrait être réinjectée dans la chaîne laser. Une autre approche consiste à utiliser la modulation de l'intensité laser par le tube capillaire via des battements entre différents modes de couplage avec le faisceau fondamental. Cette méthode a démontré de nouveaux résultats de quasi accord de phase [M. Zepf 2007], [B. Dromey 2007]. Je vais détailler cette méthode ainsi que les résultats obtenus dans le paragraphe suivant.

5.3.3.3 Quasi accord de phase avec battement de modes

Contrairement aux capillaires ayant un rayon interne modulé, les modulations de l'intensité laser à l'intérieur du capillaire peuvent être créées par sélection des conditions de couplage qui donnent lieu à un battement de modes. Cette technique du quasi accord de phase a été étudiée ces dernières années. Le battement de modes permet d'introduire une modulation de l'intensité tout au long du tube capillaire ainsi qu'une modulation de la phase intrinsèque. Les variations d'intensité peuvent affecter fortement l'émission harmonique de plusieurs façons. L'intensité locale détermine le taux d'ionisation, et l'intensité du dipôle atomique : la génération d'harmoniques sera ainsi limitée aux régions de fortes intensités. Pour une génération d'harmoniques efficace, l'idéal est de pouvoir contrôler la modulation de façon à ce que la phase du fondamental soit la même pour chaque région de génération. Ce type de quasi accord de phase permet de générer des harmoniques plus élevées puisque les harmoniques proches du cutoff nécessitent des intensités laser plus élevées pour être générées efficacement, donc des niveaux d'ionisation plus élevés qui bénéficient de la modulation.

En début de l'année 2007, T.Pfeifer et M.C.Downer ont publié des résultats expérimentaux dans le domaine infrarouge d'une observation expérimentale de battement de mode dans un guide d'onde creux ainsi qu'une modélisation numérique [Pfeifer 2007]. Ce battement est le résultat d'une excitation de plus qu'un mode propre du tube capillaire conduisant à une modulation périodique de la répartition de l'intensité radiale du faisceau laser. Nous observons, tout au long du tube capillaire (dans ce cas $R = 25 \mu\text{m}$) des étincelles de plasma dues à une forte ionisation. Ceci est une preuve de réalisation de la modulation d'intensité par le contrôle de la taille de la tache focale à l'entrée du capillaire (voir la figure 5.12). La périodicité de battement observée est d'environ 2.6 mm ; ce résultat est en bon accord avec les simulations effectuées en tenant compte d'un battement entre les deux premiers modes EH_{11} et EH_{12} . Leur résultat a été présenté comme un moyen plus souple pour la mise en œuvre de la technique du quasi accord

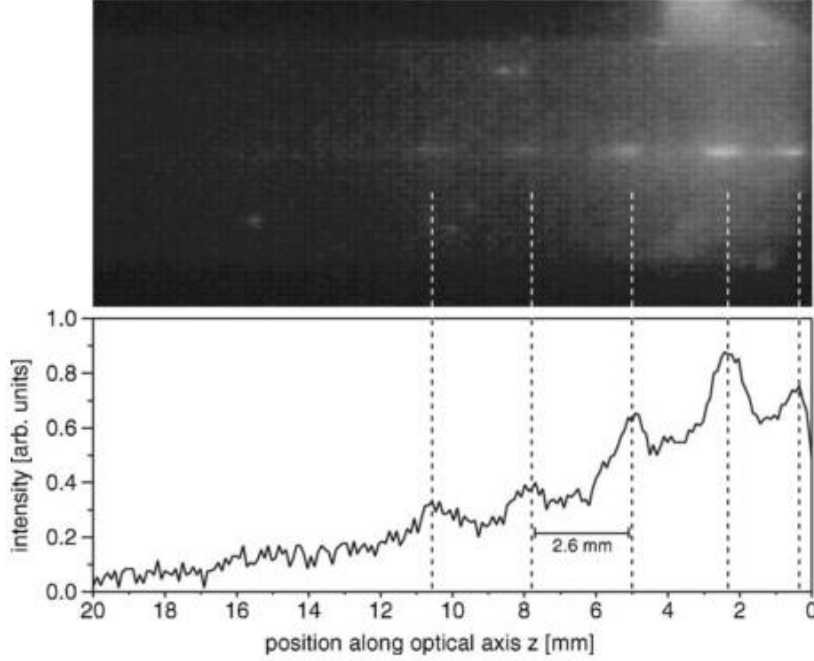


FIGURE 5.12 – Photographie présentant les endroits de forte ionisation tout au long du tube capillaire résultants d’une modulation de l’intensité par battements de modes du faisceau dans le tube capillaire. Ce plasma est généré dans 1 bar d’argon par un laser IR ($\lambda = 800\text{nm}$). La périodicité de 2.6 mm a été confirmée par le calcul présenté sur la même la figure, les modes considérés sont les modes EH_{11} et EH_{12} . Cette figure est extraite de la référence [Pfeifer 2007].

de phase par rapport à l’utilisation d’une structure de tube capillaire de rayon interne modulé. Le battement de modes effectué pendant cette expérience était limité aux deux premiers modes EH_{11} et EH_{12} . Ceci présente, pour un rayon de capillaire donné, une limitation au niveau de la périodicité introduite dans le tube capillaire, donc une limitation des régions de génération.

Quelques mois plus tard les premiers résultats de quasi accord de phase via le battement de modes ont été obtenus par l’équipe de S.M.Hooker [B. Dromey 2007]. La figure 5.13 (i) représente la modélisation du battement de modes entre les deux modes d’égale intensité ($m = 1$ et 20) dans un capillaire de rayon $90\text{ }\mu\text{m}$. On observe des maxima du signal harmonique correspondant aux interférences constructives entre ces modes. La figure 5.13 (ii) montre une comparaison de la modélisation de l’intensité axiale et du signal XUV obtenus pour deux couplage différents : un profil gaussien $\chi = 0.64$ (a, c et e) et un profil d’airy $\chi = 0.2$ (b, d ,f). L’existence des pics d’intensité espacés par une distance (L_B) permet de conduire à un quasi accord de phase, et donc à une augmentation rapide du signal harmonique. Ce signal a été calculé pour l’harmonique 201 du 800 nm générée dans 20 mbar d’argon par une impulsion de 40 fs de durée. Le maximum est obtenu en ajustant l’intensité en entrée du capillaire ainsi que la pression du gaz pour atteindre la condition $L_B \simeq 2 L_{coh}$. Peu de temps après une deuxième publication de la même équipe est parue [M. Zepf 2007], dans laquelle les auteurs ont présenté une démonstration expérimentale de la génération d’harmoniques dans des ions d’argon avec la technique du quasi accord de

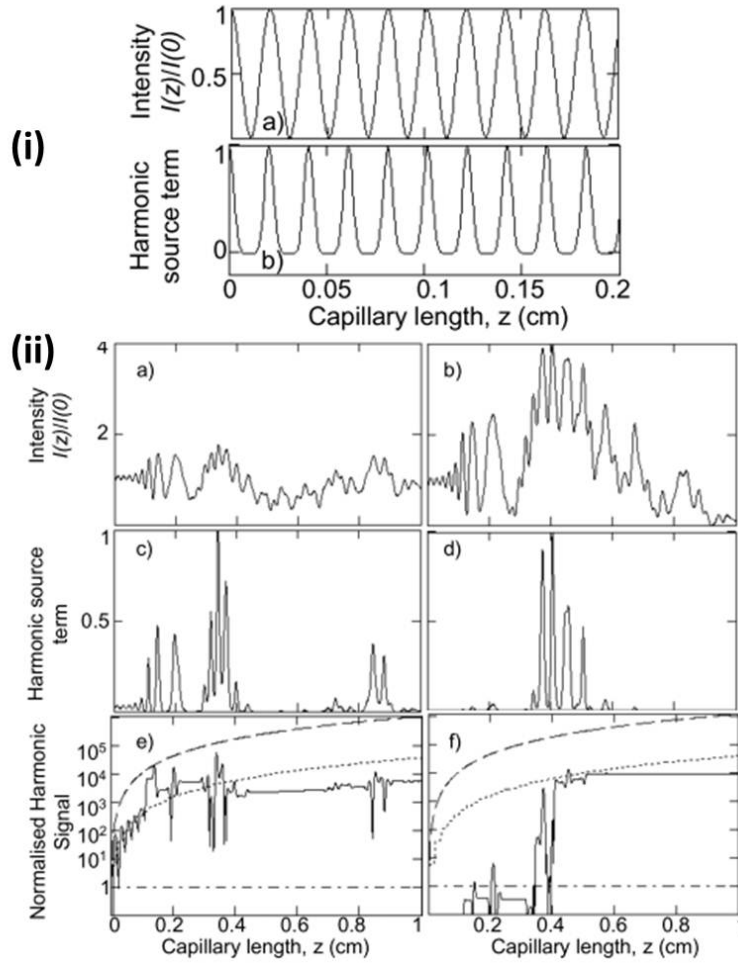


FIGURE 5.13 – Simulation numérique du signal de l'harmonique 201 du 800 nm générée par la technique du multimode quasi accord de phase dans un tube capillaire de rayon $90 \mu\text{m}$. Figures extraites de la référence [B. Dromey 2007].

phase. Les résultats ont été obtenus grâce à la modulation de l'intensité tout au long du tube capillaire produite par interférence entre les modes propres. Cette expérience a été effectuée avec des impulsions ayant une énergie maximale de 50 mJ. Le milieu générateur est un tube capillaire de $90 \mu\text{m}$ de rayon et de 15 mm de longueur.

La figure 5.14 (a) montre un spectre harmonique généré dans 20 mbar d'argon avec une intensité maximale d'environ 10^{15} W/cm^2 , le paramètre χ est égal à 0.2. L'ordre maximal généré est 231 (3.5 nm) avec une efficacité de conversion supérieure à 10^{-6} . Cette efficacité exceptionnelle n'a jamais été observée pour cette gamme de longueur d'onde. Lorsque la pression augmente à 42 mbar le signal XUV est détruit. Ce résultat est expliqué par un quasi accord de phase multimode, avec une longueur de battement de l'ordre de $200 \mu\text{m}$. Pour d'autres conditions de couplage ($\chi = 0.3$) les auteurs montrent une même efficacité de conversion (10^{-6}) pour les

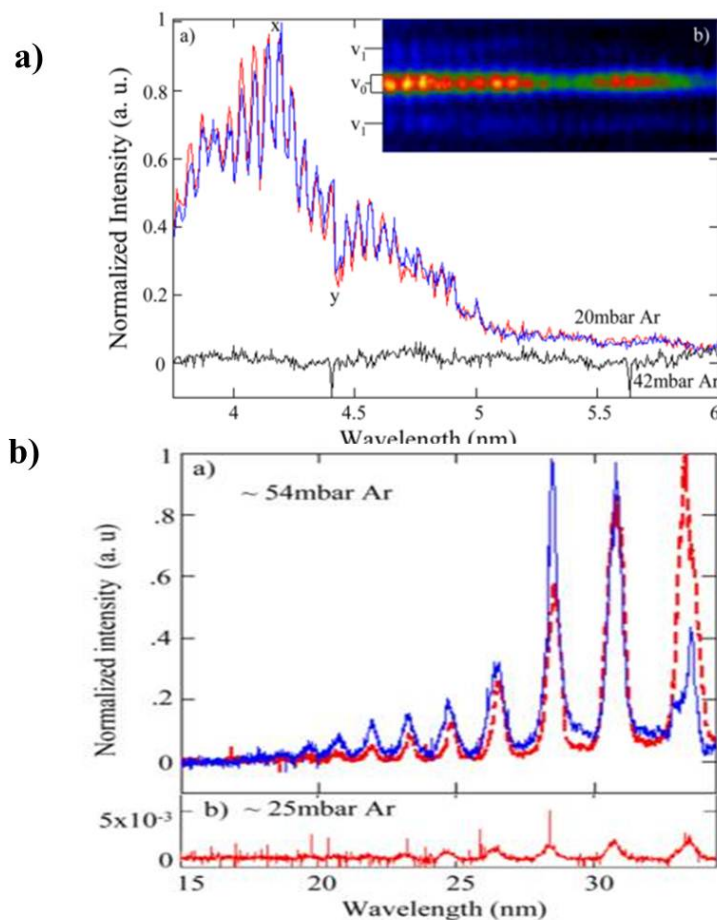


FIGURE 5.14 – (a) Quasi accord de phase pour la fenêtre de l'eau ($P_{Ar} = 20$ mbar, $\chi = 0.2$, et $I = 10^{15}$ W/cm²). (b) Quasi accord de phase multimode pour le plateau ($\lambda \simeq 30$ nm) ($P_{Ar} = 54$ mbar, $\chi = 0.3$). Figure extraite de la référence [M. Zepf 2007].

harmoniques du plateau (figure 5.14 (b)), la pression d'argon est de 54 mbar. Une diminution de l'intensité laser de $9 \cdot 10^{14}$ W/cm² à $7 \cdot 10^{14}$ W/cm² déplace de pic de l'harmonique la plus intense de 25 à 29. Ceci est présenté comme un effet de diminution de l'ionisation donnant lieu à un quasi accord de phase favorable pour les ordres harmoniques les plus élevés.

5.4 Campagne expérimentale sur LASERIX : juillet 2011

5.4.1 Tube capillaire utilisé

Les capillaires que nous avons utilisés pour nos expériences sont fabriqués par la société Friedrich Dimmock. Ils ont un diamètre extérieur de 5.5 mm et un rayon du cœur pouvant aller jusqu'à 300 μ m. La méthode de génération des harmoniques d'ordres élevés dans un tube capillaire repose sur l'interaction entre un faisceau laser femtoseconde guidé dans le cœur et un gaz rare avec le même processus que décrit dans le chapitre 1. Il est indispensable d'injecter le

gaz dans le capillaire de façon homogène sur toute la longueur. Pour ce faire nous réalisons une fente sur la partie supérieure du capillaire près de chaque extrémité (cf. figure 5.16), le gaz est injecté en même temps par les deux fentes. Les tubes capillaires sont fournis avec des longueurs comprises entre 25 et 30 cm. Nous les coupons à la longueur utile et réalisons les fentes à l'aide d'une scie à fil diamanté. L'épaisseur du fil ($250\text{ }\mu\text{m}$) définit la largeur de la fente. La figure 5.15 présente une photographie de notre tube capillaire sur laquelle on distingue bien la gaine extérieure en verre, le cœur creux et les deux fentes.



FIGURE 5.15 – Photographie d'un tube capillaire de 3 cm de longueur. On voit le cœur de $203\text{ }\mu\text{m}$ de diamètre et la gaine extérieure de diamètre 5.5 mm.

Pour réaliser les fentes nous devons respecter les deux contraintes suivantes :

- Lors de l'injection du gaz pour la génération d'harmoniques il peut y avoir des fuites vers l'enceinte. Ces fuites induisent un gradient de pression entre la fente et la sortie du capillaire. Il est donc souhaitable de réaliser des fentes le plus près possible de l'extrémité du capillaire pour minimiser la distance sur laquelle ce gradient existe. Des travaux effectués de le cadre de la thèse de Jinchaun JU (2013) ont confirmé l'homogénéité de la pression du gaz dans le capillaire, la densité de remplissage du tube capillaire a été mesurée à $81 \pm 3\%$ de la densité du réservoir [Ju 2012].
- Par contre, le choix d'une distance très faible entre le bord du tube et la fente est difficile à réaliser et fragilise l'extrémité de la fibre.

En tenant compte de ces deux contraintes, la distance de 5 mm a été choisie comme compromis. Ces deux fentes qui arrivent jusqu'au niveau du cœur du capillaire (figure 5.15) sont séparées par une certaine distance L_{cap} . Pour toutes les parties suivantes de ce chapitre, on appellera longueur du milieu (l_{med}) ou longueur de capillaire (L_{cap}) la longueur qui sépare les deux fentes de remplissages de gaz. Sur la figure 5.16 nous présentons un schéma explicatif qui donne toutes les dimensions caractéristiques définissant les tubes capillaires que nous avons utilisés.

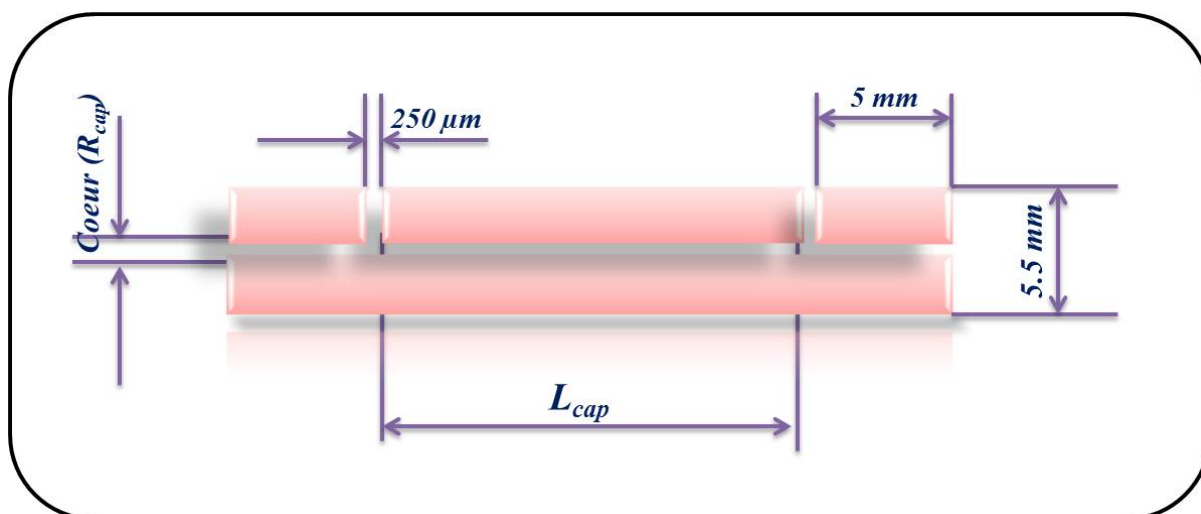


FIGURE 5.16 – Schéma de notre tube capillaire avec les mesures des dimensions caractéristiques. La coupe de scie arrive jusqu'au niveau du cœur du capillaire. La longueur caractéristique du capillaire est la longueur qui sépare les deux fentes.

5.4.2 Dispositif expérimental de génération

Je présente dans ce chapitre le premier travail expérimental de génération d'harmoniques en configuration guidée réalisé sur la station LASERIX. Une partie importante de ce travail concerne la conception et la mise en place du porte capillaire, du système d'injection du gaz et du système d'imagerie de la tache focale. Il a été effectué sous la responsabilité de Kevin Cassou dans le cadre de son projet NEXT. Ces systèmes ont été installés dans la chambre de génération de la source harmonique, les diagnostics décrits au chapitre 3 ont été utilisés.

La figure 5.17 (a) montre le système du porte capillaire conçu et utilisé pendant ma thèse. Ce dispositif est motorisé pour aligner automatiquement sous vide le tube capillaire sur l'axe du laser. Il possède cinq degrés de liberté, on déplace ainsi le porte cible, en effectuant des translations suivant les axes X, Y et Z et des rotations des angles α (angle horizontal) et β (angle vertical). Le système d'injection du gaz est illustré sur la figure 5.17. Le gaz est injecté vers le porte cible, il est ensuite conduit et réparti entre les deux fentes (figure 5.17(b)). Le dispositif d'imagerie est représenté sur la figure 5.17 (c), il est installé sous vide juste derrière le porte capillaire. Ce dispositif est constitué d'une caméra CCD 12 bits associée à un objectif de microscope de grandissement $\times 10$. L'ensemble objectif-caméra se déplace sur un système de translations 3 axes motorisé (X, Y et Z).

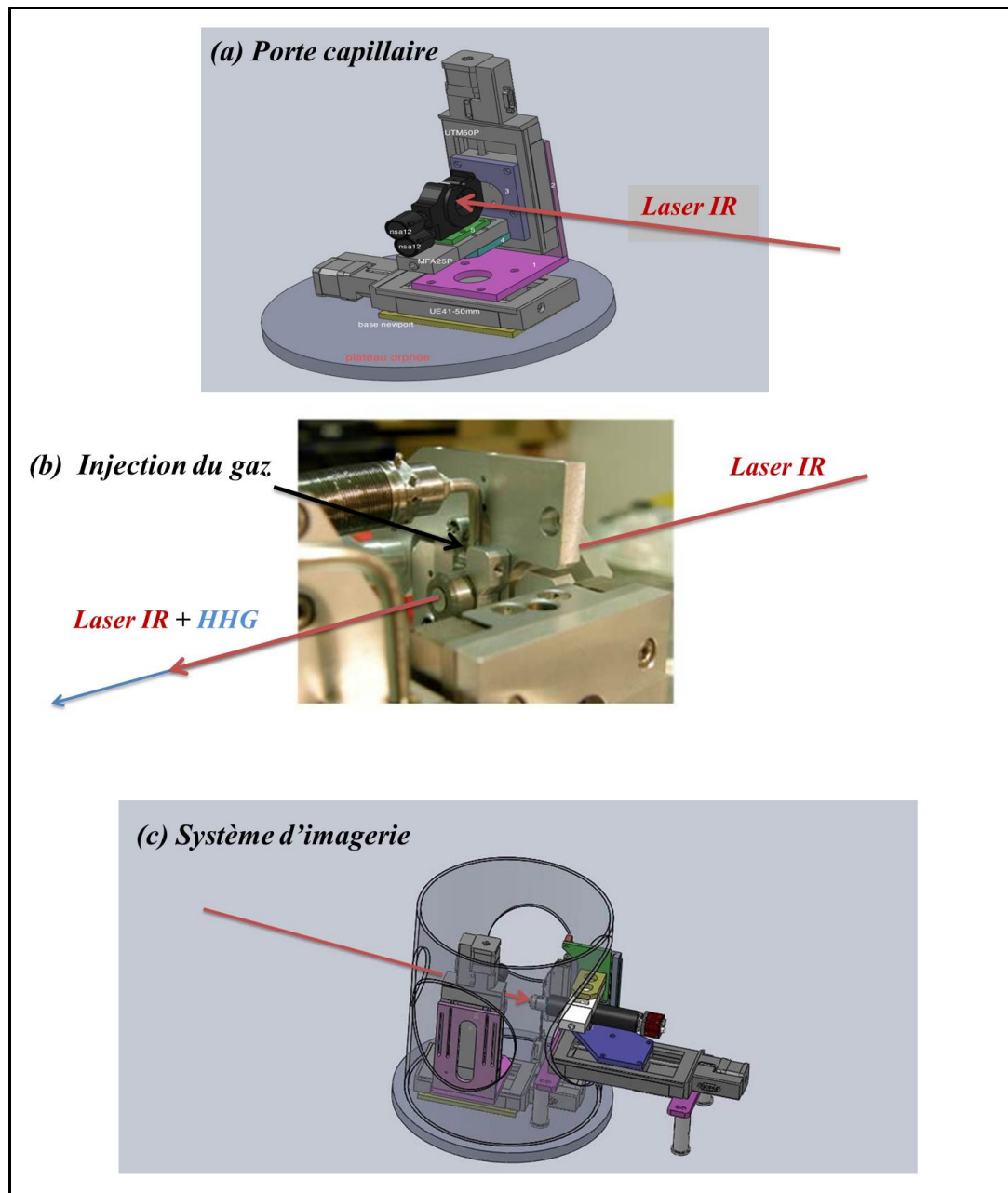


FIGURE 5.17 – (a) Système motorisé du porte cible. Ce dispositif possède cinq degrés de liberté (3 mouvements de translations X, Y et Z et deux mouvements de rotation horizontal et vertical), tous ces mouvements sont remplis par le montage des capillaires dans un système de dimensions (20 cm x 20 cm x 25 cm). (b) Système d'injection sous vide du gaz : le gaz est injecté dans le porte capillaire à travers un trou ensuite conduit et réparti sur les deux fentes du tube capillaire. (c) Système d'imagerie de la tache focale et de caractérisation de la transmission de l'énergie à travers le tube capillaire.

5.4.3 Technique d'alignement du capillaire

La procédure d'alignement consiste à aligner l'axe du tube capillaire sur l'axe du laser en optimisant l'énergie laser transmise, la précision requise amène à une procédure qui peut être longue. Elle se décompose en quatre grandes étapes :

- D'abord le porte capillaire est retiré de l'axe du faisceau laser pour repérer la position de la tache focale en utilisant les mouvements suivant les axes X et Y du porte capillaire. Ensuite, la position de la tache focale sur l'axe de propagation du laser est trouvée automatiquement à l'aide d'un programme LABVIEW permettant de repérer, pendant le mouvement du système d'imagerie suivant l'axe (z), le waist minimal en explorant la zone de Rayleigh.
- Le système d'imagerie est ensuite reculé de la longueur du tube capillaire utilisé.
- Les positions (X, Y, Z) du foyer étant identifiées, le centre du cœur du tube capillaire (face avant) sera positionné aux positions (X, Y, Z), la mise au point de la face de sortie du capillaire est ensuite effectuée avec le système d'imagerie.
- Enfin pour optimiser l'alignement du capillaire, donc le couplage de l'énergie laser, on utilise les translations précises sur les axes X et Y et les deux angles de rotations α et β . Le résultat est obtenu par analyse de la transmission du capillaire qui est calculée en faisant le rapport de l'intensité en sortie du capillaire sur l'intensité en entrée.

5.5 Stabilité de pointé laser sur la ligne harmonique de LASERIX

Après avoir installé le système porte cible et le système d'imagerie de la tache focale, nous nous sommes rendu compte que le système laser-capillaire se désalignait au bout de quelques dizaines de minutes, à cause des instabilités de pointé du laser. Il était impossible de maintenir l'alignement du système pendant le temps nécessaire à l'enregistrement d'une série de données. Il est à noter que nous n'avons pas constaté ce problème lors de l'expérience de génération de la double impulsion harmonique. Ceci s'explique par le fait que la séparation des deux faisceaux se faisait sur une faible distance et que les mouvements relatifs des deux faisceaux se compensent, à la différence de propagation près dans le montage interférométrique puisqu'ils sont focalisés par la même lentille. Je rappelle aussi que la superposition des faisceaux au foyer était vérifiée et corrigée après chaque changement de retard entre les impulsions. Une des contraintes les plus fortes pour la génération d'harmoniques dans des tubes capillaires est la stabilité tir à tir de pointé du laser de pompe. La stabilité de pointé est généralement définie comme une fluctuation angulaire (mrad ou μrad) autour d'une position moyenne. Il est à souligner que les tubes capillaires utilisés lors de nos expériences ont des rayons de cœur de 90, 101 ou 150 μm pour un rayon en $1/e^2$ de la tache focale de 80 μm (pour une ouverture d'iris de 11 mm). Un désalignement de pointé du laser de quelques dizaines de microns est donc incompatible avec l'expérience et demande un temps de correction sous vide important (environ 10 mn) rendant impossible l'acquisition d'une série de données complète.

5.5.1 Mesure de la stabilité du pointé

Pour mesurer la stabilité de pointé du laser sur la ligne harmonique nous avons utilisé le système d'imagerie du champ lointain qui nous permet de caractériser la tache focale.

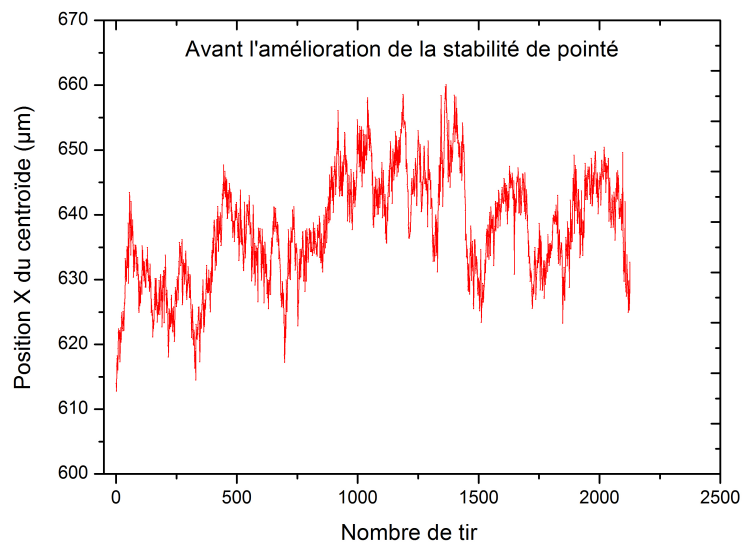


FIGURE 5.18 – Position x du centroïde du foyer du faisceau laser en fonction du nombre de tir. L'enregistrement est effectué au niveau de la caméra du système d'imagerie pendant environ quatre minutes ce qui correspond à 2400 tirs.

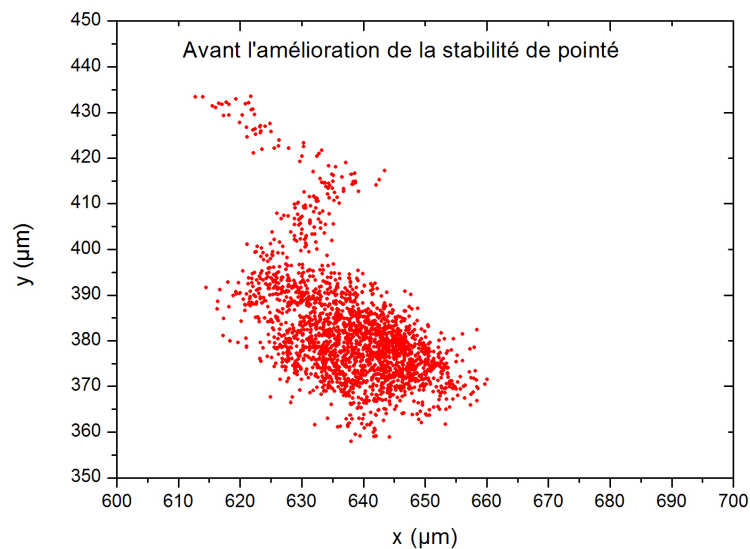


FIGURE 5.19 – Positions (x,y) du centroïde du foyer du faisceau laser mesuré au niveau de la caméra du système d'imagerie installé sous vide. L'enregistrement est effectué pendant environ quatre minutes ce qui correspond à 2400 tirs.

Avec ce système nous avons enregistré l'évolution au cours du temps des positions (x et y) du centroïde correspondant au barycentre de la distribution d'énergie de la tache focale. La figure 5.18 montre l'évolution des positions x et y de ce centroïde en fonction des tirs laser sur une durée d'environ quatre minutes. La cartographie des positions du centroïde de la tache sont montrées sur la figure 5.19. Nous constatons qu'après quatre minutes de tirs continus, le pointé du laser dérive et s'écarte de la position initiale.

Cet écart est quantifié de $50\text{ }\mu\text{m}$ sur l'axe X donc de $45\text{ }\mu\text{rad}$. Sur l'axe Y la dérive est plus importante, elle est de l'ordre de $80\text{ }\mu\text{m}$ donc de $72\text{ }\mu\text{rad}$. La dérive est importante et les valeurs d'écart sont comparables au rayon d'une tache focale, ceci revient à dire qu'au bout de quatre minutes l'alignement de départ est perdu et qu'il est indispensable de le reprendre. Or, pour enregistrer une série de données on a besoin d'une bonne stabilité tir à tir pendant le temps typique d'une série. Ce résultat justifie donc la difficulté que nous avons rencontrée lors de la tentative de génération d'harmoniques en configuration guidée sur la ligne harmonique de LASERIX.

5.5.2 Amélioration de la stabilité du pointé

L'instabilité de pointé du laser peut être affectée par un certain nombre de facteurs à la fois internes et externes au laser lui-même, y compris les mouvements physiques, les courants d'air, les caractéristiques du système de climatisation dans la salle expérimentale et de nombreux autres sources d'instabilités. Dans le but d'améliorer la stabilité de pointé, nous avons vérifié un par un les facteurs que je viens de citer. Les premiers concernent les vibrations dues aux systèmes de pompage et la qualité des montures optiques installées, l'amélioration de ces problèmes était certes utile mais pas suffisante. Une autre cause d'instabilité est due au transport du faisceau depuis la salle laser jusqu'à la salle expérimentale sur une distance de l'ordre de 20 mètres. Or depuis la sortie du dernier étage d'amplification, le faisceau est conduit vers la ligne harmonique en passant par le plafond. Ce point ainsi que les courants d'air causés par le système de climatisation se sont avérés être les plus grandes sources d'instabilité de pointé de laser. Cette instabilité a été réduite après avoir bouché le système de climatisation qui est juste en dessus de la table optique de la ligne harmonique.

Les figures 5.20 et 5.21 montrent respectivement l'évolution de la position x du centroïde de la tache focale en fonction du nombre de tir et l'ensemble des positions x et y du centroïde de la tache focale. Nous constatons que les fluctuations tir à tir du pointé sont réduites. On note une fluctuation de l'ordre de $30\text{ }\mu\text{m}$ sur les deux axes X et Y , traduisant des fluctuations angulaires de $27\text{ }\mu\text{rad}$, ce qui nous fait gagner au minimum un facteur 50 % sur les instabilités. Cependant, nous ne sommes pas parvenus à réduire encore ces fluctuations, ce qui reste un facteur limitant pour la réalisation de l'expérience de génération d'harmoniques dans des tubes capillaires avec le laser IR de la station LASERIX. Dans le futur, nous pourrions atténuer ces variations de pointé du laser de pompe en résolvant les problèmes du système de climatisation du bâtiment P ou en effectuant une stabilisation de la dérive du faisceau avant le filtre spatial sur la table de distribution.

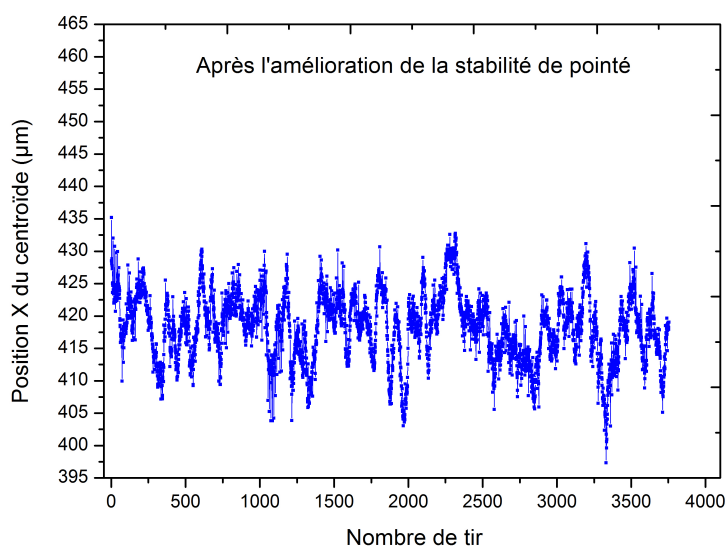


FIGURE 5.20 – Position x du foyer du faisceau laser en fonction du nombre de tir. L'enregistrement est effectué au niveau de la caméra du système d'imagerie pendant environ six minutes ce qui correspond à 3600 tirs.

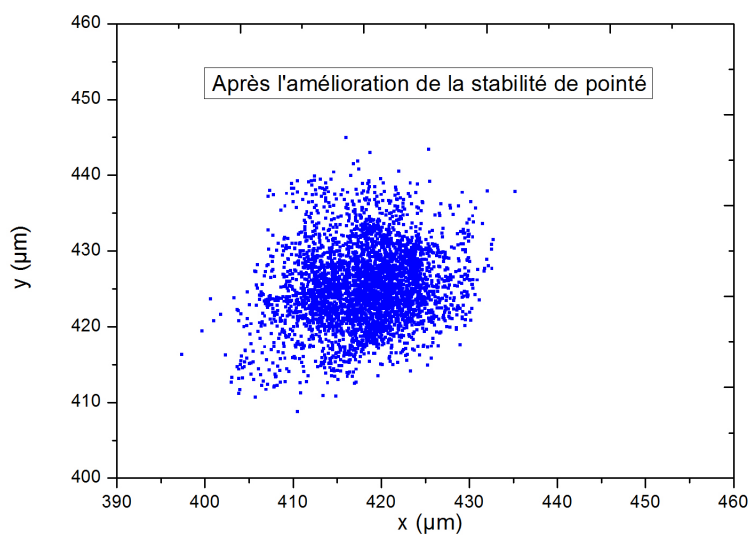


FIGURE 5.21 – Positions (x,y) du centroïde du foyer du faisceau laser mesuré au niveau de la caméra du système d'imagerie installé sous vide. Enregistrement effectué après l'amélioration de la stabilité du pointé pendant environ six minutes ce qui correspond à 3600 tirs.

5.6 Campagne expérimentale au CELIA : Mars et avril 2012

5.6.1 Ligne de lumière harmonique de la salle Éclipse 2

La bonne qualité des résultats de la thèse d'Antoine Dubrouil sur la post compression des impulsions intenses ultras-brèves dans des tubes capillaires [Dubrouil 2011] est une preuve de la bonne stabilité de pointé du laser Éclipse du CELIA. Ceci a motivé une demande de trois semaines de temps de faisceaux sur Éclipse 2 au CELIA. Cette campagne expérimentale réalisée au printemps 2012 en collaboration avec l'équipe de Eric Constant avait pour but de reproduire et d'approfondir les résultats de l'expérience de Zepf et al [M. Zepf 2007].

Le laser est un système Titane Saphir à amplification par dérive de fréquence capable de fournir à 10 Hz, des impulsions de 150 mJ d'énergie comprimées à 45 fs. Le compresseur d'impulsions est installé sous vide et possède une efficacité de l'ordre de 65 %. Contrairement à LASERIX, la propagation d'impulsions comprimées se fait entièrement sous vide, assurant une bonne stabilité au système. Le spectre des impulsions est centré à 790 nm et le profil d'intensité du faisceau est quasi gaussien avec un rayon à $1/e^2$ de 13 mm.

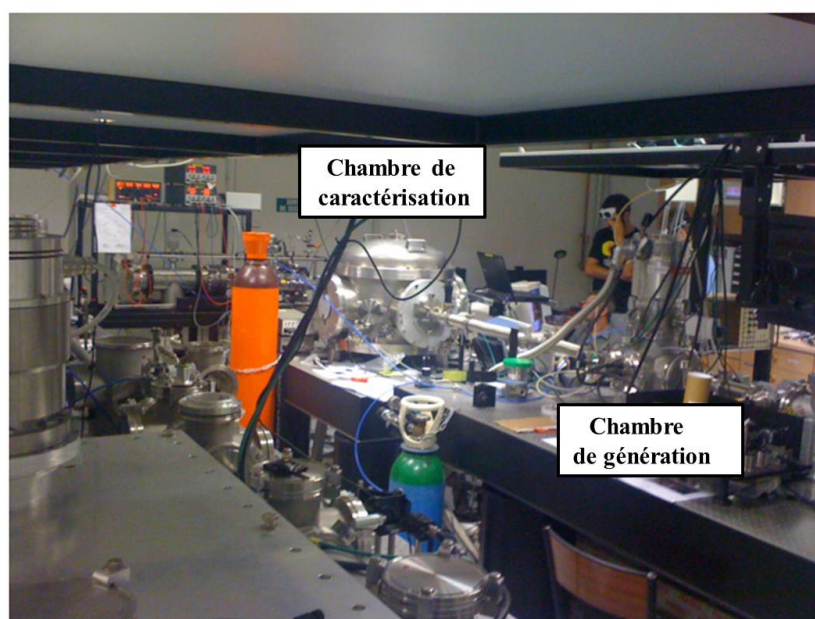


FIGURE 5.22 – Vue d'ensemble de la source harmonique d'ordres élevés d'Éclipse 2. Cette figure est extraite de la référence [Dubrouil 2011].

La figure 5.22, extraite de la référence [Dubrouil 2011], montre une photo de vue d'ensemble de la source harmonique de la salle Éclipse 2 au CELIA. Cette ligne a été construite pendant la

thèse d'Antoine Dubrouil. Dans la configuration initiale, la cible de génération utilisée est un jet de gaz et la focalisation est assurée avec un miroir sphérique de focale 2 m. Afin de se rapprocher au mieux des conditions de couplage au capillaire de l'article de Zepf et al, nous avons modifié le système de focalisation existant pour avoir une tache focale plus petite. Le miroir de focalisation a donc été remplacé par un miroir Argent sphérique de focale 750 mm de diamètre 1 pouce. Avec ce miroir le rayon de la tache focale en $1/e^2$ varie, selon le diamètre de l'iris, de $41 \mu\text{m}$ à $135 \mu\text{m}$. La figure 5.23 présente un schéma d'ensemble du dispositif expérimental utilisé pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

Le faisceau de pompe comprimé passe à travers un iris de diamètre réglable sous vide vers un miroir de renvoi. Il est ensuite focalisé avec le miroir sphérique de focale 750 mm sur un tube capillaire. Les tubes utilisés lors de cette expérience avaient un rayon de $101 \mu\text{m}$ ou de $150 \mu\text{m}$ et une longueur de 30 ou 50 mm. Après environ 2 m de propagation, les harmoniques générées se propagent colinéairement au faisceau de pompe jusqu'à la fente d'entrée du spectromètre de $500 \mu\text{m}$ de large.

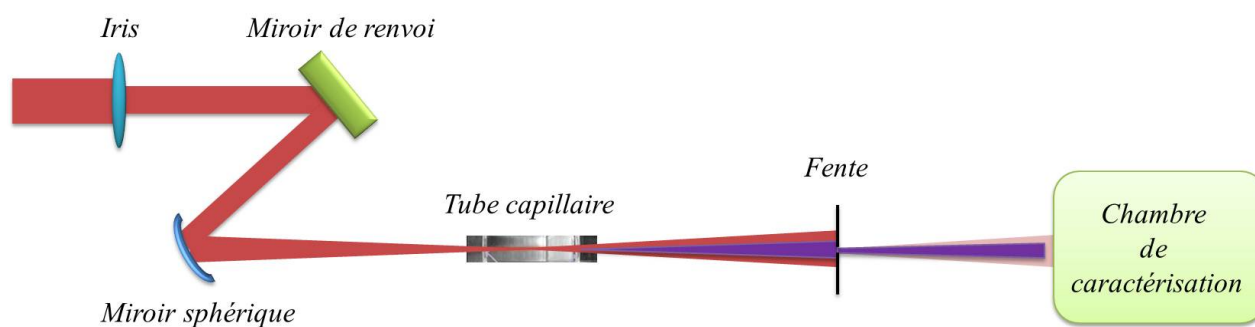


FIGURE 5.23 – Dispositif expérimental pour la génération et la caractérisation d'harmoniques d'ordres élevés dans des tubes capillaires.

5.6.1.1 Porte capillaire

La figure 5.24 montre le système porte capillaire du CELIA utilisé pour cette campagne d'expérience. Il s'agit d'un support non motorisé sur lequel le capillaire est posé. La fixation du tube capillaire sur ce support est assurée par des brides qui viennent serrer au dessus du capillaire. Le gaz est injecté à travers deux trous dans le téflon qui entoure les deux fentes. Les couches de téflon empêchent le gaz de s'échapper vers le vide de la chambre de génération. Comme illustré sur la figure 5.24, le système porte cible est installé sur une platine de translation dans l'axe de focalisation (Z). Contrairement à la technique d'alignement du capillaire sur LASERIX, l'alignement du système consiste à aligner cette fois-ci le laser de pompe sur l'axe du tube capillaire. L'alignement suivant les axes X et Y est effectué à l'aide des deux miroirs de renvoi et de focalisation qui sont motorisés sous vide.

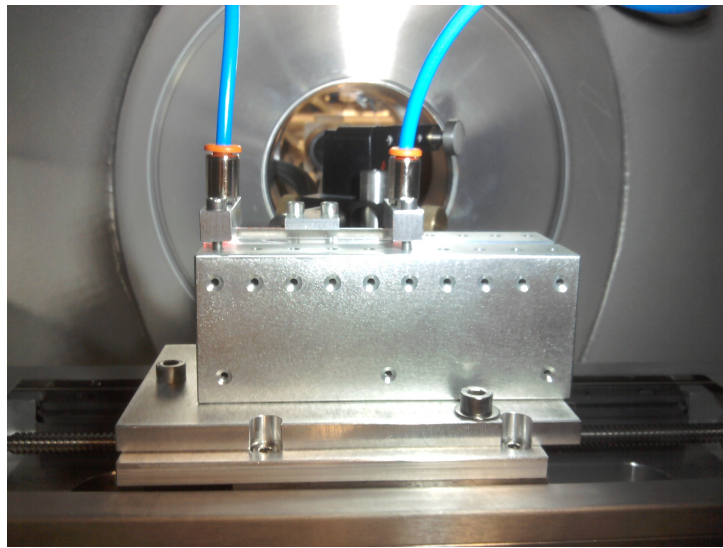


FIGURE 5.24 – Le système porte capillaire utilisé pour la campagne expérimentale au CELIA.

5.6.1.2 Spectromètre à réseau

Le diagnostic principal utilisé est le spectromètre, il est schématisé sur la figure 5.25. Ce dispositif de mesure spectrale est constitué d'une fente d'entrée de 20 mm de hauteur et de 500 μm de largeur, d'un miroir en or qui renvoie le faisceau vers un réseau XUV concave à pas variable. Le réseau est de dimension 40 x 70 cm^2 , il possède 1200 traits par millimètre.

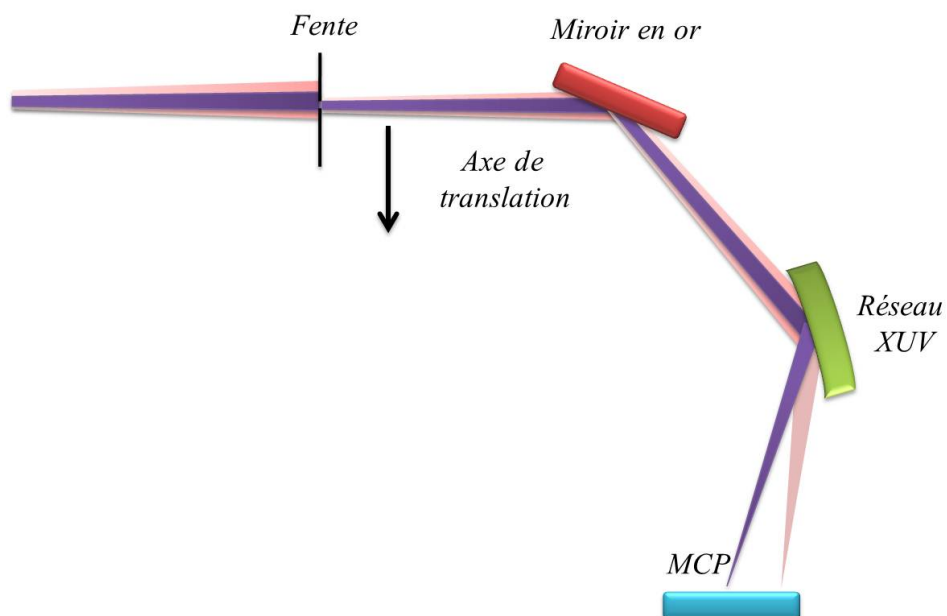


FIGURE 5.25 – Schéma de principe du spectromètre à réseau de la source harmonique de la salle Eclipse 2 de CELIA [Dubrouil 2011].

Il est utilisé avec un angle d'incidence de 87° et permet d'imager la fente pour la dimension spectrale et de laisser diverger les harmoniques dans la dimension spatiale (verticale). La distance entre la source et le système de détection est de 3 m. La détection et l'acquisition des images sont assurées par l'ensemble MCP-phosphore et caméra CCD 12 bits. Ce système est monté sur une platine de translation pour balayer plusieurs fenêtres spectrales [Dubrouil 2011].

5.6.2 Résultats obtenus

5.6.2.1 Estimation de l'intensité laser

Un des problèmes rencontrés lors de cette campagne d'expériences est l'estimation de l'intensité laser maximale à l'entrée du capillaire. En effet, la compression et toute la propagation du faisceau qui s'ensuit se faisant sous vide, il n'est pas aisé de mesurer l'efficacité de chaque composant optique, y compris l'iris motorisé et le couplage au capillaire qui sont sources de pertes importantes. Pour estimer l'intensité effective à l'entrée du capillaire, nous avons réalisé une étude de la transmission de l'iris en fonction de son diamètre. Cette étude a été menée à énergie fixe avant le compresseur. En utilisant l'estimation de la transmission de l'iris et du compresseur (estimée de 65 %) et la caractérisation de la tache focale nous avons pu déterminer à chaque fois l'intensité laser à l'entrée du capillaire.

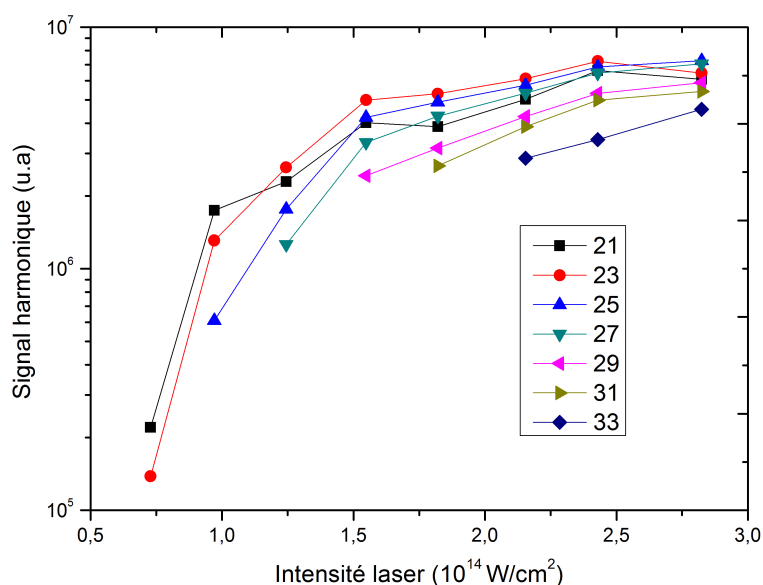


FIGURE 5.26 – Signal harmonique en fonction de l'intensité laser maximale à l'entrée du tube capillaire pour les ordres harmoniques entre 21 et 33.

Dans le but de vérifier nos estimations, nous avons effectué une étude de l'effet de l'énergie laser sur l'apparition des ordres harmoniques successifs dans le cas d'une très faible pression. La figure 5.26 montre l'évolution du signal intégré pour les ordres harmoniques variant entre 21 et

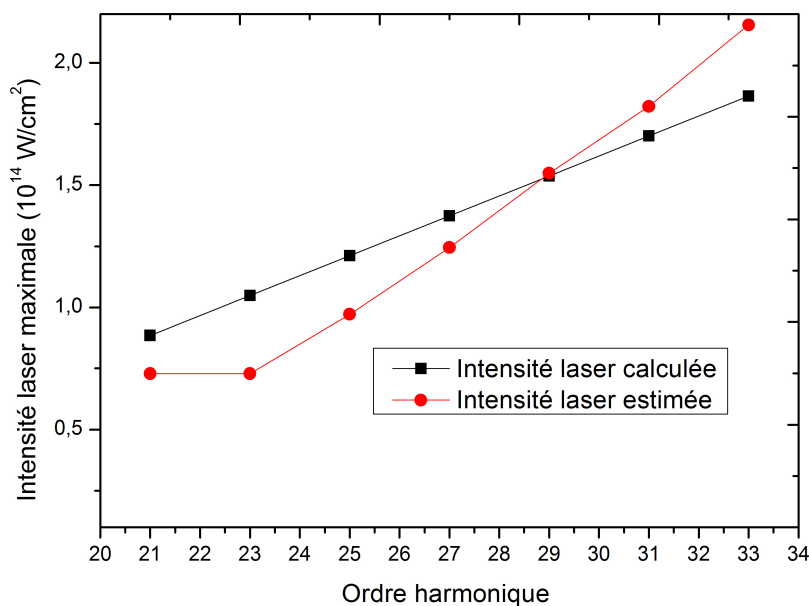


FIGURE 5.27 – Évolution de l'intensité laser maximale estimée ainsi que l'intensité laser maximale calculée à partir de la loi de cutoff en fonction de l'ordre harmonique généré.

33 en fonction de l'intensité laser. Pour cette courbe, l'intensité laser a été estimée en utilisant la méthode décrite ci-dessus. À l'aide d'un calcul basé sur la loi de cutoff (voir le chapitre 1) [L'Huillier 1993], nous avons calculé l'intensité théorique permettant à une harmonique d'être générée. À titre de comparaison, l'évolution de l'intensité laser estimée (à partir de la figure 5.26 - courbe rouge) et l'intensité calculée (en utilisant la loi de cutoff - courbe noire) est représentée, en fonction de l'ordre harmonique, sur la figure 5.27. Pour une harmonique donnée, l'écart entre les deux valeurs d'intensités varie entre 0.01 et $0.3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, cet écart est considéré comme relativement faible compte tenu des incertitudes expérimentales dans ces expériences à haute intensité.

5.6.2.2 Spectres typiques des harmoniques dans un jet de gaz

La campagne expérimentale effectuée au CELIA nous a permis d'observer des harmoniques générées dans un jet de gaz et dans un tube capillaire. Avant de commencer l'expérience de génération en configuration guidée, une série d'optimisation des harmoniques dans un jet de gaz a été effectuée. Nous avons utilisé deux types de gaz : l'argon et le néon. Dans cette partie je présenterai les résultats qui ont été obtenus dans l'argon.

La figure 5.28 montre un spectre typique obtenu en générant les harmoniques en jet de gaz pour une pression en amont de 2.6 bar d'argon avec un diamètre d'iris de 13 mm. Ce spectre correspond au cas d'une génération optimisée dans des conditions standard : focalisation douce

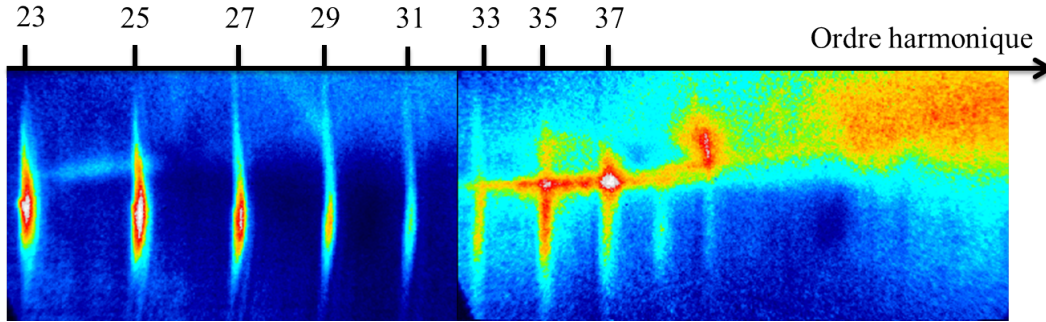


FIGURE 5.28 – Spectre résolu spectralement et spatialement d'harmoniques générées dans un jet de gaz. La pression en amont est de 2.6 bar d'argon et l'énergie estimée après un iris fermé à 13 mm est 22 mJ résultant à une intensité de $7 \cdot 10^{14}$ W/cm². Les spectres sont moyennés sur 10 tirs laser et la fenêtre spectrale s'étend de 10 à 35 nm, l'ordre harmonique maximal observé est l'ordre 37.

(miroir sphérique de 2 m de focale) et intensité au foyer estimée de $7 \cdot 10^{14}$ W/cm² (pour 45 fs - 22 mJ - $\phi_{iris} = 13$ mm). La fenêtre spectrale d'observation s'étend de 10 à 35 nm, on distingue les ordres harmoniques entre 23 et 37, l'ordre harmonique maximal observé se situe alors à 57.35 eV.

5.6.2.3 Comparaison des spectres obtenus dans un jet de gaz et dans un capillaire

Il s'agit dans cette partie de présenter les résultats expérimentaux obtenus suite à la génération d'harmoniques dans un tube capillaire de 101 μ m de rayon interne et de 30 mm de longueur. Dans une première étape nous avons cherché à examiner l'évolution des spectres obtenus en fonction de la pression d'argon ; l'ouverture de l'iris a été fixée à 7.5 mm donnant un paramètre de couplage égal à $\chi = \frac{w_0}{R_{cap}} = 0.82$ et une intensité à l'entrée du capillaire de l'ordre de $6.65 \cdot 10^{14}$ W/cm² (pour 45 fs - 6.5 mJ). Ces spectres sont présentés sur la figure 5.29, la gamme spectrale observée s'étend de 10 à 35 nm correspondant à la gamme énergétique 35-85 eV.

Pour une faible pression (5 mbar), on remarque une apparition de nouveaux ordres harmoniques sur le spectre, on observe les harmoniques entre 23 et 53 ce qui correspond à des longueurs d'onde allant jusqu'à 14.5 nm. L'ordre harmonique maximal observé est alors repoussé jusqu'à l'harmonique 53 ($\simeq 82$ eV), les harmoniques présentent un profil spatial assez fin. Lorsqu'on augmente la pression à 12 mbar, le signal des harmoniques entre 23 et 33 augmente et leur profil s'élargit. On voit toujours les harmoniques allant jusqu'à l'ordre 53, avec un meilleur niveau de signal. Pour 25 mbar, on observe une disparition d'au moins deux ordres (51 et 53) et les raies deviennent de plus en plus larges. En augmentant encore la pression, on constate une disparition des harmoniques élevées. Sur l'axe, les harmoniques se chevauchent et le spectre devient presque continu. Pour 50 mbar, l'ordre maximal observé s'arrête à 45.

Par rapport à la configuration de génération en propagation libre, deux effets ont été constatés pour le cas d'une configuration guidée ; une augmentation de la largeur des harmoniques en fonction de la pression ainsi qu'une apparition de nouveaux ordres. La figure 5.30 présente,

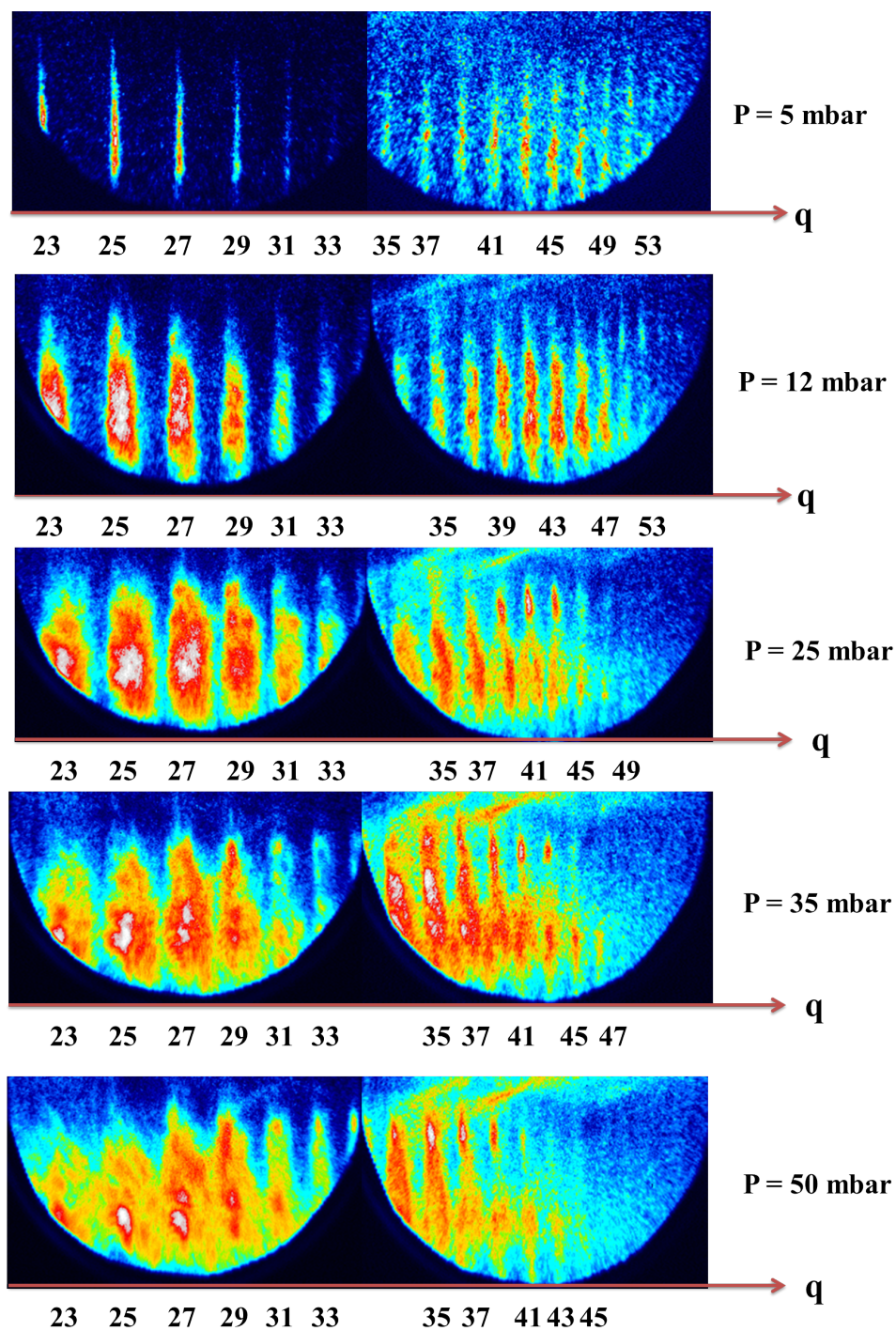


FIGURE 5.29 – Spectres harmoniques obtenus dans un tube capillaire de $101 \mu\text{m}$ et de 30 mm de longueur pour différentes valeurs de pression d'argon. L'intensité à l'entrée du capillaire est égale à $6.65 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (pour 45 fs - 6.5 mJ - 7.5 mm) et le paramètre χ étant égal à 0.82 .

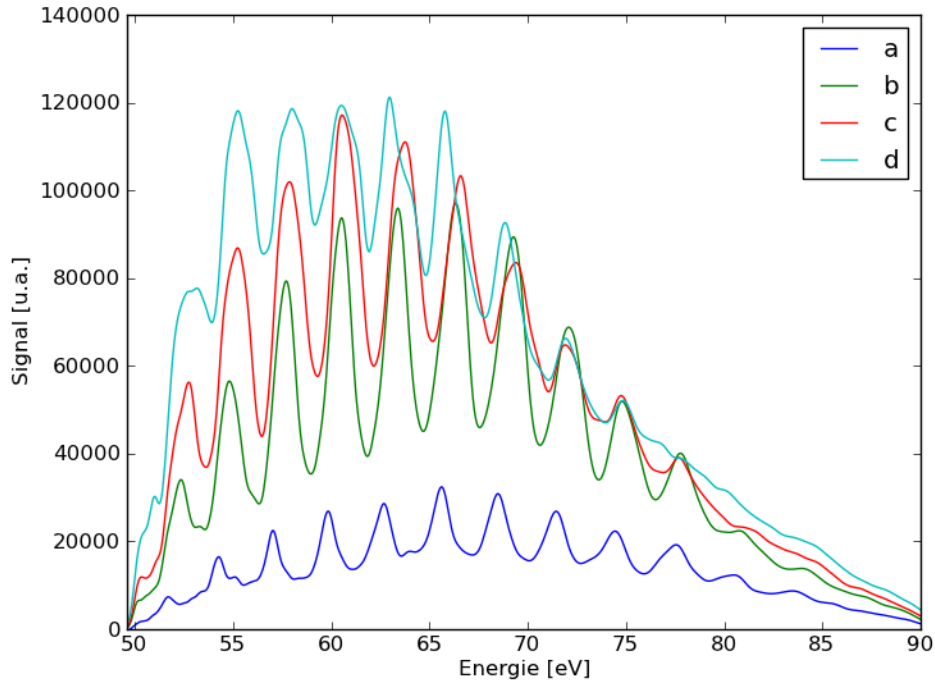


FIGURE 5.30 – Évolution du signal harmonique intégré des ordres harmoniques variant entre 33 et 53 pour quatre valeurs de pression ; spectre (a) $P = 5$ mbar ; spectre (b) $P = 12$ mbar ; spectre (c) $P = 15$ mbar , spectre (d) $P = 25$ mbar. L'intensité à l'entrée du capillaire est égale à $6.65 \cdot 10^{14}$ W/cm² (pour 45 fs - 6.5 mJ - 7.5 mm) et le paramètre χ étant égal à 0.82.

pour quatre valeurs de pression, l'évolution du signal intégré des harmoniques présentées dans la figure 5.29. On observe les ordres harmoniques entre 33 et 53. Cette figure illustre la disparition des ordres harmoniques élevés avec l'augmentation de la pression. On observe également une optimisation du signal pour les ordres harmoniques les plus faibles.

La figure 5.31 présente, sur le même graphe, une comparaison entre deux spectres harmoniques obtenus dans l'argon respectivement dans un jet de gaz et dans un tube capillaire pour des intensités laser comparables. Le spectre (a) correspond au spectre de référence présenté sur la figure 5.28. Le spectre (b) a été obtenu dans 12 mbar d'argon avec une intensité à l'entrée du capillaire de l'ordre de $6.65 \cdot 10^{14}$ W/cm² (pour 45 fs - 6.5 mJ - 7.5 mm). L'évolution du signal intégré a été construite à partir de deux spectres enregistrés dans les mêmes conditions expérimentales mais pour deux gammes spectrales différentes donc pour deux positions des galettes MCP différentes. A cause d'un léger désalignement de l'axe de propagation des harmoniques par rapport à la position de la fenêtre de détection, la première et la dernière harmoniques sont coupées, il est donc à noter que l'apparition de deux plateaux sur le spectre présenté dans la figure 5.31 pourrait n'être qu'un artefact de mesure. Pour les ordres harmoniques entre 23 et 37, le facteur d'amélioration du signal varie entre 1 et 2 selon les ordres harmoniques, alors que pour les harmoniques les plus élevées ce facteur varie entre 2 et 7. Les harmoniques du spectre (b)

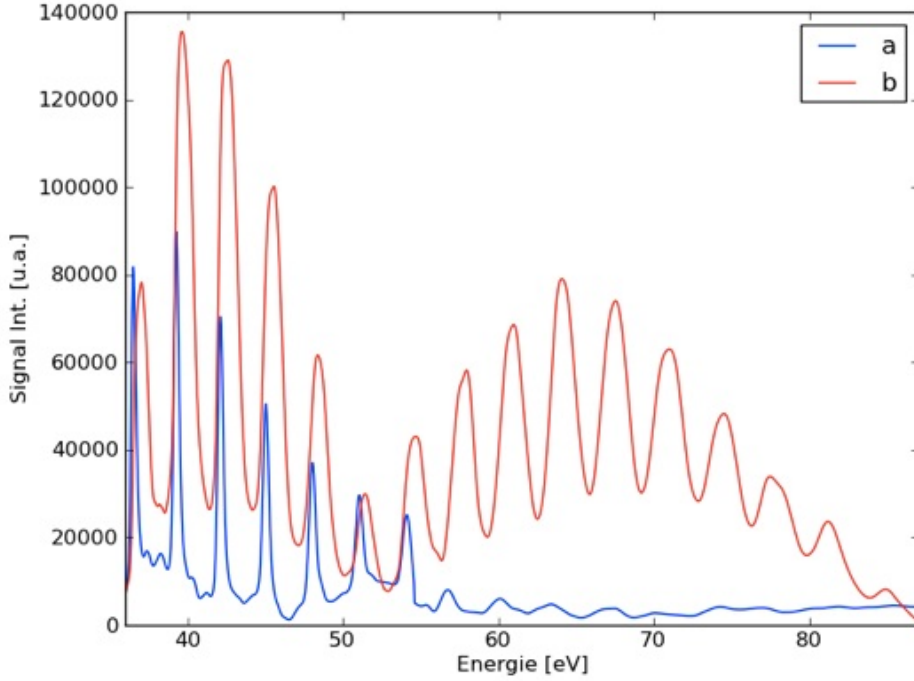


FIGURE 5.31 – Spectres harmoniques obtenus respectivement dans un jet de gaz (spectre a) avec une pression en amont de 2.6 bar d'argon (45 fs - $\phi_{iris} = 13$ mm - $E_{iris} = 22$ mJ) et dans un capillaire rempli de 12 mbar d'argon (spectre b) ($R_{cap} = 101$ μ m et $L_{cap} = 30$ mm, $\phi_{iris} = 7.5$ mm, $E_{iris} = 6.5$ mJ).

ont une largeur spectrale plus élevée, signe d'un effet spectro-temporel au cours de la génération d'harmonique. Notons que les ordres harmoniques supérieurs à H39 n'ont pas été observés dans le cadre d'une génération en configuration de propagation libre (dans un jet de gaz au CELIA ou en cellule sur la ligne harmonique de la station LASERIX).

Malgré le fait que les intensités laser maximales estimées pour le jet de gaz et en entrée du capillaire soient comparables, nous n'avons pas observé le même comportement des spectres, notamment en ce qui concerne les ordres élevés. Rappelons que l'intensité de suppression de barrière dans l'argon étant égale à $2.4 \cdot 10^{14}$ W/cm², avec un potentiel d'ionisation de 15.75 eV l'ordre harmonique théorique maximal généré dans l'argon neutre est de 61 eV. En conséquence de quoi, lors de la génération d'harmonique à haute intensité maximale donc sans limitation d'énergie de pompe, on s'attend à voir dans l'argon des spectres limités aux énergies de photons de l'ordre de 60 eV, la génération ayant lieu dans le front montant au moment où l'intensité passe par la valeur de suppression de barrière. C'est typiquement le comportement observé sur la figure 5.31 pour le spectre bleu en propagation libre. L'apparition sur le spectre rouge en configuration guidée d'ordres harmoniques largement plus élevés et avec une efficacité importante est potentiellement le signe d'une génération dans des ions Ar^+ qui possèdent un potentiel d'ionisation plus élevé (27 eV) et une intensité de barrière supérieure. Habituellement, la géné-

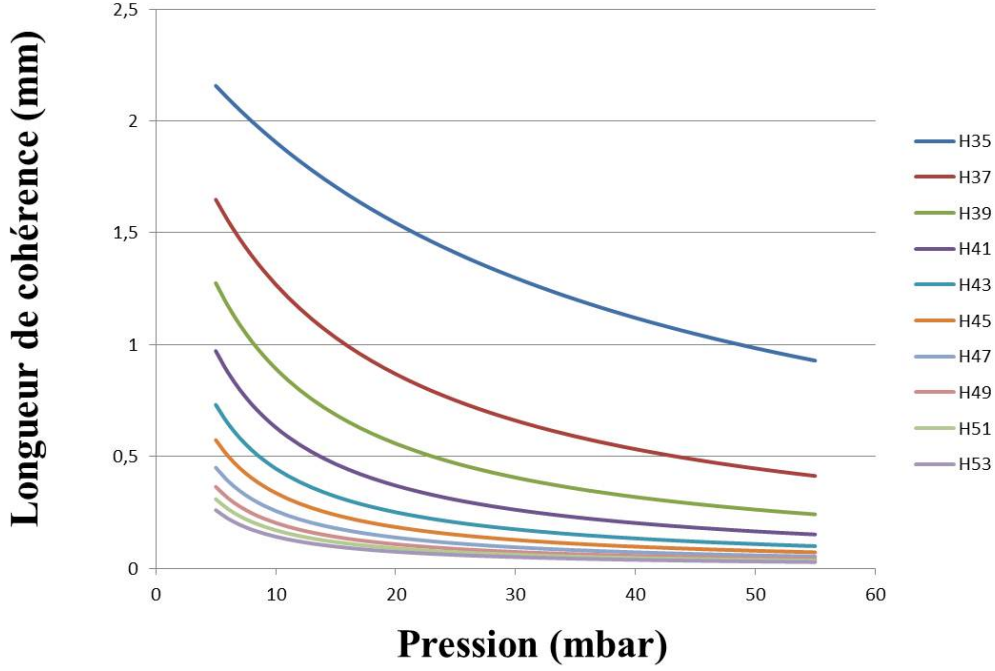


FIGURE 5.32 – Évolution de la longueur de cohérence en fonction de la pression pour les ordres harmoniques entre 35 et 53. Ce calcul analytique a été effectué pour un capillaire de $101\ \mu\text{m}$ de rayon et 30 mm de longueur.

ration d'harmonique dans Ar^+ est moins efficace en raison du degré d'ionisation très élevé dans le milieu qui dégrade l'accord de phase. Il semble donc que la configuration guidée permette de remédier à ce problème.

Pour comprendre ces observations il est intéressant d'étudier, en première étape, l'évolution de la longueur de cohérence en fonction de la pression. Un calcul analytique a été donc effectué en utilisant l'équation suivante issue des travaux de Durfee et al [C. G. Durfee 1999] et faisant abstraction d'une hypothèse de quasi-accord de phase :

$$\Delta k \simeq \frac{q\lambda_f u_{11}^2}{4\pi R_{cap}^2} + P \left(\tau N_{atm} r_e q \lambda_f - \frac{2\pi(1-\tau)\Delta(\delta)}{\lambda_q} \right) \quad (5.30)$$

Les degrés d'ionisation utilisés pour chaque ordre harmonique correspondent aux degrés issus des taux ADK avec l'hypothèse suivante : l'intensité laser maximale est fixée à $6.65 \cdot 10^{14}\ \text{W}/\text{cm}^2$ pour une durée d'impulsion de 45 fs, les taux d'ionisation sont évalués au moment de l'impulsion pour lequel l'intensité laser est suffisante pour générer un ordre harmonique donné via la loi du cutoff. Le taux d'ionisation retenu augmente donc logiquement avec l'ordre harmonique. La gamme spectrale étudiée correspond aux ordres les plus élevés du plateau de l'argon atomique soit entre 35 et 53. On remarque que pour un ordre harmonique donné, la longueur de cohérence diminue en fonction de la pression. Pour l'harmonique 35, la longueur de cohérence vaut 2 mm pour une pression de 5 mbar, et chute à 1 mm pour une pression de 50 mbar. Pour les ordres les plus élevés (49, 51 et 53), l_{coh} est inférieure à 1 mm, et devient presque nulle quand on augmente

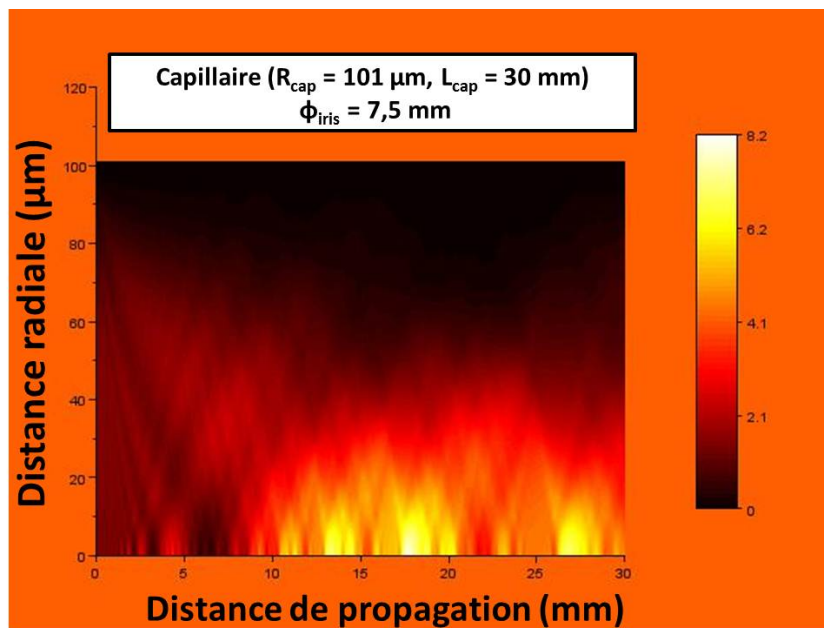


FIGURE 5.33 – Profil d'intensité calculé analytiquement pour un faisceau d'airy ($\lambda = 800nm$) se propageant dans un capillaire de $101 \mu m$ de rayon. Le paramètre χ étant égal à 0.82.

la pression. Ainsi, un calcul d'accord de phase sans hypothèse particulière prédit que les ordres les plus élevés sont d'autant plus défavorisés par une forte pression. Par ailleurs, nous avons calculé l'évolution de l'intensité laser à l'intérieur d'un tube capillaire de rayon $101 \mu m$ pour un iris fermé à $7.5 mm$, ce qui correspond à un paramètre de couplage égal à 0.82 ($\chi = \frac{w_0}{R_{cap}}$). La figure 5.33 fait apparaître des longueurs de battement de l'ordre du millimètre pour le premier centimètre de propagation dans le capillaire. Sur les deux derniers centimètres, la longueur de battement augmente et devient de l'ordre du centimètre. Même si pour des raisons de simplicité, ce calcul est fait dans un capillaire en l'absence de gaz, il montre que les ordres de grandeur des longueurs de cohérence et de battement sont comparables (de l'ordre des quelques mm) et qu'un effet de quasi accord de phase peut se produire.

5.6.2.4 Effet de la pression sur l'ordre harmonique maximal généré

En travaillant sur l'optimisation du signal harmonique dans le même tube capillaire ($30 mm$ de longueur et $101 \mu m$ de rayon) nous avons observé un effet en fonction de la pression. La figure 5.34 présente trois spectres harmoniques obtenus respectivement dans 30, 50 et 100 mbar d'argon. L'intensité laser à l'entrée du capillaire est estimée à $1.8 \cdot 10^{14} W/cm^2$ (pour 45 fs - $\phi_{iris} = 7.5 mm$ - $E_{iris} = 2.5 mJ$) et le paramètre χ est égal à 0.82. On observe les harmoniques entre 23 et 33 (de 35.65 eV à 51.15 eV), elles présentent une forme spatiale fine. On voit sur la même figure (5.34) l'évolution de l'énergie harmonique intégrée spatialement (en unités arbitraires) en fonction de la longueur d'onde en nm. Pour une pression d'argon de 30 mbar, l'ordre harmonique le plus intense du spectre est l'ordre 25. Lorsque l'on augmente la pression à 50 mbar puis à 100 mbar, l'ordre harmonique le plus intense passe de 27 à 29.

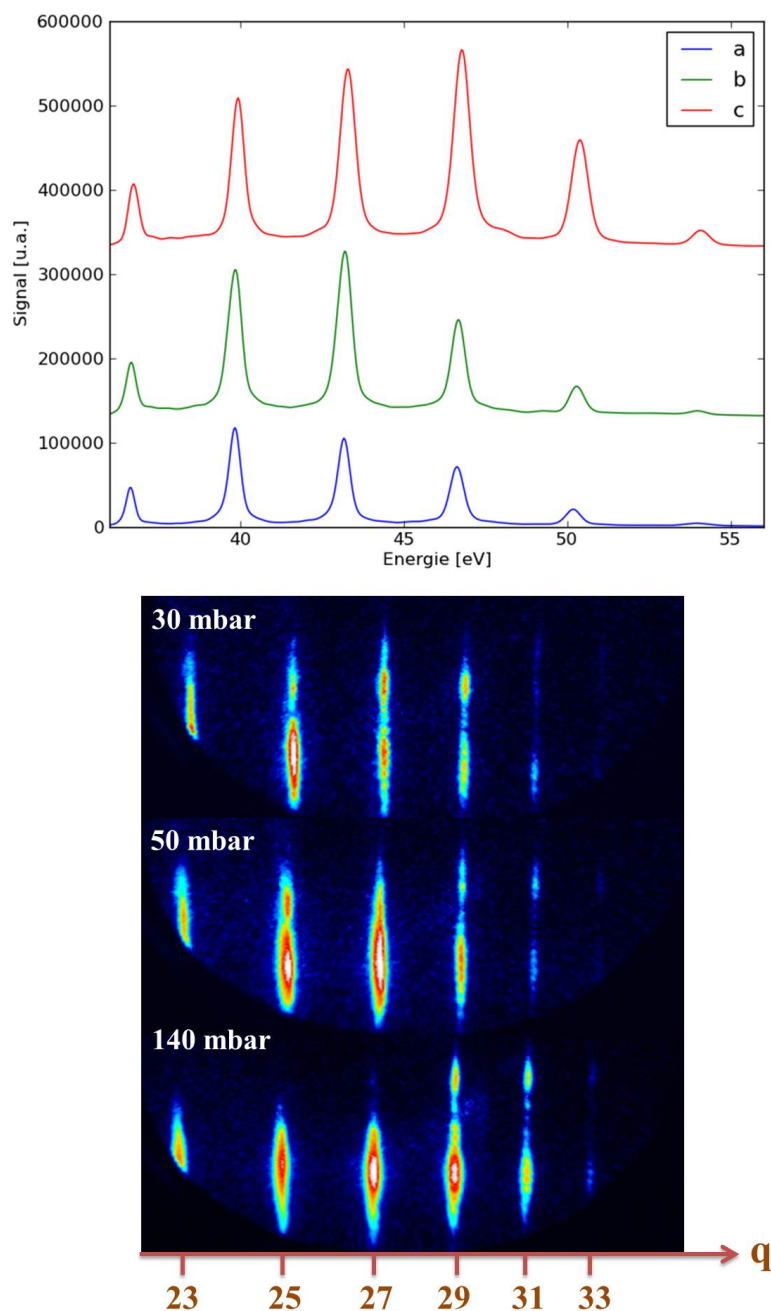


FIGURE 5.34 – Évolution de l'énergie intégrée spatialement et spectralement des harmoniques en fonction de la longueur d'onde. Trois spectres sont présentés pour trois valeurs de pression différentes (30, 50 et 100 mbar). La fenêtre spectrale s'étend de 21 à 35 nm. L'intensité laser à l'entrée du capillaire (de 30 mm de longueur et de $101\ \mu\text{m}$ de rayon) est estimée à $1.8 \cdot 10^{14}\ \text{W}/\text{cm}^2$.

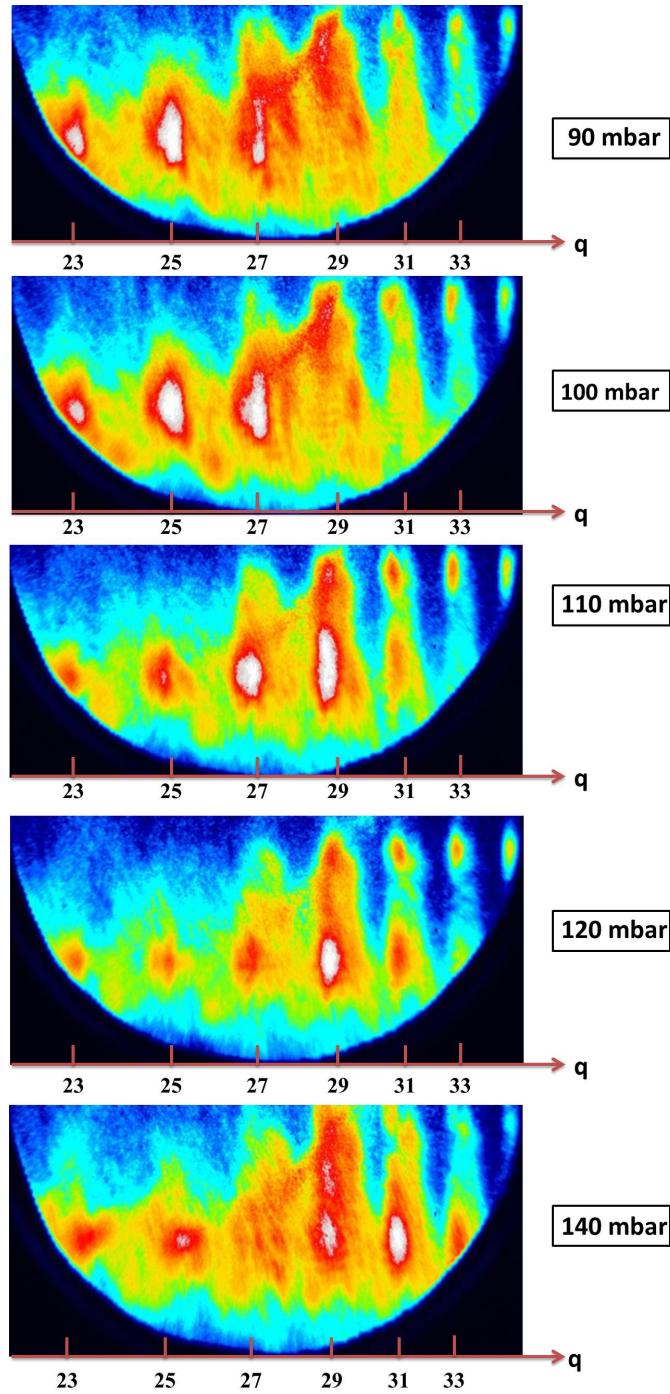


FIGURE 5.35 – Spectres résolus spectralement et spatialement d'harmoniques générées pour plusieurs pression d'argon (entre 90 et 140 mabr). Le milieu générateur est un capillaire ($R_{cap} = 101 \mu\text{m}$ et $L_{cap} = 30 \text{ mm}$). L'intensité laser estimée est égale à $6.65 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ((pour 45 fs - $\phi_{iris} = 7.5 \text{ mm}$ - $E_{iris} = 6.5 \text{ mJ}$)). La fenêtre spectrale s'étend de 21 à 35 nm.

La même étude a été effectuée pour une plus haute intensité laser dont les résultats bruts sont présentés sur la figure 5.35 montrant les spectres harmoniques obtenus pour différentes pressions d'argon (entre 90 et 140 mbar). L'intensité laser à l'entrée du tube capillaire est de $6.65 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (pour 45 fs - $\phi_{iris} = 7.5 \text{ mm}$ - $E_{iris} = 6.5 \text{ mJ}$), on observe toujours les ordres harmoniques entre 21 et 33. Dans ce cas, les harmoniques présentent un profil spectral large. On observe le même effet sur cette série ; l'harmonique la plus intense du spectre change en fonction de la pression du gaz : plus la pression augmente plus les ordres les plus élevés sont optimisés. Pour une pression d'argon égale à 90 mbar, l'ordre harmonique le plus intense est l'ordre 23, quand la pression devient égale à 100 mbar c'est l'harmonique H25 qui devient la mieux optimisée. Lorsque l'on continue à augmenter la pression de 110 mbar à 140 mbar, l'ordre le plus intense devient H27 puis H29.

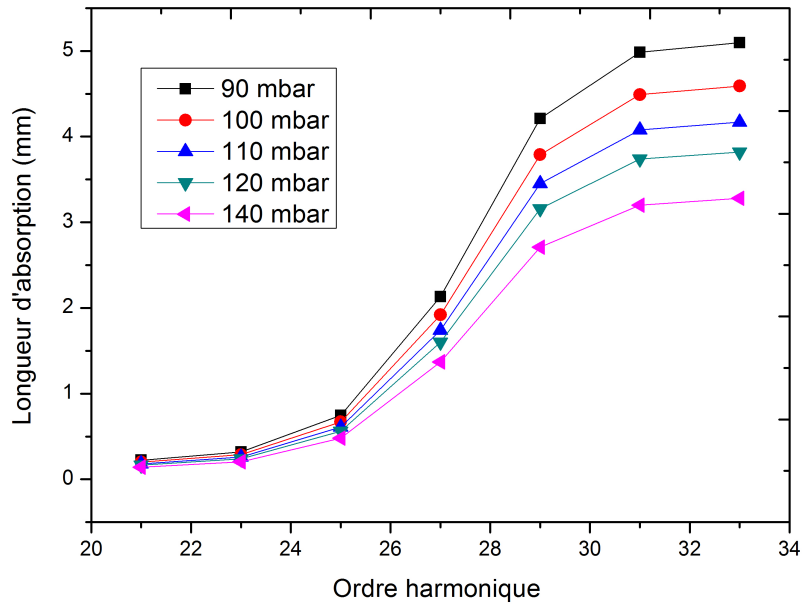


FIGURE 5.36 – Évolution de la longueur d'absorption en mm en fonction de l'ordre harmonique pour quatre valeurs de pressions différentes (90, 100, 110, 120 et 140 mbar). Les ordres harmoniques varient de 23 à 33.

Dans le but de comprendre cette constatation, nous avons calculé l'évolution de la longueur d'absorption dans l'argon. La figure 5.36 montre l'évolution de la longueur d'absorption en mm en fonction de l'ordre harmonique pour quatre valeurs de pression d'argon. On rappelle que la longueur d'absorption joue un rôle important pour la génération d'harmoniques en configuration guidée. L'étude effectuée par Constant et al [E. Constant 1999] montre que le flux de photons est optimisé lorsque $l_{coh} > 5l_{abs}$ et $l_{med} > 3l_{abs}$. Le rayonnement généré en début du capillaire sera réabsorbé au bout de quelques longueurs d'absorption, seuls les photons générés dans le dernier centimètre du tube capillaire arrivent à sortir du milieu sans être réabsorbés. La longueur

d'absorption varie proportionnellement à l'inverse de la pression. Pour q variant entre 23 et 33 elle est toujours inférieure à 5 mm pour des pressions d'argon entre 90 et 140 mbar. La longueur du milieu est égale à 30 mm, donc la condition $l_{med} > 3l_{abs}$ est toujours satisfaite. En conclusion, si l'effet de l'absorption explique en partie ce déplacement du maximum du spectre, il ne peut à lui seul rendre compte de la modification spectrale observée à haute intensité, haute pression, ni expliquer pourquoi l'accord de phase ne semble pas être le facteur limitant l'efficacité de génération pour les ordres les plus élevés du spectre.

5.6.2.5 Influence sur l'élargissement spectral

Nous étudions ici une comparaison en terme d'élargissement spectral entre des spectres obtenus en jet de gaz et en tube capillaire. La figure 5.37 montre trois spectres générés dans l'argon, le spectre (a) correspond au spectre de référence obtenu dans le jet de gaz (figure 5.28), tandis que les spectres (b) et (c) sont issus de la génération dans le tube capillaire pour la même pression d'argon (30 mbar) mais pour deux intensités laser différentes (1.8 et $6.65 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$). A forte intensité laser ($7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$), les harmoniques du spectre (a - jet de gaz) présentent un profil spectral fin ($\simeq 0.3 \text{ eV}$), relativement la même largeur spectrale est observée pour les harmoniques du spectre (b - capillaire) pour une faible intensité laser ($1.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Cependant, lorsque l'intensité laser à l'entrée du tube capillaire augmente (spectre c), les harmoniques s'élargissent d'au moins un facteur cinq et le pic central est décalé d'autant. On définit la largeur spectrale par la largeur à mi hauteur pour une harmonique donnée.

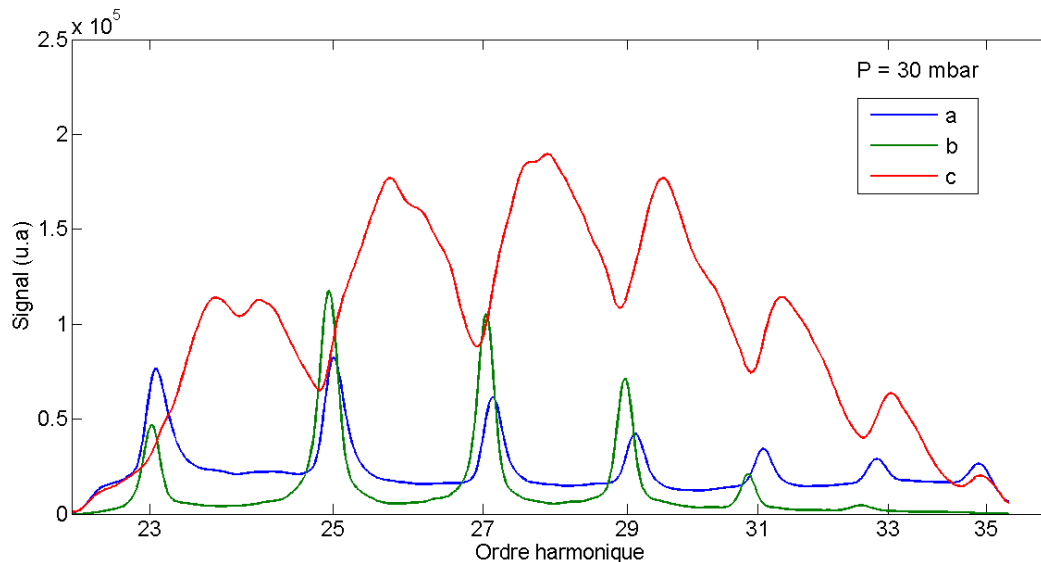


FIGURE 5.37 – Spectres harmoniques générés dans l'argon : (a) Spectre harmonique obtenu dans un jet de gaz pour une pression en amont de 2.6 bar d'argon et avec une intensité laser de $7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. (b et c) Spectres harmoniques obtenus en sortie d'un tube capillaire de 30 mm de longueur et $101 \mu\text{m}$ de rayon. La pression est égale à 30 mbar et l'intensité laser est respectivement égale à $1.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (spectre b) et de $6.65 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (spectre c).

On constate également que le signal des harmoniques générées à forte intensité dans le tube capillaire (spectre (c)) est au moins deux fois plus important que le signal des harmoniques dans les spectres (a et b). A intensités laser relativement comparables, le décalage entre les deux spectres (a) et (c) vaut environ 1.5 eV ce qui est énorme puisque cela correspond à la moitié de l'écart entre deux harmoniques successives.

Les figures 5.38 et 5.39 montrent le même type d'étude comparative entre les spectres (a, b et c) pour 50 et 100 mbar d'argon. Le spectre de référence (a) ainsi que celui obtenu dans le capillaire pour une faible intensité gardent toujours la même largeur spectrale observée pour 30 mbar d'argon, tandis que le spectre généré dans le capillaire (c) montre un élargissement spectral plus important que celui constaté dans la figure 5.38. Les harmoniques se chevauchent entre elles.

On constate également une augmentation du signal harmonique intégré avec la pression. Pour $P = 50$ mbar, le signal des harmoniques 23, 25 et 27 devient comparable pour les deux spectres obtenus en sortie du tube capillaire pour deux intensités différentes. Une question qu'on doit se poser est : pourquoi à intensités laser égales, on observe un élargissement spectral au niveau du spectre obtenu en sortie du tube capillaire et non pas dans le spectre obtenu dans le jet de gaz et pourquoi l'élargissement spectral est accompagné par un décalage d'environ un ordre harmonique ?

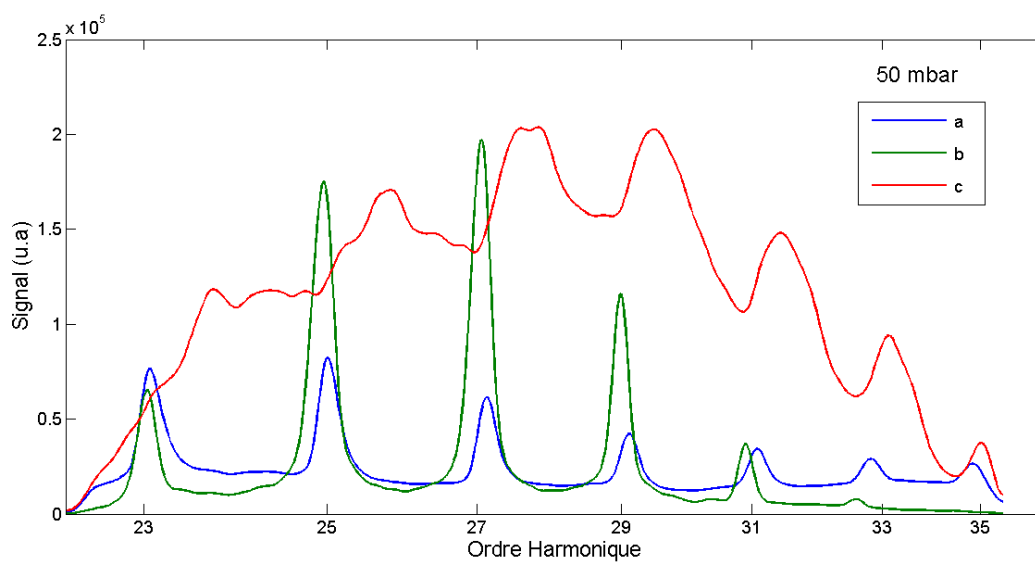


FIGURE 5.38 – Spectres harmoniques générés dans l'argon : (a) Spectre harmonique obtenu dans un jet de gaz pour une pression en amont de 2.6 bar d'argon et avec une intensité laser de $7 \cdot 10^{14}$ W/cm². (b et c) Spectres harmoniques obtenus en sortie d'un tube capillaire de 30 mm de longueur et 101 μ m de rayon. La pression est égale à 50 mbar et l'intensité laser est respectivement égale à $1.8 \cdot 10^{14}$ W/cm² (spectre b) et de $6.65 \cdot 10^{14}$ W/cm² (spectre c).

Pour répondre à cette question, une hypothèse a été étudiée correspondant à la possibilité d'un élargissement spectral dû à une auto-modulation de phase. Cet élargissement spectral aboutirait à une compression de la durée d'impulsion du fondamental permettant de générer des harmoniques larges avec un niveau de signal non-négligeable. Cette hypothèse est basée sur une étude publiée par l'équipe de Kapteyn et Murnane montrant la première démonstration du mécanisme de compression temporelle d'une impulsion laser dans le cas d'une forte intensité laser (forte ionisation). Le capillaire utilisé est de $150\text{ }\mu\text{m}$ de rayon et de 25 mm de longueur. Une auto-compression de 30 à 13 fs a été observée dans un tube capillaire rempli d'argon [Nicholas L. Wagner 2004].

L'auto-compression est le résultat des effets conjugués de la réfraction et du décalage vers le bleu induits par le plasma, de la diffraction du faisceau laser, de la modulation de phase due au changement rapide de l'indice de plasma et de l'effet du guidage dans le tube capillaire. Un modèle 3D, développé par Ivan Christov, a permis d'étudier la propagation dans les tubes capillaires. Ce modèle a montré que le processus de compression d'impulsion est sensible au mode initial couplé dans le capillaire. Ce résultat a été confirmé expérimentalement. La figure 5.40 montre une comparaison entre les calculs théoriques du spectre de l'impulsion fondamentale avant et après la propagation dans le tube capillaire. Le cas de plusieurs pressions d'argon ainsi que l'absence de la pression du gaz ont été examinés. On constate que l'impulsion subit une réduction de sa durée lorsque la pression augmente, celle-ci devrait en théorie être favorable à la génération d'harmoniques.

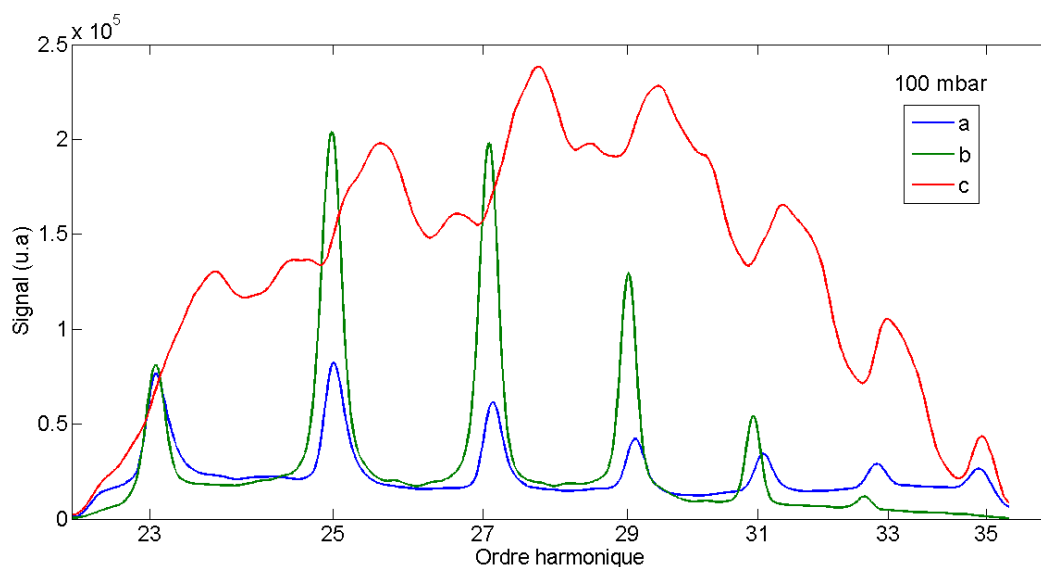


FIGURE 5.39 – Spectres harmoniques générés dans l'argon : (a) Spectre harmonique obtenu dans un jet de gaz pour une pression en amont de 2.6 bar d'argon et avec une intensité laser de $7 \cdot 10^{14}\text{ W/cm}^2$. (b et c) Spectres harmoniques obtenus en sortie d'un tube capillaire de 30 mm de longueur et $101\text{ }\mu\text{m}$ de rayon. La pression est égale à 100 mbar et l'intensité laser est respectivement égale à $1.8 \cdot 10^{14}\text{ W/cm}^2$ (spectre b) et de $6.65 \cdot 10^{14}\text{ W/cm}^2$ (spectre c).

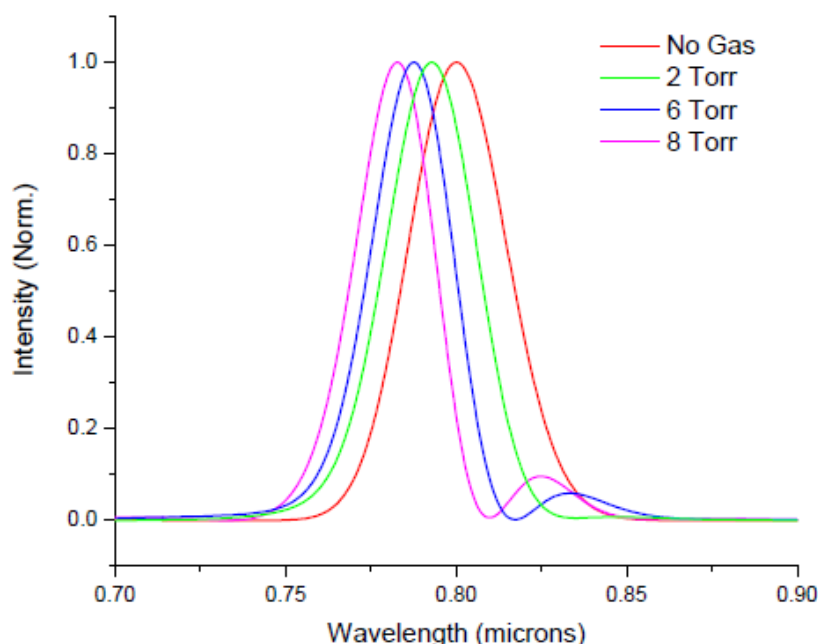


FIGURE 5.40 – Modélisation théorique du spectre de l'impulsion fondamentale avant et après la propagation dans le tube capillaire. Le gaz de l'absence du gaz ainsi que les cas de plusieurs valeurs de pression ont été examinés. Cette figure est extraite de la référence [Gibson 1997].

L'explication de cet effet spectro-temporel lié à la propagation dans un capillaire serait la suivante : lorsque le faisceau lumineux est suffisamment intense deux effets non-linéaires peuvent avoir lieu, le premier effet à apparaître est l'effet Kerr. Cet effet rend compte de la modification, par le faisceau laser, de l'indice du milieu dans lequel se propage l'impulsion conduisant à une auto-focalisation du faisceau sur lui même. Le deuxième effet correspond à l'ionisation agissant comme une lentille divergente sur le faisceau et donc permet sa défocalisation. Dans ce cas, il se produit une compétition entre la focalisation par effet Kerr et la défocalisation par le plasma. Si le milieu de propagation est un tube capillaire, la défocalisation par le plasma est limitée vu la géométrie du guidage à l'intérieur du capillaire, une fois produite elle sera ensuite renvoyée dans le tube capillaire par la réflexion sur les parois.

L'auto-modulation de phase est le résultat d'une modification temporelle de l'indice de réfraction du gaz par effet Kerr. Cette modification induit un décalage de phase de l'impulsion conduisant à une modification du spectre de fréquence de l'impulsion. Une impulsion laser intense permet au spectre de s'auto-élargir lors de la propagation en générant de nouvelles fréquences. Lorsque l'on remet en phase toutes les nouvelles fréquences créées, la durée de l'impulsion laser peut être raccourcie. La création de nouvelles fréquences dans le spectre dépend de la distance de propagation z , de l'indice non-linéaire n_2 et du signe de la pente d'intensité de l'impulsion via l'équation suivante :

$$\omega(t) = -\frac{\partial\phi}{\partial t} = \omega_0 - \frac{n_2\omega_0}{c} \frac{\partial I(r,t)}{\partial t} \quad (5.31)$$

Où ω_0 est la pulsation du laser, c la célérité de la lumière, I l'intensité laser. $\phi(t)$ correspond à la phase instantanée $\phi(t) = \omega_0 t - \frac{2\pi n(t)z}{\lambda_0}$ et $n(t) = n_0 + n_2 I(r,t)$.

L'observation d'un élargissement spectral des harmoniques générées dans un tube capillaire pour une forte intensité laser peut être potentiellement induit par une auto-modulation de phase découlant d'un guidage dans le capillaire. De façon surprenante, une étude de l'effet de l'auto-compression sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés n'a pas été effectuée, à notre connaissance, par cette équipe, pourtant parmi les plus en avance dans le domaine au niveau mondial. Par ailleurs, il n'est pas exclus que Zepf et al, aient observé un effet de ce type dans leurs résultats présentés alors comme du simple quasi-accord de phase.

En conclusion, l'hypothèse la plus probable pour rendre compte de nos résultats expérimentaux, aussi bien que de ceux de l'article de Zepf et al dans la fenêtre de l'eau serait que le couplage au capillaire à relativement haute pression, haute intensité et régime de battement important induise un effet d'auto-compression de l'intensité qui vient renforcer l'effet bénéfique du quasi accord de phase sur l'efficacité de génération.

5.6.2.6 Influence de l'intensité laser

La figure 5.41 présente une étude du signal harmoniques généré dans 22 mbar d'argon en sortie d'un capillaire de 30 mm de longueur mais possédant un diamètre plus grand que celui utilisé pour tout les résultats déjà montrés; $R_{cap} = 150 \mu\text{m}$. Deux spectres sont présentés correspondant à deux intensités laser différentes en entrée du tube capillaire, le spectre (a) a été obtenu pour $3 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ alors que le spectre (b) correspond à une intensité plus élevée ($5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$). Le spectre (c) a été obtenu pour $7 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$. Dans ce cas, l'ouverture de l'iris a été fixée à 14.5 donnant un paramètre de couplage de l'ordre de 0.33. On observe les ordres harmoniques entre 23 et 35. On constate sur cette figure, qu'à pression constante, lorsque l'intensité laser augmente le signal devient plus important et les harmoniques deviennent de plus en plus larges. On constate également que les harmoniques se décalent vers les hautes énergies.

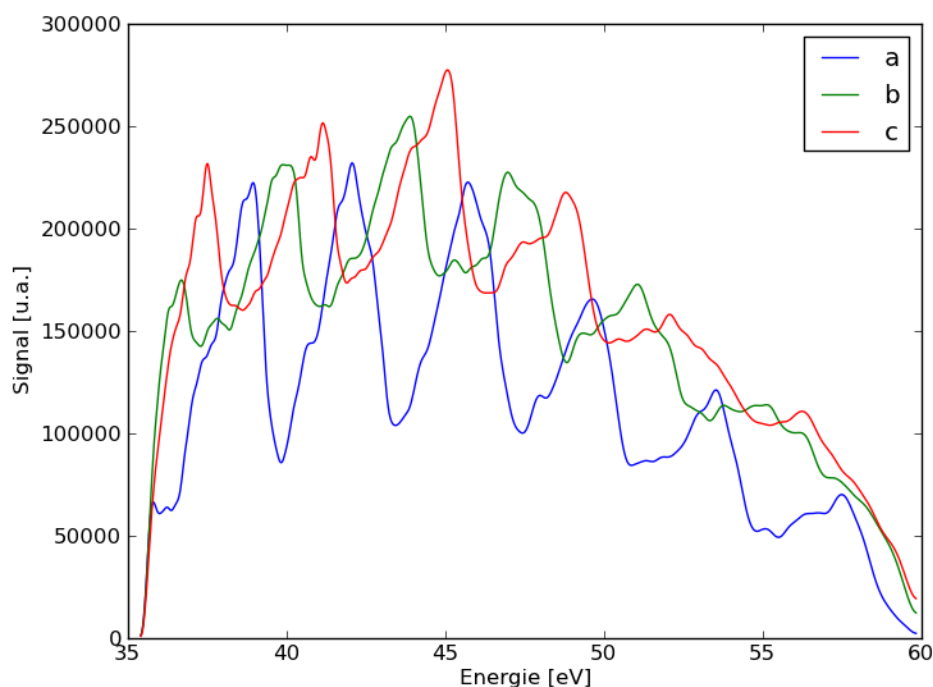


FIGURE 5.41 – Spectres harmoniques obtenus dans 22 mbar d’argon dans un capillaire de 30 mm de longueur et de 150 μm de rayon. Le paramètre de couplage est égale à 0.33 et les harmoniques observées sont entre l’ordre 23 et 35. Le spectre (a) a été obtenu pour une intensité laser égale à $3 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ et le spectre (b) pour une intensité de $5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ et le spectre (c) correspond à une intensité de $7 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$.

5.6.3 Conclusion

La génération d’harmoniques d’ordres élevés dans une configuration guidée était l’objectif initial de ma thèse. Elle a fait l’objet d’une importante partie de mon travail durant ces trois ans. Après la construction et l’optimisation de la source harmonique de la station LASERIX, mon travail a été consacré au développement et à la mise en place du système porte capillaire motorisé sous vide pour un alignement précis. Nous avons été limités sur LASERIX par l’instabilité du pointé de laser, raison pour laquelle nous avons demandé un temps de faisceau au Centre des Lasers Intenses et Applications (CELIA).

Une campagne expérimentale a été effectuée en collaboration avec l’équipe d’Eric Constant au CELIA dont les résultats ont été présentés dans ce chapitre. D’abord une optimisation en fonction des paramètres de génération a été effectuée donnant des résultats standard de l’accord de phase dans un tube capillaire, le gaz principalement étudié étant l’argon. Cet accord de phase est obtenu par une compensation des termes de dispersions électronique et de guidage par la dispersion atomique liée à la pression. Ensuite, nous avons essayé de reproduire les résultats de l’expérience de Zepf et al [M. Zepf 2007] en se plaçant à intensité et pression élevées et en fai-

sant varier le paramètre de couplage. Si nous n'avons pas reproduit les efficacités de conversion record publiées dans la fenêtre de l'eau, nous avons enregistré une forte augmentation du signal harmonique produit dans l'argon dans la région spectrale en dessous de 20 nm. Cette augmentation de signal s'accompagne d'un élargissement spectral très important, aboutissant à un quasi continuum. L'hypothèse avancée pour expliquer ce phénomène est une auto-compression de l'impulsion infrarouge lors de sa propagation guidée dans le capillaire, qui n'exclut pas également des effets de quasi accord de phase. Le travail d'interprétation théorique reste à poursuivre, notamment par des simulations du profil spectral et temporel du laser en propagation multi-mode et en présence de gaz. On peut cependant d'ores et déjà affirmer d'un point de vue expérimental que le profil spectral de la source ainsi produite en fait une excellente candidate pour l'injection dans un plasma de laser X.

Conclusion et Perspectives

Dans ce dernier chapitre, je vais tout d'abord dresser le bilan de cette thèse en rappelant la démarche suivie et les principaux résultats obtenus. Ensuite, je mettrai l'accent sur l'originalité des travaux et je mentionnerai la production scientifique qui en est le fruit. Je proposerai également des axes de recherche pour de futurs travaux.

Cette étude doctorale s'inscrit dans le cadre de travaux de recherche menés sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz rares. La première partie du manuscrit développe les concepts théoriques nécessaires à la compréhension de la physique mise en œuvre dans les expériences présentées dans les autres chapitres. L'enjeu consistait à construire la ligne harmonique de la station LASERIX, l'optimiser et la rendre accessible aux utilisateurs pour des expériences d'applications.

Dans un premier temps, la caractérisation et l'utilisation de la ligne harmonique a été effectuée dans des conditions standard de génération. Rappelons que l'installation de cette ligne a été réalisée à partir d'une salle expérimentale vierge et sur une installation en cours de construction. Un flux de photons XUV comparable aux données bibliographiques correspondant à des installations de même type a été observé dans l'argon ainsi que dans le néon. Dans une seconde étape du travail, les efforts ont été focalisés sur la réalisation d'une expérience d'application afin de confirmer la fiabilité de la source. Une collaboration avec l'Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay (ISMO) et le Laboratoire de d'Utilisation des Lasers Intenses (LULI) a été mise en place. L'objectif de cette collaboration était d'utiliser la source harmonique pour mesurer la résolution temporelle d'une streak caméra. En effet, au vu du panel des sources de lumière existantes dans ce domaine spectral, la source harmonique présente l'avantage de sa courte durée d'impulsion (femtoseconde voire attoseconde) faisant d'elle une source idéale pour calibrer et mesurer la résolution temporelle d'une streak caméra. Cela a constitué le premier résultat sur la source harmonique de LASERIX, permettant de mesurer une résolution temporelle de 2.00 ± 0.18 ps. Ce travail a été publié dans « Applied Physics Letters » [L. Meng 2012]. Une fois la résolution temporelle connue avec précision, il serait intéressant de passer à la détermination de la résolution spatiale de cette caméra streak, deux idées d'expériences sont possibles. Une première idée propose de positionner un objet fin dans la direction de propagation du faisceau harmonique, connaissant la taille de cet objet nous allons pouvoir en déduire la résolution spatiale de la caméra. Une autre idée consiste à imager sur l'écran de la caméra à balayage de fentes, les franges d'interférences provenant des interférences en champ lointain de deux sources harmoniques.

J'ai ensuite entrepris la caractérisation du profil spatial du faisceau en étudiant la divergence du faisceau harmonique produit sur notre ligne. Un travail expérimental ainsi que des estimations théoriques ont été entrepris afin d'évaluer l'effet de la variation de l'ouverture du diaphragme sur la divergence du faisceau. Cette étude nous a permis de démontrer une faible divergence des harmoniques, majoritairement dominée par la contribution de la phase atomique du chemin court.

En parallèle de ce travail de développement expérimental, une étude théorique a été menée visant à la compréhension de résultats expérimentaux controversés publiés dans la référence [J. Seres 2010a]. Sur la base d'une étude bibliographique de la génération d'harmoniques nous avons identifié une question relative à l'accord de phase dans le cas d'une configuration de forte focalisation. Plus précisément, l'observation expérimentale d'une augmentation plus que quadratique du signal harmonique en fonction de la pression a été expliquée en termes d'accord de phase dans la génération d'harmoniques et non pas d'une hypothétique amplification paramétrique dans l'XUV comme l'ont prétendu les auteurs de l'article [J. Seres 2010a]. De plus, des effets fins observés sur les résultats expérimentaux, mais non expliqués par les auteurs, ont été évoqués et interprétés dans cette thèse. Ce travail a fait l'objet de deux publications dans des revues internationales à comité de lecture [S. Kazamias 2010, S. Kazamias 2011].

Le chapitre 4 du manuscrit développe l'étude expérimentale de la génération d'une double impulsion harmonique ayant pour but de préparer une expérience d'injection d'harmoniques dans un plasma de laser X afin d'en étudier la réponse temporelle. Cette expérience destinée à des applications XUV a nécessité un important travail expérimental. Une approche de génération quasi-colinéaire a été choisie. Les deux impulsions laser sont séparées d'un délai temporel variant de 500 fs à 100 ps dans un interféromètre de type Mach Zehnder puis croisées dans le milieu de génération avec un angle de 1 mrad. Pour cette faible valeur d'angle de croisement, la réponse physique du milieu de génération est semblable à la situation d'une configuration de deux faisceaux colinéaires si les deux taches focales sont bien superposées tout au long de la propagation dans le milieu générateur. Dans un premier temps, nous avons effectué une étude de l'influence de l'interaction du gaz avec la première impulsion sur l'efficacité de génération de la deuxième. Si l'énergie et les conditions de focalisation sont les mêmes pour les deux impulsions on observe une perte de signal d'un facteur deux sur la deuxième impulsion. Ceci est dû à l'ionisation du gaz induite par la première impulsion laser. L'étude expérimentale de l'effet du délai temporel sur le comportement du milieu de génération a été élaborée. L'analyse et l'interprétation des données indiquent que le comportement du milieu de génération, suite à interaction avec la première impulsion laser, ne varie pas pendant une durée supérieure à 100 ps. Le délai ne joue donc pas de rôle sur la génération de double impulsion dans la plage temporelle qui nous intéresse. Cette constatation a été faite pour les cas de deux faisceaux laser ayant une polarisation croisée ou parallèle.

Des estimations théoriques du temps caractéristique de recombinaison du plasma ont été effectuées par Gilles Maynard et donnent un ordre de grandeur de 2 ns. Dans un second temps, nous avons effectué, pour un délai fixe, une optimisation de la génération de double impulsion en fonction de la pression et de l'énergie dans le but d'équilibrer l'énergie des deux faisceaux harmoniques. L'énergie laser de la première impulsion s'est avérée le paramètre clé, tandis que la pression ne joue un rôle significative que dans le cas d'une forte intensité laser. Nous avons par ailleurs démontré et expliqué que les spectres harmoniques produits par les deux impulsions consécutives étaient identiques. Cette information est d'un grand intérêt pour une expérience d'injection dans un laser X. En fait, si on veut sélectionner une seule harmonique de chaque faisceau XUV, il est indispensable qu'elles aient la même longueur d'onde. A notre connaissance, c'est la première fois que cette étude temporelle de la génération d'une double

impulsion harmonique a été réalisée. Les résultats résumés dans cette partie ont fait l'objet d'une publication dans « Applied physics B » [S.Daboussi 2012].

La dernière partie de cette étude a donc été consacrée à la génération d'harmoniques à un délai temporel fixé à zéro entre les deux impulsions. Dans ce cas, une émission harmonique dans la direction de la bissectrice des deux faisceaux laser a été observée. Le faisceau généré présente une énergie au moins deux fois plus intense que chacune des deux impulsions harmoniques optimisées indépendamment l'une de l'autre. Il sera nécessaire d'étudier l'influence des paramètres d'optimisation de la génération d'harmoniques sur le comportement d'émission XUV coaxiale. Il pourrait être envisageable d'améliorer le dispositif expérimental utilisé pour la génération d'une double impulsion afin de rendre son utilisation plus simple et afin d'assurer une meilleure stabilité du système. Nous pourrions également penser à modifier la configuration du dispositif pour réduire son encombrement spatial.

À l'origine, le but premier de cette thèse était de répondre à la question « est-il possible de générer dans l'argon des harmoniques à courte longueur d'onde (jusqu'à 4 nm) en utilisant, comme approche de génération, le guidage dans des tubes capillaires conformément aux résultats expérimentaux publiés dans la référence [M. Zepf 2007] ? ». Vu la qualité et l'importance de ces résultats, un état de l'art relativement complet sur la génération d'harmoniques en configuration guidée a été établi. Pour répondre à cette question, nous avons effectué une campagne expérimentale en collaboration avec le laboratoire CELIA à Bordeaux sur une durée de trois semaines. Les premiers résultats concernent l'optimisation du signal harmonique obtenu dans un tube capillaire en fonction des paramètres de génération, un comportement similaire à la génération en configuration libre a été observé : un optimum en pression pour le signal des harmoniques du plateau et une apparition des ordres harmoniques les plus élevés en fonction de l'intensité laser.

Cette étude a également montré qu'il était possible de pousser le cutoff dans l'argon jusqu'à l'ordre harmonique 53 (83 eV) grâce au guidage dans le tube capillaire, néanmoins nous n'avons pas observé les harmoniques de très courtes longueurs d'onde. Des effets sur l'élargissement spectral des harmoniques en fonction de la pression et de l'intensité laser ont été observés. Les harmoniques sont d'autant plus larges pour de fortes pressions et intensités laser. Les résultats obtenus à l'issue de ce travail indiquent un rôle important du guidage du faisceau laser sur l'augmentation de l'ordre harmonique maximal généré. Cette observation est potentiellement la signature d'un effet d'auto-modulation de phase donnant lieu à une augmentation locale de l'intensité à l'intérieur du tube capillaire. Cette hypothèse est à approfondir, elle doit être étudiée avec plus de détails et demande même de refaire des séries d'expériences pour mieux comprendre les effets spectro-temporels qui se produisent au sein du capillaire et qui semblent produire des résultats intéressants en termes d'efficacité de génération à courtes longueurs d'onde.

Bibliographie

- [A. Maquet 1992] A.Maquet, T.Menis, R.Taieb, V.Veniard, and J.Cooper. *Harmonic generation by laser-driven classical hydrogen atoms*. Phys. Rev. A, vol. 46, page 380, 1992. (Cit  en page 24.)
- [A. McPherson 1987] A.McPherson, G.Gibson, H.Jara, U.Johann, T.S.Luk, I.A.McIntyre, K.Boyer, and C.K. Rhodes. *Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gasses*. Journal of the Optical Society of America B, vol. 4, page 595-601, 1987. (Cit  en page 3.)
- [A. Ozawa 2008] A.Ozawa, A.Vernaleken, W.Schneider, I.Gotlibovych, Th.Udem, and T.W.Hansch. *Non-collinear high harmonic generation : a promising outcoupling method for cavity-assisted XUV generation*. OPTICS EXPRESS, vol. 16, page 6233, 2008. (Cit  en page 123.)
- [A. Paul 2006] A.Paul, E.Gibson, X.Zhang, A.Lytle, T.Popmintchev, X.B.Zhou, M.Murnane, I.Christov, and H.Kapteyn. *Phase-matching techniques for coherent soft x-ray generation*. IEEE Journal of Quantum Electronics, vol. 42, page 12, 2006. (Cit  en pages 146 et 149.)
- [A. R. Rundquist 1998] A.R.Rundquist, Ph.D. dissertation, Washington State University. *Phase-matched generation of coherent, ultrafast x-rays using high harmonics*. PhD thesis, Washington State University, 1998. (Cit  en page 145.)
- [A.Klisnick 2002] C.Chenais-Popovics, R.Keenan, S.J.Topping, C.L.S.Lewis, F.Strati, G.J.Tallents, D.Neely, R.Clarke, J.Collier, A.G.MacPhee, F.Bortolotto, P.V.Nickles, and K.A.Janulewicz. *Demonstration of a 2-ps transient x-ray laser*. Phys. Rev. A, vol. 65, page 033810, 2002. (Cit  en page 94.)
- [Andy Rundquist 1998] Andy Rundquist, Charles G.Durfee III, Zenghu Chang, Catherine Herne, Sterling Backus, Margaret M.Murnane, Henry C.Kapteyn. *Phase-Matched Generation of Coherent Soft X-rays*. SCIENCE, vol. 280, pages 1412–1414, 29 MAY 1998. (Cit  en pages 144 et 145.)
- [A.Ozawa 2008] A.Ozawa, A.Vernaleken,W.Schneider, I.Gotlibovych, Th.Udem and T.W.Hansch. *Non-collinear high harmonic generation : a promising outcoupling method for cavity-assisted XUV generation*. Optics Express, vol. 16, page 6233, 2008. (Cit  en page 96.)
- [A.Paul 2003] A.Paul, R.A.Bartels, R.Tobey, H.Green, S.Weiman, I.P.Christov, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, S. Backus. *Quasi-phase-matched generation of coherent extreme-ultraviolet light*. Nature, vol. 421, pages 51–54, 2003. (Cit  en pages xviii, 77, 149 et 150.)
- [A.S.Morlens 2006] A.S.Morlens, J.Gautier, G.Rey, P.Zeitoun, J.P.Caumes, M.Kos-Rosset, H.Merdji, S.Kazamias, K.Cassou, M.Fajardo. *Submicrometer digital in-line holographic microscopy at 32 nm with high-order harmonics*. OPTICS LETTERS, vol. 31, pages 3095–3097, 2006. (Cit  en page 93.)
- [A.V.Birulin 1996a] A.V.Birulin, V.T.Platonenko and V.V.Strelkov. Kvantovaya Electron, vol. 23, page 387, 1996. (Cit  en page 122.)

- [A.V.Birulin 1996b] A.V.Birulin, V.T.Platonenko and V.V.Strelkov. JETP, vol. 83, page 33, 1996. (Cité en page 122.)
- [B. Dromey 2007] B.Dromey, M.Zepf, M.Landreman, and S.M.Hooker. *Quasi-phasematching of harmonic generation via multimode beating in waveguides*. Optics Express, vol. 15, pages 7894–7900, 2007. (Cité en pages xviii, 151, 152 et 153.)
- [Born 1959] Max Born et Emil Wolf. Principles of optics. Pergamon press, 1959. (Cité en page 37.)
- [C. Courtois 2001] C.Courtois, A.Couairon, B.Cros, J.R.Marques, G.Matthieussent. *Propagation of intense ultrashort laser pulses in a plasma filled capillary tube : Simulations and experiments*. PHYSICS OF PLASMAS, vol. 8, page 3445, 2001. (Cité en page 136.)
- [C. G. Durfee 1999] C.G.Durfee, A.R.Rundquist, S.Backus, C.Herne, M.M.Murnane and H.C.Kapteyn. *Phase matching of high-order harmonics in hollow waveguides*. Physical Review Letters, vol. 83, pages 2187–2190, 1999. (Cité en pages 77, 144, 145 et 171.)
- [C.-G. Wahlstrom 1993] C.-G.Wahlstrom, J.Larsson, A.Persson, T.Starczewski and S. Svanberg P.Salieres, Ph.Balcou and Anne L’Huillier. *High-order harmonic generation in rare gases with an intense short-pulse laser*. PHYSICAL REVIEW A, vol. 48, pages 4709–4720, 1993. (Cité en pages xi, 25 et 26.)
- [C.M.Heyl 2012] C.M.Heyl, J.Gudde, A.L’Huillier and U Hofer. *High-order harmonic generation with micro J laser pulses at high repetition rates*. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys., vol. 45, page 074020 (9pp), 2012. (Cité en page 77.)
- [Corkum 1993] P.B. Corkum. *Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization*. Phys. Rev. Lett., vol. 71, page 1994, 1993. (Cité en pages 7, 10, 94 et 114.)
- [COURTOIS 2001] Cedric COURTOIS. *Propagation d’impulsions laser de haute intensité dans des tubes capillaires*. PhD thesis, Université Paris Sud 11, 2001. (Cité en page 136.)
- [D. Feng 1980] D.Feng, N.B.Ming, J.F.Hong, Y.S.Yang, J.S.Zhu, Z.Yang and Y.N.Wang. *Enhancement of second-harmonic generation in linbo crystals with periodic laminar ferroelectric domains*. Applied Physics Letters, vol. 37, page 607, 1980. (Cité en page 147.)
- [Daniel Zimmer 2010] Daniel Zimmer, Bernhard Zielbauer, Moana Pittman, Olivier Guilbaud, Jamil Habib, Sophie Kazamias, David Ros, Vincent Bagnoud, and Thomas Kuehl. *Optimization of a tabletop high-repetition-rate soft x-ray laser pumped in double-pulse single-beam grazing incidence*. Optics Letters, vol. 35, pages 450–452, 2010. (Cité en page 59.)
- [David H. Reitze 2004] David H. Reitze, Sophie Kazamias, Frederick Weihe, Genevieve Mullet, Denis Douillet, Frederika Auge, Olivier Albert, Vidya Ramanathan Jean Paul Chambaret, Daniele Hulin, and Philippe Balcou. *Enhancement of high-order harmonic generation at tuned wavelengths through adaptive control*. Optics Letters, vol. 29, pages 86–88, 2004. (Cité en page 113.)
- [D.G.Deacon 1977] D.G.Deacon, L.R.Elias, J.M.J.Madey, G.J.Ramian, H.A.Scwettman et T.L.Smith. *First operation of free electron laser*. Phys.Re, vol. 38, page 892, 1977. (Cité en page 1.)
- [Dubrouil 2011] Antoine Dubrouil. *Post compression d’impulsions intenses ultra-brèves et mise en forme spatiale pour la génération d’impulsions attosecondes intenses*. PhD thesis, Université de Bordeaux, 2011. (Cité en pages xix, 162, 164 et 165.)

- [E. A. Gibson 2003] E.A.Gibson, A.Paul, N.Wagner, R.Tobey, D.Gaudiosi, S.Backus, I.P.Christov, A.Aquila, E.M.Gullikson, D.T.Attwood, M.M.Murnane, and H.C.Kapteyn. *Coherent soft x-ray generation in the water window with quasi-phase matching*. Science, vol. 302, pages 95–98, 2003. (Cité en pages xviii, 3, 149 et 150.)
- [E. Constant 1999] E.Constant, D.Garzella, P.Breger, E.Mével, Ch.Dorrer, C.Le Blanc, F.Salin and P.Agostini. *Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases : Model and Experiment*. Phys. Rev. Lett, vol. 82, pages 1668–1668, 1999. (Cité en pages 8, 22, 40, 41, 68, 117, 145 et 175.)
- [E. Mével 2000] E.Mével, E.Constant, D.Garzella, P.Breger, C.Dorrer, C.LeBlanc, F.Salin and P.Agostini. *Optimizing high order harmonic generation in absorbing gases*. Multiphoton Processes : ICOMP VIII, 8th International Conference, page 373, 2000. (Cité en page 22.)
- [E. Oliva 2011] E.Oliva, Ph.Zeitoun, M.Fajardo, G.Lambert, D.Ros, S.Sebban, P.Velarde. *Comparison of natural and forced amplification regimes in plasma-based soft-x-ray lasers seeded by high-order harmonics*. Phys. Rev A, vol. 84, page 13811, 2011. (Cité en page 94.)
- [E.A.J.Maracatili 1964] E.A.J.Maracatili et R.A.Schmeltzer. *Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers*. The bell system technical journal, vol. 43, pages 1783–1809, 1964. (Cité en page 132.)
- [E.Priori 2000] E.Priori. Phys. Rev A, vol. 6, page 063801, 2000. (Cité en pages xi et 27.)
- [et M.Xie 1993] K.J.Kim et M.Xie. *Self-amplified spontaneous emission fort short wavelength coherent radiation*. Nucl. Instrum. Methods A, page 331 : 359, 1993. (Cité en page 1.)
- [Ferre 2002] S. Ferre. *Caractérisation expérimentale et simulation des effets thermiques d’une chaîne laser ultraintense base de saphir dopé au titane*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2002. (Cité en page 58.)
- [Gibson 1997] Emily Abbott Gibson. *Quasi-Phase Matching of Soft X-ray Light from High-Order Harmonic Generation using Waveguide Structures*. PhD thesis, B.S. Engineering Physics, Colorado School of Mines, 1997. (Cité en pages xx et 179.)
- [G.Lambert 2008] G.Lambert, T.Hara, D.Garzella, T.Tanikawa, M.Labat, B.Carre, H.Kitamura, T.Shintake, M.Bougeard, S. Inoue, Y.Tanaka, P.Salieres,H.Merdji, O.Chubar, O.Gobert, K.Tahara and M.E.Coupric. *Injection of harmonics generated in gas in a free-electron laser providing intense and coherent extreme-ultraviolet light*. Nature Physics, vol. 4, page 296, 2008. (Cité en page 94.)
- [GODDET 2009] Jean-Philippe GODDET. *Etude et développement de sources laser XUV par injection d’harmoniques d’ordre élevé*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2009. (Cité en page 77.)
- [Haroutunian 2001] Haroutunian. *Sources XUV cohérentes créées par laser femtoseconde : Laser X et optimisation de la génération d’harmoniques d’ordres élevés*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2001. (Cité en page 38.)
- [I. Christov 2000] I.Christov, H.Kapteyn, and M.Murnane. *Quasi-phase matching of high harmonics and attosecond pulses in modulated waveguides*. Optics Express, vol. 7, pages 362–367, 2000. (Cité en pages xviii, 3, 148 et 149.)

- [Ivan P. Christov 1996] Ivan P.Christov, J.Zhou, J.Peatross, A.Rundquist, M.M.Murnane and H.C.Kapteyn. *Nonadiabatic Effects in High-Harmonic Generation with Ultrashort Pulses*. Phys. Rev. Lett, vol. 77, pages 1743–1746, 1996. (Cit  en pages [xi](#) et [27](#).)
- [J.-F. Hergott 2002] J.-F.Hergott, M.Kovacev, H.Merdji, C.Hubert, Y.Mairesse, E.Jean, P.Breger, P.Agostini, B.Carre, and P.Salieres. *Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range*. Phys. Rev A., vol. 66, page 021801(R), 2002. (Cit  en page [32](#).)
- [J. Seres 2007] J.Seres, V.S.Yakovlev, E.Seres, Ch.Streli, P.Wobrauschek, Ch.Spielmann and F.Krausz. *Coherent superposition of laser-driven soft-X-ray harmonics from successive sources*. Nature Physics, vol. 3, pages 878 – 883, 2007. (Cit  en page [148](#).)
- [J. Seres 2010a] J.Seres, E.Seres, D.Hochhaus, B.Ecker, D.Zimmer, V.Bagnoud, T.Kuehl and C.Spielmann. *Laser-driven amplification of soft X-rays by parametric stimulated emission in neutral gases*. Nature Physics, vol. 6, pages 455–461, 2010. (Cit  en pages [xii](#), [4](#), [31](#), [32](#), [33](#), [34](#), [43](#), [46](#), [49](#), [50](#), [52](#), [53](#) et [184](#).)
- [J. Seres 2010b] J.Seres, E.Seres, D.Hochhaus, B.Ecker, D.Zimmer, V.Bagnoud, T.Kuehl and C.Spielmann. *SUPPLEMENTARY INFORMATION*. Nature Physics, vol. 6, pages 1–14, 2010. (Cit  en page [33](#).)
- [J. Zhou 1996] J.Zhou, J.Peatross, M.M.Murnane, and H.C.Kapteyn. *Enhanced high harmonic generation using 25 fs laser pulses*. Physical Review Letters, vol. 76, pages 752–755, 1996. (Cit  en page [146](#).)
- [J.A. Armstrong 1962] J.A.Armstrong, N.Bloembergen, J.Ducuing, and P.S.Pershan. *Interactions between light waves in a nonlinear dielectric*. Physical Review A, vol. 127, page 1918, 1962. (Cit  en page [146](#).)
- [J.B.Bertrand 2011] J.B.Bertrand, H.J.Worner, H.C.Bandulet, E.Bisson, M.Spanner, J.C.Kieffer, D.M.Villeneuve and P.B.Corkum. *Ultrahigh-order wave mixing in noncollinear high harmonic generation*. Phys. Rev. Letters., vol. 106, page 023001, 2011. (Cit  en page [97](#).)
- [Jeffrey L. Krause 1992] Jeffrey L.Krause, Kenneth J.Schafer, and Kenneth C.Kulander. *High-Order Harmonic Generation from Atoms and Ions in the High Intensity Regime*. Phys. Rev. L, vol. 68, pages 3535–3538, 1992. (Cit  en pages [7](#) et [46](#).)
- [J.Gaudin 2004] J.Gaudin, G.Geoffroy, S.Guizard, G.Petit, S.M.Kimentov, S.V.Garnov, P.A.Pivovarov, B.Carre, A.Belsky and P.Martin. *Photoconductivity and photo emission studies of diamond irradiated by ultrashort VUV pulses*. Appl. Phys. B, vol. 78, pages 1001–1004, 2004. (Cit  en page [93](#).)
- [J.M.J.Madey 1971] J.M.J.Madey. *Stimulated Emission of bremsstrahlung in a periodic magnetic field*. Jour.Appl.Phys, vol. 42, page 1906, 1971. (Cit  en page [1](#).)
- [J.P. Goddet 2009] J.Ph.Goddet, S.Sebban, J.Gautier, Ph.Zeitoun, C.Valentin, F.Tissandier, T.Marchenko, G.Lambert, M.Ribieres, D.Douillet, T.Lefrou, G.Iaquaniello, F.Burgy, G.Maynard, B.Cros, B.Robillard T.Moczek J.Nejdl M.Kozlova and K.Jakubczak. *Aberration-free laser beam in the soft X-ray range*. Opt. Lett, vol. 34, page 2438, 2009. (Cit  en page [94](#).)

- [J.Peatross 1994] J.L.Chaloupka J.Peatross et D.D.Meyerhofer. *Opt. Lett*, vol. 19, page 942, 1994. (Cité en page 122.)
- [Ju 2012] J.Ju and B.Cros. *Characterization of temporal and spatial distribution of hydrogen gas density in capillary tubes for laser-plasma experiments*. JOURNAL OF APPLIED PHYSICS, vol. 112, page 113102, 2012. (Cité en page 155.)
- [K. Varju 2005] K.Varju, Y.Mairesse, B.Carre, M.B.Gaarde, P.Johnsson, S.Kazamias, R.Lopez-Martens, J.Mauritsson, K.J.Schafer, PH.Balcou, A.L’huillier et P.Salieres. *Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses*. Journal of modern optics, vol. 52, pages 379–394, 2005. (Cité en pages 78 et 79.)
- [KAZAMIAS 2003] Sophie KAZAMIAS. *Optimisation d’une source d’harmoniques d’ordres élevés pour l’optique non-linéaire dans l’extrême UV*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2003. (Cité en pages xi, 13, 16 et 22.)
- [Keldysh 1965] L.V. Keldysh. *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*. Sov. Phys. JETP, vol. 20, page 1307, 1965. (Cité en pages 9 et 16.)
- [K.J.Schafer 1993] K.J.Schafer, Baorui Yang, L.F.DiMauro and K.C.Kulander. *Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff*. Phys.Rev. Lett., vol. 70, pages 1599–1602, 1993. (Cité en page 10.)
- [L. Meng 2012] L.Meng, A.-C.Bourgau, S.Bastiani-Ceccotti, O.Guilbaud, M.Pittman, S.Kazamias, K.Cassou, S.Daboussi, D.Ros, A.Klisnick. *Characterization of the temporal duration of the XUV laser pulse at the LASERIX facility*. Appl. Phys. Lett., vol. 101, pages 141–125, 2012. (Cité en pages 77, 90 et 183.)
- [Leonard 1987] P.Leonard. *Refractive indices, verdet constants, and polarizabilities of the inert gases*. Atomic Data and Nuclear Data Tables, vol. 14, pages 21–37, 1987. (Cité en pages 144 et 146.)
- [L’Huillier 1993] Anne L’Huillier et Ph. Balcou. *High-Order Harmonic Generation in Rare Gases with a 1-ps 1053-nm Laser*. PHYSICAL REVIEW LETTERS, vol. 70, pages 774–777, 1993. (Cité en pages xi, 15, 24, 72, 76 et 166.)
- [Lytle 2008] Amy Louise Lytle. *Phase Matching and Coherence of High-Order Harmonic Generation in Hollow Waveguides*. PhD thesis, Faculty of the Graduate School of the University of Colorado, 2008. (Cité en pages xi et 14.)
- [M. Berrill 2010] Mark Berrill, David Alessi, Yong Wang, Scott R.Domingue, Dale H.Martz, Brad M.Luther, Yanwei Liu and Jorge J.Rocca. *Improved beam characteristics of solid-target soft x-ray laser amplifiers by injection seeding with high harmonic pulses*. Opt. Lett., vol. 35, page 2317, 2010. (Cité en page 94.)
- [M. Ferray 1987] M.Ferray, A.L’Huillier, X.F.Li, L.A.Lompr, G.Mainfray, and C.Manus. *Multiple harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gasses*. Journal of Physics B, vol. 21, page 31, 1987. (Cité en page 3.)
- [M. Lewenstein 1994] M.Lewenstein, Ph.Balcou, M.Yu.Ivanov, Anne L’Huillier, and P.B.Corkum. *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*. Phys. Rev A, vol. 49, pages 2117–2132, 1994. (Cité en pages 8, 16, 25, 32, 34, 41 et 78.)

- [M. M. Fejer 1992] M.M.Fejer, G.A.Magel, D.H.Jundt, and R.L.Byer. *Quasi-phase-matched 2nd harmonic-generation - tuning and tolerances*. IEEE Journal of Quantum Electronics, vol. 28, pages 2631–2654, 1992. (Cit  en page 147.)
- [M. Schn rer 1999] M.Schn rer, Z.Cheng, M.Hentschel, G.Tempea, P.Kalman, T.Brabec and F.Krausz. *Absorption-Limited Generation of Coherent Ultrashort Soft-X-Ray Pulses*. Phys. Rev. Lett., vol. 83, pages 722–725, 1999. (Cit  en pages 3 et 32.)
- [M. Zepf 2007] M.Zepf, B.Dromey, M.Landreman, P.Foster, and S.M.Hooker. *Bright quasi phase matched soft x-ray harmonic radiation from argon ions*. Physical Review Letters, vol. 99, page 143901, 2007. (Cit  en pages xviii, 151, 152, 154, 162, 181 et 185.)
- [Maiman 1960] T. H. Maiman. *Stimulated optical radiation in ruby*. Nature, vol. 187, page 493-494, 1960. (Cit  en page 1.)
- [M.Drescher 2002] M.Drescher, M.Hentschel, R.Kienberger, M.Uiberacker, V.Yakovlev, A.Scrinzi, TH.Westerwalbesloh, U.Kleinberg, U.Heinzmann and F.Krausz. *Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy*. Nature, vol. 419, pages 803–807, 2002. (Cit  en page 93.)
- [Muller 1998] H.G.Muller et F.C.Kooiman. *Bunching and Focusing of Tunneling Wave Packets in Enhancement of High-Order Above-Threshold Ionization*. Phys. Rev. Lett, vol. 81, pages 1207–1210, 1998. (Cit  en page 12.)
- [N.A.Papadogiannis 2003] N.A.Papadogiannis, L.A.A.Nikolopoulos, D.Charalambidis, G.D.Tzakiris, P.Tzallas and K.Witte. *Two photon ionization of He through a superposition of higher harmonics*. Phys. Rev. Lett., vol. 90, page 133902, 2003. (Cit  en page 93.)
- [Nicholas L.Wagner 2004] Nicholas L.Wagner, Emily A.Gibson, Tenio Popmintchev, Ivan P.Christov, Margaret M.Murnane and Henry C.Kapteyn. *Self-Compression of Ultra short Pulses through Ionization-Induced Spatiotemporal Reshaping*. PHYSICAL REVIEW LETTERS, vol. 93, pages 173902–1 173902–1–173902–4, 2004. (Cit  en page 178.)
- [N.P.Delone 1998] N.P.Delone et V.P.Krainov. Phys. Usp, vol. 41, page 469, 1998. (Cit  en pages 34, 110 et 145.)
- [O. Guilbaud 2006a] O.Guilbaud, A.Klisnick, D.Joyeux, D.Benredjem, K.Cassou, S.Kazamias, D.Ros, D.Phalippou, G.Jamelot and C.Moller. *Longitudinal coherence and spectral profile of a nickel-like silver transient soft X-ray laser*. Eur. Phys. J. D, vol. 40, page 125, 2006. (Cit  en page 94.)
- [O. Guilbaud 2006b] O.Guilbaud, A.Klisnick, K.Cassou, S.Kazamias, D.Ros, G.Jamelot, D.Joyeux, D.Phalippou. *Origin of microstructures in picosecond X-ray laser beams*. Europhys. Lett., vol. 74, pages 823–829, 2006. (Cit  en page 94.)
- [P. Gallant 2000] P.Gallant, P.Forget, F.Dorchies, Z.Jiang, J.C.Kieffer, P.A.Jaanimagi, J.C.Rebuffie, C.Goulmy, J.F.Pelletier, and M.Sutton. *Characterization of a subpicosecond x-ray streak camera for ultrashort laser-produced plasmas experiments*. Rev. Sci. Instrum, vol. 71, page 3627, 2000. (Cit  en page 87.)
- [P. Shkolnikov 1994] P.Shkolnikov, A.Lago, and A.E.Kaplan. *Optimal quasi-phase-matching for high-order harmonic-generation in gases and plasma*. Physical Review A, vol. 50, pages 4461–4464, 1994. (Cit  en page 148.)

- [P.A.Franken 1961] P.A.Franken, A.E.Hill, C.W.Peters and G.Weinreich. *Generation optical harmonics*. Physical Review Letters, vol. 7, pages 118–119, 1961. (Cit  en page 1.)
- [Pascal Salieres 1995b] Pascal Salieres, Anne L’Huillier and Maciej Lewenstein. *Coherence Control of High-Order Harmonics*. PHYSICAL REVIEW LETTERS, vol. 74, pages 3776–3779, 1995. (Cit  en pages xi, 18 et 78.)
- [Pfeifer 2007] T.Pfeifer et M.C.Downer. *Direct experimental observation of periodic intensity modulation along a straight hollow-core optical waveguide*. Opt. Soc. Am. B, vol. 24, pages 1025–1029, 2007. (Cit  en pages xviii, 151 et 152.)
- [Ph. Balcou 1992] Ph.Balcou, A.S.L.Gomes, C.Cornaggia, L.A.Lompre and A.L’Huillier. J. Phys. B, vol. 25, page 4467, 1992. (Cit  en page 24.)
- [Ph. Balcou 1997] Ph.Balcou, P.Salieres, A.L’Huillier and M.Lewenstein. *Generalized phase-matching conditions for high harmonics : The role of field-gradient forces*. Phys. Rev. A, vol. 55, pages 3204–3210, 1997. (Cit  en page 21.)
- [Ph. Balcou 1999] Ph.Balcou, A.S.Dederichs, M.B.Gaarde, and A.L’Huillier. *Quantum-path analysis and phase matching of high-order harmonic generation and high-order frequency mixing processes in strong laser fields*. J. Phys. B, vol. 32, page 2973, 1999. (Cit  en page 36.)
- [P.V. Nickles 1997] P.V.Nickles, V.N.Shlyaptsev, M.Kalachnikov, M.Schnurer, I.Will and W.Sandner. *Short pulse x-ray laser at 32,6 nm based on transient gain in Ne-like Titanium*. Phys. Rev. Lett, vol. 78, pages 2748–2751, 1997. (Cit  en page 2.)
- [P.Zeitoun 2004] P.Zeitoun, G.Faivre, S.Sebban, T.Mocck, A.Hallou, M.Fajardo, D.Aubert, P.Balcou, F.Burgy, D.Douillet, S.Kazamias, G.de Lacheze-Murel, T.Lefrou, S.le Pape, P.Mercere, H.Merdji, A.S.Morelens, J.P.Rousseau, and C.Valentin. *A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam*. Nature, vol. 431, page 426, 2004. (Cit  en page 94.)
- [R.L.Abrams 1972] R.L.Abrams. *Coupling losses in hollow waveguide laser resonators*. IEEE Journal of Quantum Electronics, vol. 8, pages 838–843, 1972. (Cit  en pages 132 et 136.)
- [S. Augst 1989] S.Augst, D.Strickland, D.Meyerhofer and S.Chin and J.Eberly. *Tunneling ionization of noble gases in a high intensity laser field*. Phys. Rev. Lett., vol. 63, page 2212, 1989. (Cit  en page 9.)
- [S. Backus 1998] S.Backus, C.G.Durfee III, M.M.Murnane, and H.C.Kapteyn. *High power ultra-fast lasers*. Review of Scientific Instruments, vol. 69, page 1207, 1998. (Cit  en page 1.)
- [S. Dobosz 2009] S.Dobosz, H.Stabile, A.Tortora, P.Monot, F.R  au, M.Bougeard, H.Merdji, B.Carre, Ph.Martin, D.Joyeux, D.Phalippou, F.Delmotte, J.Gautier and R.Mercier. *Internal frequency conversion extreme ultraviolet interferometer using mutual coherence properties of two high-order-harmonic sources*. Rev. Sci. Instrum., vol. 80, page 113102, 2009. (Cit  en pages xiv, 95, 96 et 100.)
- [S. Kazamias 2002] S.Kazamias, F.Weihe, D.Douillet, C.Valentin, T.Planchon, S.Sebban, G.Grillon, F.Auge, D.Hulin, and Ph.Balcou. *High order harmonic generation optimization with an apertured laser beam*. Eur. Phys. J. D, vol. 21, pages 353–359, 2002. (Cit  en pages xiii, 48, 73 et 74.)

- [S. Kazamias 2003a] S.Kazamias, D.Douillet, C.Valentin, F.Weihe, F.Auge, Th.Lefrou, G.Grillon, S.Sebban, and Ph.Balcou. *Observation of high-contrast coherence fringes in high-order harmonic generation*. PHYSICAL REVIEW A, vol. 68, page 033819, 2003. (Cité en page 50.)
- [S. Kazamias 2003b] F. Weihe C. Valentin A. Rousse S. Sebban G. Grillon F. Auge D. Hulin S. Kazamias D. Douillet et Ph. Balcou. *Global optimization of high harmonic generation*. Phys. Rev. Lett., vol. 90, page 193901, 2003. (Cité en pages 34, 35, 48 et 94.)
- [S. Kazamias 2006] S.Kazamias, K.Cassou, O.Guilbaud, A.Klisnick, D.Ros, F.Ple, G.Jamelot, B.Rus, M.Koslova, M.Stupka, T.Mocek, D.Douillet, Ph.Zeitoun D.oyeux, D.Phalippou. *Homogeneous focusing with a transient soft X-ray laser for irradiation experiments*. Optics Communications, vol. 263, pages 98–104, 2006. (Cité en page 77.)
- [S. Kazamias 2010] S.Kazamias, S.Daboussi, O.Guilbaud, K.Cassou, C.Montet, O.Neuveu, D.Ros, B.Cros, and G.Maynard. *The super-quadratic growth of high harmonic signal as a function of pressure*. Nature Phys., vol. 6, page 927, 2010. (Cité en pages 52 et 184.)
- [S. Kazamias 2011] S.Kazamias, S.Daboussi, O.Guilbaud, K.Cassou, D.Ros, B.Cros and G.Maynard. *Pressure-induced phase matching in high-order harmonic generation*. PHYSICAL REVIEW A, vol. 83, page 063405, 2011. (Cité en pages 52, 53, 116 et 184.)
- [S.Daboussi 2012] S.Daboussi, K.Kazamias, K.Cassou, O.Guilbaud, M.Pittman, O.Delmas, O.Neuveu, B.Cros, G.Maynard and D.Ros. *Double pulse quasi-collinear high harmonic generation scheme as a tool for x-ray laser plasma gain probing*. Applied Physics B., DOI 10.1007/s00340-012-5298-9, 2012. (Cité en pages 96 et 185.)
- [Strickland 1985] D.Strickland and G.Mourou. *Compression of amplified chirped optical pulses*. Opt. Commun., vol. 56, pages 219–221, 1985. (Cité en pages 1 et 56.)
- [S.V.Fomichev 2002] S.V.Fomichev, P.Berger, B.Carre, P.Agostini and D.F.Zaretsky. *Non-Collinear High-Harmonic Generation*. Laser Physics, vol. 12, pages 383–388, 2002. (Cité en page 123.)
- [T. Mocek 2005] T.Mocek, S.Sebban, G.Maynard, Ph.Zeitoun, G.Faivre, A.Hallou, M.Fajardo, S.Kazamias, B.Cros, D.Aubert, G.de Lacheze-Murel, J.P.Rousseau, and J.Dubau. *Absolute Time-Resolved X-Ray Laser Gain Measurement*. Phys. Rev. Lett., vol. 95, page 173902, 2005. (Cité en page 94.)
- [T.Mocek 2004] T.Mocek, S.Sebban, I.Bettaibi, L.M.Upcraft, P.Balcou, P.Breger, P.Zeitoun, S.Lepape, D.Ros, A.Klisnick, A.Carillon, G.Jamelot, B.Rus and J.-F.Wyart. *Characterization of collisionally pumped optical-field-ionization soft X-ray lasers*. Appl. Phys. B, vol. 78, pages 939–944, 2004. (Cité en page 94.)
- [X. Zhang 2007] X.Zhang, A.L.Lytle, T.Popmintchev, X.Zhou, H.C.Kapteyn, M.M.Murnane, and O.Cohen. *Quasi-phase-matching and quantum-path control of highharmonic generation using counterpropagating light*. Nature Physics, vol. 3, pages 270–275, 2007. (Cité en page 151.)
- [Xinkui He 2009] Xinkui He, M.Miranda, J.Schwenke, O.Guilbaud, T.Ruchon, C.Heyl, E.Georgadiou, R.Rakowski, A.Persson, M.B.Gaarde and A.L’Huillier. *Spatial and spectral properties of the high-order harmonic emission in argon for seeding applications*. PHYSICAL REVIEW A, vol. 79, page 063829, 2009. (Cité en pages 77, 78, 82 et 84.)

-
- [Yusuke Tamaki 1999] Yusuke Tamaki, Jiro Itatani, Yutaka Nagata, Minoru Obara and Katsumi Midorikawa. *Highly Efficient, Phase-Matched High-Harmonic Generation by a Self-Guided Laser Beam*. Phys. Rev. Lett, vol. 82, page 1422, 1999. (Cité en page 69.)
- [Yusuke Tamaki 2000] Yusuke Tamaki, Jiro Itatani, Minoru Obara, and Katsumi Midorikawa. *Optimization of conversion efficiency and spatial quality of high-order harmonic generation*. Phys. Rev A., vol. 62, page 063802, 2000. (Cité en page 32.)
- [Y.Wang 2008] Y.Wang, E.Granados, F.Pedaci, D.Alessi, B.M.Luther, M.Berrill and J.J.Rocca. *Phase-coherent, injection-seeded, table-top soft-X-ray lasers at 18.9 nm and 13.9 nm*. Nature Photonics, vol. 2, page 94, 2008. (Cité en page 94.)

Liste de publications

PUBLICATIONS A COMITÉ DE LECTEURS :

1. **S.Daboussi**, S.Kazamias, K.Cassou, O.Guilbaud, M.Pitmann, O.Delmas, O.Neveu, B.Cros, G.Maynard and D.Ros, «**Double pulse quasi-collinear high harmonic generation scheme as a tool for x-ray laser plasma gain probing**», **Applied Physics B**, Appl. Phys. B, DOI 10.1007/s00340-012-5298-9 (2012).
2. S.Kazamias, **S.Daboussi**, O.Guilbaud, K.Cassou, D.Ros, B.Cros, and G. Maynard, «**Pressure induced phase matching in high harmonic generation**», **PHYSICAL REVIEW A**, **83** 063405 (2011).
3. S.Kazamias, **S.Daboussi**, O.Guilbaud, K.Cassou, C.Montet, O.Neveu, D.Ros, B.Cros and G.Maynard, «**The super-quadratic growth of high harmonic signal as a function of pressure**», **NATURE PHYSICS**, **6** 927 (2010).
4. L.A.Wilson, G. J.Tallents, J.Pasley, D.S.Whittaker, S.J.Rose, O.Guilbaud, K.Cassou, S.Kazamias, **S.Daboussi**, M.Pittman, O.Delmas, J.Demailly, O.Neveu and D.Ros, «**Energy transport in short-pulse-laser-heated targets measured using extreme ultraviolet laser backlighting**», **PHYSICAL REVIEW E**, **86**, 026406 (2012).
5. L. Meng, A.-C. Bourgaux, S. Bastiani-Ceccotti, O. Guilbaud, M. Pittman, S. Kazamias, K. Cassou, **S.Daboussi**, D. Ros, and A. Klisnick, «**Temporal characterization of a picosecond XUV laser pumped in grazing incidence**», **Appl.Phys.Lett**, **101**, 141125 (2012).
6. B.Ecker, E.Oliva, B.Aurand, D.C.Hochhaus, P.Neumayer, H.Zhao, B.Zielbauer, K.Cassou, **S.Daboussi**, O.Guilbaud, S.Kazamias, T.T.T.Le, D.Ros, P.Zeitoun and T.Kuehl, «**Gain lifetime measurement of a Ni-like Ag soft X-ray laser**», **Optics Express**, **20**, 25391 25399 (2012).

PROCEEDINGS DE CONFÉRENCES :

1. **S.Daboussi**, S.Kazamias, O.Guilbaud, K.Cassou, C.Montet, O.Neveu, B.Cros, D.Ros et G.Maynard, **Controverse sur la technique de génération d'harmoniques dite XPA**, pp. 187-191 UVX-2010 **EDP Sciences**, 2011.

Double pulse quasi-collinear high harmonic generation scheme as a tool for X-ray laser plasma gain probing

Sameh Daboussi · Sophie Kazamias · Kevin Cassou · Olivier Guilbaud ·
Moana Pittman · Olivier Delmas · Olivier Neveu · Brigitte Cros ·
Gilles Maynard · David Ros

Received: 22 June 2012 / Accepted: 9 November 2012
© Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2012

Abstract We have investigated high harmonic generation in an argon gas cell driven by two femtosecond laser pulses separated by a variable delay ranging from 500 fs to 100 ps. Experiments were performed at the LASERIX IR-EUV facility using an amplified 10 Hz CPA Ti:Sapphire laser system on a beamline delivering 50 fs pulses at 800 nm with energy up to 25 mJ. In the case of a non-zero time delay we studied the optimal conditions for equilibrated double pulse generation despite perturbation of the generating medium induced by the first pulse. We showed how high harmonic double pulse generation varies with the gas pressure, the excitation energy, the delay and the relative polarization between the two laser pulses.

1 Introduction

High order harmonic generation (HHG) is a nonlinear coherent interaction process between atoms and a driving laser field which produces ultra-short coherent radiation reaching the soft X-ray region [1–3]. HHG has been used

as a powerful table top tool for a number of applications such as holography [4] and nonlinear optics [5].

One of the emerging and very promising applications of HHG is the seeding of plasma-based soft X-ray laser (SXRL) [6, 7] and free electron lasers [8]. Traditionally, these systems use to work respectively in the amplification of spontaneous emission (ASE) regime or self-amplification of spontaneous emission (SASE) regime. This presents some limitations in terms of the extreme UV (EUV) beam optical properties [9, 10]. Strong enhancement of beam collimation, spatial coherence and temporal coherence has been demonstrated in plasma-based SXRL by seeding proper EUV beam. This opens the way to sources combining the high output energy of SXRL source with the spatial and temporal coherence of the HHG source [11, 12]. It is important to point out that seeding requires not only well-characterized and optimized harmonics but also high enough energy in order to dominate the spontaneous emission signal.

We investigate in this paper the possibility to generate a seed pulse with a double temporal structure with variable delay in the picosecond range. This waveform would be attractive for different EUV-EUV pump-probe experiment but also to study more deeply the plasma-based SXRL seeding temporal aspects like gain build up and recovery time [13] or medium polarization evolution [14].

The first harmonic pulse would act as a pump by triggering the gain depletion and the second one as a probe of the residual gain and the polarization behavior of the amplifying plasma. A popular scheme to obtain efficient EUV amplification in a plasma is the transient collisional excitation (TCE) in which the pumping of population inversion in pre-existing ions is induced by a short laser pulse via electron collisional excitations, leading to high gain value at short wavelength. For this type of experiment,

S. Daboussi (✉) · S. Kazamias · K. Cassou · O. Guilbaud ·
O. Neveu · B. Cros · G. Maynard · D. Ros
LPGP, CNRS, UMR 8578, Univ. Paris-Sud, Bat 210,
Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France
e-mail: sameh.daboussi@u-psud.fr

S. Daboussi · S. Kazamias · K. Cassou · O. Guilbaud ·
M. Pittman · O. Delmas · O. Neveu · D. Ros
LASERIX, CLUPS- LUMAT, Univ. Paris-Sud, CNRS FR 2764,
Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

O. Delmas
Amplitude Technologies, 2-4 rue du bois chaland-CE,
91029 Evry, France

the relevant temporal range of interest ranges from 500 fs to 10 ps, as gain duration inferred from ASE pulse duration measured with streak cameras [15] or cross correlation [16] techniques are of the order of a few picoseconds. We will therefore concentrate our study on double pulse seed with delay covering this temporal range.

2 Position of the problem

To our knowledge due to fundamental and technical issues, HHG pumped by two close following short pulses in the picosecond range has not been studied extensively except for zero delay. First of all, the pump energy level required to generate high energy per harmonic pulse is rather high (5–10 mJ minimum for argon gas) and not often available on the kilohertz laser installations dedicated to HHG studies and applications. Secondly, it is well known that HHG is a multi-photon process closely linked with laser field ionization of gases, so that no efficient harmonic generation can really take place without a small amount of ionization [17]. Conversely, ionization causes electronic dispersion in the generating gas which is detrimental for phase-matching [18]. Efficient harmonic generation in a pre-ionized medium that has already generated a harmonic pulse is thus a non-trivial issue. This was observed in the early 2000s by the CEA-Saclay group when they performed HHG interferometry [19]; in this case the HHG beam generated by the second pulse in the same gas target was so perturbed that they preferred to generate two different HHG sources originating from two different gas targets. Significant results were then obtained using such a device for EUV plasma interferometry [20] at the price of a complex optical system. The advantage of our configuration is that alignments are considerably simplified as compared to double target systems, because the two-pulse EUV lies in the same beam leading therefore to simpler arrangement for SXRL experiments seeding. The present work aims at studying the problem of double pulse HHG from the same medium, in terms of its temporal response, the influence of phase-matching optimization with respect to pumping energy and gas pressure in the case of efficient loose focusing geometry [21].

3 Quasi collinear generation process

A key issue for the double harmonic pulse generation and optimization is the possibility to discriminate between two EUV pulses generated with a time delay in the picosecond range for pump-probe experiments. It is indeed important to fully characterize behavior of the second pulse independently with respect of the first one, in terms of total

energy, spectrum and transverse profile. Extreme UV streak cameras could hardly reach such temporal resolution but the complex working conditions they require, together with their small dynamic range make them hard to use. We made the choice to use a slightly non-collinear double pulse conversion configuration. For this, the two laser excitation pulses were shaped in a Mach–Zehnder type interferometer with variable delay and are non-collinearly recombined at focus, in the gas cell. This was done with a small angle as possible so as to make them spatially overlapping such as if they were collinear. As will be shown later, the interaction volumes of both pulses overlap at 90 %. Because of the low harmonic divergence, the two harmonic beams generated by each of the pulses can then be distinguished on far field detectors after a few meters of propagation thanks to the non-collinear geometry. As an illustration Fig. 1 shows the footprints of HHG beams generated by each isolated beam and by their combination at a delay of 10 ps.

Non-collinear techniques have already been studied for several applications in the case of zero delay between the two pulses, for example in order to increase the yield of various low-order wave mixing processes [22, 23], to separate generated EUV from excitation IR beam by generating a HHG beam in the middle direction resulting from the coherent mixing of the two intensities, ultra high-order wave mixing with cross angle about 14 mrad [24]. In some conditions, when the cross angle is more important (30 mrad), non-collinear high harmonic generation can be used as an out coupling method for cavity assisted EUV generation [25]. Theoretical interpretations of the results obtained for zero delay have been proposed in terms of infrared field enhancement and modified phase-matching conditions as early as 2002 [23], and more recently the two color experiment from [24] was interpreted in terms of perturbation theory. Our experiment and its interpretation are radically different in the sense that the two consecutive pulses generating the double temporal structure are not interfering in the gas medium when generating HHG. To our knowledge, our experimental setup with both controllable infrared energy and temporal delay in the picosecond range is a new approach for HHG based applications.

4 Experimental setup

The experimental investigation was carried out at LASERIX, a high-power laser facility fully dedicated to the development and applications of SXRL beams in the range of 7–30 nm [26]. The IR source used in our experiment is based on a low energy sampling from the amplified Ti:Sapphire laser system that provides 50 fs duration pulses centered at a wavelength of 800 nm. Due to pulse air

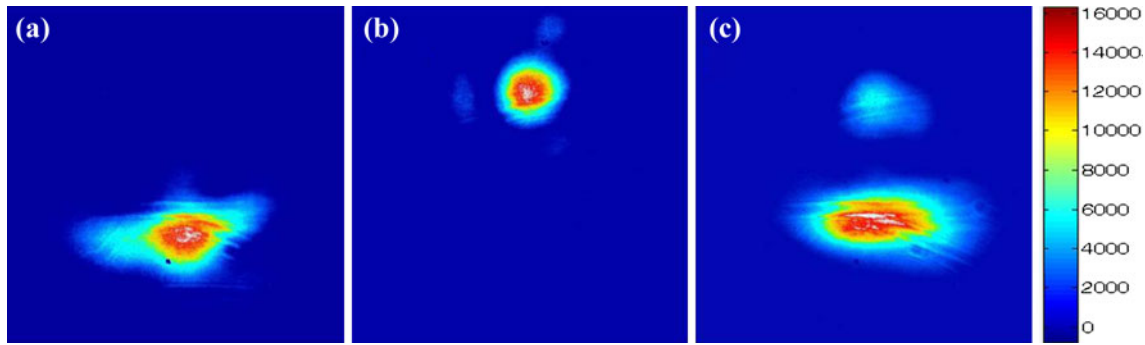


Fig. 1 **a, b** Footprints of HHG beams generated in 15 mbar of argon by each isolated IR beam of 1.5×10^{14} W/cm². **c** Footprints of HHG beams generated in 15 mbar of argon by both the first (*lower trace*) and the second (*upper trace*) IR beams for a delay of 10 ps. Footprints

measured 3 m away from the HHG source. Transverse separation is about 1 mm corresponding to an angular separation of about 1 mrad between the 2 beams

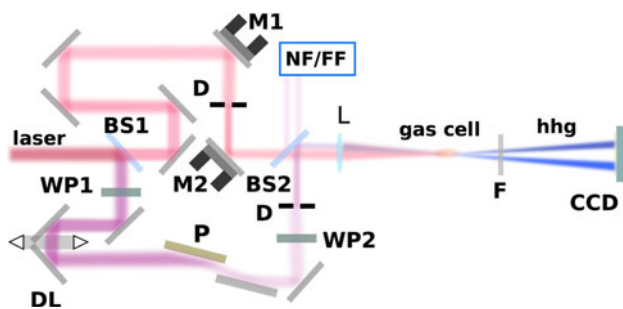


Fig. 2 Experimental setup for quasi-collinear HHG: BS, beamsplitter 50/50; WP1, half wave plates; P, Brewster Polarizer; NF, real time near field control; FF, real time far field control; D, iris diaphragm; L, lens $f = 1100$ mm and F, Al 0.2 μ m thick filter. The polarization of the reflected pulse is controlled using the wave plate WP2. Reflected energy sent on the cell is adjusted with WP1+P

compression, the maximum energy dedicated to HHG is limited to 25 mJ at a repetition rate of 10 Hz. The schematic of our setup for quasi-collinear HHG is shown on Fig. 2. The incoming laser pulse is injected into a Mach-Zehnder type system equipped with an adjustable length arm in order to control the delay (-100 ps, $+100$ ps) between the reflected and the transmitted pulses. The temporal resolution of the system was 6 fs limited by the motorized translation stage accuracy. The polarization of the two beams could be set parallel or perpendicular to each other. A polarizer associated with a zero order half wave plate was installed in the path of the reflected beam in order to adjust its energy. Variable apertures were placed on both the reflected and the transmitted beams to adjust intensities and focusing geometries [21].

The two beams are recombined with a 50/50 thin beam splitter with a small transverse separation of about 1 mm and then focused into the gas cell with an f1100 mm lens with a small angle. The recombination angle which is of the order of 1 mrad was chosen in order that, considering their own divergence which is also about 1 mrad for each

HHG pulse, the two EUV beams do not overlap on the detector situated 3 m away from the gas cell. The footprints of the two generated EUV beams were recorded 3 m further from the source on a backlighted EUV CCD camera (Fig. 1). The harmonic spectrum is then analyzed by a transmission-grating spectrometer coupled to a backlighted EUV CCD camera placed at a similar distance from the source. The generation medium is a 10 mm long gas cell which center is placed on the focal plane of the IR beams. The beam waist has been measured to be $w_0 = 80$ μ m (half-width at $1/e^2$) for both beams. The 1 mrad angle between them leads to a maximum spot separation of 5 μ m into the generating medium, one order of magnitude smaller than the waist value. The transmitted laser light and high harmonic orders higher than 47 were blocked by an aluminum filter (0.2 μ m thickness). After energy optimization in argon for HHG signal separately for each pulse, only 10 mJ of the 25 mJ available energy was used in our configuration. The estimated energy per harmonic beam is 70 pJ using the CCD and filter calibration and referring to previous EUV calibrated photodiode [27] data obtained in similar conditions. In those conditions a precise laser alignment is crucial to achieve precise superposition of the beams in the focal region. A real time control of near and far fields showed that the two focal spots still spatially superimposed throughout the cell when varying the delay.

5 Temporal delay effect

5.1 Experimental investigation

After HHG optimization of each of the two individual beams, EUV generation using both of them simultaneously was studied. For a null delay between the two quasi-collinear pulses, a clear on-axis signal was observed similar to observation reported in already mentioned works [23] and

[25] giving confidence in correct superposition and timing of both IR pulses. The influence of the delay was then analyzed for equivalent generation conditions on both arms (15 mbar of argon, same IR intensity about 1.5×10^{14} W/cm²). Figure 3 shows the delay scan from 500 fs to 100 ps of the normalized integrated signals of the two HHG beams recorded with the EUV-CCD camera. These curves were obtained by the ratio between the measurements of the total integrated EUV signal generated by the first (resp. the second) IR beam in the double and single pulse configurations. Each IR pulse was first individually optimized in order to obtain two equivalent EUV signals on the CCD footprint (with 16 bits dynamic). These signals were used as references for the two pulse configuration. Each measurement was averaged over five laser shots and the experiment was repeated over several days with real time spatial control of the superposition of the two focal spots as shown on Fig. 1 (NF-FF). The represented error bars are attributed to HHG signal fluctuations due to shot to shot variations of laser energy. The slow drift of the laser pointing mainly due to delay line adjustment were checked and corrected before each acquisition.

As expected, the first pulse is not affected by the presence of the second one. The ratio slightly higher than one is not significant since it represents the ratio over two integrated signals measured with an interval of few tens of minutes. For the pulse arriving later, the signal ratio is approximately half maximum value for any kind of delay in the range studied. This indicates that HHG phase-matching for the second pulse is presumably perturbed by the ionization due to the first one. Moreover, this alteration of the generation conditions does not seem to depend on the delay, even for values as long as 100 ps. The same

behavior was observed for parallel and perpendicular pulses polarization.

5.2 Theoretical estimations for plasma recombination characteristic time

This independence with delay of harmonic generation condition for the second pulse has been investigated theoretically. As mentioned above, the optical field of the first intense pulse ionizes the medium. Using the Ammosov–Delone–Krainov (ADK) ionization rate (τ) [28], a maximum of 5 % of the argon atoms are expected to be ionized in our experimental conditions for a 25 mbar argon pressure and a maximum intensity of 1.5×10^{14} W/cm².

Calculations have been performed using a zero dimension (0D) optical field ionization (OFI) code predicting the energy distribution of electrons coupled to a collisional radiative model [29–31]. Temperature predicted for heavy particle (atoms and ions) is close to the room temperature whereas electrons reach a 0.5 eV temperature immediately after the first pulse interaction. In that case, neither hydrodynamic expansion which is estimated to be about 0.15 μ m during 100 ps nor excitation by collisions have time to play a significant role. Besides, for this low temperature, the energy exchange between electrons and heavy particles is dominated by ion-electron collisions with a characteristic time of 1 μ s leading to a negligible cooling of the electron gas of 0.01 % in 100 ps. Moreover the recombination rates are also small. In this context, the three body recombination mechanism is dominant. However, the direct recombination to the fundamental state has a characteristic time of the order of 1 ms and only recombination to highly excited states can then have a significant rate. These excited neutral atoms decay slowly to the fundamental state, with a characteristic time of 2 ns. Moreover, they are more rapidly ionized by the optical field of the second pulse than neutral atoms in the ground state. From the harmonic generation point of view the excited neutral species behave as ionized species.

In summary, these theoretical estimations show that the plasma effective recombination time is of the order of a few nanoseconds. Once perturbed by the first pulse, the generating medium does not significantly evolve on tens of picosecond timescales. The behavior remains stable during more than 100 ps, so for the following parts, the time delay between the two pulses will be arbitrarily set at 10 ps.

6 Spectra discussion

The recorded HHG emission spectra generated by the two IR pulses in 15 mbar of argon are displayed in Fig. 4. The upper curves show the estimated spatially integrated

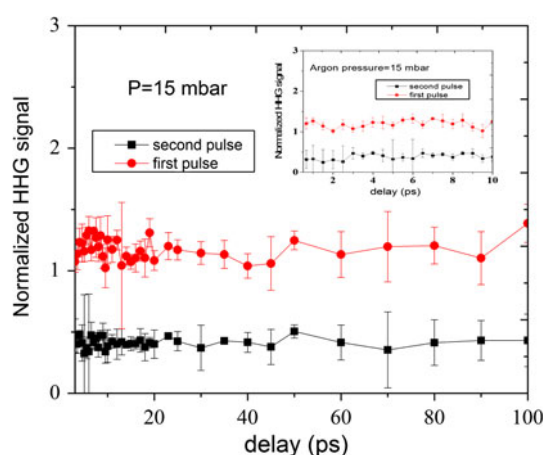


Fig. 3 Measured HHG signal generated by the first pulse (*circle*) and by the second pulse (*square*) as a function of the delay in 15 mbar of argon. These measurements correspond to encircled energy recorded on the CCD normalized with respect to the corresponding single HHG beam

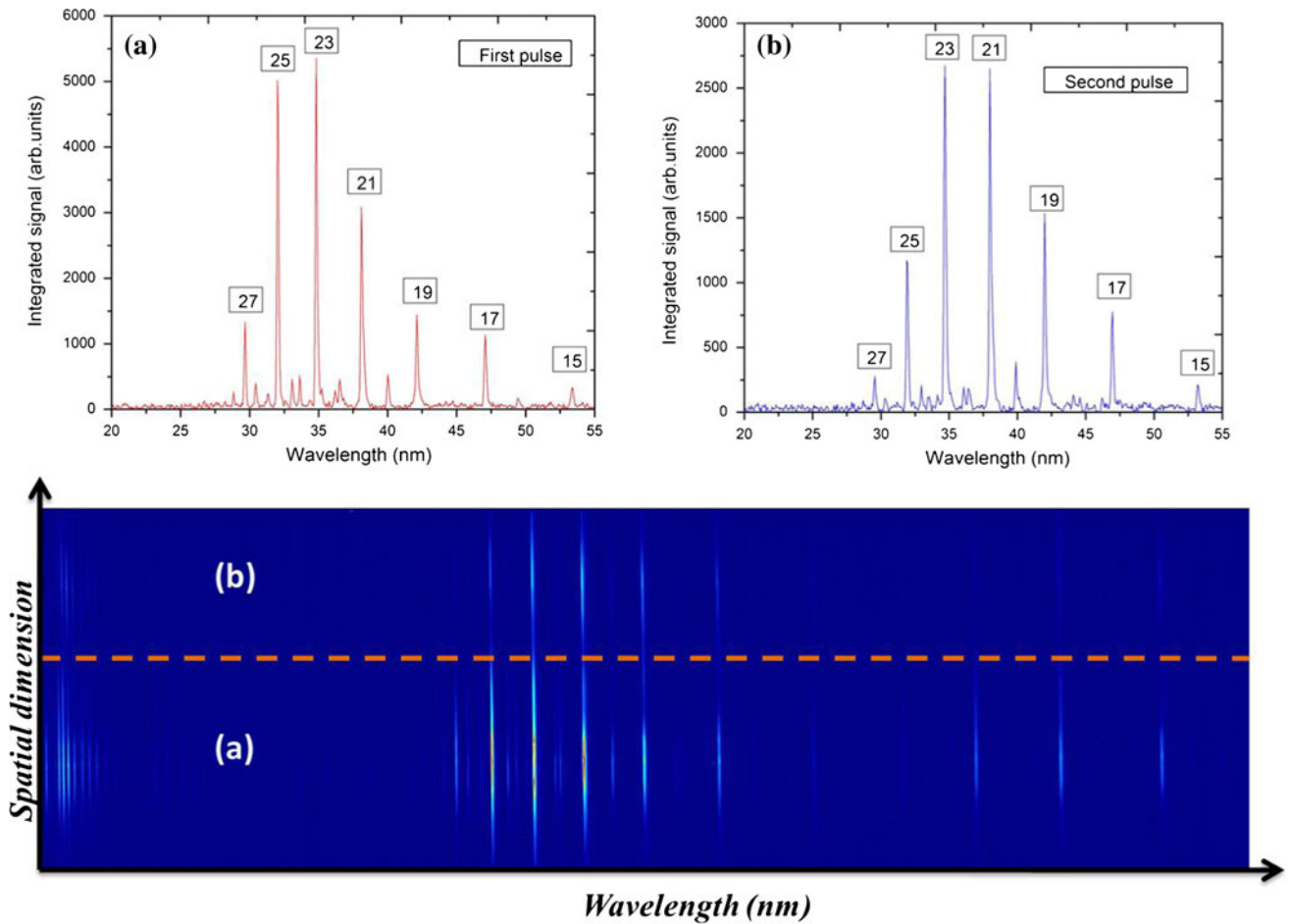


Fig. 4 Measured harmonic spectra generated in 15 mbar of argon from: **a** the first IR beam and **b** the second IR beam. The delay is fixed to 10 ps. For both spectra we observe the same harmonics from 15 to 27

photon flux per harmonic order with respect to wavelength. The lower pictures shows the spectra recorded in one image for 2 mJ of IR energy in both pulses measured for a diaphragm aperture of 11 mm diameter on both beams and the time delay was arbitrarily set at 10 ps.

As shown in Fig. 4, in both spectra we observe the same peaks occurring at odd multiples of the driving laser frequency from 15th to 27th (53.33–29.62 nm) corresponding to the same cutoff. Neither spectral shift nor widening is observed for the second HHG pulse.

The spectral shift compared to the central wavelength can occur for the second pulse if during the generation, a temporal variation of the atomic phase gradient ($\alpha \frac{\delta I}{\delta t}$), the atomic dispersion (δk_{at}) or the electronic dispersion (δk_{elec}) [32] is induced by the first pulse, with $\alpha = 2 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ for the first quantum path and $\alpha = 22 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ for the second quantum path.

After interaction with the first pulse, the generation conditions for the second one are certainly not the same as for the first. The electronic and atomic dispersions are modified, but no modification of their temporal derivative

can take place since the ionization rate in the medium does not depend on the time since we consider no coherent effect between the two laser pulses can appear at such timescale. We can also remark that the harmonics from both spectra are spatially well confined (low divergence 1 mrad), thus a dominant contribution from the short trajectory may be assumed. This can explain why there is no spectral modification in the spectrum of the second pulse despite the ionization in the medium before generation.

We couldn't measure the duration of the two HHG pulses because we do not have the appropriate setup. But we can conclude from the spectrum of the second pulse that no temporal change has occurred since no spectral broadening is observed.

Future work will aim to inject the 25th harmonic into SXRL plasma amplifiers pumped by intense optical laser pulses on a solid titanium target (32.6 nm line of neon-like titanium). So, there is keen interest for the injection experience to generate the same harmonics with a temporal double pulse structure to probe the SXRL plasma gain.

7 Phase matching optimization

For the following study, the temporal delay was set at 10 ps and we optimized the infrared energy and the gas pressure in order to balance the intensity of the two HHG beams. Maximum HHG signal was obtained independently for each excitation beam with comparable pulse peak intensities of $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ resulting from 2 mJ of the 50 fs IR pulses with an aperture size at near field of 11 mm. The waists of the driving beams at focus were $w_0 = 80 \mu\text{m}$ (half-width at $1/e^2$). The same studies were done in the case of parallel and perpendicular pumping polarization and for the same working conditions, the same results were observed.

7.1 Infrared energy effect

For the curve presented in Fig. 5, we varied the IR pump energy of the first pulse from 0 to 2 mJ with fixed energy for the second pulse of 1.5 mJ. This figure displays the evolution of both signals generated by the first (square) and the second (circles) pumping pulses.

As predicted by the classical atomic model of HHG [17], the EUV signal generated by the first pulse increases with IR energy. On the other hand, for 1 mJ of the first pumping energy the two curves intersect, so the EUV signal of both beams is balanced, at about 40 pJ/shot for each EUV pulse. For a relatively low energy of the first pulse (below 0.8 mJ), the EUV signal generated by the second pulse decreases slowly but remains around 70 pJ/shot. Then, it falls sharply when the IR energy of the first

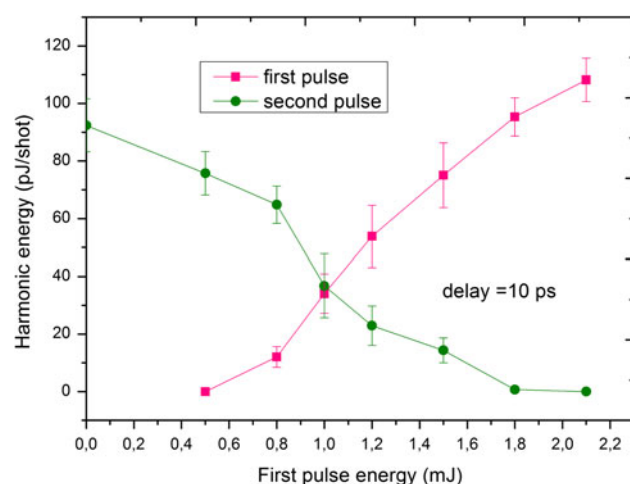


Fig. 5 Variation of the harmonic signal generated by: the first beam (squares) and the second beam (circles) by function of IR energy of the first pulse. Energy of the second pulse remains constant around 1.5 mJ. The argon pressure was 15 mbar and the time delay between two pulses was fixed at 10 ps

pulse increases up to 1.5 mJ. Finally, this EUV signal turns off above 1.5 mJ of the first pumping energies.

We can interpret the decrease of the second pulse EUV energy as a function of the first pumping energy by the increase of the ionization rate in the generating medium.

The effect of the ionization rate on the signal evolution of the second pulse has been investigated using a one dimensional (1D) time-dependent code of HHG described in detail in [33]. Using this code, we have studied the temporal evolution of the ionization rate in the generating medium after interaction with only the first pulse, and then after interaction with the two pumping pulses. The temporal evolution of the coherence length, which is the characteristic length of the phase matching, was also studied.

We consider the case of two consecutive equivalent pumping pulses with the same intensity of about $I = 1.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ for 1.5 mJ. After interaction of the first pulse with the generating medium, the ionization rate passes from 0 to 2.5 %, corresponding to a coherence length evolution from 6.7 to 3.5 mm. These values are not negligible and allow achieving a good HHG signal level. This can explain the high signal level of the second EUV pulse when the first pumping pulse energies are low.

As we introduced earlier, it is reasonable to assume that the medium does not change between the first and the second pumping pulse. The second pulse interacts with an already ionized medium, the ionization rate increases from 2.5 to 4.9 %. Therefore, the coherence length decreases up to 2.5 mm. This latter value, which is much smaller than the medium length (10 mm), leads to a dramatically reduced HHG signal.

Considering the phase matching, for a fixed pressure, high ionization rate is not favorable for efficient HHG generation [33] because the atomic positive dispersion is no more able to compensate for the electronic dispersion induced by ionization. So to ensure that the second pulse is efficiently generated, it is necessary to limit ionization rate of the medium after interaction with the first IR beam. At a given pressure, it is then necessary to use less IR energy for the first beam than in the second one. A simple solution in our case is to use a 40/60 for the recombining beams splitter instead of a classical 50/50 one.

7.2 Pressure effect

Figure 6 presents on a semi logarithmic scale the signal measured for the two HHG beams as a function of the gas pressure, the excitation beams being balanced. The laser intensity for each pulse in that experiment was estimated around $1.75 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, corresponding to a high ionization rate of the gas, and the time delay between the two pulses was arbitrarily set at 10 ps.

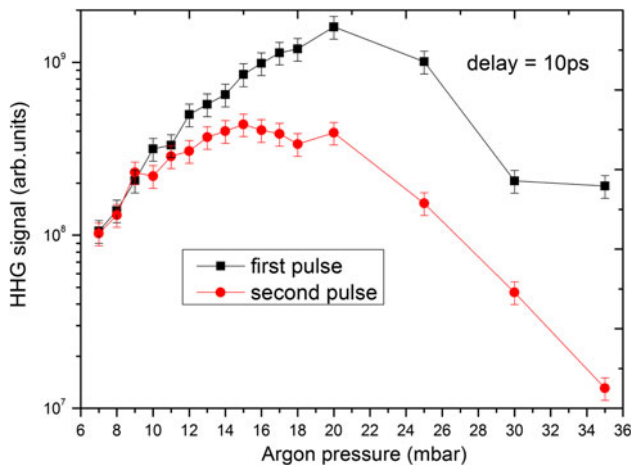


Fig. 6 Variation of the harmonic signal generated by: the first beam (circles) and the second beam (squares) as a function of argon pressure. The laser intensity at the focus for each infrared beam was estimated around $1.75 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and the time delay between two pulses was fixed at 10 ps

The two EUV pulses are optimized for a pressure of 20 mbar; in this case the EUV signal generated by the first pulse was one order of magnitude higher than the second one. For higher pressure, both signals decrease as the pressure continues to increase.

In the case of lower pressures, the two EUV beams tend to be balanced. For this case the signal generated by the first pulse is 20 times lower than the optimum value. So in order to balance the two EUV pulses in the case of high ionization we have to decrease the pressure.

This can be explained in terms of HHG phase matching at high ionization level, typically (τ higher than 4 %). In that case [33], the phase mismatch is almost linear with both ionization and pressure. In the presence of strong intensity, it is necessary to work at low gas pressure in order to balance the energy of the two EUV beams. The same study conducted at low intensity, shown no strong effect of the pressure in that case. To conclude, the pressure plays an important role on the balance of the two pulses only in the case of high ionization.

8 Conclusion

In conclusion, generation of two quasi-collinear EUV pulses arising from the same high-order harmonic medium and separated by delay of 500 fs up to 100 ps has been investigated. A versatile experimental setup has been used to generate two infrared pulses with controlled delay, angle, energy and polarization. The first pulse perturbs the medium by ionization, changing the generation conditions for the following pulse. When the two pulses are not temporally superimposed, we experimentally checked that

the time delay does not play any role in the generation of the double pulse up to 100 ps, which is consistent with theoretical recombination time scale. For a fixed delay, phase matching optimization was carried out to balance the EUV energy in the two pulses. The IR energy of the first pulse was found to be the key parameter, and gas pressure plays only a role in the case of high intensity since we worked in the loose focusing configuration. Due to the very high spatial overlap of the two generating IR beams throughout the gas cell, results obtained here can reasonably be extrapolated to perfectly collinear pulses. Besides, we confirmed that the observed behavior does not depend on the relative polarization states, parallel or crossed, of the two IR generating pulses. Moreover, the spectra of the two EUV pulses remain identical. These three properties are of great interest for plasma-based soft X-ray laser seeding experiments aiming at probing the gain and polarization dynamics of the amplifier stage. This type of study gives also insight into the physics of very high repetition rate harmonics, above 1 GHz.

Acknowledgments We acknowledge the support of the ANR project “Jeunes chercheuses et jeunes chercheurs ASOURIX ANR-09-JCJC-0056”.

References

1. M. Lewenstein, Ph. Balcou, M.Y. Ivanov, A. L’Huillier, P.B. Corkum, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994)
2. C.-G. Wahlstrom, J. Larsson, A. Persson, T. Starczewski, S. Svanberg, P. Salieres, Ph. Balcou, A. L’Huillier, *Phys. Rev. A* **48**, 4709 (1993)
3. C.G. Durfee, A.R. Rundquist, S. Backus, C. Herne, M.M. Murnane, H.C. Kapteyn, *Phys. Rev. Lett* **83**, 2187 (1997)
4. A.S. Morlens, J. Gautier, G. Rey, P. Zeitoun, J.P. Caumes, M. Kos-Rosset, H. Merdji, S. Kazamias, K. Cassou, M. Fajardo, *Opt. Lett.* **31**, 3095–3097 (2006)
5. N.A. Papadogiannis, L.A.A. Nikolopoulos, D. Charalambidis, G.D. Tzakiris, P. Tzallas, K. Witte, *Phys. Rev. Lett* **90**, 133902 (2003)
6. P. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, P. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lacheze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercere, H. Merdji, A.S. Morelens, J.P. Rousseau, C. Valentin, *Nature (London)* **431**, 426 (2004)
7. Y. Wang, E. Granados, F. Pedaci, D. Alessi, B.M. Luther, M. Berrill, J.J. Rocca, *Nat. Photon.* **2**, 94 (2008)
8. G. Lambert, T. Hara, D. Garzella, T. Tanikawa, M. Labat, B. Carre, H. Kitamura, T. Shintake, M. Bougeard, S. Inoue, Y. Tanaka, P. Salieres, H. Merdji, O. Chubar, O. Gobert, K. Tahara, M.E. Couprie, *Nat. Phys.* **4**, 296 (2008)
9. O. Guilbaud, A. Klisnick, D. Joyeux, D. Benredjem, K. Cassou, S. Kazamias, D. Ros, D. Phalippou, G. Jamelot, C. Moller, *Eur. Phys. J. D* **40**, 125 (2006)
10. O. Guilbaud, A. Klisnick, K. Cassou, S. Kazamias, D. Ros, G. Jamelot, D. Joyeux, D. Phalippou, *Eur. Phys. Lett.* **74**, 823 (2006)
11. J.P. Goddet, S. Sebban, J. Gautier, Ph. Zeitoun, C. Valentin, F. Tissandier, T. Marchenko, G. Lambert et al., *Opt. Lett.* **34**, 2438 (2009)

12. M. Berrill, D. Alessi, Y. Wang, S.R. Domingue, D.H. Martz, B.M. Luther, Y. Liu, J.J. Rocca, *Opt. Lett.* **35**, 2317 (2010)
13. T. Mocek, S. Sebban, G. Maynard, Ph. Zeitoun, G. Faivre, A. Hallou, M. Fajardo, S. Kazamias, B. Cros, D. Aubert et al., *Phys. Rev. Lett.* **95**, 173902 (2005)
14. E. Oliva, Ph. Zeitoun, M. Fajardo, G. Lambert, D. Ros, S. Sebban, P. Velarde, *Phys. Rev. A* **84**, 13811 (2011)
15. A. Klisnick, J. Kubal, D. Ros, R. Smith, G. Jamelot, C. Chénais-Popovics, R. Keenan, S.J. Topping, C.L.S. Lewis, F. Strati, G.J. Tallents, D. Neely, R. Clarke, J. Collier, A.G. MacPhee, F. Bortolotto, P.V. Nickles, K.A. Janulewicz, *Phys. Rev. A* **65**, 033810 (2002)
16. T. Mocek, S. Sebban, I. Bettaibi, L.M. Upcraft, P. Balcou, P. Breger, P. Zeitoun, S. Lepape, D. Ros, A. Klisnick, A. Carillon, G. Jamelot, B. Rus, J.-F. Wyart, *Appl. Phys. B* **78**, 939–944 (2004)
17. P.B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993)
18. S. Kazamias, D. Douillet, F. Weihe, C. Valentin, A. Rousse, S. Sebban, G. Grillon, F. Auge, D. Hulin, Ph. Balcou, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 193901 (2003)
19. H. Merdji, J.-F. Hergott, M. Kovacev, E. Priori, P. Salieres, B. Carre, *Laser Part Beams*, **22**, 275–278 (2004).
20. S. Dobosz, H. Stabile, A. Tortora, P. Monot, F. Reau, M. Bougeard, H. Merdji, B. Carre, Ph. Martin, D. Joyeux, D. Phalippou, F. Delmotte, J. Gautier, R. Mercier, *Rev. Sci. Instrum.* **80**, 113102 (2009)
21. S. Kazamias, F. Weihe, D. Douillet, C. Valentin, T. Planchon, S. Sebban, G. Grillon, F. Auge, D. Hulin, Ph. Balcou, *Eur. Phys. J. D* **21**, 353 (2002)
22. N. Bloembergen, *Nonlinear Optics* (Benjamin, New York, 1965)
23. S.V. Fomichev, P. Berger, B. Carre, P. Agostini, D.F. Zaretsky, *Laser Phys.* **12**, 383–388 (2002)
24. J.B. Bertrand, H.J. Wörner, H.C. Bandulet, E. Bisson, M. Spanner, J.C. Kieffer, D.M. Villeneuve, P.B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 023001 (2011)
25. A. Ozawa, A. Vernaleken, W. Schenneider, I. Gotlibovich, Th. Udem, T.W. Hansch, *Opt. Express* **16**, 6233 (2008)
26. B. Zielbauer, D. Zimmer, J. Habib, O. Guilbaud, S. Kazamias, M. Pittman, D. Ros, *Appl. Phys. B* **100**, 731–736 (2010)
27. http://www.nist.gov/pml/div685/grp07/al_detector.cfm
28. N.P. Delone, V.P. Krainov, *Phys. Usp* **41**, 469 (1998)
29. B. Cros, T. Mocek, I. Bettaibi, G. Vieux, M. Farinet, J. Dubau, S. Sebban, G. Maynard, *Phys. Rev. A* **73**, 033801 (2006)
30. V.J. Vlcek, *Phys. D* **22**, 623 (1989)
31. M.G. Kapper, J.L. Cambier, *J. Appl. Phys.* **109**, 113308 (2011)
32. D.H. Reitze, S. Kazamias, F. Weihe, G. Mullot, D. Douillet, F. Aug, O. Albert, V. Ramanathan, J.P. Chambaret, D. Hulin, P. Balcou, *Opt. Lett.* **29**, 86–88 (2004)
33. S. Kazamias, S. Daboussi, O. Guilbaud, K. Cassou, D. Ros, B. Cros, G. Maynard, *Phys. Rev. A* **83**, 063405 (2011)

Pressure-induced phase matching in high-order harmonic generation

S. Kazamias,^{1,2} S. Daboussi,^{1,2} O. Guilbaud,^{1,2} K. Cassou,^{1,2} D. Ros,^{1,2} B. Cros,¹ and G. Maynard¹

¹*Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, CNRS - Université Paris-Sud 11, F-91405 Orsay Cedex, France*

²*LASERIX-CLUPS-Université Paris-Sud 11, F-91405 Orsay Cedex, France*

(Received 11 April 2011; published 8 June 2011)

We present an alternative explanation of the high-order-harmonic-generation experimental results published recently by Seres *et al.* [*Nature Phys.* **6**, 455 (2010)]. We show that the physical interpretation can be comprehensively done in the frame of classical theory of high-order harmonic generation without referring to a parametric effect in the XUV domain. The experimental conditions explored by Seres *et al.* indeed correspond to the case of long-pulse, low-infrared-energy laser beams for which tight focusing is necessary to reach the minimum intensity required for high atomic response. The positive atomic dispersion can compensate for the Gouy phase and explains the behavior of the experimental variation of the harmonic signal presented. We will show that our interpretation explains not only the global behavior of the curves but also the second-order variation of the signal as a function of experimental parameters.

DOI: [10.1103/PhysRevA.83.063405](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.83.063405)

PACS number(s): 32.80.Qk, 32.30.Jc

I. INTRODUCTION

Due to its wide field of application, high-order harmonic source obtained from the interaction between an intense laser pulse and a rare gas has been extensively studied for the last 20 years. Since the first experimental demonstration at the end of the 1980s [1], the conversion efficiency has considerably progressed from about 10^{-9} [1] in 1990, to 10^{-8} in 1993 [2], 10^{-7} in 1995 [3], and 5×10^{-6} in 1998 [4]; the evolution in time is exponential until 2000 with 10^{-5} [5]. These advances were due to a better theoretical understanding of both the atomic response [6] and the phase-matching conditions [7,8]. Meanwhile, development and technical progress on high-energy short-pulse-duration [9] laser systems have been done. The most efficient high-order harmonic generation takes place in experimental conditions where the focusing is quite loose, the pressure relatively low, and the laser intensity quite high [10,11].

Historically, the use of low pump energy, long-pulse-duration lasers was progressively withdrawn because it required quite tight focusing and the conversion efficiency was lower than for loose focusing. The high-order harmonic generation in those conditions had not been extensively studied for several years. Recently published experimental results [12] provide a wide range of new data obtained in those conditions with high dynamics detectors. We will show that classical phase-matching analysis can provide a physical interpretation of what is observed experimentally [13]. We analyze more specifically the influence of gas pressure, harmonic order, maximum laser intensity, and focusing conditions on high-order harmonic generation. The quite low conversion efficiency obtained by Seres *et al.* [12] of near 10^{-7} is also compatible with our analysis.

II. OVERVIEW OF THE BASIC THEORY OF HIGH-ORDER HARMONICS

High-order harmonic generation (HHG) is a highly nonlinear process induced in rare gases by an intense laser field with ultrashort pulse duration: in the picosecond or femtosecond regime. The intensity reached at focus, of the order of

10^{14} W/cm², is so high that the laser field is comparable to the electric field between the core and the electron. Twice in an optical cycle, tunnel ionization can occur; afterward the quasifree electron is accelerated in the laser electric field. If the laser polarization is strictly linear, there can be a recollision between the electron and the parent ion when the electric field changes sign. During the radiative recombination, a harmonic photon is produced with an energy corresponding to the sum of the kinetic energy acquired in the laser field and the ionization potential of the atom. This three-step model was first analyzed in 1992 [14,15] using a semiclassical approach and afterward through a full quantum understanding in 1994 in the frame of the strong field approximation (SFA) [6]. This model allows the quantitative prediction of both harmonic dipole phase and amplitude as a function of the laser intensity. It explains the quantum origin of the two quantum paths with their different phases connected to the time spent in the continuum by the electron before it recollides with its parent ion.

The macroscopic growth of the harmonic signal along the propagation in the generative medium is the result of phase-matching considerations. For a given order q , the instantaneous harmonic signal $S_{\text{HHG}}(t)$ at the output of a medium with length l_{med} depends on the coherence length l_{coh} and on the absorption length l_{abs} following the law [16]

$$S_{\text{HHG}}(t) \propto \frac{4l_{\text{abs}}^2 P^2 A_q(t)^2}{1 + 4\pi^2 [l_{\text{abs}}^2 / l_{\text{coh}}(t)^2]} \times \left[1 + e^{-\frac{l_{\text{med}}}{l_{\text{abs}}}} - 2 \cos \left(\pi \frac{l_{\text{med}}}{l_{\text{coh}}(t)} \right) e^{-\frac{l_{\text{med}}}{2l_{\text{abs}}}} \right], \quad (1)$$

where P is the gas pressure and A_q is the individual harmonic dipole amplitude. Following the results presented by Lewenstein [6], A_q strongly depends on time through its variation with laser intensity. The laser intensity is compared with I_{cutoff} , the minimum intensity required for a given harmonic to be efficiently generated. If $I > I_{\text{cutoff}}$ then A_q scales as $(\frac{I}{I_{\text{cutoff}}})^{4.6}$, otherwise it is taken as $(\frac{I}{I_{\text{cutoff}}})^{10.6}$, which means logically almost zero [17]. The second dependence of A_q comes from the fact that only nonionized atoms are considered for harmonic generation: A_q thus scales with the proportion of neutral atoms.

Lengths l_{med} and l_{abs} are constant in time, but the coherence length can rapidly change within the infrared pulse duration because of the ionization process that influences the electronic and atomic dispersions. It is given by $l_{\text{coh}} = \frac{\pi}{|\delta k|}$, where the wave-vector mismatch δk between infrared and XUV fields is (the notation is the same as for Ref. [5]):

$$\delta k = q(\delta k_{\text{at}} + \delta k_{\text{elec}} + \delta k_{\text{Gouy}}) + \delta k_{\phi_{\text{at}}}, \quad (2)$$

where δk_{Gouy} is known as the Gouy phase gradient and depends on laser focusing conditions, and $\delta k_{\phi_{\text{at}}}$ is the atomic phase gradient and depends on the quantum path. Within the pulse duration, the maximum harmonic emission is obtained as a compromise between phase-matching considerations and atomic response. High atomic response would require high laser intensity but at the same time high intensity generates a high ionization level that damages phase matching. Phase matching is reached when the coherence length is greater than the medium length so that no destructive interferences of the coherent signal can occur between two harmonic dipoles with π phase difference [16]. The absorption limit is obtained when the medium length is also longer than a few times the absorption length. When absorption-limited generation is reached, the two other ways of still increasing the signal is to increase the laser intensity at which the perfect phase matching occurs [5] or increase the transverse dimension of the beam [10,11,18]: this is the so-called loose focusing technique obtained when the Rayleigh range is much longer than the medium length.

III. DESCRIPTION OF THE 1D MODEL

A one-dimensional (1D) numerical code, described in detail in Ref. [5], has been written to analyze the high-order harmonic generation. This code was adapted to study the case of low intensity, tight focusing, and high gas pressure recently published in Fig. 2 of Ref. [12].

The harmonic signal from H31 to H55 was calculated using the same parameters as in [12]: argon gas pressure up to 2 bars, laser intensity of $(1-5) \times 10^{14}$ W/cm², temporal Gaussian envelope with duration up to 350 fs, 1050-nm wavelength, $z_0 = 5$ mm Rayleigh range, medium length $l_{\text{med}} = 2$ mm, and medium entrance located at $z_{\text{cell}} = 2$ mm from the laser focal position.

Table I presents the absorption lengths (in mm) for argon for harmonic 31 to harmonic 55 for a pressure of 100 mbar [19]. Note also that it scales inversely with pressure.

The atomic dispersion for a 1050-nm laser wavelength in argon is given by

$$\delta k_{\text{at}}[\text{mm}^{-1}] = 1.66 \times 10^{-3} \times P[\text{mbar}](1 - \tau), \quad (3)$$

where τ is the ionization degree calculated from the Ammosov, Delone and Krainov rates [20] and solving the differential system of atomic and argon ion species.

Electronic dispersion depends on the infrared laser wavelength according to the plasma dispersion law:

$$\delta k_{\text{elec}} = \frac{\omega}{c} \delta n_{\text{elec}} = -\frac{\omega}{c} \frac{n_e}{2n_c}, \quad (4)$$

with

$$n_e = \frac{\tau P}{k_B T}, \quad (5)$$

and

$$n_c = \frac{\omega^2 m_e}{\mu_0 c^2 e^2}, \quad (6)$$

$$\delta k_{\text{elec}}[\text{mm}^{-1}] = -\frac{\lambda P[\text{mbar}](0.1 \tau \mu_0 e^2)}{4\pi m_e k_B T}. \quad (7)$$

For $\lambda = 1050$ nm it is given by

$$\delta k_{\text{elec}}[\text{mm}^{-1}] = -0.07366 \times \tau P[\text{mbar}], \quad (8)$$

The atomic phase gradient plays a role in phase matching; the corresponding wave-vector mismatch is expressed for both the first and the second quantum paths using

$$\delta k_{\phi_{\text{at}}} = -\alpha \nabla I, \quad (9)$$

with $\alpha = 2 \times 10^{-14}$ cm²/W for the first quantum path and $\alpha = 22 \times 10^{-14}$ cm²/W for the second one [21].

The calculation of the time dependence of the above wave-vector mismatches allows us to determine the value of $l_{\text{coh}}(t)$ and then the instantaneous value of the harmonic flux from Eq. (1). The total harmonic signal is integrated over the whole pulse duration separately for quantum paths 1 and 2, then the total signal is summed for both contributions [21].

IV. RESULTS OBTAINED FROM THE 1D CODE

Figures 1 and 2 present in semilogarithmic scale the time-integrated harmonic signals for H31 and H55, respectively, as a function of the gas pressure for different laser intensities.

The laser intensities are 1, 1.5, and 2×10^{14} W/cm². For the sake of comparison, the curve marked with * corresponds to a quadratic growth. As a first conclusion, the theoretical predictions obtained using a 1D model are in qualitative agreement with the experimental data in [12]. Figures 1 and 2 clearly exhibit the harmonic signal increase over four orders of magnitude at low pressures below 100 mbar observed experimentally. Furthermore, they reproduce the two different behaviors observed at high pressures in [12]: signal saturation for high intensities and decrease for low intensities. An important point is that the saturation of the signal with pressure starts almost for the same pressure for all the harmonic orders, which shows that this effect is not due to

TABLE I. Absorption lengths (in mm) in argon for harmonic 31 to harmonic 55 and a pressure of 100 mbar.

Order	31	33	35	37	39	41	43	45	47	49	51	53	55
l_{abs}	0.23	0.60	1.34	2.72	4.03	4.45	4.65	4.49	4.25	3.98	3.68	3.40	3.18

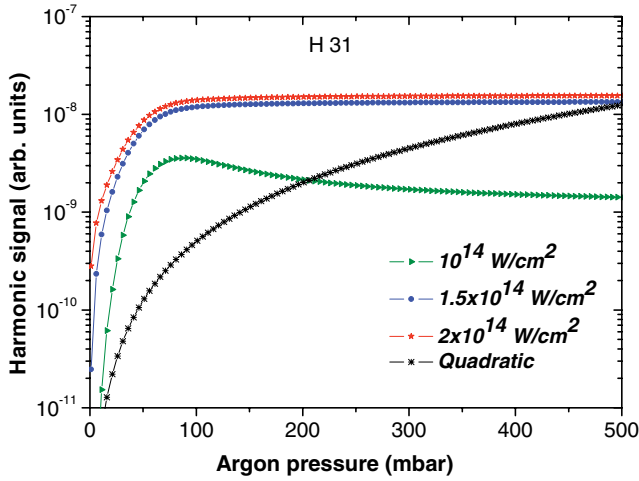


FIG. 1. (Color online) Signal from H31 in argon as a function of pressure for three laser intensities. A pure quadratic law is also indicated.

reabsorption, since absorption strongly depends on harmonic order (see Table I). The 1D simulations also reproduce the curve inflexion, the so-called shoulder, observed only for a high-order harmonic (H55) at low intensity for a pressure around 100 mbar (see Fig. 2(a) of Ref. [12]). The explanation of these characteristics in the following paragraphs, including second-order effects such as the shoulders, will show that our model provides an accurate understanding of the high-order-harmonic-generation processes involved in the experiment.

V. DEPENDENCE OF THE COHERENCE LENGTH WITH THE PRESSURE AT LOW INTENSITY

At low laser intensity, i.e., when the ionization rate in the medium and the atomic phase gradient can be neglected, the coherence length can be analytically cal-

culated as a function of pressure for a 1050-nm pump wavelength:

$$\begin{aligned} l_{\text{coh}}(\tau = 0) &\approx \frac{\pi/q}{|\delta k_{\text{Gouy}} + \delta k_{\text{at}}|} \\ &\approx \frac{\pi/q}{\left| \frac{1}{z_0 + z_{\text{cell}}^2/z_0} - P \times 1.66 \times 10^{-3} \right|} \\ &\approx 600 \frac{\pi/q}{|P_{\text{opt}} - P|}. \end{aligned} \quad (10)$$

l_{coh} increases up to the optimum pressure for which the atomic dispersion exactly compensates the Gouy phase gradient. The coherence length becomes theoretically infinite for

$$P_{\text{opt}} = \frac{600}{z_0 + \frac{z_{\text{cell}}^2}{z_0}}. \quad (11)$$

This optimum pressure is obviously independent of the harmonic order q , but inversely scales with the Rayleigh range: the shorter the focusing, the greater the effect. For the lowest intensity (10^{14} W/cm²), thus low ionization ($\tau \sim 0$), Fig. 2 shows the evolution of l_{coh} of H31 as a function of pressure for $z_0 = 5$ mm and $z_{\text{cell}} = 2$ mm.

When the gas remains neutral during the whole infrared pulse duration, the coherence length remains constant in time and the maximum of the harmonic emission occurs at the maximum of the infrared laser intensity. The signal can be analytically calculated as a function of gas pressure by including Eq. (10) into Eq. (1). The result is presented in Fig. 3 together with a pure quadratic law. We conclude that the fast growth of the high-order harmonic signal at low pressures is explained by the coherence length increase with pressure in addition to the quadratic growth of the atomic response with gas density [the P^2 term in Eq. (1)]. Note that this is valid for any harmonic order, because P_{opt} is independent of q . The signal decrease after the maximum is also due to the coherence length decrease with pressure after the maximum value. These results compare well with Fig. 2(b) of Ref. [12]. Note that the experimental conditions, not only the high quality

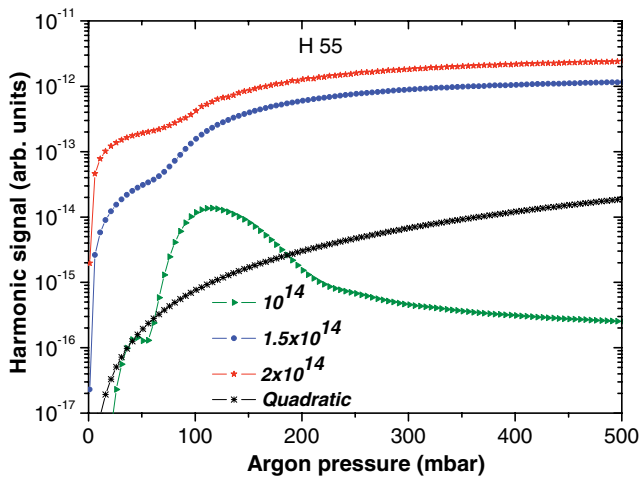


FIG. 2. (Color online) Same as Fig. 1, but for the signal from H55 in argon.

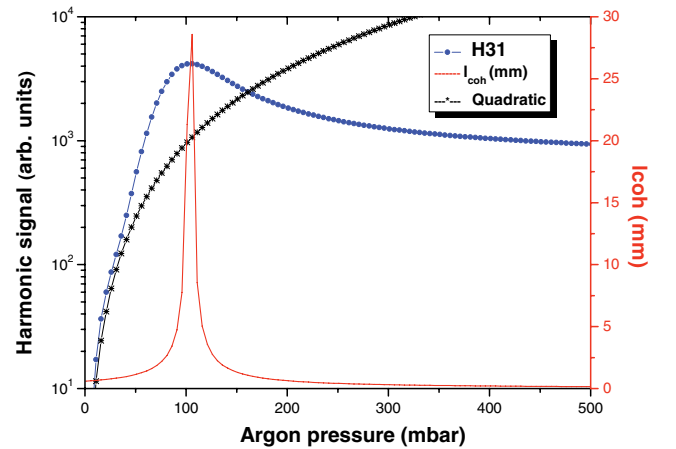


FIG. 3. (Color online) Analytical H31 signal as a function of pressure ($\circ$) as compared to pure quadratic increase ($\times$), the coherence length evolution (in mm) is shown in full line.

of the experimental setup but also the broad detection range of Ref. [12], were very appropriate to seeing this strong increase in coherence length with pressure, which was predicted as early as 1999 [7].

This simple time-independent view only works for low intensities. At higher laser intensity in order to get higher harmonic orders, the ionization level in the medium at the maximum of the laser pulse can reach a few percents (for 350-fs pulse duration, 10^{14} W/cm² leads to 1% whereas 2×10^{14} W/cm² leads to 80%). The phase-matching behavior is then more complicated and connected to temporal effects as we will see in the following.

VI. PHASE-MATCHING OPTIMIZATION IN PRESENCE OF IONIZATION

A. Position of the problem

It is well known that the production of an efficient atomic response for a high-order harmonic requires high laser intensity as this is a highly nonlinear effect. Moreover a minimum laser intensity is needed for a given harmonic to be efficiently generated [15]. This laser intensity, called I_{cutoff} , increases with the harmonic order and also corresponds to some ionization degree in the medium, especially for long pulse duration as in Ref. [12] (where the laser pulse duration is 350 fs).

At a given ionization degree τ and considering only the first quantum path for which the atomic phase is almost zero, the coherence length becomes

$$\begin{aligned} l_{\text{coh}}(\tau) &\approx \frac{\pi/q}{|\delta k_{\text{Gouy}} + \delta k_{\text{at}} + \delta k_{\text{elec}}|} \\ &\approx \frac{\pi/q}{\left| \frac{1}{z_0 + \frac{z_{\text{cell}}^2}{z_0}} - 10^{-3} P(1.66 - 73.66 \times \tau) \right|} \\ &\approx 600 \frac{\pi/q}{|P_{\text{opt}}(0) - P(1 - 44\tau)|}. \end{aligned} \quad (12)$$

The pressure that leads to the highest coherence length is now given by

$$P_{\text{opt}}(\tau) = \frac{600}{\left(z_0 + \frac{z_{\text{cell}}^2}{z_0} \right) (1 - 44\tau)}. \quad (13)$$

The ionization rate reduces the positive effect of atomic dispersion. As long as $\tau < 2\%$, the above phase-matching analysis is still valid except that the value of P_{opt} is increased following Eq. (13). For τ larger than $\approx 2\%$, P_{opt} becomes negative and the atomic dispersion is no longer able to compensate for the Gouy phase mismatch at the maximum of the pulse. In the following we will study the consequence of this, in the cases of high and low pressures.

B. Behavior for pressures higher than the optimum

For pressures largely above the optimum, the sign of the total δk in Eqs. (2) and (12) changes and the value of l_{coh} is dominated by the dispersive term that becomes much larger than the Gouy phase mismatch. If the laser intensity is high enough, an amount of ionization close to $\tau = 2\%$ optimizes

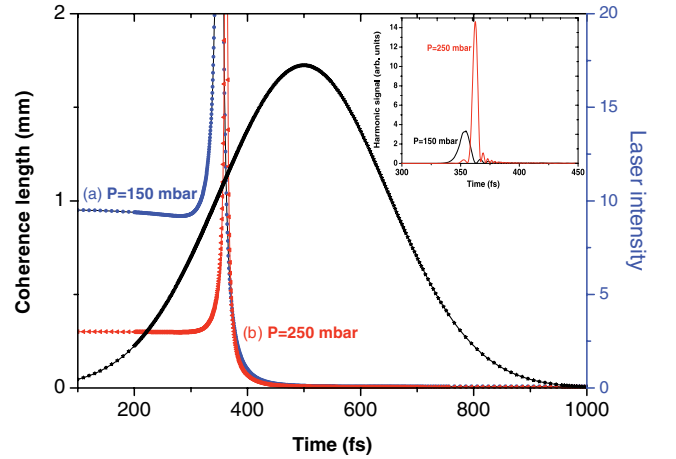


FIG. 4. (Color online) H43 temporal evolution of both the coherence length in mm and the harmonic signal in arbitrary units for pressures of 150 and 250 mbar. The unlabeled curve represents the infrared laser envelope, $I = 2.10^{14}$ W/cm².

the coherence length since the τ for which l_{coh} is infinite is equal to $\frac{1}{44}(1 - \frac{P_{\text{opt}}(0)}{P})$. This amount increases with P up to the $\tau = 2\%$ limit and explains why the curves at high intensity and high pressure from Fig. 2 in Ref. [12] do not decrease and even still increase slowly: the higher the pressure, the higher the laser intensity at which perfect phase matching occurs. An illustration of this is provided in Fig. 4 which shows both the temporal evolution of the coherence length and the H43 harmonic signal at two different pressures above the optimum one, i.e., 150 and 250 mbar, and $I = 2 \times 10^{14}$ W/cm². This effect of course cannot take place at low intensities for which τ remains zero all along the pulse and l_{coh} decreases as $1/P$ [$P > P_{\text{opt}}(0)$].

C. Behavior for pressures lower than the optimum

If the pressure is too low, that is, lower than $P_{\text{opt}}(0)$, there is no value of ionization for which the infinite coherence length can be reached. Moreover the coherence length decreases with τ . Efficient harmonic generation then occurs at the beginning of the rising front of the pulse for which τ is as low as possible. In that case, high laser intensity is not compatible with good phase matching.

This was observed at a fixed laser intensity by comparing different harmonic orders: in Fig. 2(b) of Ref. [12] the exponential slope of the signal is much larger for a low-order harmonic such as H31, which requires only a low intensity to be generated, than for a much higher-order harmonic such as H43.

Another consequence is that the signal increase with the laser intensity for a given harmonic will be small. A striking illustration of this is the absolute calibration of the harmonic signal for H31 in Fig. 2 from Ref. [12]: whereas the optimized signal in pressure reaches 0.5 nJ per pulse at 1.1×10^{14} W/cm² and even 2 nJ for 1.5×10^{14} W/cm², it falls down to 6×10^{-2} nJ at 4×10^{14} W/cm².

The above analysis clearly shows why the atomic dispersion compensation of the Gouy phase mismatch is appropriate for low-intensity lasers and quite tight focusing. When phase

matching at high intensity is desired, the only way to reach it is to reduce the Gouy phase mismatch, which is the principle of the “loose focusing” phase matching. As explained more in detail in Refs. [5,18], when the Gouy phase mismatch becomes almost negligible, phase matching is reached when the atomic and electronic dispersions compensate for each other: that corresponds to a precise ionization rate (here $\tau = 2\%$) but is independent of gas pressure.

VII. DESTRUCTIVE INTERFERENCE BETWEEN THE HARMONIC DIPOLES: ORIGIN OF THE SHOULDERS

A. Low-intensity case

As can be observed around 100 mbar in Fig. 1 for H55, the harmonic signal growth presents a slight inflexion of the curve arising, which we call the shoulder in the following. This is also observed experimentally in the results presented in Fig. 2 from Ref. [12]. These shoulders occur for a large number of harmonic orders, and are much more pronounced at low intensities. It can be explained by destructive interference within the medium between harmonic dipoles exactly separated by l_{coh} [22]. This is clearly visible in the cosine term in Eq. (1). When increasing the pressure, the coherence length increases [Eq. (10)] but reaches some values for which the medium length exactly corresponds to even multiples of it: this is mainly given by $l_{\text{coh}} = 1$ mm in the experimental case for which $l_{\text{med}} = 2$ mm. The signal then stops its rapid growth with pressure until the pressure increase allows the coherence length to be far from this destructive value. Equation (6) shows that the $1/q$ dependence of l_{coh} with harmonic order predicts a slightly higher pressure for higher q to reach 1 mm. This effect is clearly visible on the data in Fig. 2(a) of Ref. [12].

B. High-intensity case

When the intensity is higher, the time dependence of the coherence length plays a key role but the interpretation in terms of destructive interference is still the same. As can be seen in Fig. 5, which shows both the coherence length and harmonic signal evolution in time for three pressures around the shoulder, the value of the coherence length before ionization is higher than 1 mm, but through the ionization process (in our case the intensity reaches 10^{14} W/cm² and $\tau = 1.2\%$), it goes through this destructive value during the laser pulse. The most negative effect will occur when the 1 mm value is reached at the maximum of the pulse, case (b) for which the pressure is 85 mbar.

Looking at Eq. (12), it is then easy to understand why the shoulder occurs for higher pressures at higher intensities, since the value of the coherence length must be larger than one at the beginning of the pulse. This is clearly visible in Fig. 2 of Ref. [12]: shoulders occur around 0.1 bar for $I = 1.5 \times 10^{14}$ W/cm² and are close to 0.2 bar for $I = 1.5 \times 10^{14}$ W/cm².

At even higher intensities and higher pressures, the shoulder effect almost disappears since fringes are blurred by time integration: the coherence length reaches destructive values too fast or too often in the pulse.

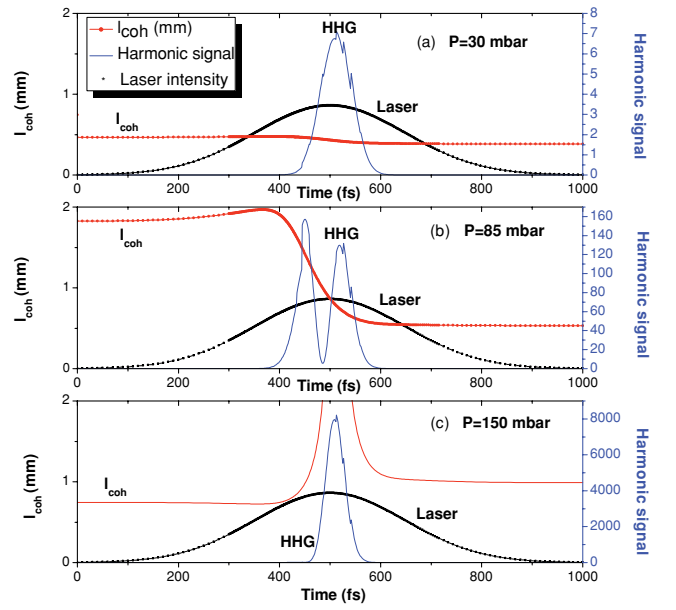


FIG. 5. (Color online) H55 temporal evolution of both the coherence length in mm (circles) and the harmonic signal in arbitrary units (triangles) for three pressures. The black curve represents the infrared laser envelope, $I = 10^{14}$ W/cm².

VIII. CONCLUSION

Using an analytical 1D time-dependent model of high-order harmonic generation, we have explained the interplaying roles of gas pressure, focusing geometry, and laser intensity on phase matching in a range of parameters relevant to recent experimental observations [12] in argon. Without any adjustable parameter, our model reproduces the more than quadratic growth of the harmonic signal with pressure. Moreover, we explain as a function of harmonic order and laser intensity the different ways the curves saturate, which was not even mentioned nor numerically reproduced by Seres *et al.* [12]. Our model shows the origin of curve inflexion at low pressures and how it behaves with harmonic order and laser intensity, the x-ray parametric amplification model proposed by Seres does not.

Our 1D model is unable to quantitatively predict the harmonic spectra and spatial distribution. However, a hypothesis can be proposed to explain the experimental results described in [12]. A very low divergence beam plus reduced spectral width were observed for the high level of harmonic signal at optimum pressure, whereas they were both large for the low level signal. This case corresponds to what the authors call a seed beam and which is harmonic generation at too low of a pressure. We think this difference can be explained in terms of the transition between phase matching from the first to the second quantum path [22,23]. It has indeed been well known since 1995 [24] that the second quantum path leads to a larger divergence and a much larger spectrum than the first one, both on the blue and the red sides [25], through the atomic phase derivative in time.

Concerning the specific case of helium, and despite the low atomic dispersion of this gas, our model also predicts a rapid increase of the signal with pressure at the beginning of the curve, but it fails to explain the position of the maximum for

the different harmonic orders. Our interpretation is that three-dimensional effects such as strong beam defocusing are occurring, since the laser intensity is as high as 2×10^{16} W/cm². A more refined code with the time-dependent Schrödinger equation (TDSE) and three-dimensional propagation of the laser in a strongly ionized medium would probably be able to reproduce the experimental curves.

An important point concerning the experimental results from Ref. [12] is whether or not they provide a signature of self-stimulated harmonic emission as mentioned by Seres

et al. Our conclusion based on the very good agreement between our model and the experimental data is that any self-stimulated contribution is negligible in the experimental conditions of [12].

ACKNOWLEDGMENTS

We acknowledge the support of the ANR project “jeunes chercheuses et jeunes chercheurs” ASOURIX ANR-09-JCJC-0056.

-
- [1] L. A. Lompré, A. L’Huillier, M. Ferray, P. Monot, G. Mainfray, and C. Manus, *J. Opt. Soc. Am. B* **7**, 754 (1990).
 - [2] Anne L’Huillier and Ph. Balcou, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 774 (1993).
 - [3] T. Ditmire, J. K. Crane, H. Nguyen, L. B. DaSilva, and M. D. Perry, *Phys. Rev. A* **51**, R902 (1995).
 - [4] S. G. Preston, D. M. Chambers, R. S. Marjoribanks, P. A. Norreys, D. Neely, M. Zepf, J. Zhang, M. H. Key, and J. S. Wark, *J. Phys. B* **31**, 1069 (1998).
 - [5] S. Kazamias, D. Douillet, F. Weihe, C. Valentin, A. Rousse, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, and Ph. Balcou, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 193901 (2003).
 - [6] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L’Huillier, and P. B. Corkum, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
 - [7] C. G. Durfee, A. R. Rundquist, S. Backus, C. Herne, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2187 (1999).
 - [8] A. Rundquist, C. G. Durfee, Z. Chang, C. Herne, S. Backus, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, *Science* **29**, 1412 (1998).
 - [9] M. Schnürer, Z. Cheng, M. Hentschel, G. Tempea, P. Kálmán, T. Brabec, and F. Krausz, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 722 (1999).
 - [10] J.-F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Agostini, B. Carré, and P. Salieres, *Phys. Rev. A* **66**, 021801(R) (2002).
 - [11] Y. Tamaki, J. Itatani, M. Obara, and K. Midorikawa, *Phys. Rev. A* **62**, 063802(R) (2002).
 - [12] J. Seres, E. Seres, D. Hochhaus, B. Ecker, D. Zimmer, V. Bagnoud, T. Kuehl, and C. Spielmann, *Nature Phys.* **6**, 455 (2010).
 - [13] S. Kazamias, S. Daboussi, O. Guilbaud, K. Cassou, C. Montet, O. Neveu, D. Ros, B. Cros, and G. Maynard, *Nature Phys.* **6**, 927 (2010).
 - [14] P. B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994 (1993).
 - [15] J. L. Krause, K. J. Schafer, and K. C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3535 (1992).
 - [16] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mevel, Ch. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin, and P. Agostini, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1668 (1999).
 - [17] This value was discussed with Philippe Balcou in 2001 and comes from the analysis of Figs. 3 and 4 in [6].
 - [18] S. Kazamias, F. Weihe, D. Douillet, C. Valentin, T. Planchon, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, and Ph. Balcou, *Eur. Phys. J. D* **21**, 353 (2002).
 - [19] The Center for X-Ray Optics website: [www.cxro.lbl.gov].
 - [20] N. P. Delone and V. P. Krainov, *Phys. Usp.* **41**, 469 (1998).
 - [21] Ph. Balcou, A. S. Dederichs, M. B. Gaarde, and A. L’Huillier, *J. Phys. B* **32**, 2973 (1999).
 - [22] S. Kazamias, D. Douillet, C. Valentin, F. Weihe, F. Augé, Th. Lefrou, G. Grillon, S. Sebban, and Ph. Balcou, *Phys. Rev. A* **68**, 033819 (2003).
 - [23] Ph. Balcou, P. Salieres, A. L’Huillier, and M. Lewenstein, *Phys. Rev. A* **55**, 3204 (1997).
 - [24] P. Salieres, A. L’Huillier, and M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3776 (1995).
 - [25] D. H. Reitze *et al.*, *Opt. Lett.* **29**, 86 (2004).

The super-quadratic growth of high-harmonic signal as a function of pressure

To the Editor — A super-quadratic growth of high-harmonic (HHG) signal was measured by Seres *et al.*¹ over more than five orders of magnitude as a function of gas pressure and for a large range of laser intensities. The authors explain this impressive growth as the signature of a strong increase of the extreme ultraviolet (XUV) signal induced by an additional stimulated effect, which they call X-ray parametric amplification (XPA). We performed a detailed analysis of the results in ref. 1 using the theory of pure HHG and taking into account all the effects of phase-matching. Our results demonstrate that, without introducing any adjustable parameter, phase-matching can account for the super-quadratic growth, and that pure HHG yields are in good agreement with the experimental data of ref. 1. Semiclassical^{2,3} and quantum⁴ theories provide accurate estimates of the initial amplitude and phase of the XUV polarization generated during single atom and electron interaction in the HHG processes.

Phase-matching macroscopic conditions are fully described to study the coherence between the XUV and the infrared fields along the generative medium, and a coherence length is calculated⁵. The final XUV intensity strongly depends on the value of the coherence length, influenced by the atomic and electronic dispersions, the Gouy phase and the atomic phase gradients⁶. These effects were included in the numerical code described in ref. 6 and ran for the conditions of ref. 1. An example of the results obtained for the 43rd harmonic is shown in Fig. 1, where a strong exponential growth at low pressure is clearly visible, before saturation takes place at higher pressures, in good agreement with the data of ref. 1. The super-quadratic behaviour was observed over a large set of harmonic orders and laser intensities from 1 to 2×10^{14} W cm⁻². The relatively low laser intensity and short focusing used in ref. 1, as compared with more usual conditions with higher efficiency such as in refs 8 and 9, lead to a strong increase of the coherence length with pressure by compensation of the Gouy phase gradient through atomic dispersion in neutral gas,

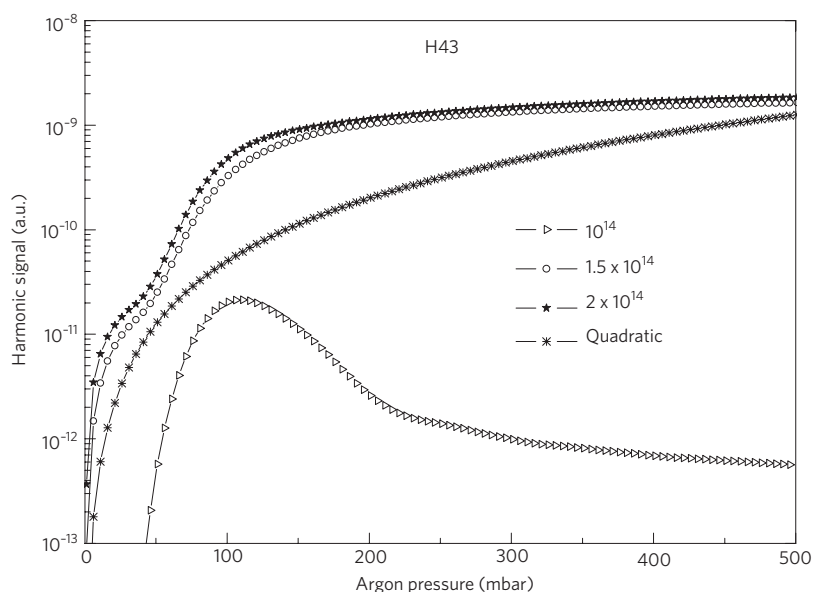


Figure 1 | Signal from H43 as a function of pressure for three laser intensities, 1, 1.5 and 2×10^{14} W cm⁻², compared with quadratic behaviour. a.u., arbitrary units.

already described in ref. 7. This coherence length increase comes in addition to the quadratic growth of the atomic response with pressure to produce the super-quadratic behaviour. We consequently explain why this effect is not observed at looser focusing with smaller Gouy phase gradient. Moreover, we found that in the experimental conditions of ref. 1, the atomic phase gradient from the long trajectory is more favourable than the short one to increase the poor phase-matching conditions at low pressures and low intensities, and thus low signal, which can explain why both the spectral and spatial profiles are much wider in those conditions than at optimum pressures when the short trajectory dominates. As it is well known that the atomic phase spectral broadening is red for the rising front and blue for the rear one, global redshifting means that harmonics are mostly generated on the rising front. Our model also explains the signal inflexion at low pressure and low intensity in terms of temporal phase-matching fringes. In conclusion, our simulations show that the experimental data of ref. 1 do not definitely

demonstrate any additional effect such as stimulated or parametric amplification rather than peculiar properties of pure high harmonic emission. □

References

1. Seres, J. *et al.* *Nature Phys.* **6**, 455–461 (2010).
2. Corkum, P. *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994–1997 (1993).
3. Krause, J. L., Schafer, K. J. & Kulander, K. C. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3535–3538 (1992).
4. Lewenstein, M., Balcou, Ph., Ivanov, M. Yu., L'Huillier, A. & Corkum, P. B. *Phys. Rev. A* **49**, 2117–2132 (1994).
5. Constant, E. *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1668–1671 (1999).
6. Kazamias, S. *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **90**, 193901 (2003).
7. Durfee, C. G. *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2187–2190 (1997).
8. Hergott, J.-F. *et al.* *Phys. Rev. A* **66**, 021801 (2002).
9. Tamaki, Y., Itatani, J., Obara, M. & Midorikawa, K. *Phys. Rev. A* **62**, 063802 (2002).

S. Kazamias^{1,2,3*}, S. Daboussi^{1,2,3},
O. Guibaud^{1,2,3}, K. Cassou^{1,2,3}, C. Montet^{1,2,3},
O. Neveu^{1,2,3}, B. Cros^{1,2,3}, D. Ros^{1,2,3}
and G. Maynard^{1,2}

¹University Paris-Sud, Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, UMR 8578, Orsay F-91405, France, ²CNRS, Orsay F-91405, France, ³LASERIX, CLUPS, University Paris-Sud, Orsay F-91405, France

*e-mail: sophie.kazamias@u-psud.fr

Controverse sur la technique de génération d'harmoniques dite XPA

S. Daboussi^{1,2}, S. Kazamias^{1,2}, O. Guilbaud^{1,2}, K. Cassou^{1,2}, C. Montet¹,
O. Neveu^{1,2}, B. Cros^{1,2}, D. Ros^{1,2} et G. Maynard¹

¹ LPGP, Univ. Paris-Sud, UMR 8578, CNRS, Bât. 210, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

² LASERIX, CLUPS, Univ. Paris-Sud, CNRS, Campus d'Orsay, 91405 Orsay Cedex, France

Résumé. Un article est récemment paru dans le journal “Nature Physics” sous le nom “Laser-driven amplification of soft X-rays by parametric stimulated emission in neutral gases” [1]. Suite à l’observation expérimentale de la croissance exponentielle du signal harmonique en fonction de la pression de gaz, les auteurs annoncent que seule une nouvelle théorie qu’ils appellent “XPA” pour (X-ray parametric amplification) permet d’expliquer le résultat. Or dans ce qui suit nous montrons qu’une étude détaillée de l’accord de phase dans le cadre de la théorie classique de la génération d’harmoniques d’ordres élevés permet de reproduire parfaitement et d’expliquer la croissance exponentielle du signal harmonique en fonction de la pression par l’augmentation de la longueur de cohérence due à la dispersion atomique.

1. INTRODUCTION

La génération d’harmoniques d’ordres élevés (HHG en abréviation anglaise) est un processus hautement non-linéaire induit dans les gaz rares par un champ laser très intense dans le régime femtoseconde. L’efficacité de ce processus résulte de la combinaison de deux aspects:

1) L’aspect microscopique et la réponse de l’atome unique:

L’émission harmonique est due à une réponse fortement non-linéaire des atomes d’un gaz soumis à un champ laser intense. Ce phénomène peut être décrit par un modèle dit à trois étapes qui a été analysé pour la première fois en 1992 en utilisant une approche semi-classique [2,3]. En 1994 une étude quantique complète a été effectuée par Lewenstein dans le cadre de l’approximation du champ fort (SFA) [4]. Ce modèle permet de calculer la phase et l’amplitude du dipôle harmonique en fonction de l’intensité laser et des autres paramètres de génération. Les trois étapes sont les suivantes: Ionisation par effet tunnel induite par le laser, accélération de l’électron quasi libre dans le champ laser et finalement recombinaison atome-électron avec émission d’un photon harmonique.

2) L’aspect macroscopique et le problème de l’accord de phase:

Le signal harmonique total est la superposition cohérente des champs émis par les atomes du gaz le long de la propagation dans la cellule de génération. Le signal en sortie de cellule est maximal quand l’accord de phase est obtenu, c’est à dire quand les dipôles harmoniques de la cellule sont en phase. Pour cela, il faut que les vitesses de propagation du laser infrarouge et des harmoniques soient égales. Dans le cas contraire on appelle longueur de cohérence la distance dans la cellule qui sépare deux dipôles harmoniques avec une différence de phase de π , qui vont donc interférer destructivement.

2. MODÉLISATION 1D DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS

La signal harmonique instantané $S_{HHG}(t)$ à la sortie du milieu dépend de la longueur du milieu l_{med} , de la longueur d'absorption l_{abs} et de la longueur de cohérence l_{coh} selon la loi [5]:

$$S_{HHG}(t) \propto P^2 A_q^2 \frac{4l_{abs}^2}{1 + 4\pi^2(l_{abs}^2/l_{coh}^2)} \times [1 + e^{-l_{med}/l_{abs}} - 2\cos(\pi l_{med}/l_{coh})e^{-l_{med}/2l_{abs}}] \quad (1)$$

avec P la pression et A_q l'amplitude du dipôle harmonique. La longueur de cohérence dépend fortement de l'ionisation du milieu qui fixe les dispersions atomique et électronique. La longueur de cohérence est donnée par $l_{coh} = \frac{\pi}{|\delta k|}$ avec

$$\delta k = (q\omega/c)(\delta n_{at} + \delta n_{elec}) + q\delta k_{Gouy} + \delta k_{\phi_{at}} \quad (2)$$

q est l'ordre harmonique, ω est la pulsation laser, c la célérité de la lumière, δk_{Gouy} la dispersion de Gouy qui dépend des conditions de focalisation du laser, $\delta k_{\phi_{at}}$ est le gradient de la phase atomique qui provient de la réponse de l'atome unique.

Nous avons développé un code unidimensionnel permettant d'étudier la dépendance en fonction du temps des paramètres harmoniques [6]. Nous avons calculé le signal des harmoniques H31 et H55 pour l'argon en utilisant comme paramètres d'entrée l'intensité laser (de 1 à 3×10^{14} W/cm²), la durée d'impulsion (350 fs), la longueur d'onde du laser ($\lambda_{laser} = 1054$ nm), la longueur de Rayleigh (5 mm) et la longueur du milieu (2 mm). Les longueurs d'absorption qui varient comme l'inverse de la pression sont récapitulées dans ce tableau pour une pression 100 mbar d'argon [7].

HHG	31	33	35	37	39	41	43	45	47	49	51	53	55
$l_{abs}(mm)$	0.23	0.60	1.34	2.72	4.03	4.45	4.65	4.49	4.25	3.98	3.68	3.40	3.18

Les dispersions atomique et électronique dans l'Argon pour $\lambda_{laser} = 1054$ nm sont données par

$$\delta k_{atomic} [mm^{-1}] = -q \cdot 1.66 \times 10^{-3} \cdot P [mbar] \cdot (1 - \tau) \quad (3)$$

et

$$\delta k_{electronic} [mm^{-1}] = q(0.072 \cdot \tau \cdot P [mbar]) \quad (4)$$

avec τ le degré d'ionisation de l'Argon calculé en utilisant les taux ADK [8].

Le gradient de phase atomique qui joue un rôle important dans l'accord de phase est exprimé pour les deux chemins quantiques par

$$\delta k_{\phi_{at}} [mm^{-1}] = \alpha \nabla I \quad (5)$$

avec $\alpha = 2 \times 10^{-14}$ cm²/W pour le premier chemin quantique et $\alpha = 22 \times 10^{-14}$ cm²/W pour le second chemin quantique [9].

Le calcul de ces paramètres en fonction du temps permet de déterminer la valeur de $l_{coh}(t)$ et du signal harmonique. Le signal est ensuite intégré sur toute la durée d'impulsion séparément pour les chemins 1 et 2. $S_{HHG}(t)$ total est la somme des deux contributions.

3. RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

3.1. Influence de la longueur de cohérence sur le signal harmonique

La figure 1 présente la variation du signal total des harmoniques H31 et H55 en fonction de la pression pour trois valeurs d'intensités laser : 1, 1.5 et 2×10^{14} W/cm², $z_0 = 5$ mm et $z_{cell} = 2$ mm. Cette figure montre que nos simulations sont en bon accord avec les résultats expérimentaux publiés dans [1], le signal harmonique croît bien exponentiellement avec la pression pour une large gamme d'intensités

sur plusieurs ordres de grandeur jusqu'à une valeur d'environ 100 mbar. On reproduit également le fait qu'une saturation du signal se produit à haute pression et haute intensité alors que le signal chute à haute pression basse intensité. Notre modèle ne permet pas la défocalisation du laser qui pourrait intervenir à haute pression et haute intensité.

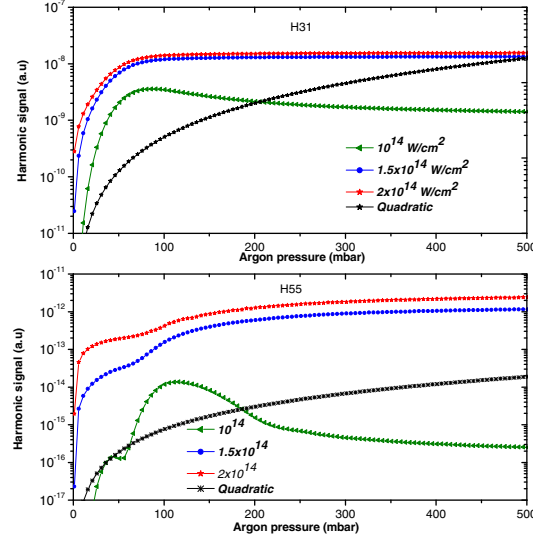


Figure 1. Signal des harmoniques H31 et H55 en fonction de la pression pour trois valeurs d'intensité laser : respectivement $1(\blacktriangle)$, $1.5(\bullet)$ and $2(\star) 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

Pour expliquer l'origine de ces comportements nous avons étudié l'évolution de l_{coh} et du signal harmonique en fonction de la pression pour une basse intensité laser (ionisation faible dans le milieu ($\tau \sim 0$)) ; dans ces conditions la longueur de cohérence s'exprime comme :

$$l_{coh} \simeq \frac{\pi}{|\delta k_{Gouy} + \delta k_{atomic}|} \quad (6)$$

$$\simeq \frac{\pi/q}{\left| \frac{1}{z_0 + \frac{z_{cell}}{z_0}} - P \cdot 1.66 \cdot 10^{-3} \right|} \quad (7)$$

La figure 2 présente la variation analytique de $l_{coh}(\tau \sim 0)$ pour une basse intensité laser (10^{14} W/cm^2) (équation (7)) et de $S_{HHG}(\tau \sim 0)$ (équation (1)) en fonction de la pression pour H31, $z_0 = 5 \text{ mm}$ et $z_{cell} = 2 \text{ mm}$. Une augmentation importante de l_{coh} est observée jusqu'à $P = 100 \text{ mbar}$ suivie d'une forte décroissance. Ce comportement dû à la dispersion atomique explique parfaitement les résultats obtenus.

Le signal harmonique croît avec la pression et atteint sa valeur maximale pour une pression égale à 100 mbar pour laquelle la dispersion atomique compense la phase de Gouy, d'où le meilleur accord de phase. Pour des valeurs de pression plus élevées, le signal décroît suite à la décroissance de l_{coh} .

3.2. Interférences destructives entre les dipôles harmoniques

Nous avons aussi montré que notre modèle permet de reproduire les inflexions observées dans le signal harmonique à basse intensité basse pression (comme le montre la figure 1 pour H55 et pour une ionisation dans le milieu $\tau \sim 0$). Au cours de son augmentation avec la pression, la longueur de

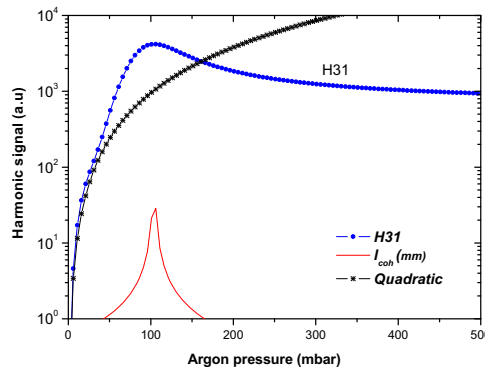


Figure 2. Signal de l’harmonique H31 en fonction de la pression (●), courbe de croissance quadratique (*), longueur de cohérence en mm.

cohérence passe par des valeurs pour lesquelles elle devient un sous multiple pair ou impair de la longueur du milieu. Or en regardant le terme $\cos(\pi l_{med}/l_{coh})$ de l’équation (1) on remarque que le flux harmonique se construit pour les longueurs de cohérence qui sont des sous multiples impairs de l_{med} et se détruit pour les sous multiples pairs [11]. L’étude de l’évolution analytique de la longueur de cohérence montre que pour une certaine valeur de pression, l_{coh} passe par la valeur 1 mm (la longueur du milieu est $l_{med} = 2$ mm). Pour cette valeur de pression il se produit des interférences destructives entre les dipôles harmoniques, ce qui arrête l’augmentation du signal. Dès que la pression ré-augmente, la longueur de cohérence s’éloigne de la valeur 1 mm donc le signal reprend sa croissance exponentielle.

4. CONCLUSION

Dans ce travail nous avons montré que la théorie classique de la génération d’harmoniques d’ordres élevés permet de reproduire et d’expliquer la croissance exponentielle du signal harmonique en fonction de la pression dans les conditions expérimentales présentées dans la référence [1]. La croissance de la pression fait augmenter la dispersion atomique qui vient à son tour compenser la forte focalisation ($z_0 = 5$ mm), d’où l’augmentation de la longueur de cohérence signe d’accord de phase dans le milieu. Ceci provoque l’augmentation du nombre de photons harmoniques. Ce travail a fait l’objet d’un commentaire publié dans le journal “Nature Physics” [10] et d’un article soumis à “New Journal of Physics” où nous avons présenté une étude plus détaillée de l’accord de phase dans la génération d’harmoniques en fonction de la pression [12].

Références

- [1] J. Seres, E. Seres, D. Hochhaus, B. Ecker, D. Zimmer, V. Bagnoud, T. Kuehl et C. Spielmann, Nature Physics **6**, 455 (2010)
- [2] P.B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)
- [3] J.L. Krause, K.J. Schafer et K.C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **68** 3535 (1992)
- [4] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M.Yu. Ivanov, A. LHuillier, et P.B. Corkum, Phys. Rev. A **49** 2117 (1994)
- [5] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, Ch. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin, et P. Agostini, Phys. Rev. Lett. **82** 1668 (1999)
- [6] S. Kazamias, D. Douillet, F. Weihe, C. Valentin, A. Rousse, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, et Ph. Balcou, Phys. Rev. Lett. **90** 193901 (2003)
- [7] CXRO website: www.cxro.lbl.gov

- [8] Delone et al, Physics Uspekhi **40** 469 (1998)
- [9] Ph. Balcou, A.S. Dederichs, M.B. Gaarde et A. L'Huillier, J. Phys. B, **32** 2973 (1999)
- [10] S. Kazamias, S. Daboussi, O. Guilbaud, K. Cassou, C. Montet, O. Neveu, D. Ros, B. Cros et G. Maynard, Nature Physics (2010)
- [11] S. Kazamias, D. Douillet, C. Valentin, F. Weihe, F. Augé, Th. Lefrou, G. Grillon, S. Sebban, et Ph. Balcou, Phys. Rev. A, **68** 033819 (2003)
- [12] S. Kazamias, S. Daboussi, O. Guilbaud, K. Cassou, D. Ros, B. Cros et G. Maynard, à soumettre à New Journal of Physics (2010)

