



HAL
open science

Vers les lasers XUV femtosecondes : étude des propriétés spectrales et temporelles de l'amplification de rayonnement XUV dans un plasma

Andréa Le Marec

► To cite this version:

Andréa Le Marec. Vers les lasers XUV femtosecondes : étude des propriétés spectrales et temporelles de l'amplification de rayonnement XUV dans un plasma. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Université Paris Saclay (COMUE), 2016. Français. NNT : 2016SACLS337 . tel-01431611

HAL Id: tel-01431611

<https://theses.hal.science/tel-01431611v1>

Submitted on 11 Jan 2017

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.

NNT : 2016SACLS337

THESE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY
PREPAREE A
L'UNIVERSITE PARIS-SUD

ECOLE DOCTORALE N°572
ONDES ET MATIERE – EDOM

Spécialité de doctorat : Milieux dilués et optique fondamentale

Par

Andréa LE MAREC

Vers les lasers XUV femtosecondes : étude des propriétés spectrales et temporelles
de l'amplification de rayonnement XUV dans un plasma.

Thèse présentée et soutenue à Orsay, le 19 octobre 2016 :

Composition du Jury :

Gilles Maynard	Directeur de Recherche, CNRS	Président
Philippe Balcou	Directeur de Recherche, CNRS	Rapporteur
Sandrine Ferri	Maître de Conférences, Aix – Marseille Université	Rapporteuse
Fabien Dorchies	Directeur de Recherche, CNRS	Examineur
Stéphane Sebban	Directeur de Recherche, CNRS	Examineur
Annie Klisnick	Directeur de Recherche, CNRS	Directrice de thèse

Titre : Vers les lasers XUV femtosecondes : étude des propriétés spectrales et temporelles de l'amplification de rayonnement XUV dans un plasma.

Mots clés : Laser, Laser XUV, Cohérence, Rayonnement XUV, Rayonnement EUV

Résumé : Cette thèse s'inscrit dans le contexte des travaux visant à réduire la durée d'impulsion des lasers XUV générés dans des plasmas au domaine femtoseconde. La bande spectrale très étroite du milieu amplificateur ($\sim 10^{10} - 10^{11}$ Hz) limite la durée minimum accessible (limite de Fourier). Le milieu amplificateur des lasers XUV sont des plasmas denses et chauds qui peuvent être créés aussi bien par décharge électrique rapide que par différents types de lasers de puissance. Il existe ainsi 4 types de sources lasers XUV distinctes dont les paramètres du plasma (densité, température) dans la zone de gain diffèrent. Or, les propriétés spectrales et temporelles du rayonnement émis sont fortement liées à ces paramètres.

L'ensemble des 4 types de lasers XUV opèrent en mode d'amplification de l'émission spontanée (ASE) et 2 d'entre eux peuvent opérer en mode « injecté ». Cette technique consiste à injecter une impulsion harmonique d'ordre élevé femtoseconde, résonante avec la transition laser, à l'une des extrémités du plasma amplificateur. L'important désaccord entre la largeur spectrale du plasma et celle de l'harmonique ne permet pas de conserver la durée fs de cette dernière au cours de l'amplification. Les simulations (code Bloch-Maxwell COLAX) montrent que l'amplification est fortement non-linéaire dans ces systèmes, avec notamment l'apparition d'oscillations de Rabi. La génération d'oscillations de Rabi dans des lasers XUV en mode injecté est actuellement considérée comme un moyen prometteur de produire des lasers XUV fs, mais la manifestation de ces dernières n'a toutefois encore jamais été mise en évidence expérimentalement. Ainsi, une méticuleuse caractérisation expérimentale des propriétés spectrales des 4 types de lasers XUV en relation avec les conditions du plasma, associée à une meilleure compréhension des mécanismes d'amplification sous différentes conditions plasma basée sur des études théoriques et des simulations, sont nécessaires pour atteindre notre objectif.

Une large campagne expérimentale visant à caractériser spectralement l'ensemble des différents types de lasers XUV a été menée par notre groupe sur la dernière décennie. La résolution spectrale nécessaire n'étant pas accessible avec les spectromètres actuels, la méthode employée consiste à mesurer la cohérence temporelle du laser XUV par autocorrélation du champ électrique à l'aide d'un interféromètre à division de front d'onde, spécifiquement conçu pour ces mesures, à partir desquelles la largeur spectrale peut être déduite. Le dernier type de laser XUV (PALS, Prague) a été caractérisé dans le cadre de cette thèse. Le temps de cohérence mesuré est de 0,68 ps, significativement inférieur aux valeurs mesurées sur les autres types de lasers XUV. L'analyse de l'ensemble des mesures a fait apparaître un comportement différent suivant que la durée d'impulsion est longue devant le temps de cohérence ou proche de celui-ci. Dans le premier cas les largeurs spectrales déduites sont en bon accord avec les calculs, dans le second l'accord est moins bon et la forme des traces d'autocorrélation n'était pas comprise. Ces observations ont motivé une étude détaillée de l'influence des propriétés temporelles de l'émission ASE des lasers XUV sur la méthode interférométrique employée pour caractériser leur largeur spectrale. Cette étude, basée sur un modèle emprunté aux lasers à électrons libres, a révélé un effet de la cohérence temporelle partielle sur les mesures d'autocorrélation en champ de ces sources. Elle ouvre des perspectives sur l'utilisation de notre méthode pour une mesure simultanée de la largeur spectrale et de la durée d'impulsion de la source. Enfin, une étude basée sur un modèle Bloch-Maxwell a été réalisée pour tenter de mieux comprendre les conditions d'apparition des oscillations de Rabi au cours de l'amplification de l'harmonique dans le plasma de laser XUV. Deux régimes d'amplification, adiabatique et dynamique, autour d'un seuil d'inversion de population ont été mis en évidence.



Title: Towards femtosecond XUV lasers: study of the spectral and temporal properties of the amplification of XUV radiation in a plasma.

Keywords: Lasers, XUV lasers, Coherence, XUV radiation, EUV radiation

Abstract: The work of this thesis was made in the context of the efforts made to reduce the pulse duration of plasma-based XUV lasers down to the femtosecond domain. The very narrow spectral width of the amplifier medium ($\sim 10^{10} - 10^{11}$ Hz) limits the minimum achievable pulse duration (Fourier limit). The amplifier medium of XUV lasers pumped by collisional excitation are dense and hot plasmas that can be created both by rapid electrical discharge and by different types of power lasers. There are thus 4 distinct types of XUV laser sources with different plasma parameters (density, temperature) in the gain region. Yet, the spectral and temporal properties of the emitted radiation are strongly linked to these parameters.

All 4 types of XUV lasers operate in amplification of spontaneous emission (ASE) mode, and 2 of them, for a few years, can operate in "seeded" mode. This technique consists in injecting a femtosecond high order harmonic pulse (the seed), resonant with the lasing transition, at one extremity of the plasma amplifier. Because of the major mismatch between the spectral width of the plasma and that of the seed the femtosecond duration of the latter is not preserved during amplification. Simulations (COLAX Maxwell-Bloch code) show that the amplification is highly non-linear in such systems, including the appearance of Rabi oscillations. Generating Rabi oscillations in seeded XUV lasers is currently considered a promising way to produce femtosecond XUV lasers. However Rabi oscillations have yet never been experimentally demonstrated. Thus, a meticulous experimental characterization of the spectral properties of the 4 types of XUV lasers in connection with the plasma conditions, combined with a better understanding of amplification mechanisms under different theoretical plasma conditions based on studies and simulations are needed to reach our goal.

A wide experimental campaign aiming to spectrally characterize all different types of XUV lasers was conducted by our group over the past decade. The required spectral resolution is not available with the best current spectrometers, so the method we used consists on the measurement of the temporal coherence of the XUV laser through an electric field autocorrelation, using a wavefront-division interferometer that was specifically designed for these measures, from which the spectral width can be deduced. The latter type of the four XUV laser types (PALS, Prague) was characterized during this thesis, closing this experimental campaign. The measured coherence time was 0.68 ps, which is significantly lower than the coherence times measured on the other XUV laser types. Analysis of the overall results revealed two different behavior whether the XUV laser has a long pulse duration compared to its coherence time or if the two durations are close. In the first case the inferred spectral widths are in good agreement with theoretical predictions, while in the second case the agreement was not as good and the shape of the electric field autocorrelation traces was not understood. This observation has prompted a detailed study of the influence of temporal properties of ASE XUV lasers on the interferometric methodology used to determine the spectral width of XUV lasers. The study, based on a model developed for X-free electron lasers, revealed an effect of partial temporal coherence in electric field autocorrelation measures of these sources. This study offers perspectives on a simultaneous measure of the spectral width and the duration of these sources with our method. Finally, a study based on Maxwell-Bloch equations was carried out in order to understand better the conditions of apparition of Rabi oscillations. This study highlighted two amplification regimes, adiabatic and dynamic, around a population inversion threshold.



Table des matières

Introduction	15
1 Lasers XUV collisionnels créés par plasma	19
1.1 Introduction aux sources XUV cohérentes délivrant des impulsions courtes	19
1.1.1 Harmoniques d'ordre élevé	19
1.1.2 Lasers X/XUV à électrons libres	21
1.1.3 Lasers XUV créés par plasma	22
1.2 Schémas de pompage des inversions de population	22
1.2.1 Pompage par recombinaison	23
1.2.2 Pompage par photoionisation de couche interne	23
1.2.3 Pompage par excitation collisionnelle	24
1.3 Génération du plasma amplificateur - différents types de lasers XUV	25
1.3.1 Plasmas créés par décharge capillaire : lasers XUV "QSS-d"	26
1.3.2 Plasmas créés par focalisation d'un laser sur une cible solide : lasers XUV "QSS-l" et "TCE"	26
1.3.3 Ionisation en champ intense dans un gaz : lasers XUV "OFI"	28
1.4 Amplification de l'émission spontanée dans un plasma	29
1.4.1 Régime faible-signal	29
1.4.2 Régime de saturation	31
1.4.3 Evolution du profil spectral de la raie laser XUV	32
1.5 Propriétés de cohérence des lasers XUV	33
1.5.1 Notion de cohérence	33
1.5.2 Cohérence spatiale	36
1.5.3 Cohérence temporelle	37
1.6 Lasers XUV injectés	39
2 Description des outils et des méthodes	41
2.1 Introduction	41
2.2 Interféromètre à division de front d'onde à bi-dièdre	41
2.2.1 Description de l'interféromètre	41
2.2.2 Méthode d'analyse des interférogrammes	45
2.3 Code de transfert radiatif 1D "Koch"	47
2.4 Code Bloch-Maxwell 2D "COLAX"	49
3 Caractérisation de la cohérence temporelle et du spectre du laser XUV quasi-stationnaire de PALS	53
3.1 Introduction	53
3.2 Description de l'expérience	53
3.2.1 Génération du laser XUV quasi-stationnaire de zinc néonoïde à PALS	53
3.2.2 Montage expérimental et diagnostics	54
3.2.3 Mesure d'un temps de cohérence subpicoseconde à saturation	57
3.2.4 Observation d'un rétrécissement spectral par le gain	58
3.2.5 Mesures du gain faible signal	59
3.3 Discussion	61
3.3.1 Comparaison à des simulations numériques basées sur un modèle de transfert radiatif	61

3.3.2	Comparaison aux précédentes mesures réalisées sur d'autres lasers XUV QSS-1	64
3.4	Conclusions	66
4	Effet de la cohérence temporelle partielle des lasers XUV opérant en ASE sur leur caractérisation spectrale	69
4.1	Introduction	69
4.2	Résumé des observations expérimentales	70
4.3	Modèle de source partiellement cohérente temporellement et grandeurs associées	74
4.3.1	Etapas de la génération d'une impulsion partiellement cohérente	74
4.3.2	Calcul des grandeurs associées à l'enveloppe temporelle de l'impulsion	75
4.3.3	Implantation numérique du code	78
4.4	Rôle de la durée d'impulsion sur l'allure de la courbe de visibilité	80
4.4.1	Cas d'une impulsion fortement cohérente temporellement ($\tau_{pulse} = 5 \cdot \tau_{FL}$)	80
4.4.2	Cas d'une impulsion faiblement cohérente temporellement ($\tau_{pulse} = 1000 \cdot \tau_{FL}$)	84
4.5	Utilisation du modèle pour la ré-estimation des largeurs spectrales à partir des données expérimentales.	90
4.6	Comparaison avec des simulations détaillées du code COLAX pour un laser XUV TCE	95
4.6.1	Traitement de l'émission spontanée et effet des approximations temporelles dans COLAX	96
4.6.2	Simulations COLAX : effet du nombre de modes longitudinaux	98
4.7	Etude systématique des caractéristiques de l'épaulement avec la durée d'impulsion	105
4.8	Perspectives : Mesures d'autocorrélations en champ avec un interféromètre monocoup	109
4.8.1	Principe de l'interféromètre XUV monocoup OASIS	110
4.8.2	Description du projet d'expérience	113
4.9	Conclusions	114
5	Etude du comportement temporel des lasers XUV injectés	115
5.1	Introduction	115
5.2	Régimes d'amplification adiabatique et dynamique : existence d'un seuil	116
5.2.1	Echelles de temps de la formation et l'amplification du rayonnement laser XUV :	116
5.2.2	Gain faible-signal "adiabatique" :	117
5.2.3	Régime d'amplification dynamique, notion de seuil	118
5.2.4	Perspectives de l'étude : effet de la propagation	123
5.3	Spectres et fonctions d'autocorrélation calculés par COLAX : signes d'oscillations de Rabi?	123
5.3.1	Introduction	123
5.3.2	Amplification d'une harmonique d'ordre élevé dans un plasma de laser XUV	124
5.3.3	Paramètres contrôlant le profil temporel de l'impulsion laser XUV injecté	126
5.3.4	Degrés de cohérence temporelle et profils spectraux	128
5.4	Conclusions	132
	Conclusion et perspectives	135
	Publications liées à cette thèse	139
	Bibliographie	164

Remerciements

Je tiens à remercier les personnes qui m'ont fait l'honneur de constituer mon jury : les rapporteurs, Philippe Balcou et Sandrine Ferri, ainsi que les examinateurs Fabien Dorchies, Stéphane Sebban et Gilles Maynard qui a présidé le jury. Je remercie en particulier Sandrine Ferri, Fabien Dorchies et Philippe Balcou qui ont fait le voyage depuis Bordeaux et Marseille pour participer à ma soutenance de thèse. Merci à tous d'avoir accepté d'évaluer ce travail de thèse, pour l'intérêt que vous y avez porté et pour vos commentaires pertinents.

Je tiens tout particulièrement à remercier ma directrice de thèse Annie Klisnick, pour qui il m'est difficile d'exprimer en quelques mots ma profonde gratitude et la grande estime que je lui porte. Annie, je te suis infiniment reconnaissante pour ta disponibilité, ta bienveillance, ton soutien, ta patience (particulièrement pendant la période de rédaction de ce manuscrit !), ainsi que pour ta confiance qui m'a permis de prendre de l'autonomie et de gagner confiance en moi. Ce fut un réel plaisir d'effectuer ma thèse avec toi, tant sur le plan humain que scientifique. Je me suis passionnée pour notre sujet de recherche, les lasers XUV, et je te suis très reconnaissante pour les méthodes de travail rigoureuses que j'ai apprises à tes côtés.

Je tiens également à vivement remercier Olivier Guilbaud pour son aide, sa disponibilité, son soutien et ses précieux conseils qui ont largement dépassés le cadre de notre collaboration expérimentale sur LASERIX (Orsay, France). Nos discussions ont beaucoup contribué à ma compréhension de mon sujet et à mes travaux de thèse en général. J'ai aussi énormément appris sur le plan expérimental à ses côtés en salle de manip à LASERIX.

Je remercie également chaleureusement l'ensemble de l'équipe LASERIX pour leur accueil amical et leur aide lors de nos expériences : Sophie Kazamias, Moana Pittman, Elsa Baynard, Olivier Neveu, Julien Demailly, Olivier Delmas et David Ros.

J'ai également eu l'occasion de participer à des expériences sur les installations laser de PALS (Prague, Rép. Tchèque) et de la salle jaune du Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA, Palaiseau, France). Je remercie donc Misha Kozlova, Jaroslav Nejdil et l'équipe technique de PALS pour leur accueil sympathique lors de notre campagne d'expériences, ainsi que Fabien Tissandier venu nous apporter son aide. Je remercie aussi les membres de l'équipe FLEX du LOA, Stéphane Sebban, Julien Gautier, Fabien Tissandier et Adrien Depresseux, pour leur aimable accueil en salle jaune.

Aussi, je tiens à remercier Denis Joyeux du Synchrotron SOLEIL pour son aide sur l'interféromètre à bi-dièdre, instrument qu'il a conçu spécialement pour notre équipe à l'ISMO il y a quelques années et qui était au cœur des expériences de mes travaux de thèse.

Pendant ma thèse j'ai également eu l'occasion de réaliser des simulations numériques. J'ai notamment utilisé le code Bloch-Maxwell COLAX développé par Olivier Larroche du CEA DIF. Je remercie vivement Olivier Larroche pour son aide, sa disponibilité, et ses précieuses explications qui ont amplement dépassé l'utilisation de son code COLAX et m'ont aidée à mieux appréhender mon sujet.

Je remercie aussi chaleureusement Pierre Chavel du Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique (IOGS) qui nous ai aiguillés dans notre réflexion sur le rôle de la cohérence temporelle dans nos mesures expérimentales, pour son aide, ses commentaires et le temps qu'il nous a consacré. Je tiens aussi à exprimer ma reconnaissance à Olivier Guilbaud et Olivier Larroche qui ont contribué à ces travaux.

Je remercie Philippe Bréchnac et Bernard Bourguignon qui lui a succédé à la direction de l'ISMO, de m'avoir accueillie au laboratoire. Je m'y suis très vite sentie à l'aise, et ce grâce à l'accueil sympathique de tout ses membres et à la bonne ambiance générale qui y règne. Je tiens tout particulièrement à exprimer ma sympathie à mes colocataires du 2^{ème} étage du bâtiment 350, avec lesquels j'ai partagé mes déjeuners au Cesfo et de nombreuses discussions autour de cafés (et parfois crêpes, gâteaux, chocolats, loukoums...). Les membres de l'équipe B, permanents ou de passage pendant ma thèse : Sirine Amri, Osman Atabek, Jean-Marc Bizau, Charles Bourrassin-Bouchet, Eric Charron, Raluca Cireasa, Robin Corgier, Denis Cubaynes, Ségolène Diehl-Guilbaud, Danielle Dowek, Sylvain Fayard, Arne Keller, Annie Klisnick, Roland Lefebvre, Sonia Maggi-Poulain, Limin Meng, Rajumon Puthumpally-Joseph, Ibrahim Saideh, Nicolas Saquet, Kévin Veyrinas, Jérémy Viau-Trudel. Ainsi que les membres des équipes et services techniques du 2^{ème} étage du 350 : Jean-Yves Bazzara du service informatique, Eric Bouisset, Jérôme Guigand et Alexis Marié du BE-mécanique, Olivier Moustier du service électronique et Marc Roullia désormais à l'IOGS.

Merci à Limin, précédent doctorant d'Annie dont la thèse s'est achevée trois mois après que la mienne ait débutée, qui a trouvé le temps de me transmettre les outils de traitement de données qu'il avait développés pendant sa thèse malgré la course effrénée de sa fin de rédaction et préparation de soutenance. Merci à Charles Bourrassin-Bouchet, post-doctorant d'Annie et mon coloc' de bureau pendant ma dernière année de thèse, pour son aide, ses explications, ses conseils et sa bonne humeur. Merci aussi à Jean-Yves Bazzara, avec qui se fut également un plaisir de partager mon bureau, qui m'a aidée dans mes divers déboires informatiques tout au long de ma thèse. Merci à Alexis Marié et Jérôme Guigand qui ont respectivement conçu et réalisé un cube instrumenté pour nos manip (testé et approuvé!). Merci à Eric Bouisset, Jérôme Guigand et Christophe François pour leur aide pour le transport de notre lourd et fragile matériel au LOA. Merci à Eric et Alexis pour l'impression de mes posters (toujours à la dernière minute!). Merci à Kévin Veyrinas pour ses précieux conseils pour mon monitorat. Je tiens aussi à vivement remercier Osman Atabek, Denis Cubaynes et Olivier Guilbaud qui ont eu la gentillesse de constituer, avec Annie, le faux jury de mon ultime répétition de soutenance. A 48h de l'échéance, l'exercice était périlleux! Mais vos conseils, vos remarques et votre bienveillance m'ont été très utiles et m'ont donné confiance pour le jour J. Je remercie aussi chaleureusement Olivier Moustier et Jérôme Guigand pour les délicieux cannelés et l'excellent gâteau des Landes (dont la bienséance m'interdit d'écrire le nom ici) apportés pour mon pot de thèse. Merci à tous pour vos cadeaux qui m'ont fait très plaisir. Je remercie Eric Charron et Martine Basset, respectivement directeur adjoint et secrétaire de l'EDOM, pour leurs conseils et leur aide dans les (lourdes) démarches administratives que rencontre un doctorant. Enfin, je remercie les services administratifs et techniques pour leur efficacité et leur disponibilité.

J'ai fait un monitorat pendant ma thèse, j'ai eu la chance d'être entourée d'enseignants-chercheurs bienveillants, pédagogues et disponibles. Je remercie Elena-Magdalena Staicu-Casagrande et Ian Picard avec qui j'ai préparé puis enseigné une partie du programme de Physique de l'UE "la vie" de L1 à l'Institut Villebon - Georges Charpak, Kuon Viet Pham, Zahia Djouadi et Claire Marrache-Kikuchi avec qui j'enseignais le cours d'ondes de PCSO et qui m'ont bien aidée à préparer ces cours, Serge Carrez, Guillaume Dupuis, Sandrine Lévêque-Fort et Qingli Kou avec qui j'encadrais les TP d'optique à Polytech. Toutes ces expériences furent très enrichissantes et je vous remercie tous pour votre confiance et votre gentillesse.

Un merci spécial à tous les doctorants croisés pendant cette thèse, au labo, en enseignement, manip, école d'été ou conférence, avec qui cela faisait un grand bien de partager conseils, déboires (ou succès!), ... : les déjà cités Kévin, Sonia, Raiju, Jérémy et Olivier Delmas; ainsi que Marie et Hannah du TP de Physique quantique, Li Lu, Johann, Mokrane, Pierre, Dario...

Et bien évidemment, je tiens à remercier tout particulièrement mes proches : mes parents, mes deux petites sœurs Axelle et Benjamine, ma cousine et ex-coloc' Maguelone, mes amis Margaux, Chloé, Manu, Laurent, Yoann, pour leur immense soutien et leurs encouragements tout au long de ma thèse, particulièrement pendant ma longue et difficile période de rédaction, et pour qui je regrette de ne pas avoir été assez disponible. Merci aussi à la "team SF" (Maï, Raphaël, Nicolas, Florian, Dimitri, Laura, Thibault, Alexandre), à "JAK et Joo" (Jérémy, Arnaud, Kévin et Joosung), à Nassim, à Louise...

Enfin, je tiens à remercier spécialement Basil sans qui je n'y serais pas arrivée. Merci de m'avoir poussée à toujours donner le meilleur de moi-même aux mots-fléchés, pour tes indications d'itinéraire en milieu urbain inspirées de méthodes de gardes-forestiers qui m'ont fait voyager, et pour tes (trop nombreux) liens 9gag et Youtube : "Swag activated in 3, 2, 1..."

Introduction

Depuis leur invention au début des années 1960, les lasers n'ont cessé de se développer. La diversité des sources laser actuelles, dont les propriétés sont très variées (longueur d'onde, intensité, durée d'impulsion, taux de répétition...), ouvre sur un très large champ d'applications dans de nombreux domaines de la physique, de la biologie, de la chimie, ainsi que des applications industrielles et médicales. Les premiers modèles théoriques visant à transposer le principe du laser aux transitions ioniques dans un plasma dense et chaud, dans le but de créer un laser dans la gamme XUV, ont été entrepris dès le milieu des années 1960 [Gudzenko 1965]. La première preuve expérimentale d'amplification par émission stimulée de raies spectrales dans le domaine XUV a été obtenue au début des années 1970 au LIXAM à Orsay [Jaegle 1971], mais ce n'est toutefois qu'en 1985 que la faisabilité expérimentale de lasers XUV fut démontrée au Livermore National Laboratory aux Etats-Unis [Matthews 1985]. Depuis, ces sources ont connu de rapides progrès et sont aujourd'hui produites sur de nombreuses plateformes expérimentales à travers le monde et utilisées pour diverses applications. Les méthodes de génération du plasma amplificateur se sont diversifiées à la fin du XX^{ème} siècle (focalisation d'impulsions laser IR intenses sur un matériau, ionisation d'un gaz par effet tunnel en présence du champ intense d'un laser IR, ou décharge électrique dans un gaz), permettant de créer des lasers XUV avec des propriétés distinctes : leurs propriétés spectrales et temporelles, qui dépendent fortement des conditions hydrodynamiques dans la zone de gain du plasma, et leur durée d'impulsion. En effet, dans leur mode de fonctionnement initial et "habituel", les lasers XUV opèrent en mode d'amplification de l'émission spontanée (ASE). La durée d'impulsion est déterminée par celle du gain dans le milieu amplificateur, qui varie de quelques picosecondes à un peu plus d'une nanoseconde suivant le type de laser XUV.

Les lasers à électrons libres X (XFEL), développés au cours de ces dix dernières années, permettent de délivrer des impulsions de quelques femtosecondes et d'atteindre des brillances crêtes de plusieurs ordres de grandeur supérieures à celles des sources conventionnelles, ouvrant ainsi de nouvelles voies de recherche telles que l'optique non-linéaire ou la création d'états exotiques de la matière. Néanmoins, ces sources ont un accès très restreint et des coûts de mise en œuvre et de maintenance très élevés. Il est donc toujours nécessaire de poursuivre le développement des sources lasers XUV, plus accessibles, plus compactes et moins coûteuses, afin d'approcher les performances des XFELs. La technique d'injection, apparue au début des années 2000 [Zeitoun 2004, Wang 2006], consiste à amplifier dans le plasma de laser XUV une impulsion harmonique d'ordre élevé de quelques femtosecondes résonante avec la transition laser XUV. Cette technique a permis d'avancer vers notre objectif en améliorant considérablement certaines propriétés des lasers XUV par rapport au mode ASE, notamment leur cohérence spatiale et temporelle, la collimation du faisceau, la qualité du front d'onde, le contrôle de la polarisation. La durée d'impulsion est également réduite. Néanmoins, la durée de l'harmonique d'ordre élevé injectée, de quelques dizaines de femtosecondes, n'est pas conservée durant l'amplification. Cet effet est principalement dû à l'important désaccord entre la largeur spectrale de l'harmonique d'ordre élevé à amplifier et celle de la transition laser, qui est typiquement cent à mille fois plus étroite. D'importants efforts visant à réduire la durée d'impulsion des lasers XUV créés par plasma au domaine femtoseconde sont entrepris par la communauté. C'est dans le cadre de ces travaux de recherche que s'inscrivent les travaux de cette thèse.

Un des principaux obstacles à la génération d'impulsions lasers XUV injectées femtosecondes est donc la très étroite largeur spectrale du plasma amplificateur des lasers XUV. Une caracté-

risation expérimentale des largeurs spectrales des différents types de lasers XUV opérationnels, en relation avec les paramètres du plasma amplificateur, est donc nécessaire afin de déterminer les conditions les plus favorables à l'amplification d'une harmonique d'ordre élevé tout en conservant au maximum sa durée femtoseconde. Cette caractérisation nécessite une résolution spectrale extrême qui ne peut être obtenue que par une méthode interférométrique, indirecte, par laquelle le profil spectral du laser XUV est déduit d'une mesure de sa cohérence temporelle par autocorrélation du champ électrique. Grâce à un interféromètre à division de front d'onde à différence de marche variable, spécialement conçu pour ces mesures, le groupe d'Annie Klisnick a pu mener ces dernières années une série d'expériences de caractérisation des largeurs spectrales des différents types de lasers XUV dans différents laboratoires.

La première partie de ce travail de thèse, présentée dans le chapitre 3, a été consacrée à la caractérisation du laser XUV quasi-stationnaire généré sur l'installation laser PALS à Prague en République Tchèque, clôturant ainsi cette campagne de caractérisation. Une première expérience, effectuée en 2012, avait donné des résultats très prometteurs : conformément aux simulations numériques sur ce type de laser XUV, la largeur spectrale serait plus grande que celle des autres types de lasers XUV, permettant d'amplifier des impulsions plus courtes, potentiellement sub-picosecondes. Mais la qualité des résultats ne permettait pas de raisonnablement tirer des conclusions fiables. En effet, la mesure s'est révélée plus difficile à mettre en œuvre sur cette installation que pour les lasers XUV précédemment caractérisés. Pour la deuxième expérience réalisée lors de cette thèse, le montage et la méthode expérimentale ont été améliorés afin de pallier les difficultés rencontrées lors de la première expérience.

Le chapitre 4 présente une étude numérique de notre méthode expérimentale. Nous nous sommes intéressés en particulier à un comportement déjà remarqué avant le début de cette thèse, et confirmé par la mesure sur le laser XUV de PALS, mais pas encore étudié ni compris. Alors que les mesures effectuées sur des lasers XUV à impulsion relativement longues devant le temps de cohérence indiquaient un profil spectral gaussien et une largeur spectrale mesurée en bon accord avec les simulations numériques, les mesures effectuées sur des lasers XUV à impulsions courtes étaient plus difficiles à interpréter et l'accord des mesures avec la théorie était moins bon. Des observations similaires faites sur les lasers XUV à électrons libres en mode SASE (Self-Amplified Spontaneous Emission) nous ont incités à adapter un modèle d'impulsions partiellement cohérentes temporellement, développé par d'autres auteurs pour décrire les propriétés spectrales et temporelles de ces sources. Ce modèle nous a permis de produire des impulsions partiellement cohérentes temporellement de différentes durées dont nous avons calculé les traces d'autocorrélation en champ afin de les comparer à nos mesures.

Le chapitre 5, présente des études des propriétés temporelles des lasers XUV injectés. L'important désaccord entre la largeur spectrale de l'harmonique d'ordre élevé à amplifier et celle de la transition laser XUV, induit une réponse non adiabatique du milieu et une amplification non-linéaire, qui doit être décrite par un formalisme de Bloch-Maxwell. Les simulations basées sur ce formalisme montrent en particulier l'apparition d'oscillations de Rabi dues à la présence du champ induit par harmonique d'ordre élevé. L'inversion de population oscille de valeurs positives à négatives, produisant macroscopiquement des structures temporelles dans le champ électrique émis avec des pics dont la durée peut descendre jusqu'à ~ 10 fs. La génération d'oscillations de Rabi dans les lasers XUV injectés est donc actuellement considérée comme un moyen prometteur de produire des lasers XUV femtoseconde. Mais la manifestation de ces dernières n'a toutefois encore jamais été mise en évidence expérimentalement. Pour contribuer à la réalisation de cet objectif, nous avons réalisé une étude du comportement temporel de l'amplification basée sur l'analyse des équations de Bloch-Mawell, afin d'identifier des paramètres du milieu amplificateur

permettant de favoriser l'apparition d'oscillation de Rabi. Nous présentons également des calculs numériques issus du code Bloch Maxwell COLAX développé par Olivier Larroche au CEA, dans lesquels nous avons investigué la possibilité de mettre en évidence les oscillations de Rabi dans une impulsion laser XUV transitoire injecté par la mesure du spectre ou de l'autocorrélation du champ de l'impulsion. Une campagne d'expérience a été réalisée sur un laser XUV transitoire (TCE) injecté sur l'installation LASERIX (LPGP, Université Paris-Sud) en octobre en 2013, en collaboration avec Olivier Guilbaud du LPGP. L'objectif était de favoriser l'apparition d'oscillations de Rabi (en s'appuyant notamment sur les résultats de l'étude analytique mentionnée ci-dessus), puis d'observer leur manifestation par des mesures d'autocorrélation du champ électrique de l'impulsion. Ce travail expérimental aurait dû être poursuivi tout au long de cette thèse mais il a été interrompu fin octobre 2013 par le déménagement de l'installation (alors hébergée au LOA à Palaiseau), que nous n'avons appris qu'au début de la thèse en octobre 2012. La plateforme LASERIX a depuis été réimplantée au LAL à l'Université Paris-Sud et devrait être à nouveau opérationnelle à la fin de l'année 2016. Les résultats préliminaires obtenus lors des expériences sur LASERIX ne sont pas présentés dans cette thèse. Enfin, nous avons également tenté de réaliser une mesure d'autocorrélation du champ du laser XUV OFI injecté généré au LOA par l'équipe de Stéphane Sebban, sur lequel d'importants développements ont été effectués au cours de la thèse d'Adrien Depresseux [Depresseux 2015]. Les résultats obtenus présentent des caractéristiques jamais observées auparavant lors de nos mesures avec notre interféromètre, et leur origine n'a pas encore été clairement identifiée. L'analyse de ces résultats étant encore en cours, ils ne sont pas présentés dans ce manuscrit.

Lasers XUV collisionnels créés par plasma

1.1 Introduction aux sources XUV cohérentes délivrant des impulsions courtes

Des progrès spectaculaires ont été accomplis au cours des ~ 10 dernières années dans le développement de sources de rayonnement intenses, brèves et cohérentes, émettant dans le domaine spectral XUV. Ce domaine (figure 1.1) correspond à un intervalle d'énergie typiquement compris entre 20 et 500 eV (longueur d'onde 2-50 nm). La mise à disposition de ces sources à des utilisateurs a ouvert de nombreuses nouvelles voies de recherche encore inexplorées, concernant notamment la dynamique ultrarapide des processus élémentaires, l'interaction X-matière à haute intensité, ou encore l'imagerie à très haute résolution spatiale et temporelle. Deux techniques de génération distinctes ont progressé en parallèle : celle basée sur le rayonnement secondaire des accélérateurs de particules d'une part, et celle basée sur le rayonnement secondaire dans l'interaction laser-matière à haute intensité. Les lasers XUV générés par plasma, qui sont l'objet

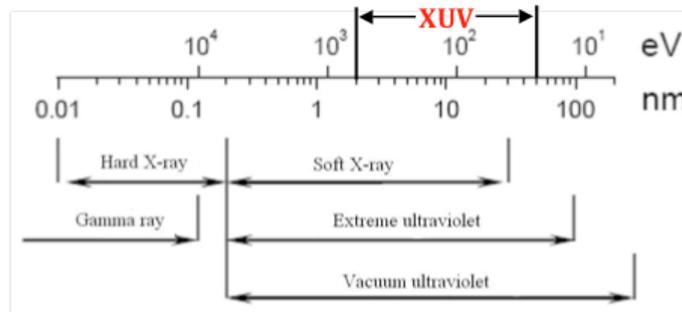


FIGURE 1.1 – Spectre du rayonnement électromagnétique, indiquant les limites du domaine XUV.

de ce travail de thèse, appartiennent à la deuxième catégorie. Avant de les présenter en détail dans ce chapitre, nous décrivons brièvement les principes de génération et les principales caractéristiques de deux autres sources qui seront discutées dans ce mémoire : les lasers XUV à électrons libres d'une part (X-FEL), et la génération d'harmonique d'ordre élevé (HH) dans un gaz d'autre part. En effet nous verrons que les harmoniques d'ordre élevé sont utilisées comme source extérieure pour être injectées dans le plasma amplificateur de certains lasers XUV, ce qui permet de considérablement améliorer leurs performances. Par ailleurs nous présenterons au chapitre 4 une étude qui montre que les lasers XUV créés par plasma ont des propriétés de cohérence similaires à celles des lasers à électrons libres, lorsque ces deux types de sources opèrent dans leur mode "naturel" d'amplification de l'émission spontanée.

1.1.1 Harmoniques d'ordre élevé

Les harmoniques d'ordre élevé que nous décrivons brièvement dans cette section sont générées par l'interaction non-linéaire d'un laser IR intense ($I = 10^{13} - 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$) avec un gaz

rare. Le rayonnement émis est composé d'un peigne de fréquences qui sont des multiples de la fréquence du laser IR. Nous n'aborderons pas les autres méthodes de génération d'harmoniques d'ordre élevé existantes, notamment la génération sur cible solide qui repose sur des processus physiques très différents de celui qui nous intéresse ici.

Le modèle le plus utilisé pour décrire la génération d'harmoniques d'ordre élevé au niveau microscopique est le modèle dit "semi-classique" ou "à trois étapes" [Lewenstein 1994] (figure 1.2). La première étape consiste en l'ionisation d'un électron lié de l'atome qui traverse la barrière de potentiel coulombien par effet tunnel, rendu possible par la déformation du potentiel coulombien par le champ intense du laser IR. Ce phénomène est très rapide comparé à la période d'oscillation du laser IR ($T_{IR} \sim 3$ fs). Dans un second temps, l'électron oscille quasi-librement dans le champ laser IR en étant accéléré. Lorsque le champ du laser (polarisé linéairement) change de signe, l'électron est accéléré dans la direction inverse, et retourne vers l'atome dont il a été arraché. Certaines des trajectoires électroniques (qui dépendent de l'instant auquel l'électron a été arraché à l'atome) peuvent donner lieu à une recombinaison radiative sur le niveau fondamental (troisième étape). L'énergie du photon émis est alors égale à la somme de l'énergie cinétique gagnée par l'électron dans le continuum et du potentiel d'ionisation du fondamental. Ces trois étapes se répètent à chaque demi-période du laser IR, lorsque le module de l'am-

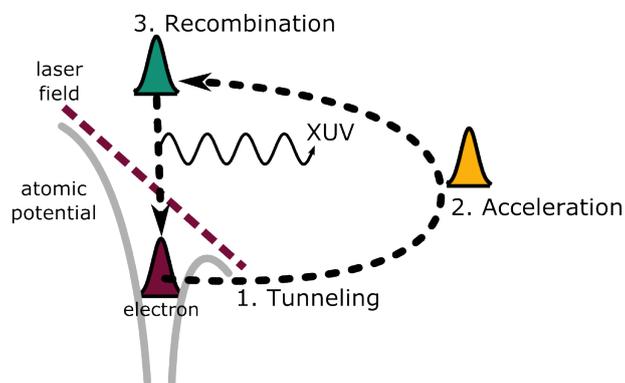


FIGURE 1.2 – Le modèle en trois étapes pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

plitude du champ est maximal (tant que l'amplitude du champ est suffisante pour permettre l'ionisation tunnel). Lorsque les conditions macroscopiques d'accord de phase sont réunies, le rayonnement XUV total émis par tous les atomes soumis au champ laser est la superposition cohérente du rayonnement émis à chaque demi-période $T_{IR}/2$, ce qui donne, dans le domaine spectral, un rayonnement constitué de raies harmoniques séparées de $\frac{1}{T_{IR}/2} = 2\nu_{IR}$. Entre deux demi-périodes consécutives, les électrons sont ionisés dans des directions opposées. Cette symétrie d'inversion du processus implique que les harmoniques émises sont impaires.

Le spectre obtenu dépend du gaz utilisé et des conditions d'interaction avec l'impulsion laser mais il possède certaines caractéristiques typiques : pour les harmoniques les plus basses une décroissance rapide de l'intensité, puis une région dite de "plateau" où l'intensité des harmoniques successives est à peu près constante, jusqu'à une énergie de coupure où cette intensité chute brutalement. L'énergie de coupure E_{max} est bien décrite par [Lewenstein 1994] :

$$E_{max} = 1,3.I_p + 3,17.U_p$$

où I_p est le potentiel d'ionisation (non perturbé) de l'atome et U_p est le potentiel pondérateur, lié à l'intensité et à la longueur d'onde du laser excitateur.

Les sources harmoniques ont connu au cours des vingt dernières années un essor spectaculaire, lié d'une part à la relative simplicité de la technique de génération, d'autre part à leurs propriétés exceptionnelles. En particulier ce sont les seules sources qui permettent actuellement

d'atteindre des durées d'impulsion attosecondes (10^{-18} s) [Paul 2001]. Les sources harmoniques conservent les propriétés de cohérence et de polarisation du laser exciteur. Elles constituent donc des sources bien adaptées pour être injectées dans un plasma de laser XUV.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé a été étendue jusqu'à des énergies de plusieurs centaines d'électron-volts, dans le domaine appelé "fenêtre de l'eau" (longueur d'onde 2-4 nm), avec toutefois une efficacité de génération beaucoup plus faible. La meilleure efficacité est obtenue autour de $\lambda \sim 30 - 40$ nm, avec une énergie par impulsion qui peut atteindre ou dépasser le microjoule. L'injection d'harmonique dans un plasma de laser XUV pourrait donc constituer une alternative intéressante pour augmenter le nombre de photons d'une harmonique donnée.

1.1.2 Lasers X/XUV à électrons libres

Les lasers X/XUV à électrons libres (X-FEL) constituent un nouveau type de sources synchrotron de quatrième génération, qui ont permis d'atteindre un nouveau domaine d'intensité en tirant bénéfice du développement récent de la technologie des accélérateurs. L'appellation "laser" peut être considérée comme un abus de langage car les lasers à électrons libres ne reposent pas sur l'effet laser "atomique" classique, mais sur l'émission synchrotron. Les X-FELs sont principalement constitués d'un accélérateur linéaire et d'un onduleur magnétique. L'accélérateur linéaire accélère des paquets d'électrons d'énergie de un à une vingtaine de GeV suivant la longueur d'onde du rayonnement voulu. Chaque paquet passe ensuite dans l'onduleur qui force les électrons à osciller transversalement en émettant du rayonnement synchrotron (figure 1.3). L'interaction des électrons avec leur propre rayonnement dans le champ magnétique de l'onduleur provoque un phénomène de "microbunching" : les électrons se regroupent en tranches et émettent en phase un rayonnement quasi-cohérent qui s'amplifie au cours de la propagation dans l'onduleur. Cet effet est désigné par le terme SASE pour *Self-Amplified Spontaneous Emission* [Kondratenko 1980, Bonifacio 1984].

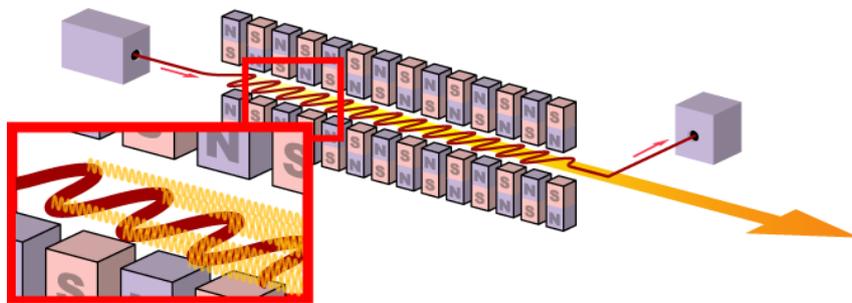


FIGURE 1.3 – Schéma d'un onduleur d'un laser X à électrons libres.

Plusieurs installations de type X-FEL ont été construites et d'autres sont en construction. Dans le domaine XUV les installations existantes sont FLASH [FLASH] à Hambourg (Allemagne), FERMI à Trieste (Italie). Dans le domaine X, deux installations sont actuellement en fonctionnement : le LCLS [LCLS] à Stanford (USA) (gamme X mou à X dur) et SACLA [SACLA] (gamme X dur). Ces sources fournissent un rayonnement de courte longueur d'onde – jusqu'à la taille d'un atome - avec des courtes durées d'impulsions - quelques femtosecondes à quelques dizaines de femtosecondes, de l'ordre de la durée des plus courts processus atomiques. Les intensités atteintes après focalisation sont exceptionnellement élevées (jusqu'à $10^{18} - 10^{19}$ W.cm⁻²), ce qui correspond à 1 photon par atome dans un solide. Le rayonnement est de plus ajustable en longueur d'onde. La plupart des X-FELs fonctionnent en régime SASE, caractérisé par des impulsions partiellement cohérentes, comme on le verra au chapitre 4. Comme dans le cas des lasers XUV à plasma, leurs propriétés peuvent être améliorées en fonctionnant en mode injecté. C'est le cas de l'installation FERMI de Trieste, qui est actuellement le seul

X-FEL fonctionnant en routine en mode injecté [Allaria 2010].

Les X-FELs sont donc des sources aux propriétés uniques, qui attirent une communauté croissante d'utilisateurs pour des applications variées. L'accès à ces sources est toutefois difficile à obtenir, en raison de leur nombre très limité dans le monde. Les lasers XUV générés par plasma, qui n'atteignent pas ou pas encore ces performances, constituent donc des sources complémentaires utilisables à l'échelle d'un laboratoire.

1.1.3 Lasers XUV créés par plasma

Les lasers XUV générés par plasma reposent sur le principe du laser : le rayonnement émis résulte de l'amplification par émission stimulée à la longueur d'onde d'une transition entre deux niveaux en inversion de population. Des longueurs d'onde dans le domaine XUV peuvent être obtenues en utilisant des transitions électroniques entre niveaux excités d'ions multichargés. Le milieu à gain de ces lasers est donc une petite colonne de plasma dense ($> 10^{18} - 10^{21} \text{ cm}^{-3}$) et chaud (quelques 10 eV - quelques 100 eV) hautement ionisé comportant une espèce ionique en grande quantité dans laquelle peut s'établir une inversion de population sur une transition électronique. Ces plasmas peuvent être produits aussi bien par décharge électrique rapide dans un gaz que par différents types de lasers de puissance. Parmi tous les schémas de pompage explorés dans ces plasmas c'est le pompage par excitation collisionnelle dans des ions néonoïdes et nickéloïdes qui s'est révélé le plus efficace. Ce pompage a été mis en œuvre dans des plasmas produits avec une grande variété de techniques expérimentales, conduisant à des lasers XUV avec des caractéristiques variées, comme on le verra plus loin dans ce chapitre. Contrairement aux lasers optiques classiques, le milieu à gain des lasers XUV n'est pas placé dans une cavité optique résonnante. Cela est d'une part dû à la courte durée du gain (de quelques ps à un peu plus de 1 ns en fonction de la méthode de génération du plasma) qui ne permettrait pas au rayonnement d'effectuer un grand nombre d'aller-retour dans le milieu amplificateur, et à la faible réflectivité des miroirs dans le domaine XUV. Le rayonnement laser XUV est donc de l'amplification d'émission spontanée (ASE), c'est-à-dire que l'émission spontanée à la longueur d'onde de la transition laser sert de germe à l'amplification. Néanmoins, les gains sont suffisamment élevés pour permettre aux lasers XUV actuellement opérationnels d'atteindre la saturation de l'amplification en un seul passage du rayonnement dans la colonne de plasma. Nous verrons également dans la section 1.6 que certains plasmas de lasers XUV sont utilisés comme milieu amplificateur pour une harmonique d'ordre élevé résonante avec la transition pompée dans le plasma, on parle alors de lasers XUV injectés.

1.2 Schémas de pompage des inversions de population

Afin d'obtenir un effet laser à partir d'une transition radiative d'ions multichargés, il faut que ceux-ci soient présents en grande quantité dans le milieu amplificateur et relativement résistants aux processus d'ionisation. Les schémas de pompage envisagés utilisent donc généralement des ions à couche externe fermée dont l'énergie d'ionisation est plus élevée que celles des autres états de charges. Ils résistent donc mieux aux processus d'ionisation par collisions électroniques et peuvent être présents sur de plus larges gammes de température et densité. À la différence des lasers optiques classiques, la transition laser n'est pas pompée par une source extérieure et l'inversion de population s'établit, sous certaines conditions de densité et de température, par le peuplement différentiel de niveaux excités par des mécanismes collisionnels et radiatifs. Nous décrivons les trois schémas de pompage qui ont été étudiés expérimentalement et théoriquement pour réaliser des lasers XUV. Rappelons à nouveau que c'est le pompage par excitation collisionnelle qui est à la base de tous les lasers XUV actuellement opérationnels dans le monde.

1.2.1 Pompage par recombinaison

Le premier schéma de pompage qui fut proposé (en 1965) est le schéma de pompage par recombinaison [Gudzenko 1965]. La transition laser s'effectue entre un état métastable (niveau supérieur de la transition laser) d'un ion hydrogénoïde ($Z = 1$, où Z est le nombre d'électrons liés) ou lithiuoïde ($Z = 3$), et un état (niveau inférieur de la transition laser) ayant un taux radiatif élevé vers le fondamental (voir figure 1.4). Dans les conditions favorables, le niveau supérieur est peuplé par des recombinaisons à trois corps (recombinaison d'un électron avec un ion assistée par un autre électron) depuis l'état de charge supérieur (ion nu dans le cas d'un transition laser XUV hydrogénoïde, ion héliumoïde dans le cas d'un laser XUV lithiuoïde) vers les niveaux les plus excités de l'ion, suivies d'une cascade collisionnelle-radiative vers le niveau supérieur de la transition laser.

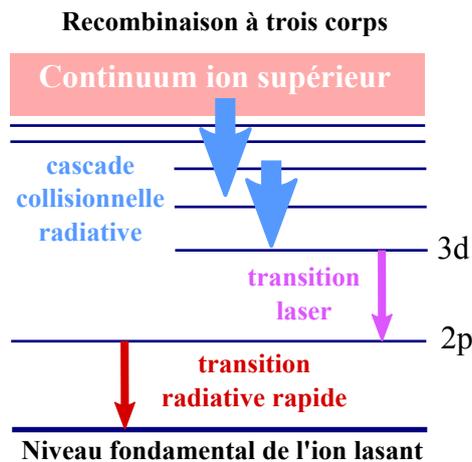


FIGURE 1.4 – Schéma du pompage par recombinaison collisionnelle.

Le taux de recombinaison à trois corps varie en N_e^3/T_e où N_e est la densité électronique et T_e la température électronique. Pour maximiser ce taux, il faut ainsi créer un plasma à la fois dense et froid (quelques 10 eV). Ces conditions optimales sont difficiles à obtenir expérimentalement et, bien que de faibles gains aient été observés dans plusieurs laboratoires, la saturation n'a jamais pu être obtenue avec ce schéma de pompage. Il a été peu à peu délaissé au profit du schéma de pompage par excitation collisionnelle décrit dans le paragraphe suivant.

Néanmoins, l'étude de ce schéma est à nouveau envisagée en employant des lasers de type CPA (Chirped Pulse Amplification [Strickland 1985]) délivrant des impulsions intenses et ultra-brèves et en ionisant le plasma par effet tunnel, ce qui permettrait de rester à plus basse température.

1.2.2 Pompage par photoionisation de couche interne

Le schéma de pompage par photoionisation en couche interne fut proposé en 1967 par Duguay et Rentzepis [Duguay 1967]. Contrairement aux deux autres schémas de pompage, il fait appel à un rayonnement X externe pour le pompage de la transition laser par photoionisation d'un électron interne de la couche K d'un atome neutre (voir figure 1.5). La transition laser correspond à la désexcitation d'un électron d'une couche externe vers le niveau fondamental de l'ion, permettant d'atteindre de très courtes longueurs d'onde ($\lambda = 1,5$ nm dans le néon et 4,4 nm dans le carbone). Il faut que la source X soit suffisamment intense et brève pour que l'inversion de population s'établisse sur un temps plus rapide que les processus qui peuvent la détruire : le dépeuplement du niveau haut par effet Auger, et le peuplement du niveau bas par ionisation collisionnelle. Le dépeuplement par effet Auger est en particulier très rapide, de l'ordre de quelques fs.

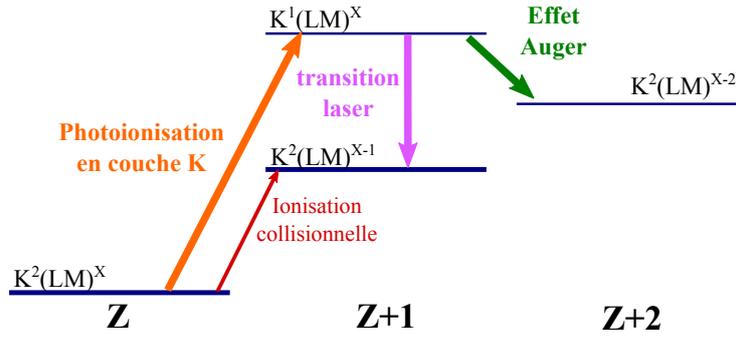


FIGURE 1.5 – Schéma du pompage par photoionisation de couche interne.

La première démonstration expérimentale de ce schéma de pompage a été réalisée en 2012 par l'équipe de N. Rohringer [Rohringer 2012], en utilisant comme source de pompage le laser à électrons libres du LCLS ajusté à 960 eV pour photoioniser un gaz de néon. Une forte amplification a été observée à 1,46 nm, longueur d'onde de la transition $2p - 1s$ dans Ne^+ , atteignant le régime de saturation. La durée de l'impulsion laser XUV ainsi générée est estimée à 5 fs par des simulations numériques.

1.2.3 Pompage par excitation collisionnelle

Le schéma de pompage par excitation collisionnelle fut proposé en 1976 par A. N. Zherikhin [Zherikhin 1976] et la première démonstration expérimentale d'un laser XUV présentant une amplification significative était basée sur ce schéma de pompage [Matthews 1985]. Jusqu'à récemment, c'était le seul schéma de pompage ayant permis d'atteindre le régime de saturation. C'est en tous cas le mécanisme de pompage sur lequel reposent tous les lasers XUV opérationnels actuellement.

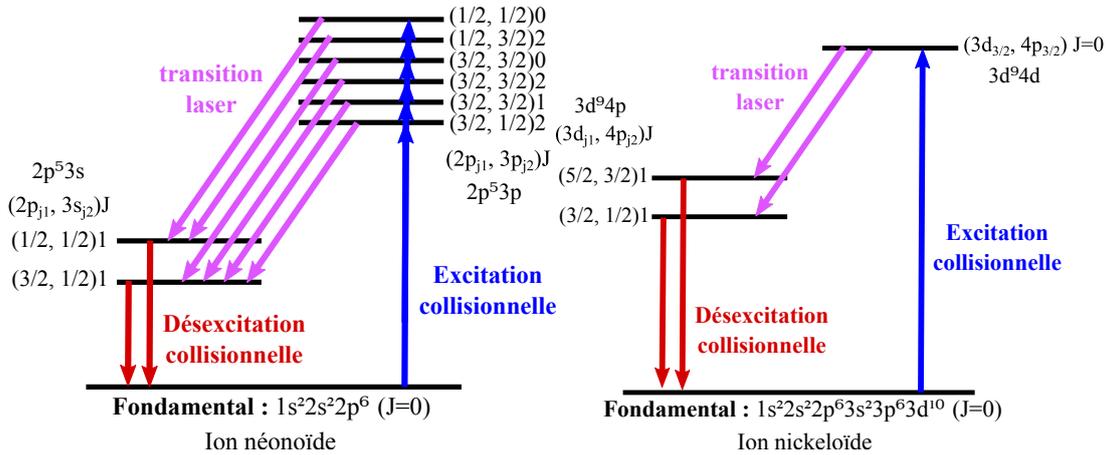


FIGURE 1.6 – Schéma du pompage par excitation collisionnelle.

Le principe est représenté sur la figure 1.6 pour les deux espèces ioniques à couche externe fermée pour lesquelles il a été mis en œuvre : néonoïdes ($Z = 10$ électrons liés) ou nickelloïdes ($Z = 18$). Des électrons du niveau fondamental de ces ions ($2p^6$ pour Ne-like ou $3d^{10}$ pour Ni-like) sont pompés par excitation collisionnelle vers les premiers niveaux excités de l'ion ($2p^53l$ ou $3d^94l$ respectivement). Le niveau haut de l'inversion de population ($2p^53p$ ou $3d^94d$) est métastable (la transition vers le fondamental est interdite par les règles de sélection dipolaire), tandis que le niveau bas ($2p^53s$ ou $3d^94p$) a une probabilité de désexcitation radiative très élevée

qui lui permet de se dépeupler rapidement. Il s'établit donc une inversion de population entre ces deux niveaux excités. Les transitions atteignant les gains les plus élevés sont respectivement les transitions $(3p - 3s)_{J=0-1}$ (ions néonoïdes) et $(4d - 4p)_{J=0-1}$ (ions nickelloïdes), car le taux d'excitation collisionnelle le plus élevé est le taux monopolaire ($J = 0$ vers $J = 0$).

Le taux d'excitation collisionnelle augmente avec la température électronique (l'énergie moyenne des électrons libres doit en effet être supérieure ou égale à l'énergie du niveau supérieur de la transition laser pour y pomper les électrons liés) et la densité électronique (puisque cela augmente la probabilité des collisions). Le plasma doit donc être à la fois dense et chaud, ce qui est plus facile à mettre en œuvre expérimentalement qu'un plasma dense et froid nécessaire au pompage par recombinaison. Des gains compris entre ~ 1 et 100 cm^{-1} , de durées comprises entre quelques ps à un peu plus de 1 ns ont ainsi été atteints, selon la méthode employée pour créer et pomper le plasma. Le pompage par excitation collisionnelle a été démontré expérimentalement dans de nombreux éléments, ce qui permet de couvrir (de façon discrète) une gamme de longueur d'onde comprise entre $\sim 50 \text{ nm}$ et 4 nm (voir figure 1.7). Plus on va vers les courtes longueurs d'onde, plus l'énergie du laser de pompe doit être importante pour atteindre l'état d'ionisation souhaitée.

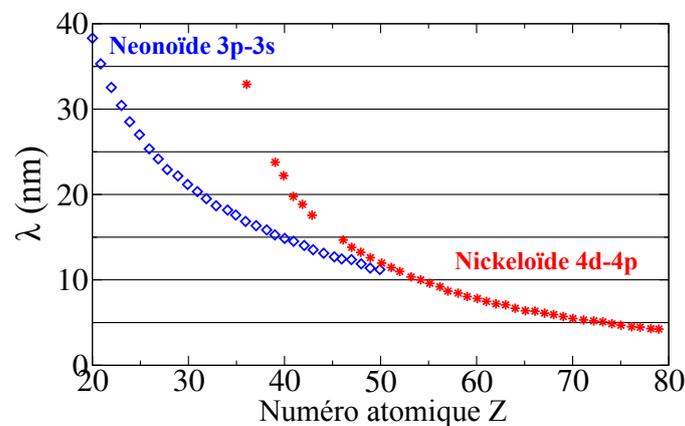


FIGURE 1.7 – Longueur d'onde des transitions en fonction du numéro atomique pour les ions néonoïdes et nickelloïdes.

1.3 Génération du plasma amplificateur - différents types de lasers XUV

Il existe ainsi 4 types de sources lasers XUV distinctes : les lasers XUV à décharge capillaire (QSS-d) générés par une décharge électrique dans un gaz, les lasers XUV quasi-stationnaires (QSS-l) et les lasers XUV transitoires (TCE) tous deux générés par la focalisation d'un laser sur une cible solide mais mettant en jeu des cinétiques différentes, et les lasers XUV OFI générés par l'ionisation d'un gaz en champ intense.

On désigne ainsi par laser XUV quasi-stationnaire les systèmes dont le temps caractéristique de stabilisation des populations des niveaux excités (\sim picoseconde) est très inférieur à celui de l'ionisation des ions lasants. On peut donc considérer que les populations des niveaux laser suivent adiabatiquement la population de l'espèce ionique. Dans le cas des lasers XUV transitoires, les temps caractéristiques d'évolution des grandeurs hydrodynamiques sont très rapides, du même ordre de grandeur que le temps nécessaire à la mise en équilibre stationnaire des populations des niveaux excités de l'ion lasant.

1.3.1 Plasmas créés par décharge capillaire : lasers XUV "QSS-d"

Le plasma des lasers XUV de décharge capillaire est créé par une décharge électrique de plusieurs kA dans un gaz confiné dans un tube capillaire. Le régime cinétique de ces lasers est quasi-stationnaire. Bien que le gain soit relativement faible (environ 1 cm^{-1}), sa longue durée ($> 1 \text{ ns}$) permet d'atteindre la saturation avec des capillaires longs de plusieurs dizaines de centimètres, avec une énergie par impulsion qui peut atteindre 1mJ.

Le laser XUV QSS-d généré à la *Colorado State University* dans les groupe de J. J. Rocca fonctionne en routine avec l'argon néonoïde ($\lambda = 46,9 \text{ nm}$ - $h\nu = 26,5 \text{ eV}$) et est régulièrement utilisé pour diverses applications (interférométrie [Filevich 2009], ablation [Kuznetsov 2015], nanolithographie [Urbanski 2012a], ...).

Ces dispositifs ont l'avantage d'être très compacts (de la taille d'une table de bureau) et de fonctionner à cadence relativement élevée (jusqu'à 10 Hz). Par contre ce type de laser XUV ne fonctionne actuellement qu'à la seule longueur d'onde de 46.9 nm dans l'argon néonoïde. La réduction vers des longueurs d'onde plus courtes a été tentée par l'équipe de J. Rocca mais n'a pas encore été démontrée.

1.3.2 Plasmas créés par focalisation d'un laser sur une cible solide : lasers XUV "QSS-l" et "TCE"

Pompage quasi-stationnaire : lasers XUV QSS-l

A la fin des années 1980 et au début des années 1990, les premiers lasers XUV ont été étudiés sur des installations lasers infrarouges très énergétiques (jusqu'à plusieurs kilojoules), délivrant des impulsions de plusieurs centaines de picosecondes : Novette à Livermore (USA) où a été réalisée la première démonstration en 1984 [Matthews 1985], Rutherford Laboratory (UK), GekkoXII (Japon) ou encore le laser 6 faisceaux du LULI (Palaiseau, France).

Ces lasers, généralement basés sur une technologie verre : néodyme ont des taux de répétition faibles, de l'ordre d'un à deux tirs par heure. C'est néanmoins avec ces systèmes que les recherches sur les lasers XUV ont progressé jusqu'à la fin des années 90, que les premières expériences de démonstration d'applications ont été réalisées ou que la fenêtre de l'eau a été atteinte ($\lambda = 3,5 \text{ nm}$ dans un plasma d'or [MacGowan 1992]).

Le laser XUV QSS-l est produit en focalisant sur une cible solide une impulsion laser IR (énergie : quelques centaines de Joules, durée : quelques centaines de picosecondes) selon une petite ligne focale de quelques centimètres de longueur (voir figure 1.8). Les inversions de populations sont créées pendant le chauffage, à peu près au maximum de l'impulsion de pompe, dans la zone proche (juste au dessous) de la densité critique.

Actuellement le seul laser XUV QSS-l encore en fonctionnement est le laser XUV à zinc néonoïde du PALS (Prague, République Tchèque) développé par l'équipe de B. Rus au début des années 2000. L'énergie émise par impulsion est élevée et peut atteindre une énergie de 4 à 10 mJ par impulsion [Rus 2002]. La durée de vie du gain (une centaine de picosecondes) permet de faire parcourir un aller-retour dans le plasma (configuration en demi-cavité) et d'atteindre la saturation.

C'est le laser XUV dont nous avons caractérisé la cohérence temporelle et la largeur spectrale au début de cette thèse, résultats qui seront présentés dans le chapitre 3.

Pompage transitoire : lasers XUV TCE

Le pompage transitoire, proposé par Afanasiev et Shlyaptsev en 1989 [Afanas' ev 1989], et démontré par l'équipe de P. Nickles en 1997 [Nickles 1997], est une évolution du pompage quasi-stationnaire. L'effet laser XUV est généré en deux temps, en utilisant deux impulsions

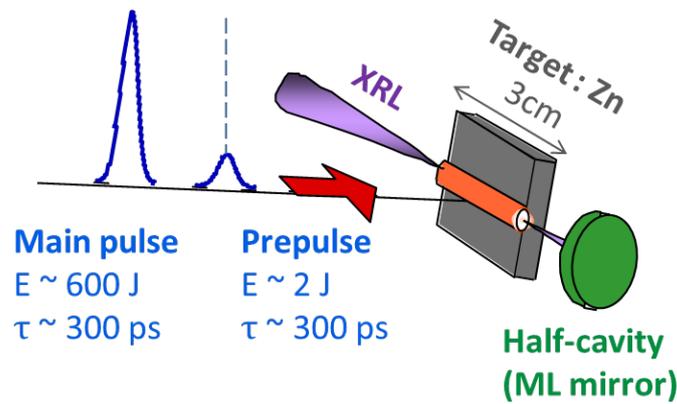


FIGURE 1.8 – Schéma d'un laser XUV quasi-stationnaire créé par laser (QSS-l).

de quelques joules, séparées par un délai de quelques centaines de picosecondes (voir figure 1.9). La première impulsion, dite "longue", de quelques centaines de picosecondes de durée ($I = 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$) crée un plasma possédant le bon degré d'ionisation (néonoïde ou nickelloïde), mais avec une température électronique très insuffisante pour générer l'inversion de population. La deuxième impulsion, dite "courte", de quelques picosecondes de durée, ($I = 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$, lasers CPA) chauffe rapidement les électrons libres et induit le pompage collisionnel transitoire (TCE : *Transient Collisional Excitation*). La durée de l'impulsion est plus courte que le temps de stabilisation des populations. La brutale augmentation de température des électrons permet alors d'induire de fortes inversions de population et donc de forts gains (plusieurs 10 cm^{-1}). Grâce à ces gains élevés, la saturation de l'amplification est atteinte en quelques millimètres de plasma (au lieu de $\sim 6 \text{ cm}$ pour le lasers XUV QSS-l, ou $\sim 25 \text{ cm}$ pour le laser XUV à décharge capillaire QSS-d).

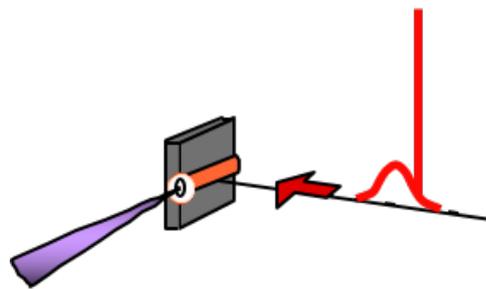


FIGURE 1.9 – Schéma d'un laser XUV transitoire (TCE).

Le gain ne dure que quelques picosecondes car les fortes températures électroniques atteintes détruisent les ions lasants par sur-ionisation. On applique alors un pompage en onde progressive (*travelling-wave pumping*) [Klisnick 2000] pour que l'émission XUV puisse être amplifiée tout au long du plasma, qui peut être de plus d'une dizaine de millimètres de long (30 ps de traversée). L'énergie par impulsion typique des lasers XUV transitoires est de 1 à quelques microjoules [Cassou 2007]. Des lasers XUV basés sur ce pompage et fonctionnant à saturation ont été démontrés dans de nombreux éléments dans les séries isoélectroniques néonoïde et nickelloïde, couvrant ainsi (de façon discrète) une gamme comprise entre $\sim 33 \text{ nm}$ et 7 nm [Alessi 2011]. La durée typique est de 2 ps à 10 ps, selon les paramètres du laser de pompe [Meng 2012a].

Vers la fin des années 2000, les lasers XUV transitoires ont permis une nouvelle étape décisive dans le progrès de ces sources, grâce à l'utilisation d'une géométrie dite "en incidence rasante"

(*Grazing Incidence Pumping*, GRIP [Keenan 2005]), puis grâce à la mise en œuvre de lasers de pompe de type titane-saphir 100 TW fonctionnant à un taux de répétition significativement plus élevé (10 Hz, soit 36000 tirs par heure, au lieu de 1 à 2 avec les systèmes verre : néodyme!) [Lindau 2007]. Ces progrès ont notamment permis la construction de l'installation LASERIX, basée à l'ENSTA-Palaiseau au début de cette thèse, et actuellement en cours de réouverture au LAL, sur le campus d'Orsay. Le laser XUV transitoire est actuellement le système le plus répandu dans le monde : APRC à Nara (Japon), Colorado University (USA), GSI (Allemagne), ...

Le taux de répétition a récemment été encore augmenté par l'équipe de J. J. Rocca, grâce à l'utilisation de pompage par diodes, et un fonctionnement à 100 Hz a été démontré en 2014, augmentant significativement la puissance moyenne de ces sources [Reagan 2014].

Enfin l'injection d'harmonique d'ordre élevé (voir section 1.6) a été démontrée dans les plasmas de lasers XUV transitoire. La première démonstration a été réalisée par l'équipe de J. J. Rocca (CSU, USA) en 2006, dans un plasma de titane néonoïde [Wang 2006].

1.3.3 Ionisation en champ intense dans un gaz : lasers XUV "OFI"

Contrairement aux lasers XUV précédemment décrits, dans lesquels l'ionisation du plasma s'effectue par collisions avec les électrons libres du plasma, les lasers XUV OFI (*Optical Field Ionization*) reposent, comme leur nom l'indique, sur l'ionisation directe par le champ du laser de pompe. Le laser (titane-saphir 100 TW, 10 Hz) est focalisé à haute intensité ($\sim 10^{17}$ W.cm⁻²) longitudinalement dans un gaz rare (jet ou cellule, voir figure 1.10), l'intensité étant ajustée pour atteindre le degré d'ionisation voulu. Pour chauffer efficacement les électrons libérés par l'ionisation et induire un pompage collisionnel, le laser de pompe est polarisé circulairement.

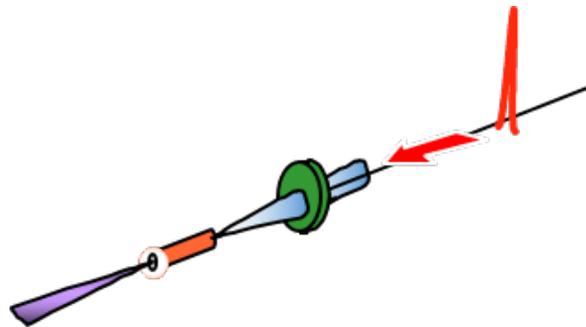


FIGURE 1.10 – Schéma d'un laser XUV créé par ionisation en champ intense (OFI) dans une cellule de gaz.

La première démonstration de laser XUV collisionnel pompé par OFI a été réalisée par B. E. Lemoff et al. en 1995 [Lemoff 1995], dans un plasma de xénon palladiumoïde (46 électrons liés, transition $5d - 5p$, $\lambda = 41,8$ nm). L'équipe de Stéphane Sebban au LOA a reproduit ce résultat en 2001 [Sebban 2001] puis l'a étendu à un plasma de krypton nickelloïde, permettant d'atteindre une longueur d'onde plus courte (transition $4d - 4p$, $\lambda = 32,8$ nm) [Sebban 2002]. Les performances de cette source ont continué d'être améliorées depuis par l'équipe du LOA, notamment grâce à la démonstration d'injection d'harmonique d'ordre élevé en 2004 [Zeitoun 2004].

Récemment, afin d'améliorer encore les performances du laser XUV OFI fonctionnant en mode injecté, et notamment la durée de l'impulsion amplifiée, l'équipe du LOA a mis en œuvre le pompage OFI dans un plasma à haute densité [Depresseux 2015].

1.4 Amplification de l'émission spontanée dans un plasma

Nous avons vu que le rayonnement laser XUV résultait de l'amplification d'émission spontanée en un seul passage (ou deux dans le cas du laser XUV QSS-1) émise le long de la colonne de plasma. Nous donnons dans cette partie quelques notions de base de ce type d'amplification (ASE).

1.4.1 Régime faible-signal

On assimile la colonne de plasma amplificateur à un cylindre de longueur L et de rayon R (fig. 1.11). La transition laser s'effectue entre deux niveaux atomiques de populations $N_h(r, t)$ (niveau supérieur) et $N_b(r, t)$ (niveau inférieur), qui peuvent varier en fonction de la position r dans le milieu amplificateur et évoluer pendant le temps t de propagation.

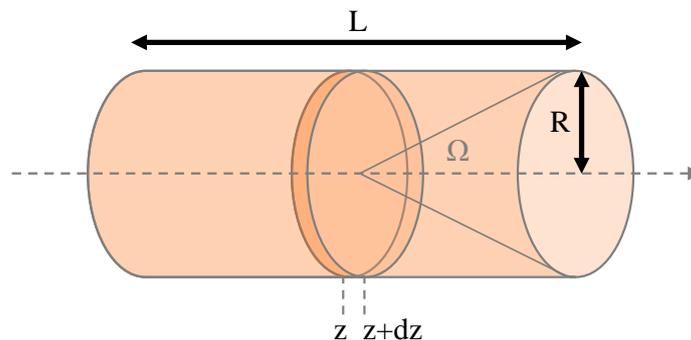


FIGURE 1.11 – Schéma du milieu amplificateur d'un laser XUV supposé cylindrique et homogène.

L'émission spontanée est un processus aléatoire : le champ résultant de l'émission spontanée dans un petit volume élémentaire dV a une phase qui varie aléatoirement au cours du temps, et qui n'a aucune cohérence mutuelle avec le champ émis dans un autre volume élémentaire. Comme tout signal aléatoire, ce champ peut être caractérisé par sa densité spectrale de puissance $S(\nu)$, dépendant de la fréquence ν . On appelle émissivité laser $j(\nu)$ la densité spectrale d'énergie rayonnée par émission spontanée par unité de volume et de temps (exprimée en $\text{W}\cdot\text{cm}^{-3}\cdot\text{Hz}^{-1}$). Elle est donnée par la relation :

$$j(\nu, r, t) = N_h \cdot h\nu \cdot A_{hb} \cdot s(\nu, r, t) \cdot \frac{\Omega}{4\pi}. \quad (1.1)$$

L'émissivité est donc proportionnelle à N_h , le nombre d'émetteurs, et à $A_{hb} \cdot s(\nu, r, t)$, la probabilité d'émission spontanée dans l'intervalle de fréquence $[\nu, \nu + d\nu]$ par unité de temps. A_{hb} est la probabilité totale d'émission spontanée entre les deux niveaux (le coefficient d'Einstein) et $s(\nu, r, t)$ la densité spectrale de puissance normalisée (ou profil spectral) de l'émission spontanée qui vérifie :

$$\int_0^\infty s(\nu, r, t) d\nu = 1. \quad (1.2)$$

Dans la relation (1.1), Ω représente l'angle solide dans lequel l'émission spontanée contribuera au rayonnement laser (voir fig. 1.11). En effet l'émission spontanée d'un volume élémentaire dV est isotrope, i.e. émise sur 4π . Seule une fraction de ce rayonnement restera dans la zone de gain et pourra être amplifiée par émission stimulée : $\Omega = \frac{\pi R^2}{(L-z)^2}$. Comme nous allons le voir, l'amplification est exponentielle tant que le rayonnement n'affecte pas l'inversion de population (avant d'entrer dans le régime de saturation, voir la section suivante). On peut donc considérer que le

rayonnement contribuant majoritairement à l'intensité finale en sortie du cylindre amplificatrice provient de l'autre extrémité du cylindre, c'est-à-dire $\Omega \approx \frac{\pi R^2}{L^2}$.

Il y a amplification du rayonnement par émission stimulée lorsque celle-ci compense l'absorption. Pour une fréquence comprise entre $[\nu, \nu + d\nu]$, le coefficient de gain $g(\nu, r, t)$, représentant le taux d'amplification par unité de longueur (exprimé en $\text{cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1}$), correspond à la différence entre le taux d'émission stimulée et le taux d'absorption :

$$g(\nu, r, t) = N_h(r, t) \cdot \sigma_{stim}(\nu, r, t) - N_b(r, t) \cdot \sigma_{abs}(\nu, r, t), \quad (1.3)$$

où $\sigma_{stim}(\nu, r, t)$ est la section efficace d'émission stimulée et $\sigma_{abs}(\nu, r, t)$ la section efficace de l'absorption de la transition. Ces dernières s'expriment de la façon suivante :

$$\sigma_{stim}(\nu, r, t) = \frac{h\nu}{c} \cdot B_{hb} \cdot s(\nu, r, t) \quad (1.4)$$

$$\sigma_{abs}(\nu, r, t) = \frac{h\nu}{c} \cdot B_{bh} \cdot s(\nu, r, t) \quad (1.5)$$

où B_{hb} (resp. B_{bh}) est le coefficient d'Einstein représentant la probabilité totale de transition par émission stimulée (resp. par absorption) par unité de temps et de densité de puissance spectrale (il s'exprime alors en $\text{J}^{-1} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-2}$). Les trois coefficients d'Einstein sont reliés par les relations :

$$A_{hb} = \frac{8\pi h\nu_0^3}{c^3} \cdot B_{hb}, \quad (1.6)$$

$$g_h \cdot B_{hb} = g_b \cdot B_{bh}, \quad (1.7)$$

où g_h et g_b sont les poids statistiques des niveaux haut et bas de la transition respectivement, et ν_0 la fréquence centrale de la raie ($h\nu_0 = E_h - E_b$). On peut donc réécrire l'expression du gain (1.3) :

$$g(\nu, r, t) = \left(N_h(r, t) - \frac{g_h}{g_b} N_b(r, t) \right) \cdot \frac{c^2}{8\pi\nu_0^2} \cdot A_{hb} \cdot s(\nu, r, t). \quad (1.8)$$

Lorsque le gain est positif, i.e. le taux d'émission stimulée est supérieur au taux d'absorption, le rayonnement peut-être amplifié par effet laser. Pour cela, il faut qu'il y ait une inversion de population : $\frac{N_h(r, t)}{g_h} > \frac{N_b(r, t)}{g_b}$ (ce qui ne peut pas se produire à l'équilibre thermodynamique où le rapport des populations est donné par la loi de Boltzmann : $\frac{N_h}{N_b} = \frac{g_h}{g_b} \cdot e^{-\frac{h\nu_0}{k_b T}}$, avec k_b la constante de Boltzmann et T la température électronique à l'équilibre).

L'intensité spectrale $I(\nu, z, r, t)$ (la puissance spectrale par unité de surface dans l'angle solide Ω , exprimée en $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{Hz}^{-1}$) est alors obtenue en résolvant l'équation de transfert radiatif suivante [Casperson 1975] :

$$\frac{I(\nu, z, r, t)}{dz} + \frac{1}{c} \cdot \frac{dI(\nu, z, r, t)}{dt} = j(\nu, r, t) + g(\nu, r, t) \cdot I(\nu, z, r, t). \quad (1.9)$$

Si le tube de plasma est homogène et qu'il n'évolue pas pendant le temps de propagation, l'équation différentielle (1.9) se réduit à :

$$\frac{I(\nu, z)}{dz} = j(\nu) + g(\nu) \cdot I(\nu, z). \quad (1.10)$$

On obtient en intégrant celle-ci que :

$$I(\nu, L) = \frac{j(\nu)}{g(\nu)} \cdot (e^{g(\nu) \cdot L} - 1). \quad (1.11)$$

L'émissivité $j(\nu)$ et le gain $g(\nu)$ dépendent du profil de la raie $s(\nu)$. On montre aisément, d'après les équations (1.1) et (1.8), que le rapport $j(\nu)/g(\nu)$ est une fonction linéairement variable avec ν . Or, la largeur spectrale est extrêmement petite devant ν_0 , ce qui permet de faire l'approximation : $j(\nu)/g(\nu) \approx j_0/g_0$, avec j_0 et g_0 respectivement l'émissivité et le gain au centre de la raie ν_0 . L'équation (1.11) peut donc s'écrire :

$$I(\nu, L) = \frac{j_0}{g_0} \cdot (e^{g(\nu) \cdot L} - 1). \quad (1.12)$$

G. J. Linford a proposé une expression analytique qui décrit le comportement de l'intensité intégrée spectralement $I = \int_0^\infty I(\nu) d\nu$ (généralement exprimée en $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$) en fonction de la longueur du milieu amplificateur [Linford 1974, Tommasini 2000]. Lorsque le profil de raie est gaussien de largeur à mi-hauteur $\Delta\nu$:

$$I(L) = \frac{\sqrt{\pi}}{2\sqrt{\ln 2}} \cdot \Delta\nu \cdot \frac{j_0}{g_0} \cdot \frac{(e^{g_0 \cdot L} - 1)^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{g_0 \cdot L \cdot e^{g_0 \cdot L}}}, \quad (1.13)$$

Lorsque le profil est Lorentzien (de largeur à mi-hauteur $\Delta\nu$), l'expression devient :

$$I(L) = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \Delta\nu \cdot \frac{j_0}{g_0} \cdot \frac{(e^{g_0 \cdot L} - 1)^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{g_0 \cdot L \cdot e^{g_0 \cdot L}}}. \quad (1.14)$$

D'après cette expression l'intensité croît exponentiellement en fonction du produit gain-longueur $g_0 \cdot L$. Ceci permet d'obtenir un faisceau XUV intense sur des longueurs assez courtes bien qu'ils opèrent en ASE (typiquement de quelques millimètres à quelques centimètres, suivant la valeur du gain qui varie entre $\sim 1 \text{ cm}^{-1}$ et quelques dizaines de cm^{-1}). En revanche, lorsque l'intensité atteint une certaine valeur, l'amplification entre dans un régime de saturation et ne croît plus exponentiellement avec la longueur.

1.4.2 Régime de saturation

Lorsque le rayonnement devient suffisamment intense, l'émission stimulée tend à diminuer l'inversion de population de la transition, et donc le gain. Dans ce régime, l'intensité cesse alors de croître exponentiellement et entre dans une phase de croissance linéaire avec la longueur. On définit l'intensité de saturation, I_{sat} , comme l'intensité pour laquelle le gain se réduit de moitié. Elle est exprimée par :

$$I_{sat} = \frac{h\nu_0}{\sigma_{stim}(\nu)\tau_r} \quad (1.15)$$

où $h\nu_0$ est l'énergie du photon laser XUV, $\sigma_{stim}(\nu)$ est la section efficace d'émission stimulée donnée par (1.4) (indépendant des populations), et τ_r est le temps de recouvrement de l'inversion de population (ou du gain). Ce dernier ne dépend que des taux de dépeuplement du niveau supérieur de la transition. Lorsque les populations atteignent très rapidement un équilibre (régime quasi-stationnaire) et que l'élargissement spectral est purement homogène (voir section suivante), le gain peut s'écrire :

$$g(\nu) = \frac{g_i(\nu)}{1 + \frac{I}{I_{sat}}} \quad (1.16)$$

où $g_i(\nu)$ représente le gain initial en régime faible-signal (1.8). Dans le régime de très forte saturation, lorsque le gain devient très faible $g(\nu) \rightarrow 0$, on peut écrire d'après l'équation (1.11) :

$$I(\nu, L) \approx j(\nu) \cdot L. \quad (1.17)$$

L'intensité tend alors à croître linéairement avec la longueur du milieu amplificateur.

1.4.3 Evolution du profil spectral de la raie laser XUV

Le profil de la raie laser XUV résulte de différents effets (il faut noter que contrairement aux lasers optiques classiques, il n'y a pas d'effets liés à une sélection spectrale par une cavité dans le cas des lasers XUV).

Le profil spectral intrinsèque de la raie dépend du profil spectral de l'émission spontanée et du gain faible-signal (qui peuvent être considérés comme étant similaires dans notre situation). Le profil spectral intrinsèque dépend des propriétés intrinsèques de la transition laser et des paramètres hydrodynamiques du milieu (T_e , T_i , N_e) qui peuvent causer un élargissement de la raie (on distingue habituellement les élargissements homogènes des élargissements inhomogènes). Enfin, le profil spectral est également influencé par le processus d'amplification lui-même.

Elargissement homogène

L'élargissement homogène (ou élargissement naturel), est lié aux phénomènes limitant la durée de vie de la transition (émission spontanée, effet des collisions électroniques). Ces différents processus causent un élargissement du profil spectral de la raie identique pour tous les émetteurs du milieu. Le profil spectral a la forme d'une fonction de Lorentz :

$$s_h(\nu) = \frac{2}{\pi \cdot \Delta\nu_h} \cdot \frac{1}{1 + \frac{4(\nu - \nu_0)^2}{\Delta\nu_h^2}} \quad (1.18)$$

La largeur de raie à mi-hauteur $\Delta\nu_h$ peut être obtenue en fonction de la durée de vie des niveaux de la transition [Griem 1975, Milonni 1988] :

$$\Delta\nu_h = \frac{1}{\pi} \sum_i \frac{1}{\tau_i} = \frac{1}{\pi} \sum_i \Gamma_i \quad (1.19)$$

où les facteurs Γ_i correspondent aux différentes probabilités de désexcitation des niveaux de la transition par désexcitation spontanée ou sous l'effet des collisions électroniques. Si l'effet des collisions domine, l'élargissement sera alors sensible aux température et densité électroniques du milieu.

Elargissement inhomogène

L'élargissement inhomogène du profil spectral de la raie est quant à lui dû à l'existence d'émetteurs ayant des fréquences centrales différentes. Il peut être dû à l'effet Doppler lié à l'agitation thermique des ions émetteurs ou à l'effet Stark produit par les champs des ions environnant les ions émetteurs (effet Stark quasi-statique). Dans le cas de l'élargissement Doppler, la distribution maxwellienne des vitesses des ions conduit à un profil de raie gaussien :

$$s_D(\nu) = \frac{2\sqrt{\ln 2}}{\sqrt{\pi \cdot \Delta\nu_D}} \cdot e^{\left(-4 \ln 2 \left(\frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu_D}\right)^2\right)} \quad (1.20)$$

où la largeur spectrale Doppler (à mi-hauteur) est donnée par :

$$\Delta\nu_D = 2\sqrt{\ln 2} \cdot \nu_0 \cdot \sqrt{\frac{2 \cdot k_b \cdot T_i}{m_i \cdot c^2}} \quad (1.21)$$

avec m_i la masse des ions émetteurs et T_i la température ionique du plasma. L'élargissement Doppler augmente donc avec la température ionique ($\Delta\nu_D \propto \sqrt{T_i}$).

L'effet Stark quasi-statique est dû au microchamp électrique créé par les ions (supposés lents

par rapport aux électrons libres), qui provoque le déplacement de niveaux d'énergies des ions émetteurs. Cet effet est négligeable dans le cas des lasers XUV car il ne devient significatif qu'à de très hautes densités, typiquement supérieures à 10^{21} cm^{-3} (donc $> N_c$, la densité critique des plasmas de lasers XUV TCE et QSS-1).

Dans la plupart des cas, le profil spectral intrinsèque subit un élargissement homogène et inhomogène. Le profil spectral est alors la convolution des deux. Dans le cas d'un profil homogène lorentzien et d'un profil inhomogène Doppler, le produit de convolution est un profil Voigt [Koch 1994] :

$$\mathcal{V}(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} s_D(\nu' - \nu) \cdot s_h(\nu') d\nu'. \quad (1.22)$$

Effet spectral de l'amplification et de la saturation

Les profils spectraux décrit ci-dessus sont optiquement minces : ils ne tiennent pas compte des phénomènes de réabsorption ou d'amplification. À partir de l'équation (1.12), c'est-à-dire dans le cas d'une amplification en régime faible-signal, en supposant un produit gain-longueur $g_0 \cdot L$ élevé (mais non-saturé), on trouve que la largeur à mi-hauteur de la raie après amplification $\Delta\nu_{ampl}$ diminue suivant la loi suivante ($\Delta\nu_{int}$ est la raie intrinsèque) :

$$\Delta\nu_{ampl} = \frac{\Delta\nu_{int}}{\sqrt{g_0 \cdot L}}. \quad (1.23)$$

À saturation, la racine du produit gain-longueur vaut typiquement $\sqrt{g_0 \cdot L_{sat}} \approx 4$. La largeur intrinsèque des lasers XUV, déjà très étroite, est donc environ divisée par 4. Elle est de l'ordre de $\Delta\nu/\nu \approx 10^{-5}$, ce qui, comme nous allons le voir, rend sa caractérisation expérimentale difficile.

J. A. Koch et al. ont développé un modèle d'amplification de l'émission spontanée plus réaliste permettant de tenir compte du régime de saturation et de profils combinant effets homogènes et inhomogènes [Koch 1994]. Ce modèle théorique, ainsi que le code numérique associé, seront décrits plus en détail dans le chapitre 2. L'équation de transfert radiatif pour un intervalle de fréquence $[\nu, \nu + d\nu]$ de ce modèle s'écrit :

$$\frac{dI}{dz}(\nu, z) = \frac{j_0}{\mathcal{V}(\nu_0)} \cdot \left[1 + \frac{g_0}{j_0} \cdot I(\nu, z) \right] \times \int_0^{\infty} \frac{s_D(u) s_h(\nu, u) du}{1 + \frac{1}{I_{sat}} \int_0^{\infty} I(\nu', z) \cdot s_h(\nu', u) d\nu'}. \quad (1.24)$$

1.5 Propriétés de cohérence des lasers XUV

1.5.1 Notion de cohérence

La notion de cohérence fait appel à une description de la lumière :

- ondulatoire (on utilisera pour cela un champ électrique E complexe d'amplitude A et de phase ϕ dépendant du temps t et de la position r dans l'espace : $E(r, t) = A(r, t) \cdot e^{i\phi(r, t)}$),
- et statistique (ce champ est le résultat de la superposition des champs émis par une multitude d'émetteurs composant la source lumineuse).

La cohérence d'une onde lumineuse caractérise une relation de phase définie et constante dans le temps entre le champ de cette onde en différents points. Lorsque cette relation de phase existe entre des points du faisceau appartenant au plan transverse de l'onde par rapport à sa direction de propagation on parle de cohérence spatiale (ou transverse). Lorsque les points sont alignés

dans la direction de propagation du faisceau, on parle de cohérence temporelle (ou longitudinale). Ces notions sont détaillées dans la suite et nous verrons notamment que la cohérence spatiale est liée à la taille de la source et la cohérence temporelle est quant à elle liée à la largeur spectrale de l'onde.

On définit souvent la cohérence comme la capacité d'ondes à donner naissance à des interférences lorsque celles-ci sont superposées. Cette définition peut paraître insatisfaisante car elle ne décrit pas le phénomène à l'origine des interférences. Néanmoins, cette définition est intéressante, d'une part, parce que le phénomène d'interférence est, historiquement, le moyen ayant permis d'établir la nature ondulatoire de la lumière, et d'autre part, comme nous allons le voir, la notion de cohérence qui est censée caractériser des propriétés de la phase du champ électrique d'une onde est étroitement liée à sa caractérisation expérimentale. En effet, l'amplitude A et la phase ϕ du champ électrique ne sont pas accessibles directement car nous ne disposons que de détecteurs quadratiques permettant de mesurer l'intensité du champ intégrée sur le temps : $I = \frac{c}{4\pi} \sqrt{\frac{\mu}{\epsilon}} \times \frac{1}{T} \int dt |E|^2$ (où T est le temps d'intégration). La phase du champ d'une onde lumineuse peut être caractérisée indirectement grâce au phénomène d'interférence, par la mesure du contraste (ou visibilité) de franges d'interférences produites lorsque l'on superpose deux parties de cette onde. Nous allons voir dans le chapitre 4 que le fait que la mesure de la cohérence soit intégrée en temps n'est pas anodin lorsque l'impulsion caractérisée n'est pas stationnaire "au sens large" (voir paragraphe sur la cohérence temporelle ci-dessous pour la définition d'une impulsion stationnaire au sens large).

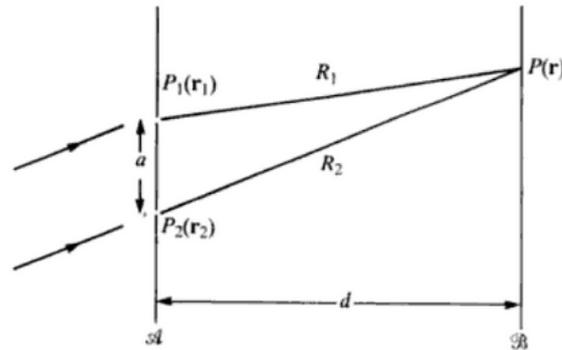


FIGURE 1.12 – Schéma de l'expérience des fentes d'Young issu de [Mandel 1995].

Considérons une onde quasi-monochromatique envoyée sur un dispositif interférométrique à division de front d'onde tel que des fentes d'Young de façon à faire interférer les signaux lumineux qui résultent de cette division (voir figure 1.12). L'intensité moyenne produite au point $P(r)$ par la superposition des deux ondes secondaires issues des fentes en P_1 et P_2 s'écrit alors :

$$\langle I(r) \rangle = \langle I(r_1) \rangle + \langle I(r_2) \rangle + 2.Re[\Gamma_{12}(\tau)] \quad (1.25)$$

où $\langle I(r_1) \rangle$ et $\langle I(r_2) \rangle$ sont les intensités moyennes au niveau du plan d'observation \mathfrak{B} des rayonnements issus des fentes $P_1(r_1)$ et $P_2(r_2)$ respectivement. On considère ici que le champ est stationnaire, c'est-à-dire invariant par une translation arbitraire de l'origine des temps (nous reviendrons sur cette notion dans la suite) :

$$\langle E(r_1, t - t_1).E^*(r_1, t - t_1) \rangle = \langle E(r_1, t).E^*(r_1, t) \rangle = \langle I(r_1) \rangle \quad (1.26)$$

où la notation $\langle \mathcal{G} \rangle$ équivaut à une moyenne temporelle de la grandeur \mathcal{G} sur un temps T très long par rapport au temps de cohérence du champ. Ainsi l'intensité moyenne au niveau du plan

d'observation \mathfrak{B} du rayonnement issu de la fente P_1 vaut :

$$\langle \mathcal{I} \rangle = \lim_{T \rightarrow +\infty} \frac{1}{2T} \int_{-T}^T \mathcal{I} dt. \quad (1.27)$$

La fonction $\Gamma_{12}(\tau)$ est la fonction de cohérence mutuelle (grandeur complexe, $Re[\Gamma_{12}(\tau)]$ représente sa partie réelle). Il s'agit du produit de corrélation des champs $E(r_1, t_1)$ et $E(r_2, t_2)$. Elle est donnée par la relation :

$$\Gamma_{12}(\tau) = \Gamma(r_1, r_2, \tau) = \langle E(r_1, t) \cdot E^*(r_2, t + \tau) \rangle \quad (1.28)$$

où $\tau = t_1 - t_2 = \frac{R_1 - R_2}{c}$ est le retard dû à la différence de marche entre les rayons issus des fentes P_1 et P_2 (voir fig. 1.12). Lorsque les deux points P_1 et P_2 coïncident (dans un dispositif interférométrique à division d'amplitude employant des séparatrices, comme les interféromètres de Michelson et Mach-Zehnder), on parle alors de fonction d'autocorrélation :

$$\Gamma_{11}(\tau) = \Gamma(r_1, r_1, \tau) = \langle E(r_1, t) \cdot E^*(r_1, t + \tau) \rangle. \quad (1.29)$$

Si de plus le retard τ entre les rayons qui interfèrent est nul, on retrouve l'expression de l'intensité moyenne au point P_1 : $\langle E(r_1, t) \cdot E^*(r_1, t) \rangle = \langle I(r_1) \rangle$.

Le degré de cohérence complexe $\gamma_{12}(\tau)$ est défini comme la normalisation de la fonction de cohérence mutuelle $\Gamma_{12}(\tau)$:

$$\gamma_{12}(\tau) = \frac{\Gamma(r_1, r_2, \tau)}{\sqrt{\Gamma(r_1, r_1, 0) \cdot \Gamma(r_2, r_2, 0)}} = \frac{\Gamma(r_1, r_2, \tau)}{\sqrt{\langle I(r_1) \rangle \cdot \langle I(r_2) \rangle}}. \quad (1.30)$$

On peut alors réécrire la relation (1.25) (en désignant les intensités moyennes $\langle I(r_1) \rangle$ et $\langle I(r_2) \rangle$ par les notations I_1 et I_2 respectivement) :

$$\langle I(r) \rangle = I_1 + I_2 + 2 \cdot \sqrt{I_1 \cdot I_2} \cdot Re[\gamma_{12}(\tau)]. \quad (1.31)$$

Le terme d'interférence est donc proportionnel à la partie réelle du degré de cohérence complexe $\gamma_{12}(\tau)$. Dans le cas d'une onde strictement monochromatique de fréquence ν_0 le degré de cohérence complexe s'exprime de la manière suivante :

$$\gamma_{12}(\tau) = |\gamma_{12}(\tau)| e^{-i2\pi\nu_0\tau} = |\gamma_{12}(\tau)| e^{-i2\pi(r_2 - r_1)/\lambda_0}. \quad (1.32)$$

On voit donc apparaître des franges d'interférences sur le plan d'observation \mathfrak{B} : chaque fois que la différence de marche entre les rayons $|r_2 - r_1|$ est un multiple de la longueur d'onde λ_0 les interférences sont constructives et l'intensité est maximale. La visibilité (ou contraste) de ces franges est donnée par la relation :

$$V = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}}. \quad (1.33)$$

I_{max} désigne l'intensité crête d'une frange (où les interférences sont constructives) et I_{min} l'intensité minimum (où les interférences sont destructives) :

$$I_{max} = I_1 + I_2 + 2 \cdot \sqrt{I_1 \cdot I_2} \cdot |\gamma_{12}(\tau)|$$

$$I_{min} = I_1 + I_2 - 2 \cdot \sqrt{I_1 \cdot I_2} \cdot |\gamma_{12}(\tau)|$$

À partir de (1.32) on peut donc montrer que la visibilité est proportionnelle au module du degré de cohérence complexe $\gamma_{12}(\tau)$:

$$V = \frac{2\sqrt{R}}{R+1} \times |\gamma_{12}(\tau)| \quad (1.34)$$

où $R = I_1/I_2$ est le rapport des intensités moyennes. Lorsque R est différent de 1, la visibilité des franges est diminuée. La variation de la visibilité des franges d'interférence peut donc être due à une variation du rapport d'intensités le long de la figure de franges indépendamment de la variation de la cohérence entre les rayons qui interfèrent et qui est caractérisée par le degré de cohérence complexe $\gamma_{12}(\tau)$.

1.5.2 Cohérence spatiale

La cohérence spatiale ou transverse d'un faisceau caractérise le degré de cohérence mutuelle entre deux points du champ appartenant au même front d'onde, i.e. ayant été émis au même instant par la source : $\gamma(P_1, P_2, \tau \approx 0)$ que l'on note $\mu_{12}(\Delta X)$, avec ΔX la distance entre P_1 et P_2 . Elle peut être mesurée par une expérience analogue aux fentes d'Young. La largeur de cohérence spatiale ℓ_{cs} correspond à la distance entre les fentes (distance entre les sources secondaires) pour laquelle on obtient une visibilité de franges donnée. Elle est proportionnelle à la longueur d'onde la source λ et à la distance D entre la source et le plan des fentes, et inversement proportionnelle à la largeur e de la distribution d'intensité de la source : $\ell_{cs} \propto \lambda.D/e$. En effet, plus on éloigne la source des fentes ou bien plus celle-ci a une faible étendue spatiale, i.e. plus le rapport $D/e \gg 1$, plus la source se rapproche d'une source ponctuelle élémentaire.

Comme nous l'avons vu, les lasers XUV ne possèdent pas de cavité permettant de filtrer spatialement le rayonnement. Le milieu amplifie, généralement en un seul passage, le rayonnement aléatoire et incohérent généré par l'émission spontanée. Les lasers XUV ont donc une cohérence spatiale relativement faible. D'après le théorème de Van Cittert - Zernike [Born 2000, Mandel 1995], la distribution angulaire d'intensité normalisée d'une source non-corrélée lointaine et de taille finie Σ (i.e. il n'existe pas de relation de phase stable dans le temps entre le champ émis par les différents points de la source) est égale à la transformée de Fourier de son degré de cohérence mutuelle $\mu_{12}(\Delta X)$:

$$\mu_{12}(\Delta X) = \frac{\int_{\Sigma} I(x) \cdot e^{-i2\pi \frac{\Delta X \cdot x}{\lambda \cdot D}} dx}{\int_{\Sigma} I(x) dx} \quad (1.35)$$

où x représente la coordonnée d'un point de la source, ΔX la distance entre P_1 et P_2 et D la distance entre la source et les fentes. Cette relation est valable si $D \gg \Sigma \gg \lambda$. Une mesure de $\mu_{12}(\Delta X)$ pour différentes valeurs de ΔX sur une source réelle permet de calculer une taille de source non-corrélée équivalente, c'est-à-dire la taille de la source non-corrélée Σ qui donnerait les mêmes figures de franges que la source réelle caractérisée. Dans le cas des lasers XUV, compte-tenu de leur faible cohérence spatiale, la taille de source équivalente est proche de la taille de source réelle.

Nous verrons dans le chapitre suivant que pour nos mesures de cohérence temporelle nous utilisons un interféromètre à division de front-d'onde à différence de marche variable, et qu'une bonne cohérence spatiale est donc nécessaire pour nos mesures. Il faut typiquement une largeur de cohérence spatiale de quelques centaines de microns. Les tailles de sources (taille de la pupille de sortie du laser XUV) des lasers XUV TCE, OFI et QSS-d sont de l'ordre de quelques dizaines de microns (10 à 50 μm), la largeur de cohérence spatiale nécessaire à nos mesures peut être obtenue en plaçant notre interféromètre à quelques mètres ($\sim 3-5$ m) de la source. En revanche, les lasers XUV QSS-l ont une taille de source plus grande, de l'ordre de 100 à 150 μm . Pour ces lasers, il faut placer l'interféromètre beaucoup plus loin. Nous verrons dans le chapitre 3 qu'une distance de 12 m a été nécessaire pour réaliser la mesure.

Enfin, les lasers XUV TCE qui délivrent des impulsions courtes, proches de leur temps de cohérence (défini dans le paragraphe suivant), ont des empreintes de faisceau très caractéristiques. La distribution d'intensité en champ lointain est hétérogène, analogue à des figures de speckles (ou tavelures), contrairement aux lasers XUV QSS-d et QSS-l qui délivrent des impulsions très longues dont la distribution d'intensité en champ lointain est uniforme. Ce phénomène peut s'expliquer par le fait que la pupille de sortie du laser XUV agit comme une pupille diffractante : l'empreinte du faisceau observée en champ lointain est alors une transformée de Fourier de la pupille de sortie [Guilbaud 2006a]. Les speckles sont des zones de cohérence spatiale. Leurs dimensions (notées δx dans la direction horizontale, δy dans la direction verticale) dépend de la longueur d'onde λ , de la longueur de la zone de gain L et de la largeur de la zone de gain (notée ℓ_H et ℓ_V dans les directions horizontale et verticale respectivement) :

$$\delta x = \frac{\lambda \cdot L}{\ell_H} \quad \text{et} \quad \delta y = \frac{\lambda \cdot L}{\ell_V}.$$

Ces speckles sont répartis de façon aléatoire sur le plan du détecteur. Nous verrons dans la suite que l'on peut décrire l'impulsion comme une succession de trains d'onde où le champ est cohérent temporellement, séparés par des sauts de phase aléatoires du champ. Chaque train d'onde produit une nouvelle figure de diffraction avec des speckles répartis différemment. Lorsqu'il y a peu de trains d'onde (cas des lasers XUV TCE) on observe ces speckles sur les empreintes en champ lointain du faisceau. Lorsque le nombre de trains d'onde est très élevé (plusieurs centaines, lasers QSS-l et QSS-d), toutes les figures de diffraction se superposent ce qui forme une distribution d'intensité homogène.

1.5.3 Cohérence temporelle

On peut représenter le champ d'une onde quasi-monochromatique de fréquence ν_0 de la manière suivante (on ne considère ici que les fluctuations temporelles du champ) :

$$E(t) = A(t) \cdot e^{i[\Phi(t) - 2\pi\nu_0 t]}. \quad (1.36)$$

Le champ est une sinusoïde oscillant à la fréquence ν_0 dont l'amplitude $A(t)$ et la phase $\Phi(t)$ varient dans le temps sur des échelles de temps caractéristiques très longues devant la période d'une oscillation $T_0 = 1/\nu_0$ (une onde strictement monochromatique aurait une amplitude A_0 et une phase ϕ_0 constantes dans le temps et serait donc de durée infinie). Considérons la corrélation de deux points séparés longitudinalement d'une distance $c\tau$ sur l'axe de propagation du faisceau. Le degré de cohérence complexe $\gamma_{11}(\tau) = \gamma(\tau)$ peut s'exprimer de la manière suivante :

$$\gamma(\tau) = |\gamma(\tau)| e^{i[\alpha(\tau) - 2\pi\nu_0 \tau]}. \quad (1.37)$$

Le terme $\alpha(\tau)$ et le module $|\gamma_{12}(\tau)|$ de (1.36) varient lentement devant le terme $2\pi\nu_0\tau$ et sont dus aux variations lentes de l'amplitude $A(t)$ et de la phase temporelle du champ $\phi(t)$. Plus les variations de $A(t)$ et $\phi(t)$ sont lentes, plus l'onde s'approche d'une onde monochromatique. On peut se représenter l'onde comme une succession de trains d'onde de durée moyenne τ_c , pendant lesquels la phase du champ est relativement constante, et séparés par des sauts de phase aléatoires.

On peut mesurer le temps de cohérence en réalisant une mesure d'autocorrélation du champ de l'onde avec un dispositif interférométrique à différence de marche variable. On divise le faisceau à caractériser en deux faisceaux secondaires (à l'aide d'un interféromètre à division d'amplitude ou de front d'onde), puis on augmente le retard τ entre les deux faisceaux secondaires. On mesure alors la chute de visibilité des franges d'interférences en fonction du retard (ou délai) $V(\tau)$ (qui

est proportionnelle au module du degré de cohérence, voir (1.35)). Le temps de cohérence τ_c peut être défini de différentes façons. L'une des plus courantes, et qui sera la définition que l'on utilisera dans ce manuscrit, est le retard τ auquel la visibilité des franges maximale $V(\tau = 0)$ (atteinte lorsque le retard entre les faisceaux est nul) est divisée par e :

$$V(\tau_c) = \frac{V(0)}{e}. \quad (1.38)$$

Nous avons vu que les lasers XUV sont des sources extrêmement monochromatiques, leur largeur spectrale vaut environ $\Delta\lambda/\lambda \sim 10^{-4} - 10^{-5}$. Nous avons vu que nous avons besoin de caractériser la largeur spectrale des lasers XUV dans le cadre des travaux visant à réduire leur durée d'impulsion. Or les spectromètres XUV actuels n'ont pas la résolution nécessaire pour permettre la mesure du profil spectral des lasers XUV. Il faut donc employer une méthode indirecte. Pour cela, nous mesurons leur cohérence temporelle par une mesure d'autocorrélation du champ. En effet, d'après le théorème de Wiener-Khintchine [Born 2000], le spectre de puissance $S(\nu)$ d'un signal est égal à la transformée de Fourier de sa fonction d'autocorrélation $\Gamma(\tau)$:

$$S(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} \Gamma(\tau) e^{i2\pi\nu\tau} d\tau \quad (1.39)$$

que l'on peut réécrire en fonction du degré de cohérence complexe :

$$s(\nu) = \int_{-\infty}^{\infty} \gamma(\tau) e^{i2\pi\nu\tau} d\tau \quad (1.40)$$

où $s(\nu)$ est le spectre de puissance normalisé : $s(\nu) = S(\nu)/\Gamma(0)$.

On voit ainsi la relation entre le spectre et la cohérence temporelle d'un signal : plus le spectre est étroit, plus le temps de cohérence, i.e. le temps de variation lente de $A(t)$ et $\phi(t)$, est long. Les temps de cohérence des lasers XUV sont donc longs comparés à ceux d'autres sources XUV telles que les harmoniques d'ordre élevé et les lasers XUV à électrons libres. Il sont typiquement de l'ordre de la picoseconde ($\tau_c \sim 0,5 - 5$ ps).

Grandeurs		Expressions		Valeurs
Largeur spectrale	$\Delta\nu$			1 THz
Temps de cohérence	τ_c	$\frac{2\sqrt{\ln(2)}}{\pi} \times \frac{1}{\Delta\nu}$		0,53 ps
Durée de l'impulsion en intensité	τ_{FL}	$\frac{2\sqrt{\ln(2)}}{\pi} \times \frac{1}{\Delta\nu}$	$\sqrt{\ln(2)} \times \tau_c$	0,44 ps
Durée de l'impulsion en champ	τ_{FL}^E	$\frac{2\sqrt{2}\sqrt{\ln(2)}}{\pi} \times \frac{1}{\Delta\nu}$	$\sqrt{2} \times \tau_{FL}$	0,62 ps

TABLE 1.1 – Relations entre les valeurs de la durée d'impulsion (en intensité τ_{FL} et en champ τ_{FL}^E) et du temps de cohérence τ_c pour une impulsion Fourier limitée de spectre gaussien et de largeur spectrale $\Delta\nu$ (où $\Delta\nu$, τ_{FL} et τ_{FL}^E sont des largeurs à mi-hauteur, et τ_c est la demi-largeur à $1/e$). À titre indicatif on donne les valeurs pour $\Delta\nu = 1$ THz.

Dans le tableau 1.1 sont résumées les relations entre le temps de cohérence τ_c , la durée d'impulsion en intensité τ_{FL} et en champ τ_{FL}^E d'une impulsion Fourier limitée de spectre gaussien avec sa largeur spectrale $\Delta\nu$. Le profil temporel de l'intensité et du champ électrique (resp. $I_{FL}(t)$ et $E_{FL}(t)$), la densité spectrale de puissance normalisée ($s(\nu)$), et le module du degré de cohérence

temporelle ($|\gamma(\tau)|$) s'expriment de la façon suivante :

$$\begin{aligned} I_{FL}(t) &= A_0 \cdot \exp \left\{ -4 \ln(2) \cdot \left(\frac{t}{\tau_{FL}} \right)^2 \right\}, \\ E_{FL}(t) &= \sqrt{A_0} \cdot \exp \left\{ -4 \ln(2) \cdot \left(\frac{t}{\tau_{FL}^E} \right)^2 \right\}, \\ s(\nu) &= s_0 \cdot \exp \left\{ -4 \ln(2) \cdot \left(\frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu} \right)^2 \right\}, \\ |\gamma(\tau)| &= \exp \left\{ - \left(\frac{\tau}{\tau_c} \right)^2 \right\}. \end{aligned}$$

Le théorème de Wiener-Khintchine s'applique aux signaux stationnaires au sens large (*wide-sens stationary*). L'émission spontanée est un processus stochastique (ou aléatoire). Le rayonnement laser XUV opérant en amplification de l'émission spontanée (ASE) est donc de nature stochastique : chaque impulsion produite correspond à un tirage aléatoire différent. Un signal $E(t)$ est statistiquement stationnaire lorsque sa moyenne $\langle E(t) \rangle$ et son autocorrélation $\Gamma(t_1, t_2)$ sont invariantes par translation arbitraire dans le temps (donc $\Gamma(t_1, t_2)$ ne dépend que de la différence entre t_1 et t_2 : $\Gamma(t_1, t_2) = \Gamma(\tau)$, $\tau = t_1 - t_2$). De telles sources sont dites ergodiques : les moyennes temporelles effectuées sur une réalisation particulière pendant un temps "suffisamment long" coïncident avec les moyennes d'ensemble correspondantes (ce qui revient à écrire (1.27)). Les lasers XUV QSS-l et QSS-d, produisant des impulsions très longues devant leurs temps de cohérence, peuvent être considérées comme stationnaires au sens large. En revanche, nous verrons dans le chapitre 4 que les lasers XUV TCE et OFI, délivrant des impulsions de durées proches de leurs temps de cohérence, n'entrent pas dans le domaine d'applicabilité du théorème.

Expérimentalement, on peut facilement mesurer le module du degré de cohérence complexe $|\gamma(\tau)|$ par la mesure de $V(\tau)$. En revanche, la phase du degré de cohérence complexe $\alpha(\tau)$, donnée par la position des franges (position des maxima d'intensité), n'est pas accessible dans nos mesures. Nous déduisons donc le profil spectral des lasers XUV de la transformée de Fourier de la courbe de visibilité mesurée $V(\tau) \propto |\gamma(\tau)|$. Nous verrons dans le chapitre 4 que la perte de l'information de la phase $\alpha(\tau)$ est sans conséquences pour la caractérisation du profil spectral des lasers XUV quasi-stationnaires (QSS-l et QSS-d), mais que cela doit être pris en compte pour la caractérisation des profil spectraux des lasers XUV TCE et OFI.

1.6 Lasers XUV injectés

L'injection et l'amplification d'une harmonique d'ordre élevé dans un laser XUV a été démontrée expérimentalement pour la première fois sur un laser XUV OFI en 2004 [Zeitoun 2004] et pour la première fois sur un laser XUV TCE en 2006 [Wang 2006]. Cette technique consiste à utiliser la colonne de plasma de laser XUV comme milieu amplificateur pour une impulsion harmonique d'ordre élevé (germe à amplifier, "seed" en anglais) d'une durée de quelques dizaines de femtosecondes, résonante avec la transition laser XUV. Dans les deux cas, l'harmonique d'ordre élevé injectée dans le plasma de laser XUV est générée à partir d'une fuite du laser IR produisant les impulsions de pompe pour le milieu à gain, ce qui permet de contrôler le délai d'injection par rapport au début du pompage de la transition avec précision.

Cette technique a conduit à une amélioration considérable des propriétés de ces lasers XUV :

le faisceau laser XUV injecté est beaucoup plus collimaté qu'en mode ASE et possède une cohérence spatiale comparable à celle de l'harmonique injectée. La cohérence temporelle est également améliorée car la durée d'impulsion des lasers XUV injectés est très proche de leur temps de cohérence, tandis qu'en mode ASE la durée d'impulsion vaut 2 à 6 fois le temps de cohérence pour ces lasers XUV (TCE et OFI) [Meng 2011, Guilbaud 2010, Tissandier 2010]. On peut alors considérer que ces impulsions sont quasi-Fourier limitées, i.e. presque totalement cohérente temporellement. Les temps de cohérence mesurés sont proches de ceux mesurés en ASE, de l'ordre de la picoseconde. Cela indique que la largeur spectrale du rayonnement est presque inchangée en mode injecté par rapport au mode ASE. L'harmonique injectée (le *seed*), quasi-Fourier limitée, a un spectre typiquement 100 à 1000 fois plus large que la largeur spectrale du milieu amplificateur. La conséquence de cet important désaccord de largeur spectrale est que l'harmonique ne s'amplifie pas adiabatiquement dans le milieu amplificateur en conservant sa durée femtoseconde. Ainsi, la plus courte durée d'impulsion mesurée sur un laser XUV injecté est de 1,1 ps tandis que l'harmonique injectée (le *seed*) avait une durée de 50 fs [Wang 2009]. L'amplification de l'harmonique, non-linéaire et non-adiabatique, doit être décrite par un formalisme de Bloch-Maxwell (voir chapitre suivant 2.4). Les simulations basées sur ce formalisme montrent en particulier l'apparition d'oscillations de Rabi dues à la présence du champ induit par le passage de l'harmonique d'ordre élevé dans le milieu amplificateur : l'inversion de population de la transition laser oscille de valeurs positives à négatives, produisant macroscopiquement des structures temporelles dans le champ électrique émis avec des pics dont la durée peut descendre jusqu'à ~ 10 fs. La génération d'oscillations de Rabi dans les lasers XUV injectés est donc actuellement considérée comme un moyen prometteur de produire des lasers XUV femtoseconde. Mais la manifestation de ces dernières n'a toutefois encore jamais été mise en évidence expérimentalement.

Description des outils et des méthodes

2.1 Introduction

Dans ce chapitre nous décrivons l'instrument principal et les codes de simulation numérique existants que nous avons utilisés pour les études qui sont présentées dans ce manuscrit. Nous présentons le principe de l'interféromètre à division de front d'onde et différence de marche variable avec lequel ont été faites les mesures de cohérence temporelle et de largeur spectrale des lasers XUV, en particulier celle que nous avons réalisée au laboratoire PALS en République Tchèque (chapitre 3). Nous discutons quelques aspects du traitement des interférogrammes pour la mesure de la visibilité des franges sur laquelle repose la caractérisation de la cohérence temporelle et de la largeur spectrale. Pour la comparaison de nos mesures de rétrécissement spectral par le gain nous avons utilisé un code de transfert radiatif décrivant l'intensité du rayonnement résolu en fréquence au cours de l'amplification, en prenant en compte les contributions des élargissements homogène et inhomogène du profil intrinsèque de la raie. Nous rappellerons les principales bases du modèle sur lequel ce code s'appuie. Enfin pour décrire plus finement les propriétés spectrales et temporelles du rayonnement XUV amplifié, notamment dans le cas des lasers XUV injectés par du rayonnement harmonique, nous avons utilisé le code COLAX, basé sur les équations de Bloch-Maxwell pour décrire l'évolution temporelle de l'enveloppe du champ électrique associé à l'émission laser.

2.2 Interféromètre à division de front d'onde à bi-dièdre

2.2.1 Description de l'interféromètre

L'interféromètre à bi-dièdre décrit dans ce chapitre est un interféromètre à différence de marche variable spécialement conçu en 2003 par l'équipe de Denis Joyeux au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique [Klisnick 2006] pour la mesure de la cohérence temporelle des lasers XUV et de leur spectre par spectroscopie de Fourier. Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre précédent, les lasers XUV ont une largeur spectrale particulièrement étroite, notamment comparée à d'autres sources cohérentes dans le domaine XUV tels que les lasers X à électrons libres et les harmoniques d'ordre élevé, ce qui rend leur mesure directe à l'aide d'un spectromètre très difficile, voire impossible pour certains d'entre eux.

Les premières mesures de largeur spectrale de lasers XUV ont été réalisées au début des années 1990 sur des lasers pompés dans le régime quasi-stationnaire (QSS), directement à l'aide de spectromètres à haute résolution : sur un laser XUV de sélénium néonoïde en 1992 [Koch 1992], puis en 1995 sur un laser XUV de germanium néonoïde [Yuan 1995]. Les spectromètres employés alors étaient des systèmes optiques complexes (voir fig.1 de la référence [Koch 1994] pour la mesure [Koch 1992] et fig.2 de la référence [Yuan 1996] pour la mesure [Yuan 1995]) dont la résolution spectrale était à peine plus fine que les largeurs spectrales caractérisées. Par exemple, lors de la première mesure [Koch 1992], le spectromètre était constitué de deux miroirs cylindriques focalisant le faisceau laser XUV sur l'entrée d'une fente, suivis d'un miroir sphérique

imageant la fente, puis d'un réseau plan à pas variable interceptant le faisceau convergent et le focalisant sur le détecteur (voir figure 1 de la référence [Koch 1994]). Le pouvoir de résolution atteignait $\Delta\lambda/\lambda \sim 5 \times 10^{-5}$ pour la raie $J = 0 \rightarrow 1$ émettant à 18,2 nm. Or la largeur spectrale mesurée pour cette raie est de $\Delta\lambda/\lambda \sim 7,2 \times 10^{-5}$. De plus, il faut préciser que les autres types de lasers XUV ont des largeurs spectrales encore plus étroites. En conséquence, une méthode plus adaptée pour atteindre la très haute résolution nécessaire est la spectroscopie de Fourier. Celle-ci consiste à faire une mesure d'autocorrélation en champ électrique du rayonnement afin de mesurer son degré de cohérence temporelle, dont on peut déduire son profil spectral dans un deuxième temps.

Pour des raisons que nous expliquons un peu plus loin, le choix s'est porté sur un interféromètre à différence de marche variable à division de front-d'onde, et non à division d'amplitude comme cela aurait pu sembler naturel pour réaliser des mesures de cohérence temporelle. L'interféromètre est basé sur le principe d'un interféromètre à bi-miroir de Fresnel mais la paire de miroirs est remplacée par une paire de réflecteurs chacun constitué de deux miroirs plans de silice formant un dièdre (voir figure 2.1). L'un des deux dièdres est mobile : il peut être incliné vers l'autre dièdre suivant un angle θ de sorte à faire se recouvrir partiellement et interférer les deux demi-faisceaux issus de la réflexion du faisceau incident. L'angle entre les dièdres est variable et détermine la largeur de la zone de recouvrement partiel des deux demi-faisceaux. Pour nos mesures cet angle est typiquement de l'ordre de quelques mrad, voir tableau 2.1. Pour la mesure de la cohérence temporelle du rayonnement, le dièdre mobile peut également être translaté verticalement afin d'introduire une différence de marche ℓ entre les demi-faisceaux qui interfèrent suivant leur axe de propagation (correspondant à un retard temporel $\tau = \ell/c$). Comme l'illustre la figure 2.1, si l'interféromètre était composé de deux simples miroirs plans, la translation verticale de l'un par rapport à l'autre ne conserverait pas la superposition spatiale des demi-faisceaux réfléchis et introduirait un décalage transverse dépendant de la distance de translation. La substitution des miroirs plans par des dièdres ajoute une réflexion supplémentaire des demi-faisceaux qui compense le décalage transverse de la première et permet de faire une mesure à cohérence spatiale constante [Polack 1995].

Pour des raisons de conception mécanique de l'ensemble, le bi-dièdre est suivi d'un miroir plan sous incidence de 6° , qui renvoie les demi-faisceaux qui interfèrent vers le détecteur CCD. L'ensemble bi-dièdre est monté sur une structure motorisée (figure 2.2.a) placée dans une enceinte (figure 2.3), ce qui permet de contrôler sous vide les différents mouvements de réglage : translation latérale et rotation dans le plan latéral de l'ensemble afin de centrer et aligner le faisceau incident sur l'axe correspondant à l'arête centrale du bi-dièdre ; translation verticale et inclinaison du dièdre mobile. La figure 2.2.b représente une vue de profil et une vue de dessus du trajet du faisceau dans l'interféromètre jusqu'au détecteur. Ce dernier est une caméra CCD XUV (Andor technology, 1024×1024 pixels) inclinée d'un angle $\beta = 35^\circ$ dans le plan perpendiculaire aux franges d'interférence. En effet, dans nos conditions de réglage (voir tableau 2.1), qui sont fixées par différentes contraintes discutées dans la suite, l'interfrange dans le plan normal du faisceau est petite par rapport à la dimension d'un pixel de la caméra CCD ($13 \mu\text{m}$). L'effet d'anamorphose induit par l'inclinaison de la CCD permet d'augmenter l'interfrange apparente et nous allons voir qu'une interfrange et un nombre de frange minimum sont nécessaires pour extraire la valeur de visibilité des franges des interférogrammes détectés par la CCD. Cependant, l'efficacité de la CCD étant diminuée lorsque le signal n'arrive pas en incidence normale sur le chip, il peut arriver qu'il soit préférable de travailler en incidence normale lorsque le niveau de signal est trop faible.

L'emploi de miroirs plans de silice en incidence rasante permet à cet instrument d'être utilisable à différentes longueurs d'onde XUV sans changement des éléments optiques, contrairement

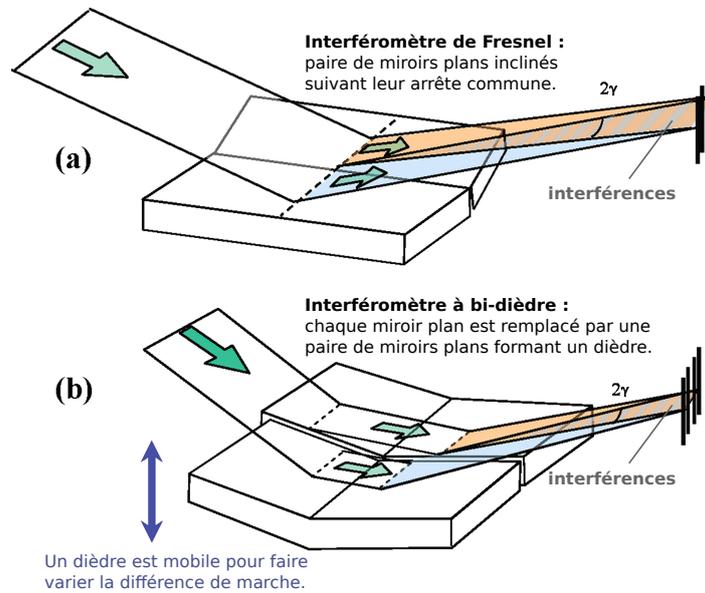


FIGURE 2.1 – Interféromètre à division de front d'onde pour spectroscopie de Fourier (figure issue de [De Oliveira 2009]). (a) Interféromètre de Fresnel à bi-miroir. Ce montage n'est pas approprié pour un balayage en différence de marche entre les demi-faisceaux réfléchis qui interfèrent. (b) Interféromètre à bi-dièdre : les miroirs plans ont été remplacés par des paires de miroirs plan formant des dièdres afin que les mêmes rayons interfèrent quelle que soit la différence de marche introduite en translatant verticalement l'un des dièdres.

aux interféromètres à division d'amplitude, qui utilisent des optiques multicouches (miroirs, séparatrices) ou des réseaux de diffraction. De plus, la réflectivité des miroirs sous incidence de 6° atteint environ 70 % pour le rayonnement XUV-X mou, ce qui est nettement plus élevé que les coefficients de réflectivité et de transmission des séparatrices multicouches (typiquement en-dessous de 20 % à 14 nm [Smith 2003]) et des réseaux de diffraction (environ 10 %).

Le tableau 2.1 résume les caractéristiques de l'interféromètre à bi-dièdre et des interférogrammes obtenus en fonction des paramètres de réglage de l'interféromètre. Le choix des différents paramètres de réglages dépend d'un certain nombre de contraintes qui varient d'une expérience à l'autre et sont liés au type de laser XUV, à sa longueur d'onde et à son mode d'opération (ASE ou injecté), ainsi qu'aux conditions nécessaires à l'analyse des interférogrammes.

Une des principales contraintes de la mesure à prendre en compte est la visibilité à différence de marche nulle entre les deux demi-faisceaux réfléchis, qui correspond à la visibilité maximum V_{max} des courbes de visibilité obtenues expérimentalement. Elle doit être de $\sim 50\%$ au minimum pour pouvoir mesurer de façon fiable la chute de visibilité des franges d'interférence lorsqu'on augmente le retard entre les deux bras de l'interféromètre. En particulier on doit garder une visibilité suffisante jusqu'au temps de cohérence qu'on cherche à mesurer, pour lequel la visibilité chute par définition d'un facteur $\sim 0,37(V(\tau_c) = V_{max}/e)$. La visibilité maximum est déterminée par la cohérence spatiale au niveau de l'interféromètre entre les points du champ qui interfèrent. Elle est donnée par le module du degré de cohérence mutuelle $|\mu_{12}|$ entre les points P_1 et P_2 du faisceau qui interfèrent :

$$V_{max} = V(P_1, P_2, \tau = 0) = |\mu_{12}|. \quad (2.1)$$

Nous avons vu dans le chapitre 1 que la cohérence spatiale diffère d'un type de laser XUV à l'autre. En mode ASE, la source peut être considérée comme une source incohérente spatialement au niveau de la pupille de sortie du plasma amplificateur qui acquiert sa cohérence spatiale au cours de sa propagation (théorème de Van Cittert - Zernicke [Born 2000]). Le degré de cohérence mutuelle $|\mu_{12}|$ entre deux points du faisceau augmente avec la distance D de ces points à la source.

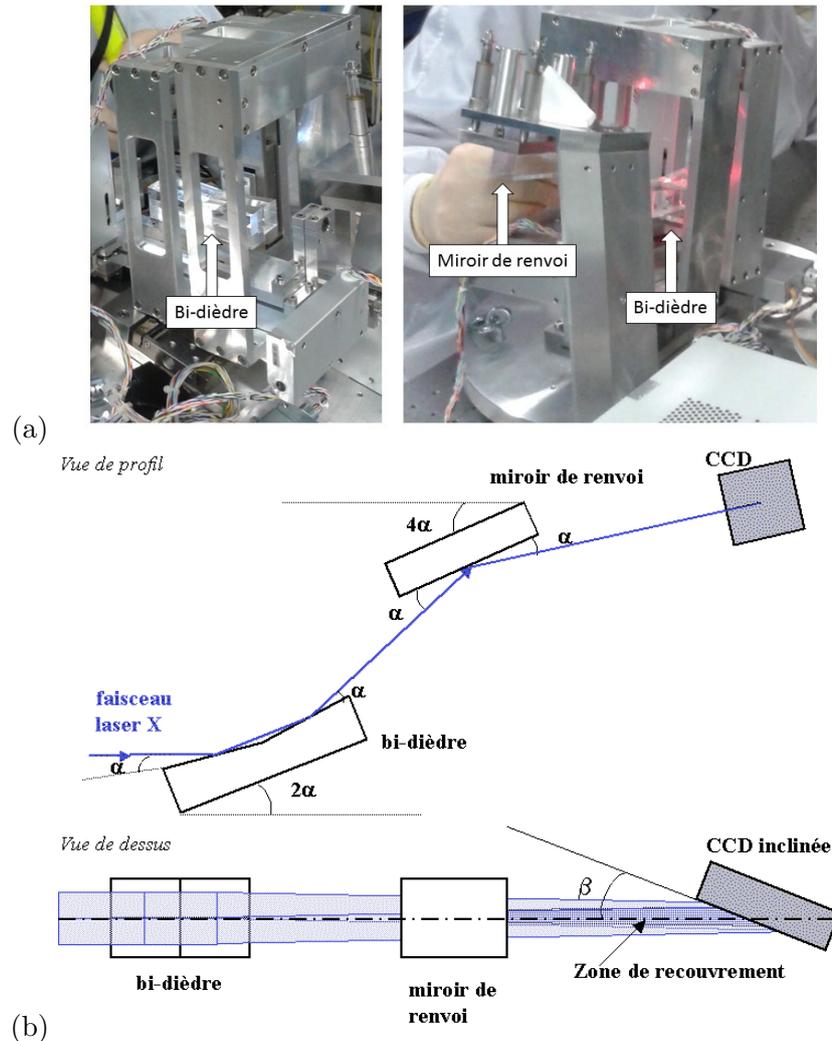


FIGURE 2.2 – Interféromètre à bi-dièdre. (a) Vue de profil (haut) et vue de dessus (bas) du trajet du faisceau dans l’interféromètre et jusqu’au détecteur. (b) Photos de la structure motorisée sur laquelle sont fixés le bi-dièdre et le miroir de renvoi de l’interféromètre.

Il faut donc éloigner l’interféromètre à bi-dièdre au maximum de la source afin d’augmenter la visibilité maximum, tout en s’assurant que le niveau de signal sur le détecteur est suffisant pour la mesure du contraste des franges d’interférences (niveau signal $\propto 1/D^2$). Dans le cas des lasers XUV TCE et OFI opérant en mode ASE, un autre élément à prendre en compte dans le choix de la distance de l’interféromètre à la source est la taille des grains de speckles (largeur d’un speckel $\propto D$ [Guilbaud 2006a]).

La largeur de la zone de recouvrement Δx doit être adaptée de sorte à rester inférieure à la longueur de cohérence spatiale à la distance D , tout en optimisant l’interfrange (environ 5 pixels/frange minimum) et le nombre de franges pour le traitement des interférogrammes ($\Delta x \geq 600 \mu\text{m}$ sur le détecteur pour une dizaine de franges de 5 pixels de $13 \mu\text{m}$). Enfin pour une largeur de zone de recouvrement Δx donnée, en complément de l’utilisation de la CCD en incidence à 35° , l’interfrange peut être accrue en augmentant la distance d du détecteur par rapport à l’interféromètre (voir tableau 2.1).

2.2.2 Méthode d’analyse des interférogrammes

La figure 2.4 montre un interférogramme typique, obtenu en un tir. On voit clairement les franges d’interférence formées dans la bande verticale. Celle-ci correspond à la zone de recouvrement partiel des deux demi-faisceaux, dont on voit par ailleurs l’empreinte sur une zone plus

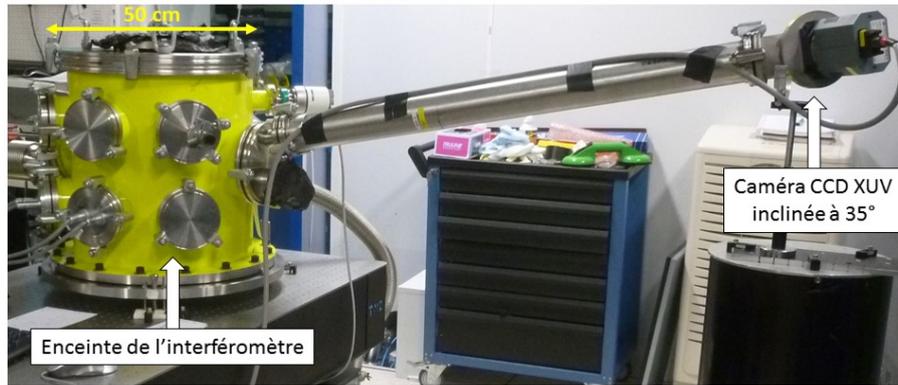


FIGURE 2.3 – Photo de l'enceinte de l'interféromètre et du tube menant à la caméra CCD XUV inclinée à 35°.

large de part et d'autre de cette zone, correspondant à la réflexion sur chacun des dièdres. En haut et en bas de l'image, on peut voir la limite de ces dièdres, au delà de laquelle l'image est noire.

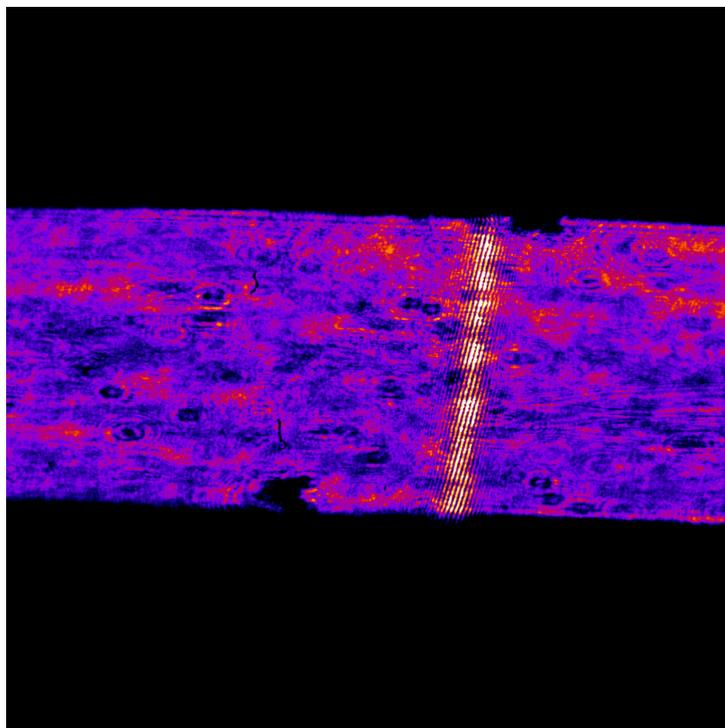


FIGURE 2.4 – Exemple d'interférogramme obtenu en 1 tir et détecté par la CCD XUV.

Évaluation de la visibilité des franges d'interférence

Pour chaque interférogramme, on construit une carte de la visibilité des franges d'interférence sur toute la zone de recouvrement des faisceaux en effectuant une transformée de Fourier 2D sur une fenêtre carrée glissante.

Le signal dans la zone de recouvrement (après soustraction du fond, évalué dans la zone froide) est sous la forme :

$$I(x) = I_0 + A \cos\left(2\pi \frac{x}{i}\right)$$

où I_0 est le niveau de signal moyen, A l'amplitude des franges et i l'interfrange. La visibilité V

Caractéristiques des dièdres		
Longueur d'un dièdre	L	80 mm
Largeur d'un dièdre	l	15 mm
Angle de rasance du faisceau incident	α	6°
Hauteur de la section du faisceau interceptée	$h = \frac{L}{2} \cdot \tan(\alpha)$	4,2 mm
Paramètres de réglage de l'interféromètre		
Positionnement de l'interféromètre :		
Distance de l'interféromètre à la source	D	4 à 12 m
Distance de l'interféromètre au détecteur	d	70 à 120 cm
Conicité	$C = 1 + \frac{d}{D}$	
Réglage des dièdres :		
Angle entre les deux dièdres	θ	quelques mrad
Angle entre les deux faisceaux réfléchis	$\varepsilon \approx 4 \cdot \alpha \cdot \theta$	$\approx 0,4 \theta$
Translation verticale du dièdre mobile	z	-2 à 60 mm
Différence de marche entre les deux faisceaux réfléchis	$\ell = 2 \cdot z \cdot \sin(2 \cdot \alpha)$	$\sim -0,8$ à 25 mm
Délai entre les deux faisceaux réfléchis	$\tau = \ell/c$	$\sim -2,7$ à 83 ps
Caractéristiques des interférogrammes		
Angle d'incidence sur le détecteur	β	35° (ou 90°)
Largeur de la zone de recouvrement sur le détecteur	$\Delta x \approx d \cdot \varepsilon$	500 à 1000 μm
Interfrange sur le détecteur	$i = \frac{\lambda}{\varepsilon \cdot \sin(\beta)} \cdot C$	≥ 5 pixels
Nombre de franges	$N = \frac{\Delta x}{i}$	~ 10 minimum

TABLE 2.1 – Caractéristiques de l'interféromètre à bi-dièdre et des interférogrammes obtenus en fonction des paramètres de réglage de l'interféromètre. Les relations entre les différentes grandeurs ainsi que leurs valeurs typiques sont précisées. Le choix des différents paramètres de réglages est discuté dans le texte.

des franges (ou contraste) peut donc s'écrire de la manière suivante :

$$V = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} = \frac{A}{I_0}.$$

Le spectre spatial de l'interférogramme contient donc trois pics : un central correspondant au signal moyen dans la fenêtre (de fréquence nulle) d'amplitude $V_0 = I_0$ et deux pics aux fréquences spatiales $k = -\frac{1}{i}$ et $k = \frac{1}{i}$ associés à la modulation des franges et d'amplitude $V_k = A/2$. Ainsi, à chaque position de la fenêtre glissante, la visibilité est donnée par :

$$V = 2 \cdot \frac{V_k}{V_0}.$$

Les cartes de visibilité de la zone de franges ainsi obtenues sont inhomogènes. En effet, le contraste des franges d'interférence est proportionnel au module du degré de cohérence temporelle avec un facteur dépendant du rapport d'intensité du champ électrique de chaque faisceau au niveau des points qui interfèrent (I_1/I_2) :

$$V = \frac{2\sqrt{I_1/I_2}}{1 + I_1/I_2} \times |\gamma_{12}(\tau)|.$$

On considère que les variations de visibilité dans la zone de franges sont uniquement dues à des variations de ce rapport d'intensité, et non à une variation de la cohérence (spatiale et/ou temporelle) sur la petite zone de faisceau interceptée. Ainsi, la valeur la plus pertinente dans nos mesures est la valeur maximale de la carte de visibilité, qui correspond aux points de l'in-

terférogramme où $I_1 = I_2$.

La taille $w \times w$ de la fenêtre glissante sur laquelle on effectue la TF est choisie comme le nombre impair immédiatement supérieur au double de l'interfrange. Ceci permet d'obtenir un spectre 2D de mêmes dimensions $w \times w$ où les fréquences spatiales des trois pics (pic central et pics du signal de franges) sont centrés sur des pixels. Le fenêtre doit contenir le minimum de franges afin que le rapport d'intensités (I_1/I_2) soit uniforme sur toute la fenêtre.

On peut voir sur la figure 2.4 que les franges d'interférence sont légèrement inclinées. Ceci est dû à un petit angle entre les dièdres dans le plan de leur arête commune, amplifié par l'anamorphose lorsque l'interférogramme est obtenu avec la caméra CCD à 35°.

Diminution de la visibilité due à l'émission incohérente du plasma

Dans les lasers XUV opérant en régime quasi-stationnaire, le plasma est fortement chauffé (les températures ioniques et électroniques atteignent ~ 100 eV) pendant plusieurs centaines de picosecondes (lasers XUV QSS-1) à quelques dizaines de nanosecondes (lasers XUV QSS-d). En conséquence, l'émission incohérente du plasma émettant dans la bande spectrale filtrée par le miroir multicouche de renvoi vers l'interféromètre à bi-dièdre peut s'avérer non négligeable par rapport au rayonnement laser XUV. Dans ce cas, le rayonnement incohérent se superpose sans interférer au système de franges produit par le laser XUV sur la caméra CCD de détection, entraînant une diminution du contraste des franges. On montre ici que cette diminution des franges n'affecte pas la mesure de cohérence temporelle, même si la contribution de cette émission incohérente ne peut être évaluée précisément, car la diminution de visibilité des franges est constante lorsqu'on fait varier le retard entre les faisceaux qui interfèrent.

Soit $V_{mesurée}$ la visibilité mesurée sur l'interférogramme, qui s'écrit :

$$V_{mesurée} = \frac{(I_{max} - I_{min})}{(I_{max} + I_{min})} = \frac{(I_{max} - I_{moy})}{I_{moy}}$$

où I_{max} (resp. I_{min}) est le signal mesuré au maximum de la frange claire (resp. sombre) et $I_{moy} = (I_{max} + I_{min})/2$. On définit par ailleurs $V_{laserXUV}$ comme la visibilité "réelle" des franges lorsqu'on a soustrait le rayonnement incohérent émis par le plasma.

$$V_{laserXUV} = \frac{(I_{max} - I_{plasma}) - (I_{min} - I_{plasma})}{(I_{max} - I_{plasma}) + (I_{min} - I_{plasma})} = \frac{(I_{max} - I_{moy})}{(I_{moy} - I_{plasma})}.$$

On peut alors réécrire :

$$\frac{1}{V_{laserXUV}} = \frac{1}{V_{mesurée}} \left(1 - \frac{I_{plasma}}{I_{moy}}\right)$$

où encore $V_{mesurée} = K \times V_{laserXUV}$ avec $K = 1 - I_{plasma}/I_{moy}$.

On voit donc que la contribution de l'émission incohérente conduit à une diminution de la visibilité d'un facteur K lié au rapport du signal de cette émission sur le signal des franges. Si on sait évaluer I_{plasma} , on peut remonter à la visibilité "réelle". Si cette évaluation est impossible, elle n'affecte pas la mesure du temps de cohérence puisque la visibilité des franges est multipliée par un facteur constant quel que soit le retard entre les faisceaux.

2.3 Code de transfert radiatif 1D "Koch"

Pour la comparaison de nos mesures de rétrécissement spectral par le gain que nous présentons dans le chapitre 3, nous avons utilisé un code de transfert radiatif décrivant l'intensité du

rayonnement résolu en fréquence au cours de l'amplification, en prenant en compte les contributions des élargissements homogène et inhomogène du profil intrinsèque de la raie. Ce code, développé par Olivier Guilbaud pendant sa thèse [Guilbaud 2004], est basé sur le modèle de J. Koch [Koch 1994], lui-même basé sur l'équation de transfert radiatif dépendant de l'espace et de la fréquence du rayonnement, en prenant en compte l'effet de saturation. L'intensité de la raie laser XUV au cours de son amplification le long la colonne de plasma s'écrit :

$$\frac{dI}{dz}(\nu, z) = \frac{j_0}{V(\nu_0)} \cdot \left[1 + \frac{g_0}{j_0} \cdot I(\nu, z) \right] \times \int_0^\infty \frac{S(u)\phi(\nu, u)du}{1 + \frac{1}{I_{sat}} \int_0^\infty I(\nu', z) \cdot \phi(\nu', u) d\nu'}. \quad (2.2)$$

Dans cette équation, g_0 et j_0 sont respectivement le gain faible signal et l'émissivité de la transition laser, supposés constants. Le modèle prend en compte la saturation de l'amplification et fait donc apparaître l'intensité de saturation I_{sat} . Le code utilise des grandeurs réduites en les normalisant par I_{sat} et l'équation (3.6) est réécrite sous la forme :

$$\frac{d\mathcal{I}}{dz}(\nu, z) = \frac{J_0}{V(\nu_0)} \cdot \left[1 + \frac{g_0}{J_0} \cdot \mathcal{I}(\nu, z) \right] \times \int_0^\infty \frac{S(u)\phi(\nu, u)du}{1 + \int_0^\infty \mathcal{I}(\nu', z) \cdot \phi(\nu', u) d\nu'} \quad (2.3)$$

en posant $J_0 = j_0/I_{sat}$ et $\mathcal{I}(\nu, z) = I(\nu, z)/I_{sat}$ respectivement le facteur d'émissivité et l'intensité réduite.

Le profil intrinsèque d'une raie laser XUV est du type Voigt. Il résulte de la convolution d'un élargissement inhomogène (gaussien) dû à l'effet Doppler, représenté dans l'équation (2.3) par la fonction $S(\nu)$ de largeur à mi-hauteur $\Delta\nu_i$ et d'un élargissement homogène (lorentzien) dû à l'émission spontanée et aux collisions électroniques, représenté par la fonction $\phi(\nu)$ de largeur à mi-hauteur $\Delta\nu_h$:

$$S(\nu) = \frac{1}{\Delta\nu_i} \sqrt{\frac{4 \ln(2)}{\pi}} \times e^{-4 \ln(2) \cdot \left(\frac{\nu - \nu_0}{\Delta\nu_i} \right)^2}, \quad (2.4)$$

$$\phi(\nu) = \frac{2}{\pi \cdot \Delta\nu_h} \times \frac{1}{1 + \left(2 \cdot \frac{(\nu - \nu_0)}{\Delta\nu_h} \right)^2}. \quad (2.5)$$

Ce modèle est basé sur différentes hypothèses. Premièrement, l'amplification est stationnaire : les populations des niveaux haut N_h et bas N_b de la transition laser, le fondamental N_{fond} , ainsi que les taux peuplant et dépeuplant ces niveaux, sont indépendants du temps au cours de l'amplification. De même, le gain faible signal g_0 , l'émissivité j_0 et l'intensité de saturation sont indépendants du temps au cours de l'amplification et homogènes tout le long de l'axe de propagation. De plus, l'amplification est monodimensionnelle : les effets de propagation transverses, tels que la diffraction ou la réfraction dues aux gradients de densité sont négligés. Le modèle ne prend pas en compte la redistribution des vitesses par des collisions élastiques ion-ion. Chaque émetteur conserve sa vitesse. Cela revient à faire l'hypothèse que la fréquence de collisions élastiques ion-ion est inférieure à l'élargissement homogène de la raie intrinsèque $\Delta\nu_h$, donc que l'effet Doppler conduit à un élargissement uniquement inhomogène. Enfin, le modèle décrit l'évolution de l'intensité de la raie laser XUV. Il ne peut donc pas décrire les effets dynamiques qui peuvent apparaître dans de tels systèmes tel que des oscillations de Rabi qui seront discutées dans le chapitre 5. Dans ce cas il faut utiliser une description de type Bloch-Maxwell pour décrire l'évo-

lution du champ électrique associé à l'émission laser, comme nous le verrons dans la section suivante. Les hypothèses ci-dessus sont bien adaptées au cas des lasers XUV quasi-stationnaires (QSS-1 et QSS-d), dont les temps caractéristiques d'évolution du plasma sont longs devant les temps de relaxation des niveaux atomiques. Les populations y atteignent rapidement un équilibre stationnaire ($\frac{dN_i}{dt} = 0$). Elles ne dépendent que des conditions hydrodynamiques du plasma et évoluent adiabatiquement avec l'évolution de celles-ci. Dans le cas des lasers XUV OFI et TCE, pour lesquels le gain est transitoire, ces hypothèses ne sont pas aussi bien vérifiées. Les grandeurs hydrodynamiques et atomiques varient sur des échelles de temps proches, les populations ne peuvent pas atteindre un équilibre stationnaire. De plus, nous verrons dans le chapitre 5 que dans ces systèmes, les très fortes densités d'inversion de population atteintes conduisent à un régime d'amplification fortement non-linéaire, qui nécessite une description de l'évolution du champ électrique associé à l'émission laser, par les équations de Bloch-Maxwell. Enfin, les gradients de densité peuvent être très abrupts ce qui conduit à des pertes d'énergie significatives dans la zone de gain par réflexion et diffraction, ce qui ne peut pas être pris en compte dans un modèle 1D.

Les paramètres d'entrée du code sont :

- les largeurs spectrales des composantes lorentzienne et gaussienne du profil intrinsèque de la raie, qui peuvent provenir de simulations de profils spectraux de raies émises par des émetteurs multi-électron dans des plasmas denses et chauds tel que le code PPP développé dans l'équipe d'Annette Calisti à Marseille [Calisti 1990].
- l'émissivité, l'intensité de saturation et le gain faible signal, qui peuvent être évalués à partir des populations et des taux dans des conditions plasma données (N_e, T_e, T_i) par des simulations hydrodynamiques. Le gain faible-signal peut être celui qui est mesuré expérimentalement.

Au cours de cette thèse, des modifications ont été apportées au code initial, permettant notamment de calculer l'amplification en double-passage dans une demi-cavité, et celle de permettre une variation temporelle du gain faible signal. Ces deux points seront présentés plus en détail dans le chapitre 3, dans lequel sont présentés des résultats expérimentaux sur le laser XUV QSS-1 de PALS, qui ont motivé l'ajout de ces modifications.

2.4 Code Bloch-Maxwell 2D "COLAX"

Pour la modélisation plus fine de la formation du signal laser XUV, et notamment celle de sa cohérence temporelle, on utilise les équations de Bloch-Maxwell. Celles-ci regroupent l'équation paraxiale de propagation du champ électrique associée à l'émission laser et les équations de Bloch qui décrivent le couplage des populations de la transition laser et du dipôle atomique (qui apparaît lorsque le système est dans une superposition de l'état inférieur et de l'état supérieur) de la transition laser. L'interaction du rayonnement laser XUV avec le plasma amplificateur est modélisé par le couplage entre la densité de polarisation complexe et les densités de populations de la transition.

On décrit ici les principaux ingrédients du code bidimensionnel COLAX, reposant sur ces équations, que nous avons utilisé dans ce travail de thèse. Le code COLAX a été développé au début des années 2000 par Olivier Larroche (CEA-DIF B3) pour modéliser la cohérence spatiale des lasers XUV opérant dans le mode ASE [Larroche 2000]. Le code COLAX a ensuite été adapté pour permettre de simuler l'amplification d'une impulsion harmonique d'ordre élevé (HH) du laser de pompe, injectée dans le plasma de laser XUV [Al'miev 2007].

L'amplitude complexe de la composante polarisée suivant z du champ électrique E se propageant dans la direction y positive dans le plan (x, y) (pour de petits angles suivant cette direction)

est décrit dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable par l'équation de propagation paraxiale suivante :

$$\frac{2i\omega}{c} \left(\frac{1}{c} \frac{\partial E}{\partial t} + \frac{\partial E}{\partial y} \right) + \frac{\partial^2 E}{\partial x^2} = -\frac{\omega^2}{c^2} \left(\frac{-\omega_p(x)^2}{\omega(\omega + i\nu_{ei})} E + 4\pi P \right). \quad (2.6)$$

L'approximation d'enveloppe lentement variable est valable pour décrire l'amplification et la propagation du rayonnement laser XUV. En effet, la période d'un cycle optique $2\pi/\omega$ est de quelques dizaines d'attosecondes, ce qui est trois ordres de grandeurs en-dessous des plus petites durées caractéristiques des impulsions (période des oscillations de Rabi et durées des impulsions harmoniques d'ordre élevé injectées dans le plasma sont de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes, voir chapitre 5). L'approximation paraxiale est justifiée ici car, même en tenant compte des effets de réfraction et de diffraction du rayonnement au cours de l'amplification, les angles transverses mis en jeu sont toujours inférieurs à 10 mrad.

L'amplitude complexe de l'enveloppe temporelle de la densité de polarisation P , dans le deuxième membre de l'équation (2.6), est donnée par :

$$\frac{\partial P}{\partial t} = -\gamma P - i\omega DE + \Gamma \quad (2.7)$$

où $\gamma = 1/T_2$ est le taux de déphasage du dipôle, principalement dû aux collisions, et lié à l'élargissement homogène de la raie laser. D est la densité d'inversion de population :

$$D = \frac{d^2}{\hbar\omega} (\rho_h - \rho_b) \quad (2.8)$$

où d est l'élément de matrice densité des niveaux haut h et bas b de la transition laser. Enfin, le terme Γ dans l'équation (2.7) représente les fluctuations dues à l'émission spontanée. L'évaluation de ce terme sera discutée plus en détail dans le chapitre 5.

Les densités de population de la transition laser ρ_h and ρ_b suivent l'évolution suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_b}{\partial t} &= -\frac{1}{2\hbar} \text{Re}(iPE^*) + \gamma_{bh}\rho_h + R_b, \\ \frac{\partial \rho_h}{\partial t} &= +\frac{1}{2\hbar} \text{Re}(iPE^*) + \gamma_{hb}\rho_b + R_h. \end{aligned} \quad (2.9)$$

Les taux γ_{bh} et γ_{hb} sont les taux collisionnels et radiatifs qui relient les deux états entre eux, alors que R_b et R_h sont des flux de population provenant des autres états (autres niveaux de l'ion) qui sont traités de façon globale.

Les deux équations (2.9) peuvent être décrites par l'unique équation suivante sur la densité d'inversion de population D :

$$\frac{\partial D}{\partial t} = -\frac{D - D_0}{T_1} - \frac{d^2}{\hbar^2\omega} \text{Re}(iPE^*) \quad (2.10)$$

où T_1 est le temps de recouvrement du gain, qui peut être estimé comme l'inverse de la plus grande valeur propre du système collisionnel-radiatif (γ_{ij}) linéarisé autour de l'équilibre conduisant à l'inversion stationnaire D_0 .

Le code COLAX, basé sur ce modèle, utilise en entrée un certain nombre de données hydro-

dynamique et de physique atomique, qui sont fournies, soit par l'utilisateur, soit par les résultats d'une simulation hydrodynamique. L'ensemble de ces données est rassemblé dans un unique fichier d'exécution.

La fréquence plasma ω_p ainsi que la fréquence de collision électron-ion ν_{ei} , qui apparaissent dans l'équation de propagation du champ électrique, contrôlent la réfraction du rayonnement et l'amortissement collisionnel des ondes au cours de la propagation dans le plasma. Le calcul de ces deux grandeurs nécessite de connaître le degré d'ionisation Z de l'ion actif, la densité électronique N_e et les températures électronique T_e et ionique T_i dans la zone de plasma modélisée. Pour résoudre les équations d'évolution gouvernant les populations atomiques, il faut fournir les taux de transition entre les deux états traités dynamiquement dans le code (dans les cas que nous présenterons, uniquement les états associés à la transition laser) ainsi que les flux de population qui les alimentent à partir des autres états, dits "extérieurs". Pour les simulations COLAX que nous présentons dans ce mémoire, toutes ces données sont issues d'une simulation réalisée avant cette thèse à l'aide du code hydrodynamique EHYBRID, qui inclut un modèle collisionnel-radiatif pour le calcul détaillé des populations dans l'ion lasant [Pert 1983]. Le code EHYBRID est monodimensionnel; la variation au cours du temps des différentes grandeurs est modélisée dans la direction transverse perpendiculaire à la cible (direction x dans l'équation 2.6).

Dans la direction de l'amplification (axe Oy dans l'équation 2.6) le plasma est supposé homogène. Il est néanmoins possible de modéliser l'évolution du plasma pompé par une onde progressive. Dans cette configuration, utilisée pour les lasers XUV transitoires (TCE), les plans iso-intensités du faisceau laser de pompe sont inclinés par rapport au plan de la cible d'un angle ajustable α qui doit être proche de 45° afin de créer dans le plasma une zone de pompage dont la position se déplace le long de l'axe longitudinal à une vitesse proche de c (figure 2.5). Ce mode d'irradiation produit donc un plasma dont les paramètres à chaque instant dépendent à la fois de x et de y . Cependant, on peut en bonne approximation reconstruire cette variation 2D à partir des résultats d'une simulation hydrodynamique 1D en notant que l'échelle de variation longitudinale (selon y) des perturbations ainsi créées est beaucoup plus grande que leur échelle de variation transverse (selon x). On peut alors considérer que chaque élément de plasma au voisinage d'une position y donnée évolue, indépendamment de ses voisins, comme une tranche de plasma homogène (en y), soumis à une impulsion de pompage d'intensité $I(t - y/v_{o.p.})$. Le profil spatio-temporel (x, t) des différentes grandeurs hydrodynamiques est alors décalé en temps d'une valeur $\delta t = t_s + y/v_{o.p.}$ en fonction de la position longitudinale y (où $v_{o.p.}$ est la vitesse de l'onde progressive).

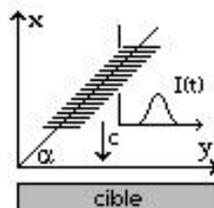


FIGURE 2.5 – Géométrie de pompage en onde progressive modélisée dans COLAX.

A partir du fichier d'entrée contenant l'évolution temporelle des différentes grandeurs dans le plan (x, y) , COLAX fournit en sortie l'évolution temporelle du champ $E(x, y, t)$, à partir de laquelle il est possible de calculer des quantités accessibles expérimentalement. On peut ainsi avoir accès à l'intensité du rayonnement émis sur la pupille de sortie du plasma, ou encore à la distribution angulaire (champ lointain) de l'émission. Il est aussi possible de calculer des grandeurs relatives à la cohérence de l'impulsion, puisqu'on connaît à chaque instant l'amplitude et

la phase du champ E.

Ainsi pour les études qui seront présentées dans les chapitres 4 et 5 de ce mémoire, nous avons utilisé la possibilité de calculer la fonction d'autocorrélation du champ $\Gamma(x, y, \tau) = \langle E(x, y, t)E^*(x, y, t + \tau) \rangle$ où les crochets désignent l'intégrale sur t entre $-\infty$ et $+\infty$ (en pratique, on choisit un intervalle de temps long devant le temps de cohérence).

Toutes les simulations COLAX qui seront présentées dans ce mémoire ont été réalisées en 1D (axe d'amplification y) afin de se concentrer sur les propriétés spectrales et temporelles du champ laser XUV, qui sont le sujet de cette thèse.

Caractérisation de la cohérence temporelle et du spectre du laser XUV quasi-stationnaire de PALS

3.1 Introduction

La caractérisation expérimentale de la cohérence temporelle et de la largeur spectrale associée des différents types de lasers XUV est non seulement essentielle pour leur utilisation, notamment pour les applications impliquant des interférences ou de la focalisation (comme la lithographie, l'holographie, la génération de matière à haute densité d'énergie...), mais nous avons vu dans le chapitre 1 que la connaissance des propriétés de cohérence temporelle et spectrale de ces sources, ainsi que la compréhension des paramètres qui les contrôlent, est également fondamentale pour la progression des travaux visant à réduire leurs durées d'impulsion.

Avant les travaux réalisés pendant cette thèse, la cohérence temporelle et la largeur spectrale associée de trois des quatre types de lasers XUV actuellement opérationnels avaient été mesurées à l'aide de l'interféromètre à bi-dièdre présenté en section 2.2 : OFI [Tissandier 2010, Guilbaud 2010], TCE [Guilbaud 2006b, Meng 2011] et QSS-d [Urbanski 2012b]. Il restait donc à caractériser le laser XUV quasi-stationnaire créé par laser (QSS-l) afin de compléter cette vaste campagne d'expériences. Des expériences ont donc été menées sur la plateforme PALS (*Prague Asterix Laser System*) en République Tchèque, qui est désormais la seule plateforme où sont générés les lasers XUV QSS-l. Une première campagne d'expériences menée en 2012 dans le cadre de l'accès européen Laserlab [Meng 2012b, Meng 2014] a permis deux premières séries de mesures, en assez bon accord avec les prédictions numériques. Le temps de cohérence mesuré était inférieur à 1 picoseconde, plus court que les autres lasers XUV caractérisés jusqu'alors. Néanmoins, un écart entre les deux mesures avait été observé, et la faible qualité des données obtenues n'était pas suffisante pour raisonnablement en tirer des conclusions. En effet, comme nous le verrons dans la suite, la mise en œuvre de notre méthode de mesure sur le laser XUV de PALS représente une difficulté particulière par rapport aux autres types de lasers XUV. Afin d'affiner les résultats préliminaires de 2012, nous avons donc mené une deuxième campagne d'expériences en 2013 où des précautions supplémentaires ont été prises afin de garantir la fiabilité des résultats. Nous présentons dans ce chapitre les résultats de cette deuxième expérience réalisée au début de ce travail de thèse.

3.2 Description de l'expérience

3.2.1 Génération du laser XUV quasi-stationnaire de zinc néonoïde à PALS

Le laser XUV QSS-l de zinc néonoïde caractérisé lors de cette expérience émet à une longueur d'onde de 21,2 nm (transition $(2p_{1/2}^5 3p_{1/2})_{J=0} \rightarrow (2p_{1/2}^5 3s_{1/2})_{J=1}$). La colonne de plasma amplificateur est générée par une séquence d'impulsions du laser à iode PALS opérant à sa longueur d'onde fondamentale ($\lambda_{\text{PALS}} = 1,315 \mu\text{m}$), focalisée en incidence normale sur une cible solide de zinc de 3 cm de long suivant une ligne. La séquence d'impulsions du laser de pompe se compose

d'une pré-impulsion de $\sim 2\text{ J} - 300\text{ ps}$ suivie après $10 \pm 0.5\text{ ns}$ de l'impulsion principale de $\sim 600\text{ J} - 350\text{ ps}$. L'impulsion principale interagit avec le pré-plasma faiblement ionisé produit par la pré-impulsion et, au pic de l'impulsion, lorsque la température est maximale, génère une inversion de population dans une zone légèrement en-dessous de la densité critique ($N_c = 6.5 \times 10^{20}\text{ cm}^{-3}$). Le gain créé est relativement long ($\sim 100\text{ ps}$) et faible (\sim quelques cm^{-1}) comparé aux lasers XUV TCE et OFI. La saturation est atteinte par un deuxième passage dans le milieu amplificateur à l'aide d'une demi-cavité [Rus 2002] constituée d'un miroir multicouche plan de Mo :Si, dont la réflectivité autour de $21,2\text{ nm}$ est de 30% , placé à une distance d'environ 7 mm de la cible de zinc.

3.2.2 Montage expérimental et diagnostics

Le montage expérimental est représenté sur la figure 3.1. La distance de $12,5\text{ m}$ entre la source et l'interféromètre a été choisie pour obtenir une visibilité maximum des franges d'interférence suffisamment élevée (voir paragraphe suivant). Cette distance est obtenue en "pliant" le faisceau à l'aide de deux miroirs multicouches Mo :Si, le premier en incidence quasi-normale suivi d'un deuxième en incidence à 45° . Un troisième miroir multicouches Mo :Si en incidence à 45° rétractable pouvait être inséré dans le trajet du faisceau laser XUV afin de contrôler son empreinte en champ lointain ("footprint") à une distance de $2,5\text{ m}$, ou afin de mesurer sa cohérence spatiale en introduisant également un masque à multi-fentes d'Young avec différents espacements de fentes.

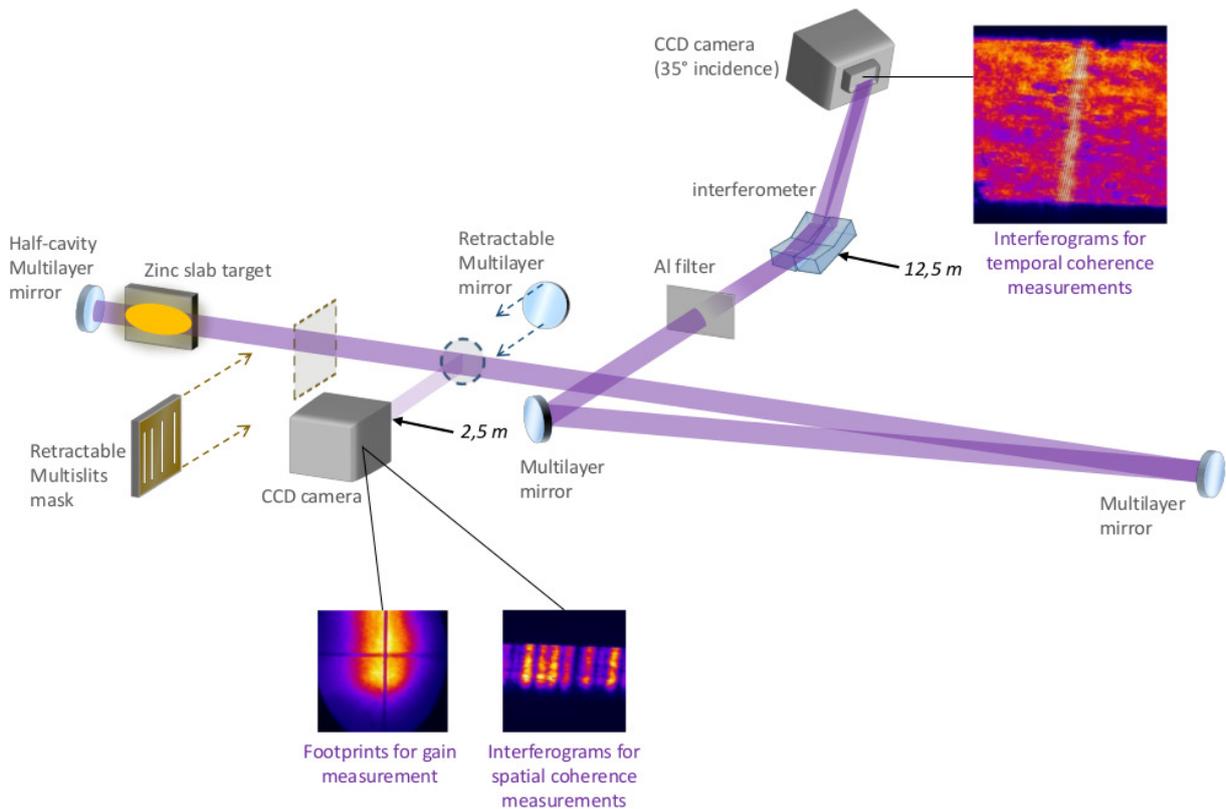


FIGURE 3.1 – Montage expérimental illustrant le trajet du faisceau du laser XUV QSS-1 de zinc opérant en double-passage jusqu'à l'interféromètre à bi-dièdre.

Positionnement de l'interféromètre à bi-dièdre, distance à la source

Lors de la première campagne d'expérience de 2012, la visibilité des franges d'interférences obtenues avec l'interféromètre à bi-dièdre à délai nul entre les deux demi-faisceaux qui interfèrent (ou visibilité maximum V_{max}) était d'environ 30% , ce qui est insuffisant pour faire une mesure

fiable du temps de cohérence et pour déduire le spectre par une transformée de Fourier de la courbe de visibilité (ce point est discuté dans la section 2.2).

La visibilité maximum de nos courbes de visibilité est donnée par le module du degré de cohérence mutuelle entre les points P_1 et P_2 du faisceau qui interfèrent :

$$V_{max} = V(P_1, P_2, \tau = 0) = |\mu_{12}|. \quad (3.1)$$

Or, comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, en mode ASE les lasers XUV peuvent être considérés comme des sources non cohérentes spatialement au niveau de la pupille de sortie du plasma amplificateur. Ils acquièrent leur cohérence spatiale lors de la propagation après la sortie du plasma. Ainsi, la visibilité maximum des courbes de visibilité obtenues avec l'interféromètre à bi-dièdre peut être estimée à l'aide du théorème de Van Cittert - Zernicke, stipulant que le degré de cohérence mutuelle μ_{12} (i.e. la fonction de corrélation spatiale du champ électrique normalisée) d'une source non-corrélée est donnée par la transformée de Fourier normalisée de la distribution spatiale en intensité dans la source $I(x)$:

$$|\mu_{12}| = \left| \frac{\langle E_1(t) \cdot E_2^*(t) \rangle}{\sqrt{\langle |E_1(t)|^2 \rangle \cdot \langle |E_2(t)|^2 \rangle}} \right| = \left| \int I(x) \cdot e^{-i2\pi \cdot \frac{x \cdot \Delta X}{\lambda \cdot D}} dx \right| \quad (3.2)$$

où $E_1(t)$ et $E_2(t)$ sont les champs électriques au niveau des points P_1 et P_2 situés à une distance D de la source, $I(x)$ la distribution spatiale d'intensité normalisée de la source au niveau du plan de la source et ΔX la distance entre les points P_1 et P_2 . La figure 3.2 représente une image de la pupille du laser XUV QSS-1 de zinc obtenue dans les mêmes conditions de pompage que lors de notre expérience, fournie par nos collaborateurs de PALS. Cette image de la source en champ proche nous permet d'estimer la largeur à mi-hauteur de la distribution spatiale d'intensité du faisceau sur l'axe horizontal à un peu plus de $100 \mu\text{m}$, c'est-à-dire environ deux fois supérieure aux tailles de sources des autres types de lasers XUV opérant en ASE ce qui explique que sa cohérence spatiale à une distance donnée soit inférieure aux autres types de lasers XUV.

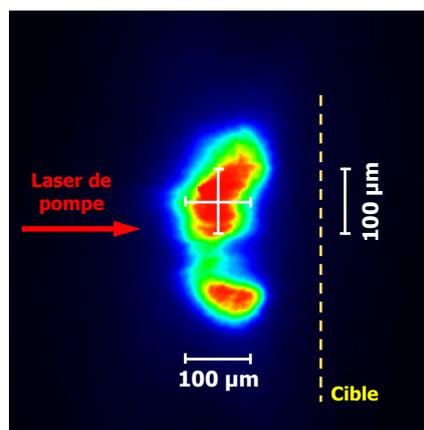


FIGURE 3.2 – Champ proche du faisceau laser XUV QSS-1 de zinc.

La distribution spatiale de l'intensité $I(x)$ est modélisée par une distribution gaussienne. D'après (3.1) et (3.2), la visibilité maximum s'exprime de la manière suivante :

$$V_{max} = \exp \left(-\frac{1}{\ln(2)} \cdot \left(\frac{\pi \cdot e \cdot \Delta X}{2 \cdot \lambda \cdot D} \right)^2 \right) \quad (3.3)$$

avec λ la longueur d'onde, ΔX la distance entre les points du champ qui interfèrent, D la dis-

tance à la source et e la largeur à mi-hauteur de la source sur l'axe sur lequel se trouvent les points du champ qui interfèrent.

Comme nous l'avons vu dans la section 2.2, la largeur de la zone de recouvrement des demi-faisceaux réfléchis par chaque dièdre de l'interféromètre correspond à la distance entre les points du champ qui interfèrent ΔX . Dans notre expérience, la zone de recouvrement était d'environ $930 \mu\text{m}$ sur la caméra CCD XUV en incidence à 35° afin d'obtenir une figure d'interférence comprenant 11 franges de 6,4 pixels pour permettre le calcul de la visibilité sur la zone de franges, donc d'environ $530 \mu\text{m}$ dans le plan normal à la propagation des faisceaux (figure 3.3).

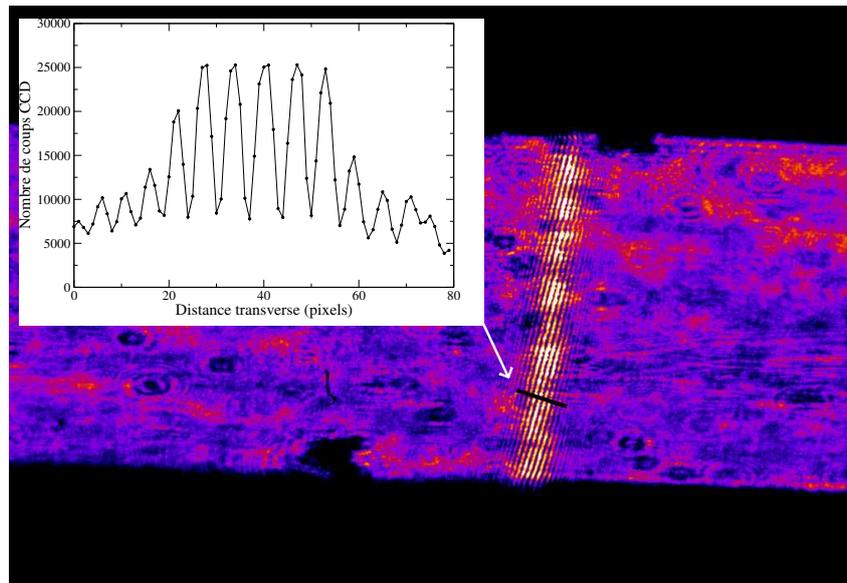


FIGURE 3.3 – Interférogramme obtenu sur le laser XUV QSS-1 opérant avec la demi-cavité avec l'interféromètre à bi-dièdre pour une différence de marche nulle entre les demi-faisceaux. (Encart) coupe transverse des franges.

La figure 3.4 (a) ci-dessous représente la visibilité calculée par la relation (3.3) pour une zone de recouvrement entre les demi-faisceaux qui interfèrent de $\Delta X = 530 \mu\text{m}$ en fonction de la distance de l'interféromètre à la source et de la taille de source. La figure 3.4 (b) représente des coupes de la carte de gauche en fonction de la taille de source pour les trois distances auxquelles des mesures ont été réalisées : à 5 et 7 m lors de la première campagne et à 12,5 m lors de la seconde. On peut voir que la visibilité maximum attendue à 7 m aurait dû être augmentée d'environ 20 % par rapport à celle obtenue à 5,3 m pour une taille de source équivalente, ce qui n'a pas été le cas. La visibilité maximum mesurée (autour de 30 % dans les deux cas) était trop faible pour en déduire une mesure fiable du spectre du laser XUV. Le fait que la visibilité maximum n'ait pas été augmentée en plaçant l'interféromètre à bi-dièdre à 7 m de la source n'a pas été véritablement compris. Il faut néanmoins noter que la campagne d'expérience avait été suivie d'une maintenance du laser de pompe. Les conditions de génération du laser QSS-1 de zinc dépendent des paramètres de l'impulsion de pompe (énergie totale, durée et forme temporelle de l'impulsion). Des fluctuations tir-à-tir de ces paramètres nuisent donc fortement à la mesure.

Contrôle de la stabilité du laser XUV

Etant donné le faible taux de répétition du laser de pompe (au maximum 1 tir/25 min) et la durée de la campagne d'expériences (14 jours), le nombre de tirs disponibles pour les mesures est considérablement réduit par rapport à des mesures réalisées sur les autres types de lasers XUV. Or, les mesures de cohérence temporelle réalisées avec l'interféromètre à bi-dièdre sont

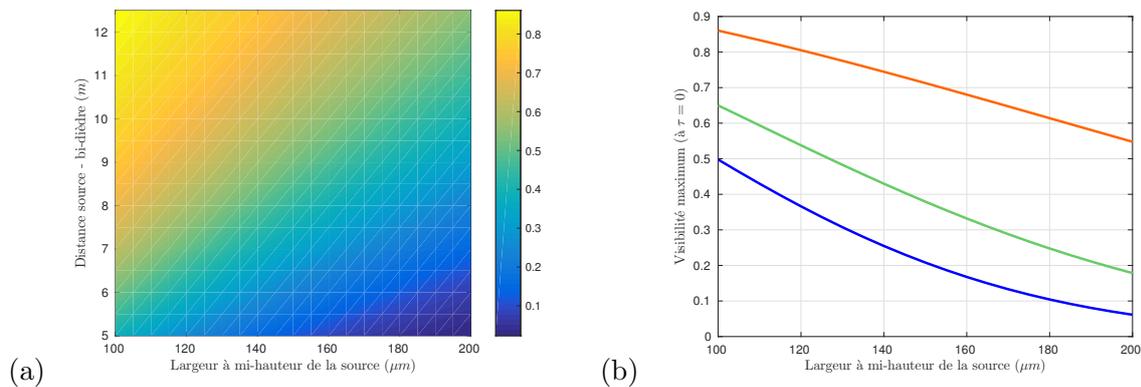


FIGURE 3.4 – (a) Carte illustrant la visibilité maximum en échelle de couleur en fonction de la distance D entre la source et le bi-dièdre de l'interféromètre et en fonction de la largeur à mi-hauteur e de la source, pour un espacement entre les points qui interfèrent d'environ $\Delta X = 530 \mu\text{m}$. (b) Courbes de la visibilité maximum en fonction de la largeur à mi-hauteur e de la source, pour un espacement entre les points qui interfèrent ΔX de $530 \mu\text{m}$, pour trois distances entre la source et le bi-dièdre de l'interféromètre : $D = 5,3$ m en bleu et $D = 7$ m en vert (configurations de la 1^{ère} campagne en 2012) et $D = 12,5$ m en orange (configuration de la 2^{ème} campagne en 2013).

des mesures multicoups. Par ailleurs, il est nécessaire de s'assurer que la chute de visibilité des franges mesurée en augmentant le délai entre les demi-faisceaux réfléchis n'est bien due qu'au degré de cohérence temporelle de la source. Cependant, nous avons vu dans le paragraphe précédent que la visibilité des franges est également liée à la cohérence spatiale de la source. Il faut donc s'assurer que celle-ci ne fluctue pas d'un tir à l'autre au cours d'une mesure. Pour cela, un diagnostic monocoup de la cohérence spatiale a été inséré dans le montage. Il consiste en un masque composé de 4 fentes de $20 \mu\text{m}$ de large espacées de $[62, 5; 125; 250] \mu\text{m}$. Il permet donc d'obtenir, en un seul tir, le module de la fonction de corrélation spatiale du champ électrique μ_{12} en fonction de différentes distances entre les points qui interfèrent et donc d'estimer la taille de source incohérente équivalente d'un tir. Ce diagnostic nous a permis de vérifier que la cohérence spatiale ne changeait pas significativement d'un tir à l'autre, lorsque les conditions de tirs étaient maintenues constantes.

3.2.3 Mesure d'un temps de cohérence subpicoseconde à saturation

Une première série de mesures a été réalisée avec l'interféromètre à bi-dièdre sur le laser QSS-1 de zinc opérant en double-passage à l'aide de la demi-cavité. Les mesures de la visibilité des franges sont tracées sur la figure 3.5 en fonction du délai entre les sous-faisceaux réfléchis par chaque dièdre. Malgré le petit nombre de tirs (12 pour cette mesure), les visibilités mesurées sont raisonnablement bien fittées par une fonction gaussienne (avec un coefficient de corrélation linéaire au carré $R^2 > 98 \%$), représentée par la courbe en pointillés sur la figure 3.5.

Dans le tableau (3.1), nous comparons nos mesures à celles de 2012. Premièrement, nous pouvons constater que la visibilité maximum a bien été augmentée en plaçant l'interféromètre à $12,5$ m de la source. On constate cependant qu'elle n'atteint pas les valeurs estimées par le théorème de Van Cittert - Zernicke dans nos conditions (d'après la relation 3.3). Cela peut être dû à l'émission incohérente du plasma qui se superpose au signal du laser XUV QSS-1 de zinc entraînant une baisse du contraste (voir section 2.2). Néanmoins, la visibilité maximum $V_{max} = V(\tau = 0)$ est suffisante faire une mesure fiable du temps de cohérence qui est de $\tau_c = 0,68$ ps à $\frac{V_{max}}{e}$. C'est, à notre connaissance, le plus court temps de cohérence mesuré sur un laser XUV (nous montrons en effet dans la suite qu'en opérant avec la demi-cavité le laser XUV QSS-1 de zinc est en régime d'amplification saturée).

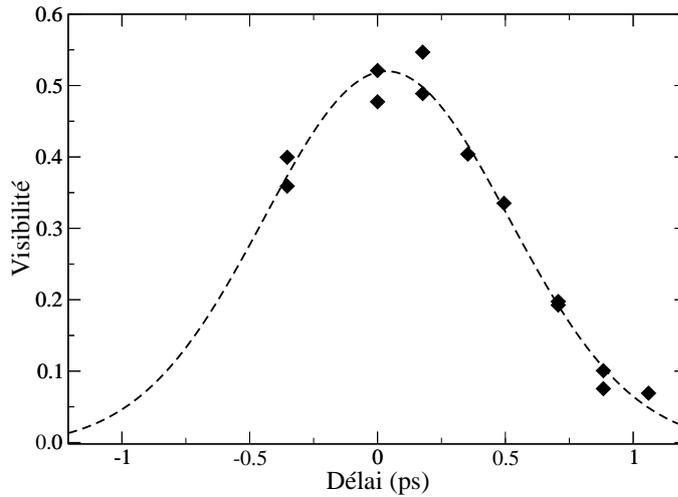


FIGURE 3.5 – Mesure de la visibilité de franges d’interférence en fonction du délai entre les faisceaux pour le laser XUV opérant en double-passage. Chaque point correspond à un interférogramme obtenu en un tir.

Comme nous l’avons vu dans le chapitre précédent, le spectre de puissance de la raie laser peut être obtenu en effectuant une transformée de Fourier de la courbe de visibilité. Celle-ci étant gaussienne, le spectre est donc également gaussien et sa largeur spectrale, donnée par la relation (3.4) ci-dessous, est de $\Delta\nu = 7,8 \times 10^{11}$ Hz.

$$\Delta\nu = \frac{2 \cdot \sqrt{\ln(2)}}{\pi \cdot \tau_c}. \quad (3.4)$$

La durée limite de Fourier associée à ce spectre est de $\tau_{FL} = 0,57$ ps, le laser XUV QSS-1 de PALS paraît donc compatible avec l’amplification d’impulsion subpicosecondes, comme nous l’illustrerons à la fin de cette section. Ces résultats confirment les résultats préliminaires obtenus lors de la première campagne menée sur PALS en 2012 où les courbes de visibilité étaient également gaussiennes et dont la durée limite de Fourier déduite était également subpicoseconde.

Expérience	Dist. D	V_{max}	Profil spectral	$\Delta\nu$ (10^{11} Hz)
2012	5 m	$\sim 0,32$	gaussien	$7,5 \pm 0,3$
2012	7 m	$\sim 0,27$	gaussien	$5,1 \pm 0,2$
2013	12 m	$\sim 0,53$	gaussien	$7,8 \pm 0,8$

TABLE 3.1 – Comparaison des résultats des deux campagnes expérimentales.

3.2.4 Observation d’un rétrécissement spectral par le gain

Nous avons réalisé deux mesures supplémentaires avec l’interféromètre à bi-dièdre pour des longueurs de cible inférieures (2 et 3 cm) et le laser XUV opérant en simple passage (figure 3.6). Dans les deux cas les données sont également bien fittées par des fonctions gaussiennes. Les spectres associés sont donc gaussiens, comme en double-passage. La mesure est moins précise pour le laser de 2 cm opérant en simple passage que les deux autres mesures. Cela est dû d’une

part au fait que dans ces conditions le laser fonctionne bien en-dessous de la saturation ce qui augmente les fluctuations tir-à-tir, et d'autre part, à une plus faible cohérence spatiale due à la courte longueur de milieu amplificateur, donc une visibilité à différence de marche nulle plus faible.

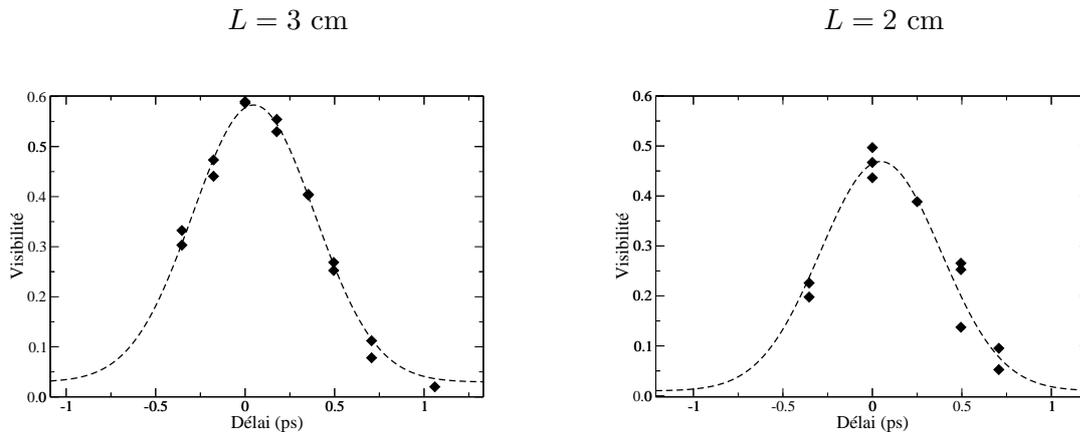


FIGURE 3.6 – Mesures de la visibilité de franges d'interférence en fonction du délai entre les faisceaux pour le laser XUV opérant en simple-passage pour des longueurs de plasma de $L = 3 \text{ cm}$ (gauche) et $L = 2 \text{ cm}$ (droite). Chaque point correspond à un interférogramme obtenu en un tir.

Cependant, on observe clairement une augmentation du temps de cohérence, donc un rétrécissement de la largeur spectrale (calculée à partir de la relation 3.4), avec la longueur du milieu amplificateur. En effet, le gain au centre de la raie laser XUV est plus élevé que sur les ailes, ce qui conduit à un rétrécissement de la largeur spectrale significatif de la raie au cours de son amplification avant saturation. L'ensemble des trois mesures est résumé dans le tableau 3.2 ci-dessous.

Longueur du plasma	τ_c (fs)	$\Delta\nu$ (10^{11} Hz)	$\Delta\nu/\nu$
2 cm – simple passage	440 ± 11	$12,1 \pm 2,9$	$8,5 \times 10^{-5}$
3 cm – simple passage	480 ± 30	$11,0 \pm 0,8$	$7,8 \times 10^{-5}$
3 cm – double passage	680 ± 68	$7,8 \pm 0,8$	$5,5 \times 10^{-5}$

TABLE 3.2 – Ensemble des mesures de temps de cohérence et largeurs spectrales réalisées sur le laser QSS-1 de Zn. Ces résultats mettent en évidence un rétrécissement de la largeur spectrale à mesure que la longueur du milieu amplificateur augmente.

3.2.5 Mesures du gain faible signal

Afin de comparer nos mesures de largeurs spectrales à des calculs de transfert radiatif (voir section 2.3), nous avons mesuré le gain faible signal du laser XUV QSS-1 de zinc. Trois mesures ont été réalisées lors de la campagne expérimentale en employant différents détecteurs placés à différentes distances de la source :

Série A : à l'aide d'empreintes en champ lointain obtenues avec la caméra CCD XUV placée à 2,5 m de la source. Sept tirs ont été réalisés pour des longueurs de plasma L comprises entre 1,5 et 3 cm.

Série B : à l'aide d'interférogrammes obtenus avec l'interféromètre et détectés par une caméra CCD XUV placée à 12,5 m de la source. Sept tirs ont été réalisés pour des longueurs de plasma L comprises entre 1 et 3 cm.

Série C : à l'aide d'empreintes en champ lointain obtenues avec la caméra CCD XUV placée sur la sortie directe de l'interféromètre à 13,25 m de la source (le bi-miroir étant éclipié

latéralement). Onze tirs ont été réalisés pour des longueurs de plasma L comprises entre 1 et 3 cm.

Sur chaque image, le signal du laser XUV est superposé à l'émission incohérente du plasma. Il faut donc soustraire ce dernier au signal total afin de calculer le gain faible-signal. Dans la série A, les images obtenues à 2,5 m de la source permettent de distinguer la totalité l'empreinte du faisceau laser, entourée d'émission incohérente du plasma. Une première méthode (que nous appellerons série A(a)) a consisté à directement soustraire le signal à l'extérieur de la tâche laser XUV au signal à l'intérieur de celle-ci sur chaque image. Les données ont ensuite été *fittées* par une fonction de Linford [Linford 1974]. Dans la mesure où l'intensité est mesurée en unités arbitraires, on peut réécrire la fonction de Linford de la manière suivante pour le fit de nos données :

$$I_{\text{mesuré}} = \frac{\mathcal{J}_0}{g_0} \cdot \frac{(e^{g_0 \cdot z} - 1)^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{g_0 \cdot z \times e^{g_0 \cdot z}}} \quad (3.5)$$

où \mathcal{J}_0 est un facteur proportionnel à l'émissivité du laser et au profil spectral intrinsèque de la raie qui inclut la réponse du détecteur, et g_0 le gain faible-signal. La figure 3.7 ci-dessous représente les données de la série A(a) de la mesure de gain ainsi que le fit par la fonction de Linford. Le gain faible-signal obtenu est de $g_0 = 2.83 \pm 0.36 \text{ cm}^{-1}$.

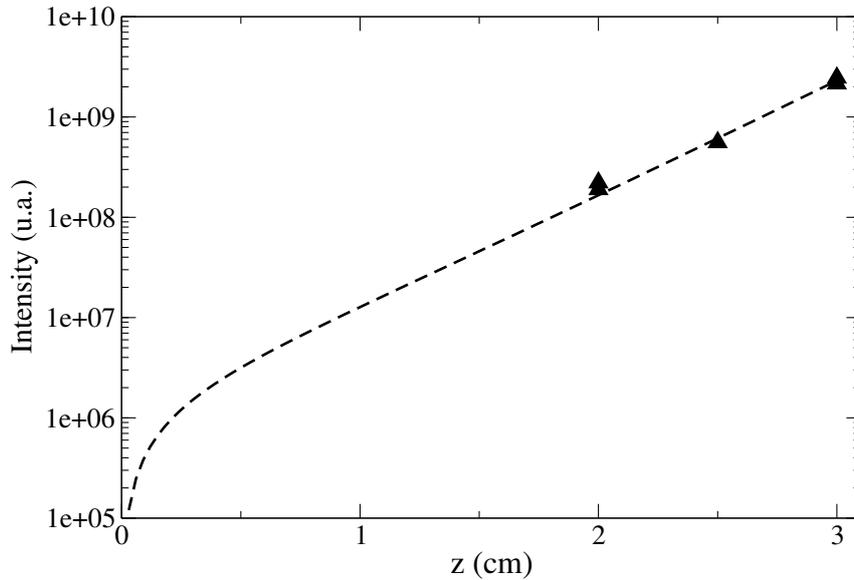


FIGURE 3.7 – Mesure de la série A(a). Intensité de l'impulsion laser XUV QSS-1 de zinc opérant en simple passage en fonction de la longueur z du plasma. Un fit par une fonction de Linford [Linford 1974] conduit à un gain de $g_0 = 2.83 \pm 0.36 \text{ cm}^{-1}$.

Pour les deux autres séries de mesure B et C, les détecteurs étaient plus éloignés de la source ce qui ne permettait pas de détecter l'ensemble de la tâche laser XUV. Pour estimer l'émission incohérente du plasma nous avons fait l'hypothèse qu'aux plus courtes longueurs de plasma le signal du laser XUV était négligeable devant l'émission incohérente. Ainsi, nous avons considéré que l'intensité intégrée sur les images obtenues avec un plasma de 1 cm était principalement de l'émission incohérente, et l'avons soustraite à l'intensité intégrée pour les longueurs de plasma supérieures. Les données ont ensuite été fittées par la fonction de Linford (3.5). Nous avons également employé cette méthode pour analyser la série A (que nous appellerons série A(b)) en utilisant une empreinte en champ lointain obtenue pour une longueur de plasma de 1,5 cm pour estimer l'émission incohérente du plasma.

L'ensemble des résultats des mesures de gain est résumé dans le tableau 3.3. On constate que toutes les valeurs sont proches et comprises entre 2 et 3 cm⁻¹, mais ne se recouvrent pas. Il faut préciser que les barres d'erreur indiquées sont uniquement données par le fit. Les intensités mesurées pour chaque longueur de plasma ne sont pas accompagnées d'une incertitude de mesure qu'il nous est impossible d'évaluer, or les fluctuations tir-à-tir du laser sont importantes lorsqu'il opère en-dessous de la saturation.

Le résultat de mesure le plus fiable est celui de la série A(a), $g_0 = 2.83 \pm 0.36$ cm⁻¹, en raison de sa méthode d'analyse basée sur une estimation plus exacte de l'émission incohérente du plasma. Cette valeur est nettement inférieure au gain faible-signal mesuré précédemment, par nos collaborateurs de PALS, de $g_0 = 7$ cm⁻¹, sur le même laser XUV dans des conditions de génération *a priori* similaires [Rus 2002]. La différence entre ces deux mesures est probablement due à des conditions de pompage moins optimales lors de notre campagne d'expérience. Cependant, bien qu'ils soient basés sur une méthode d'analyse moins précise, les résultats des mesures des séries B et C appuient le résultat de notre mesure déduit de la série A(a) et indiquent que le gain faible-signal est inférieur à 3 cm⁻¹. On peut d'ailleurs noter que le résultat de la série A(b) obtenu suivant la même méthode que ceux des séries B et C est très proche de celui de la série A(a).

Série	Distance	Emission incohérente du plasma	Gain	R^2 (%)
A(a)	2,5 m	Signal moyen autour de la tache laser XUV	$2,83 \pm 0,36$ cm ⁻¹	98,6
A(b)	2,5 m	Signal intégré à L = 1,5 cm	$3,09 \pm 0,18$ cm ⁻¹	99,8
B	12,5 m	Signal intégré à L = 1 cm	$2,21 \pm 0,25$ cm ⁻¹	96,5
C	13,25 m	Signal intégré à L = 1 cm	$1,95 \pm 0,21,2$ cm ⁻¹	93,7

TABLE 3.3 – Ensemble des résultats des séries de mesure de gain faible-signal.

3.3 Discussion

3.3.1 Comparaison à des simulations numériques basées sur un modèle de transfert radiatif

Les trois mesures de largeurs spectrales ont été comparées à des calculs 1D de l'intensité du laser XUV résolue en fréquence le long du plasma amplificateur à l'aide du code décrit en section 2.3 basé sur l'équation de transfert radiatif monodimensionnel [Koch 1994] :

$$\frac{d\mathcal{I}}{dz}(\nu, z) = \frac{J_0}{V(\nu_0)} \cdot \left[1 + \frac{g_0}{J_0} \cdot \mathcal{I}(\nu, z) \right] \times \int_0^\infty \frac{S(u)\phi(\nu, u)du}{1 + \int_0^\infty \mathcal{I}(\nu', z) \cdot \phi(\nu', u) d\nu'}$$

Les paramètres d'entrée du code de transfert radiatif 1D utilisés pour le calcul sont présentés dans les paragraphes ci-dessous.

Gain faible-signal : Nous avons utilisé la valeur de gain faible-signal que nous avons mesurée lors de la campagne d'expérience $g_0 = 2,83$ cm⁻¹. Cette valeur étant inférieure à celle mesurée précédemment de [Rus 2002] $g_0 = 7$ cm⁻¹, nous avons exploré l'éventualité que le gain faible signal ait une valeur crête supérieure à notre mesure mais qu'il varie temporellement durant l'amplification de sorte que sa mesure, qui est intégrée en temps, donne une valeur inférieure.

Largeurs spectrales intrinsèques : Le code PPP, développé au début des années 1990 au PIIM par Annette Calisti et son groupe, calcule le profil des raies spectrales émises par

des émetteurs multiélectron dans un plasma chaud [Calisti 1990]. Les largeurs des composantes homogène (lorentzienne) $\Delta\lambda_h$ et inhomogène (gaussienne) $\Delta\lambda_i$ de la raie intrinsèque du laser XUV QSS-1 de zinc ont été calculées par Annette Calisti à l'aide du code PPP pour des gammes de densité électronique N_e , de température électronique T_e et de température ionique T_i typiques dans la zone de gain dans nos conditions de génération du laser XUV : $N_e = [2 \times 10^{20} - 5 \times 10^{20}] \text{ cm}^{-3}$ et $(T_i, T_e) = [(150, 200) - (200, 300)] \text{ eV}$.

Emissivité et intensité de saturation : D'après des données de physique atomique issues de la littérature [Rus 1995], dans nos conditions $j_0 = 8,6 \times 10^{-2} \text{ W.cm}^{-3}$ et $I_{sat} = 1,6 \times 10^9 \text{ W.cm}^{-2}$, ce qui correspond à un facteur d'émissivité $J_0 = j_0/I_{sat} = 5,5 \times 10^{-7} \text{ cm}^{-1}$.

Coefficient de couplage de la demi-cavité : Le modèle de transfert radiatif prend en compte les effets de saturation, ainsi le calcul du profil spectral de la raie laser XUV opérant avec la demi-cavité le rayonnement doit être multiplié par le coefficient de couplage effectif R_{eff} entre les deux passages dans le milieu amplificateur, qui correspond à la fraction du laser XUV amplifié lors d'un premier passage dans la colonne de plasma réinjectée dans celle-ci pour un deuxième passage (voir figure 3.8).

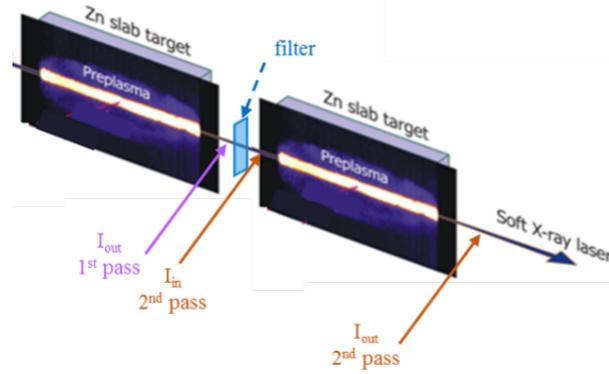


FIGURE 3.8 – Schéma de la modélisation du double-passage dans le milieu amplificateur.

Le coefficient de couplage effectif R_{eff} est le produit des pertes géométriques R_G (rapport entre la surface de la zone de gain et la section du faisceau réfléchi par le miroir de la demi-cavité à l'entrée du plasma) et de la réflectivité du miroir multicouche de la demi-cavité $R_M = 30 \%$ [Rus 2002]. Le coefficient de couplage géométrique, dans le cas de cette expérience, vaut $R_G \sim 20 \%$ (avec un faisceau de divergence de $\sim 5 \text{ mrad}$ et une zone de gain de $\sim 100 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$). Cela conduit à un coefficient de couplage effectif $R_{eff} \sim 6 \%$. La valeur de R_{eff} peut également être estimée à l'aide d'une mesure du rapport d'intensité en double passage et en simple passage dans la cavité, en ajustant le paramètre d'entrée R_{eff} dans le calcul jusqu'à ce que le rapport entre les intensités calculées en double passage et en simple passage soit égal au rapport mesuré expérimentalement. Un rapport d'intensité moyen de ~ 6.6 a été mesuré en intégrant le signal sur les interférogrammes obtenus en double passage et en simple passage avec une longueur de cible de 3 cm. La valeur de R_{eff} déduite de cette méthode est $R_{eff} \sim 0.3 \%$, soit 20 fois inférieure à la précédente. Nous verrons que les calculs de l'évolution de la largeur spectrale $\Delta\nu$ sont en fait très peu affectés par la valeur de R_{eff} dans nos conditions.

Résultats des calculs

La courbe bleue de la figure 3.9 représente le résultat du calcul de transfert radiatif ayant le meilleur accord avec les trois mesures de largeurs spectrales. Il est obtenu pour une largeur intrinsèque de $\Delta\nu_{int} = 2,9 \times 10^{12} \text{ Hz}$, avec une composante homogène (lorentzienne) de $\Delta\nu_h =$

$1,7 \times 10^{12}$ Hz et une composante inhomogène (gaussienne) de $\Delta\nu_i = 1,9 \times 10^{12}$ Hz, ce qui correspond à une densité électronique de $N_e = 5,5 \times 10^{20}$ cm $^{-3}$, une température électronique de $T_e = 300$ eV et une température ionique de $T_i = 200$ eV. La valeur de gain utilisée est celle mesurée de $g_0 = 2,83$ cm $^{-1}$ et le coefficient de couplage de la demi-cavité est celui estimé expérimentalement $R_{eff} = 0,3$ %. Cependant, comme nous l'avons indiqué, la valeur de R_{eff} n'a pas un impact très important sur la largeur spectrale calculée en double passage. Si on utilise la valeur calculée $R_{eff} = 6$ %, on trouve une largeur spectrale $\Delta\nu = 7,11 \times 10^{11}$ Hz au lieu de $7,14 \times 10^{11}$ Hz pour $R_{eff} = 0,3$ %, soit une différence très faible de 0,4 %.

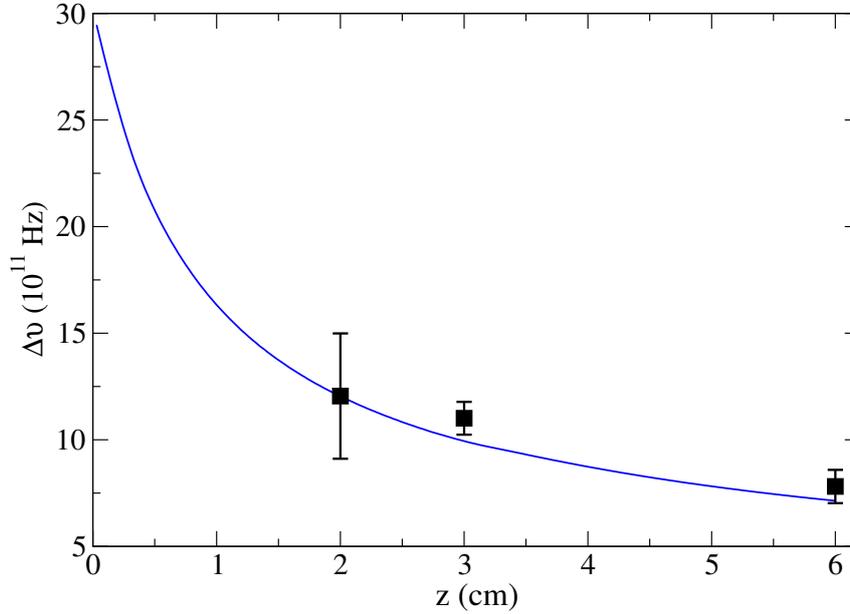


FIGURE 3.9 – Largeur spectrale $\Delta\nu$ mesurée pour 3 différentes longueurs d'amplification : 2 et 3 cm en simple passage et 6 cm en double-passage. Les données expérimentales sont bien reproduites par le calcul de transfert radiatif 1D en prenant la valeur de gain mesurée comme paramètre d'entrée du calcul.

Nous avons vu que le gain faible signal mesuré lors de notre campagne d'expérience est nettement inférieur à celui mesuré précédemment, de $g_0 = 7$ cm $^{-1}$ [Rus 2002]. La figure 3.10 montre que les calculs utilisant cette valeur plus élevée du gain ne reproduisent pas les largeurs spectrales mesurées. La courbe bleue en pointillés est obtenue en utilisant les mêmes paramètres d'entrée du calcul (notamment la même largeur spectrale intrinsèque) que pour la figure 3.9, mais avec un gain faible signal de 7 cm $^{-1}$. On voit clairement que dans ces conditions le rétrécissement spectral par le gain est tel que la courbe calculée passe très au-dessous des valeurs mesurées pour les 3 longueurs de plasma. En effet la valeur du gain est un paramètre très sensible qui contrôle la décroissance de la courbe avant le régime de saturation. La largeur spectrale intrinsèque fixe l'ordonnée à l'origine de la courbe, tandis que la nature du profil spectral (rapport entre les élargissements homogène et inhomogène) contrôle plus particulièrement la forme de la courbe dans le régime de saturation. Ainsi, la courbe en trait plein de la figure 3.10 a été obtenue pour un gain faible signal de 7 cm $^{-1}$ en partant d'une largeur spectrale intrinsèque plus grande ($\Delta\nu_{int} = 4,4 \times 10^{12}$ Hz), dont la valeur a été optimisée pour que la courbe passe au mieux par les points expérimentaux. Pour atteindre cette valeur nous avons considéré une composante inhomogène $\Delta\nu_i = 2,8 \times 10^{12}$ Hz, correspondant à une température ionique de $T_i = 450$ eV, et une composante homogène $\Delta\nu_h = 2,7 \times 10^{12}$ Hz, correspondant à une densité électronique de $N_e = 1,1 \times 10^{21}$ cm $^{-3}$. Cette valeur de densité ne peut pas être atteinte dans la zone de gain, car elle est supérieure à la densité critique correspondant à la longueur d'onde du laser de pompe ($N_c(1,315 \mu\text{m}) = 6,4 \times 10^{20}$ cm $^{-3}$). Une telle valeur de largeur spectrale intrinsèque est

donc irréaliste dans les conditions de génération du laser XUV de zinc. Enfin les deux autres paramètres du calcul, le coefficient de couplage de la demi-cavité R_{eff} et le facteur d'émissivité $J_0 = j_0/I_{\text{sat}}$ n'ont pas un impact important sur le résultat du calcul. Le coefficient de couplage R_{eff} n'influe que sur le deuxième passage dans le milieu amplificateur ($z > 3$ cm). Deux de nos mesures ont été réalisées en simple-passage et sont donc indépendantes de ce paramètre. Le coefficient d'émissivité J_0 contrôle la distance de propagation dans le milieu amplificateur à partir de laquelle le laser entre en régime d'amplification saturé. L'impact de J_0 sur la valeur de la largeur spectrale amplifiée est négligeable (cette dernière n'est modifiée que de quelques pourcents lorsque l'on fait varier le facteur d'émissivité de deux ordres de grandeur).

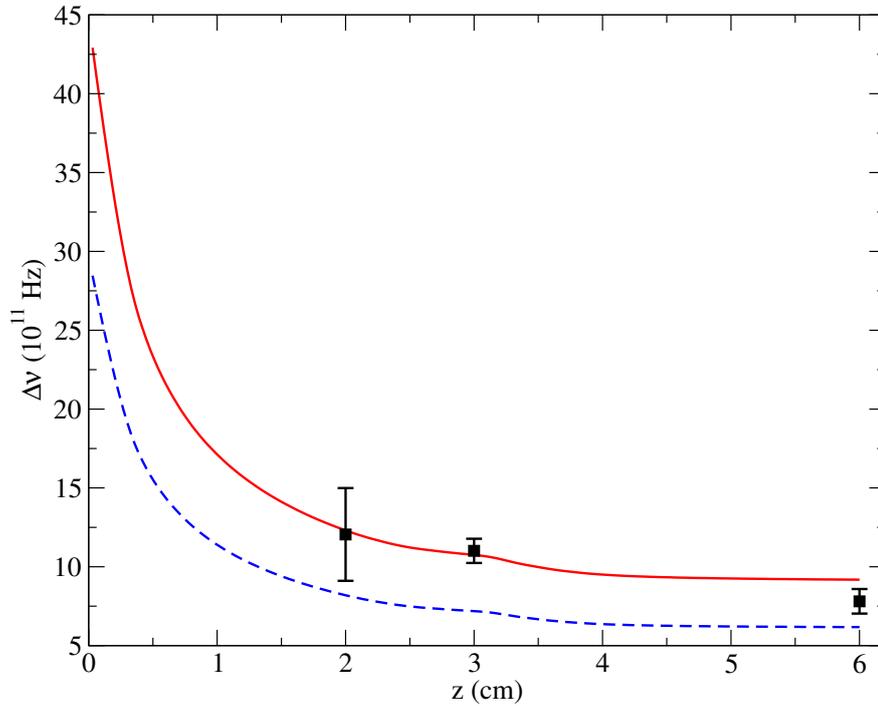


FIGURE 3.10 – Idem figure 3.9, mais en utilisant un gain de 7 cm^{-1} . Pointillés : en conservant la même largeur spectrale intrinsèque. Trait plein : en augmentant la largeur intrinsèque (largeur à $z=0$). La valeur utilisée correspond toutefois à des paramètres plasma irréalistes (voir texte).

Enfin, il est important d'ajouter que bien que le gain faible signal et le coefficient de couplage de la cavité soient relativement faibles, les calculs de transfert radiatif montrent qu'en double-passage l'amplification du laser QSS-1 de zinc atteint le régime de saturation. En utilisant la plus petite valeur du coefficient de couplage de la demi-cavité $R_{\text{eff}}=0,3 \%$ (c'est-à-dire dans la situation la plus défavorable où l'intensité du faisceau réinjecté dans le plasma amplificateur est la plus faible) la valeur du gain calculée à la sortie du deuxième passage du rayonnement dans le plasma vaut $g(2\text{pass}) = \frac{g_0}{1 + \frac{I(2\text{pass})}{I_{\text{sat}}}} \approx 0.86 \text{ cm}^{-1}$, soit seulement $\sim 30 \%$ du gain faible signal initial.

3.3.2 Comparaison aux précédentes mesures réalisées sur d'autres lasers XUV QSS-1

Nous avons vu que notre mesure de largeur spectrale du laser XUV opérant en double-passage confirmait les résultats préliminaires obtenus lors de la première campagne menée sur PALS en 2012, et que la largeur spectrale du laser XUV QSS-1 de zinc est compatible avec l'amplification

d'impulsions subpicosecondes, contrairement aux autres types de lasers XUV précédemment caractérisés. Nos mesures sont de plus cohérentes avec de précédentes mesures réalisées sur des lasers XUV QSS-1 au milieu des années 1990. Le tableau 3.4 résume l'ensemble de ces mesures ainsi que celle réalisée lors de notre campagne d'expérience.

Elément	λ_0 (nm)	Référence	G.L	$\Delta\nu$ (Hz)	τ_c (ps)
Zn	21,2	Cette expérience	~ 15 (sat.)	$7,8 \times 10^{11}$	0,68
Se	18,2	[Koch 1994]	10	$1,2 \times 10^{12}$	0,45
Ge	19,6	[Yuan 1995]	5	$2,0 \times 10^{12}$	0,27
Y	15,5	[Celliers 1995]	~ 20 (sat.)	$1,6 \times 10^{12}$	0,33

TABLE 3.4 – Comparaison de la largeur spectrale du laser XUV QSS-1 de zinc déduite de notre mesure avec de précédentes mesures de largeurs spectrales d'autres lasers XUV QSS-1 sur la même transition laser $(2p_{1/2}^5 3p_{1/2})_{J=0} \rightarrow (2p_{1/2}^5 3s_{1/2})_{J=1}$.

Toutes ces mesures ont été réalisées sur la même transition $(2p_{1/2}^5 3p_{1/2})_{J=0} \rightarrow (2p_{1/2}^5 3s_{1/2})_{J=1}$. Toutefois, une comparaison quantitative directe de ces mesures ne serait pas pertinente et un certain nombre de différences doivent être prises en compte. Premièrement, ces lasers XUV sont générés à partir de différents éléments et émettent donc à des longueurs d'ondes différentes : 18,2 nm pour le sélénium, 19,6 nm pour le germanium, 15,5 nm pour l'yttrium et 21,2 nm dans notre cas avec le zinc. En particulier, le laser XUV d'yttrium est un cas singulier des lasers XUV néonoïdes car les transitions $(2p_{1/2}^5 3p_{1/2})_{J=0} \rightarrow (2p_{1/2}^5 3s_{1/2})_{J=1}$ et $(2p_{1/2}^5 3p_{3/2})_{J=2} \rightarrow (2p_{1/2}^5 3s_{1/2})_{J=1}$, qui partagent le même niveau bas, se recouvrent spectralement [Holden 1995]. De plus, le produit gain-longueur n'est pas le même pour toutes ces mesures. Or nous avons vu que la raie laser subit un rétrécissement spectral par le gain important au cours de son amplification. Ce rétrécissement ralentit une fois que l'amplification entre en régime de saturation et atteint une largeur spectrale "asymptotique" de l'ordre de $\Delta\nu_{sat} \approx \Delta\nu_{int}/\sqrt{(G.L)_{sat}} \approx \nu_{int}/4$. Par ailleurs, les techniques de génération du laser XUV diffèrent dans ces expériences. Le laser d'yttrium est notamment généré par un laser de pompe doublé en fréquence ($\lambda = 0,53 \mu\text{m}$). Les conditions du plasma dans la zone de gain atteignent alors une température ionique de 600 eV et une densité électronique de $1,2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ce qui est significativement plus élevé que dans les lasers XUV QSS-1 générés par un laser de pompe opérant à sa fréquence fondamentale. Enfin, ces mesures ont été obtenues par des méthodes diverses : les largeurs spectrales des lasers XUV de Se et Ge ont directement été mesurées à l'aide de spectromètres-réseaux à haute résolution. Tandis que notre mesure et celle réalisée sur le laser XUV de Y sont basées sur une autocorrélation en champ électrique. Dans le cas du laser XUV de Y l'interféromètre utilisé était un interféromètre de Mach-Zehnder (à division d'amplitude) constitué d'une paire de miroirs multicouches et d'une paire de séparatrices XUV multicouches.

L'analyse de l'ensemble de ces mesures en tenant compte des différences énoncées ci-dessus nous permet de déduire quelques tendances et de percevoir leur cohérence. Ainsi, on peut voir que nos mesures sont en bon accord avec celles des lasers XUV de Ge et Se lorsque l'on tient compte du produit gain-longueur (G.L). Sur la figure 3.11 sont tracées ensemble en fonction du produit gain-longueur les largeurs spectrales mesurées sur le laser XUV de zinc et de sélénium [Koch 1994] pour lequel un rétrécissement spectral par le gain a également été observé expérimentalement. La mesure réalisée sur le laser XUV de zinc opérant en double-passage est tracée en fonction du produit gain - longueur effectif donné par : $(G.L)_{\text{eff}} = 2 \times g_0 \times L + \ln(R_{\text{eff}}) = 11,2$. La largeur spectrale mesurée pour le laser XUV d'yttrium saturé quant à elle est deux fois plus large que celle du laser XUV de zinc saturé. Cela suppose que la largeur spectrale intrinsèque du laser XUV d'yttrium soit environ deux fois supérieure à celle du laser XUV de zinc. Ceci s'explique par les différentes conditions du plasma dans la zone de gain, en particulier la densité électronique qui est environ deux fois plus élevée dans le cas du laser XUV d'yttrium. Or, la

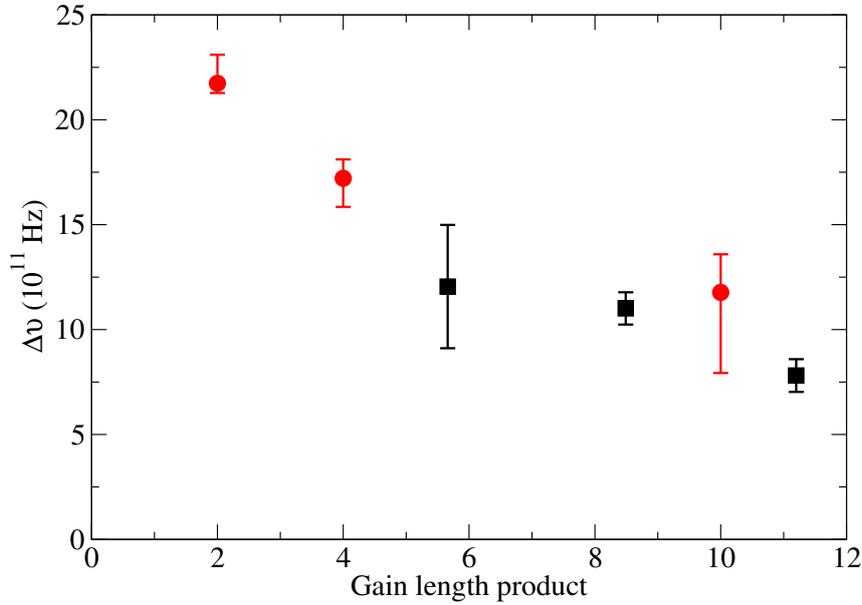


FIGURE 3.11 – (Carré noirs) Mesures de largeurs spectrales effectuées lors de notre campagne expérimentale sur le laser QSS-1 de zinc (mêmes données que dans la fig. 3.9) en fonction du produit gain - longueur (G.L). Pour la largeur spectrale mesurée en double passage à saturation, une valeur effective de G.L est utilisée (voir texte). (Ronds rouges) mesures de largeurs spectrales du laser XUV QSS-1 de sélénium néonoïde issues de [Koch 1994] (fig. 11). Ces deux séries de mesures sont en bon accord bien qu’elles aient été obtenues par deux méthodes différentes.

densité électronique est responsable de l’élargissement collisionnel de la raie. Il a notamment été montré [Calisti 2013] que pour les lasers XUV nickeloides l’élargissement collisionnel augmentait presque linéairement avec N_e .

3.4 Conclusions

Dans ce chapitre nous avons présenté les résultats de la campagne d’expérience qui conclut la caractérisation expérimentale de la largeur spectrale des différents types de lasers XUV opérationnels débutée au milieu des années 2000. Ces résultats ont été publiés dans *Physical Review A* [Le Marec 2015].

Les largeurs spectrales que nous avons mesurées sont en bon accord avec de précédentes mesures de largeurs spectrales réalisées sur des lasers XUV QSS-1. Le rétrécissement spectral par le gain observé expérimentalement est bien reproduit par des calculs de transfert radiatif utilisant une valeur de gain faible signal mesurée lors de la même campagne d’expérience.

Nos résultats montrent que les lasers XUV QSS-1 ont une largeur spectrale non seulement supérieure à celles mesurées sur les autres types de lasers XUV (QSS-d, TCE et OFI) [Meng 2012b], mais également compatible avec l’amplification d’impulsion de durée subpicoseconde. Cela est illustré par le calcul présenté sur la figure 3.12 qui montre (courbes en traits pointillés) l’évolution de la largeur spectrale d’une impulsion harmonique de durée (Fourier-limitée) 30 fs au cours de son amplification dans un plasma possédant les mêmes caractéristiques spectrales que celles donnant les largeurs spectrales mesurées en ASE. On voit que l’impulsion harmonique subit un rétrécissement très violent sur le premier millimètre d’amplification, pour atteindre une largeur spectrale comparable à la largeur spectrale ASE à partir de $z \sim 2$ cm. A cause de ce rétrécissement spectral, la durée de l’impulsion harmonique est allongée, mais reste de l’ordre de 500 fs. On verra toutefois au chapitre 5 que cette description basée sur l’équation de transfert radiatif n’est pas adaptée à l’amplification d’harmonique dans un plasma de laser XUV, qui doit être décrite par un formalisme Bloch-Maxwell.

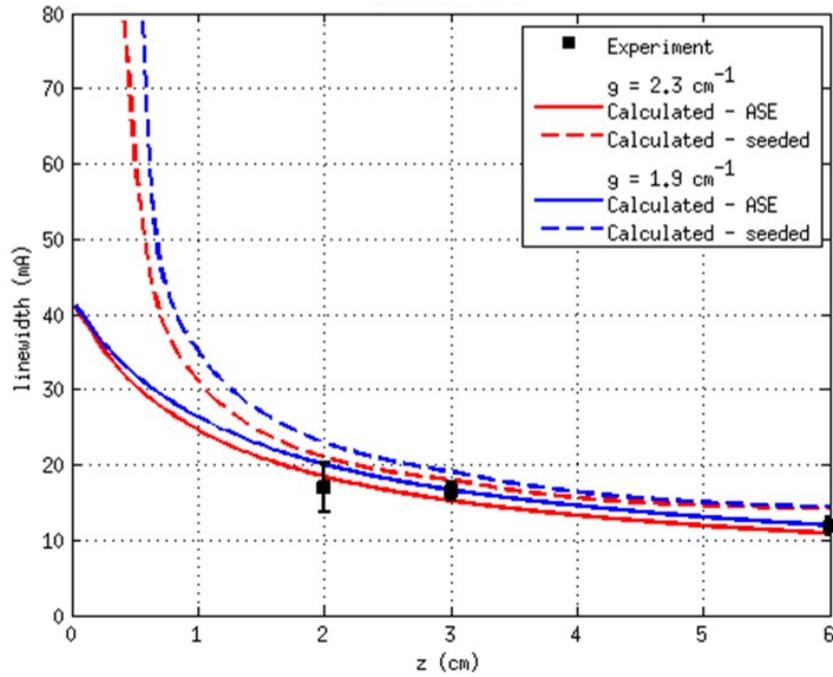


FIGURE 3.12 – Traits plein : largeur spectrale ASE en fonction de la longueur du plasma, pour 2 valeurs de gain indiquées en insert. Pointillés : idem en partant d’une largeur spectrale ~ 100 fois plus grande à $z = 0$, pour simuler l’amplification d’une harmonique injectée dans le même plasma.

Nos mesures effectuées sur le laser QSS de zinc confirment le rôle important des conditions plasma qui règnent dans la zone de gain sur la largeur spectrale de la raie amplifiée. Ainsi les lasers QSS ont une largeur spectrale plus grande que les autres lasers XUV grâce à une densité électronique plus élevée, qui contrôle l’élargissement collisionnel de la raie laser, et dans une moindre mesure, grâce à une température ionique plus grande, qui contrôle l’élargissement Doppler de la raie ($\propto \sqrt{T_i}$). Pour terminer ce chapitre il convient de signaler que des récents progrès, postérieurs à la mesure PALS, ont été réalisés au LOA sur les lasers XUV OFI pour augmenter significativement la densité électronique dans la zone de gain jusqu’à $\sim 1,2 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ [Depresseux 2015].

Effet de la cohérence temporelle partielle des lasers XUV opérant en ASE sur leur caractérisation spectrale

4.1 Introduction

Dans le chapitre précédent nous avons présenté la dernière expérience concluant la vaste campagne expérimentale menée par notre groupe au cours de la dernière décennie visant à caractériser spectralement les différents types de lasers XUV. Pour des raisons évoquées au début du chapitre 2, les largeurs spectrales des lasers XUV ont été indirectement évaluées par mesures d'autocorrélation en champ électrique, à l'aide du même interféromètre à division de front d'onde à différence de marche variable conçu spécialement à cet effet¹. Nous avons vu que l'ensemble de ces résultats concordent avec les mesures de largeurs spectrales de lasers XUV réalisées par d'autres groupes et avec les prédictions numériques, et que la synthèse de ces données avait permis d'établir les lois d'échelles de la variation de la bande spectrale des lasers XUV avec les différents paramètres du plasma amplificateur (densité électronique, températures électronique et ionique) [Klisnick 2016].

Dans le présent chapitre nous allons discuter plus en détail la forme des courbes de visibilité. Nous avons vu que, dans nos expériences, cette forme avait été utilisée pour en déduire les densités spectrales de puissance normalisées $s(\nu)$ des lasers XUV, en faisant une transformée de Fourier de la fonction $V(\tau)$ obtenue par un fit des données expérimentales. Par ailleurs des calculs de transfert radiatif basés sur le modèle de J. A. Koch [Koch 1994] (que nous avons décrit dans le chapitre 2) montrent que la forme du profil spectral de la raie laser XUV tend rapidement vers un profil gaussien durant son amplification (dès que le produit gain – longueur est supérieur à ~ 7), et ce quelle que soit la nature du profil intrinsèque de la raie laser (gaussien, lorentzien ou Voigt) [Meng 2012b]. Ce profil spectral gaussien devrait donc se traduire par des formes de courbe de visibilité $V(\tau)$ gaussiennes, indépendamment du type de laser XUV étudié.

Or, comme nous allons le rappeler plus en détail au prochain paragraphe, seuls deux types de lasers XUV ont montré, de façon reproductible, des courbes de visibilité gaussiennes, à savoir ceux pompés en décharge capillaire (QSS-d) et ceux pompés par une impulsion laser longue (QSS-l). Pour les deux autres types de lasers XUV (OFI et TCE) des formes beaucoup plus complexes et difficiles à interpréter ont été observées. Nous avons vu que les temps de cohérence mesurés pour les 4 types de lasers XUV étudiés sont compris dans un ordre de grandeur autour de la picoseconde ($\sim [0,5 - 5]$ ps) même s'ils varient d'un système à l'autre en fonction des conditions du plasma dans la zone de gain. En revanche, leurs durées d'impulsions sont très différentes, liées à la durée du gain dans le milieu amplificateur. Ainsi les lasers XUV OFI et TCE ont des

1. Présenté en détail dans la section 2.2.

durées d’impulsion de quelques picosecondes, proches de leur temps de cohérence, tandis que les lasers XUV QSS ont des durées beaucoup plus longues, de la centaine de picoseconde (QSS-l) à plus d’une nanoseconde (QSS-d). Par conséquent, on peut diviser les lasers XUV que nous étudions en deux catégories :

- Les lasers XUV ”quasi-cohérents temporellement”, TCE et OFI, dont le gain est transitoire et dont la durée d’impulsion en ASE est de quelques picosecondes, soit quelques fois seulement le temps de cohérence ($\sim [2 - 10] \times \tau_c$).
- Les lasers XUV ”quasi-stationnaires”, QSS-d et QSS-l, dont la durée d’impulsion est ~ 100 ps pour le QSS-l et ~ 1 ns pour le QSS-d, soit 100 à 1000 fois plus longue que le temps de cohérence.

Nous allons voir que ces deux régimes distincts de cohérence sont à l’origine des différences de comportement qui ont été observées dans la forme des courbes de visibilité. Nous utiliserons pour cela un modèle d’impulsions partiellement cohérentes initialement développé par d’autres auteurs pour décrire les impulsions émises par les lasers XUV à électrons libres en régime SASE. Nous verrons par ailleurs que des observations similaires ont été faites pour ces sources et qu’elles ont essentiellement la même origine.

Les interprétations faites à partir du modèle simple d’impulsions partiellement cohérentes sont confirmées et validées par les simulations numériques que nous avons réalisées à partir du code COLAX. Ce code, que nous avons présenté au chapitre 2, décrit directement l’évolution temporelle du champ de l’impulsion laser XUV, par amplification d’émission spontanée.

Nous présentons ensuite une étude systématique du rôle de la durée d’impulsion, à temps de cohérence constant, sur la forme de la courbe de visibilité, afin d’établir des lois de variation qui pourraient être utilisées pour extraire ces informations de données expérimentales.

Pour terminer nous décrivons les principes d’une expérience, qui n’a pu être réalisée avant la fin de cette thèse, destinée à mesurer le signal d’autocorrélation d’une impulsion laser XUV en un seul tir. Cette mesure est basée sur l’utilisation d’un nouvel interféromètre ”monocoup”, conçu par nos collaborateurs de l’équipe LASERIX et dont j’ai participé à la mise en place et aux premiers tests.

4.2 Résumé des observations expérimentales

Dans cette section nous résumons les principales observations expérimentales qui ont motivé le travail de simulations numériques décrit dans ce chapitre. Ces observations portent sur la forme générale de la courbe de visibilité $V(\tau)$ issue des mesures effectuées sur les différents types de laser XUV avec le même interféromètre à bi-dièdre.

Dès la première mesure réalisée en 2004 au LULI sur un laser XUV TCE d’argent nickeloïde opérant en ASE, il est clairement apparu (voir figure 4.1 gauche) que l’ensemble des points expérimentaux ne pouvait pas être fitté par une fonction gaussienne mais qu’une fonction de type exponentielle décroissante semblait plus adaptée (ce qui correspondait à un profil spectral lorentzien) [Guilbaud 2006b]. En 2009, des nouvelles expériences ont été réalisées à la Colorado State University pour caractériser à nouveau un laser XUV TCE (cette fois à partir de molybdène nickeloïde). La courbe de visibilité obtenue en ASE a également soulevé des questions [Meng 2011] : la fonction la plus satisfaisante pour décrire les points expérimentaux était une somme de deux gaussiennes (voir figure 4.1 droite). L’interprétation de la forme des courbes de visibilité $V(\tau)$ n’étant pas comprise, les auteurs ont préféré utiliser des définitions quadratiques du temps de cohérence et de la largeur spectrale, qui, contrairement aux définitions habituelles dans la communauté (respectivement largeurs à $1/e$ et à mi-hauteur), sont moins sensibles à la

forme de $V(\tau)$. Dans les deux expériences il a été noté que la largeur de raie déduite des mesures était plus faible (d'un facteur 2 à 4) que celle prédite par les simulations numériques (calcul d'élargissement + transfert radiatif).

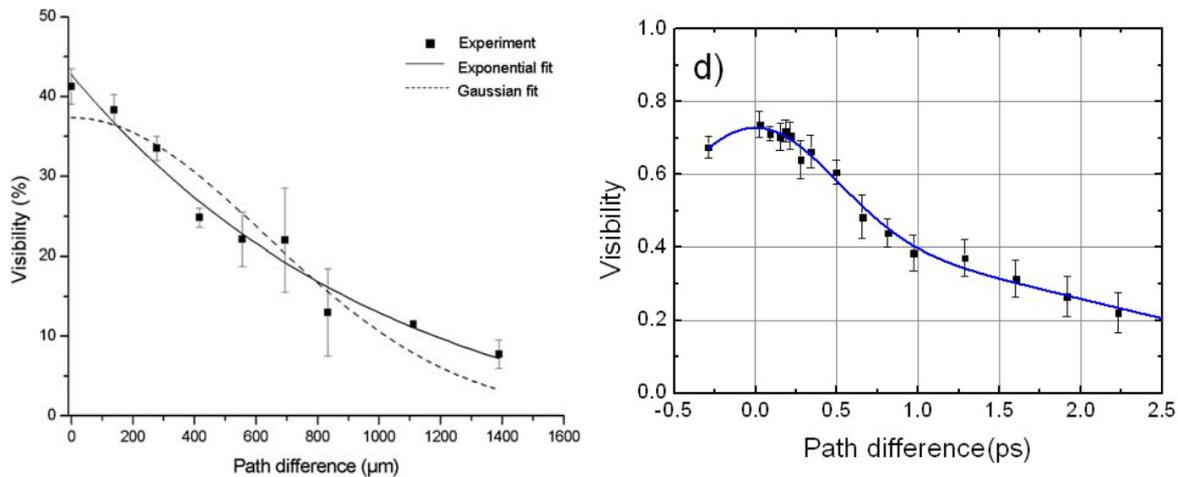


FIGURE 4.1 – Mesures réalisées sur des lasers XUV TCE avec l'interféromètre à bi-dièdre : (gauche) première mesure réalisée sur le laser XUV d'Ag nickelöide émettant à 13,9 nm (figure 2(d) de [Guilbaud 2006b]) et (droite) mesure réalisée sur le laser XUV de Mo nickelöide émettant à 18,9 nm (figure 3 de [Meng 2011]).

En 2010, des mesures ont été réalisées au LOA sur un laser XUV OFI de krypton nickelöide. Dans ce cas, les courbes de visibilité mesurées montraient une forme d'exponentielle décroissante [Tissandier 2010, Guilbaud 2010] (voir figure 4.2).

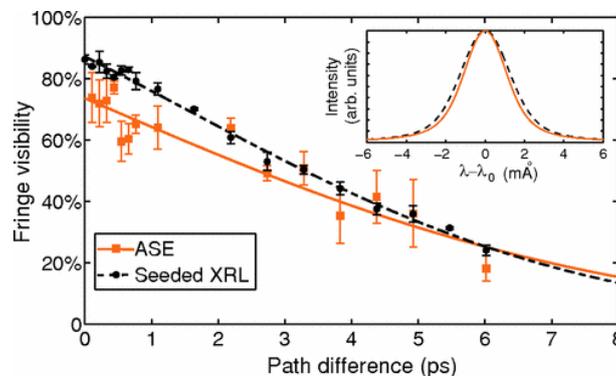


FIGURE 4.2 – Mesure réalisée avec l'interféromètre à bi-dièdre sur le laser XUV OFI de Kr nickelöide émettant à 32,8 nm (figure 1 de [Tissandier 2010]) opérant en ASE (orange) et en injecté (noir).

Des indications complémentaires sont venues des mesures réalisées ensuite avec deux types de lasers XUV QSS, de durées beaucoup plus longues : le laser XUV de PALS (QSS-1, mesure décrite dans le chapitre 3) et le laser XUV à décharge capillaire (QSS-d) de la Colorado State University. Dans les deux cas, et de façon très reproductible, les courbes de visibilité observées avaient une forme gaussienne (voir figure 4.3). Cette forme gaussienne correspond à un profil spectral gaussien, ce qui est en accord avec les prédictions des simulations numériques de transfert radiatif. Par ailleurs l'accord entre les largeurs spectrales mesurées et calculées était bien meilleur que dans les cas décrits plus haut.

En résumé les questions que nous avons cherché à résoudre étaient les suivantes :

- pourquoi les courbes de visibilité des lasers XUV à impulsion courte (proche du temps de cohérence) n’ont-elle pas une forme gaussienne, comme observé dans les lasers XUV QSS, et comme prédit par les simulations numériques ?
- d’où provient le désaccord plus prononcé entre largeurs spectrales mesurées et calculés pour les lasers XUV TCE et OFI ?

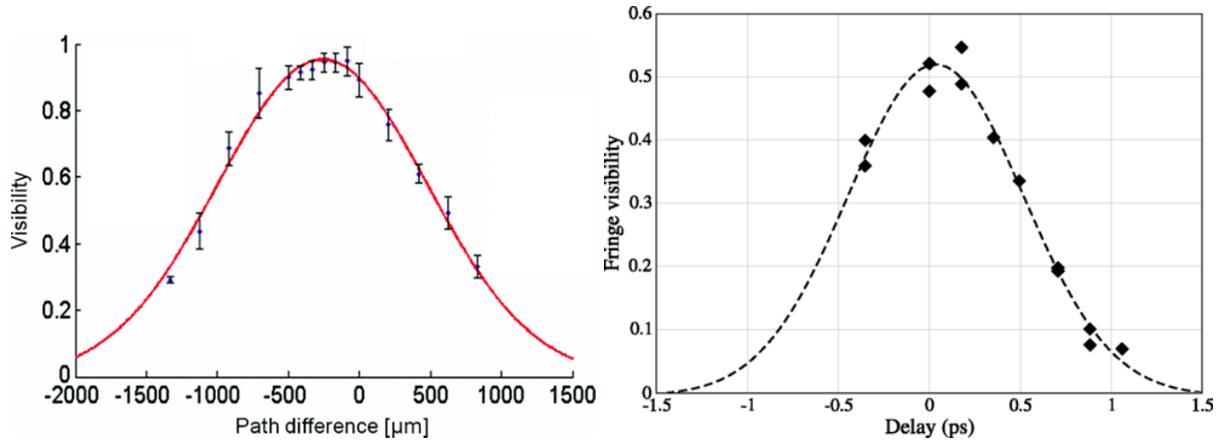


FIGURE 4.3 – Mesures réalisées avec l’interféromètre à bi-dièdre sur des lasers XUV opérant en régime quasi-stationnaire : (gauche) laser XUV à décharge capillaire QSS-d d’Ar néonoïde émettant à 46,9 nm (figure 3 de [Urbanski 2012b]) et (droite) sur le laser XUV quasi-stationnaire QSS-l de Zn néonoïde émettant à 21,2 nm (figure 2 de [Le Marec 2015], mesure présentée dans le chapitre précédent).

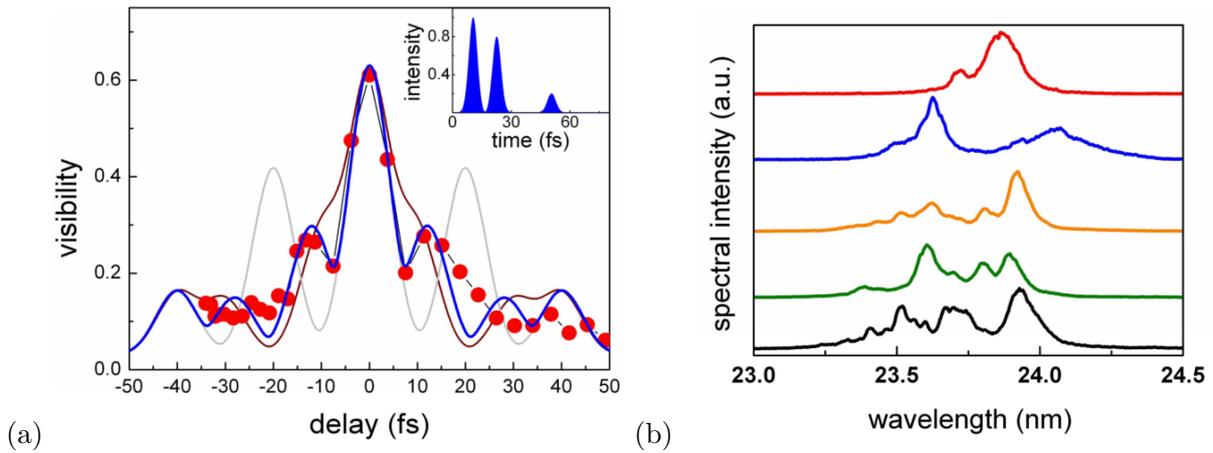


FIGURE 4.4 – Mesure d’autocorrélation en champ et spectres monocoups du XFEL FLASH opérant à 23,9 nm [Mitzner 2008]. Un temps de cohérence (mi-largeur à mi-hauteur) de $\tau_c = 6$ fs a été mesuré, sachant que la durée d’impulsion est de $\tau_{pulse} = 29$ fs $\approx 5 \times \tau_c$.

Pour compléter ce tour d’horizon des observations expérimentales, il est important de noter que des observations similaires ont été faites sur des mesures d’autocorrélation en champ réalisées sur des lasers XUV à électrons libres (X-FEL) opérant en mode SASE (*Self-Amplified Spontaneous Emission*) [Mitzner 2008, Schlotter 2010, Roling 2011, Singer 2012]. Ces mesures ont été réalisées à l’aide d’interféromètres à division de front-d’onde et différence de marche variable semblables (sur le principe) au notre. Deux exemples de résultats sont présentés sur les figures 4.4 et 4.5.

La figure 4.4 (a) présente la courbe de visibilité mesurée sur le XUV-FEL de FLASH par Mitzner et al. [Mitzner 2008]. On voit qu’au centre de la courbe de visibilité (autour du délai nul) peut être décrit par une fonction gaussienne de demi-largeur à mi-hauteur de 6 fs (attribué au temps

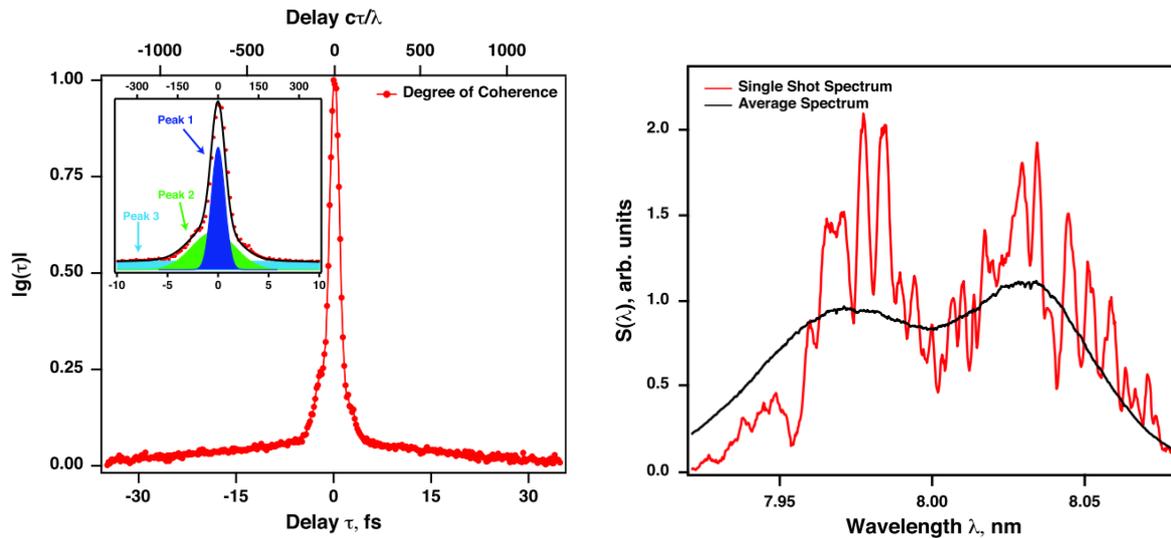


FIGURE 4.5 – Mesure d’autocorrélation en champ et spectres monocoups du XFEL FLASH opérant à 8 nm [Mitzner 2008]. Le temps de cohérence (FWHM) est de $\tau_c = 1,5$ fs. La courbe de visibilité présente également un piédestal de largeur à mi-hauteur 42 fs, soit $\approx 28 \times \tau_c$.

de cohérence de l’impulsion). De part et d’autre, les points expérimentaux font apparaître des structures, semblables à des *sidebands*. Ces structures sont interprétées par les auteurs comme étant dues à la présence de pics, ou “*spikes*”, dans la forme temporelle de l’impulsion. Ces spikes, d’une durée typique de l’ordre du temps de cohérence (quelques femtosecondes) n’ont jamais été observés directement. Par contre leur présence se déduit indirectement des spectres monocoups qui sont présentés sur la figure 4.4 (b). On constate que ces spectres sont différents tir-à-tir et comportent également des spikes, caractéristiques du nombre limité de modes temporels, comme nous le verrons en détail au cours de ce chapitre. D’après les auteurs de [Mitzner 2008], les structures de “sidebands” sur la mesure d’autocorrélation (4.4 (a)) seraient le résultat de la corrélation de ces différents modes temporels entre eux. Afin d’étayer cette hypothèse, les auteurs ont réalisé des calculs d’autocorrélation à partir d’impulsions partiellement cohérentes décrites par une succession d’impulsions gaussiennes de même durée et limitées par Fourier (i.e. de phase plate), espacées de différentes durées, et d’intensités relatives variées. La courbe bleue de la figure 4.4 (a), correspond à l’autocorrélation de la séquence d’impulsions montrée en insert. Si le modèle utilisé pour décrire une impulsion partiellement cohérente ne semble pas être très physique, il fait néanmoins apparaître des structures sur la courbe d’autocorrélation de part et d’autre du pic central, c’est-à-dire au-delà du temps de cohérence des impulsions Fourier limitées qui composent l’impulsion.

La figure 4.5 (a) extraite de l’article de Singer et al. [Singer 2012] montre un autre exemple de courbe de visibilité obtenue sur FLASH, à une longueur d’onde et avec des conditions de fonctionnement du FEL un peu différentes. Ici encore on observe un pic central gaussien de demi-largeur à mi-hauteur (HWHM) 1,54 fs (temps de cohérence). Ce pic est entouré d’un long piédestal qui s’étend sur tout l’intervalle de délai exploré (± 30 fs) et de niveau environ 10 fois plus faible que le pic central. Ce piédestal peut être décrit par une gaussienne de largeur 42 fs (FWHM), que les auteurs interprètent, là encore, comme étant lié à la corrélation entre différents spikes temporels de l’impulsion. Le pic central gaussien de largeur 1,54 fs HWHM correspond à un spectre gaussien centré en $\lambda = 8$ nm de largeur $\Delta\lambda = 0,12$ nm FWHM. Cette valeur concorde assez bien avec celle du spectre moyen montré sur la figure 4.5 (b), bien que sa forme ne soit pas vraiment gaussienne. On constate par ailleurs que le spectre monocoup sur la même figure comporte beaucoup plus de spikes que ceux de la figure 4.4 (b). Dans le domaine temporel cette

impulsion devrait comporter en moyenne le même nombre de spikes, ce qui permet aux auteurs d'estimer la durée de leur impulsion à ~ 100 fs. Le temps de cohérence mesuré étant de $\sim 1,5$ fs, l'impulsion est donc moins cohérente temporellement que dans l'expérience de Mitzner et al. illustrée sur la figure 4.4 (3 à 4 modes temporels).

On remarque donc à nouveau, comme on l'a fait pour les lasers XUV plasma, que la distorsion de la courbe de visibilité par rapport à une forme gaussienne est plus prononcée lorsque la durée d'impulsion est proche du temps de cohérence.

En conclusion l'ensemble de ces observations expérimentales suggère que la durée de l'impulsion est un paramètre important qui influence la forme de la courbe de visibilité obtenue par autocorrélation du champ dans ces expériences. Pour étudier cet effet, nous avons adapté un modèle, proposé par Pfeifer et al. en 2010 [Pfeifer 2010], pour décrire les propriétés spectrales et temporelles des impulsions partiellement cohérentes émises par les lasers à électrons libres en régime SASE. Nous allons décrire le modèle et l'implantation numérique que nous avons réalisée. Puis nous présenterons et discuterons les calculs d'autocorrélation des impulsions générées par ce modèle dans les deux cas qui nous intéressent : (i) durée d'impulsion proche du temps de cohérence ; (ii) durée d'impulsion grande devant le temps de cohérence.

4.3 Modèle de source partiellement cohérente temporellement et grandeurs associées

Dans le modèle proposé par Pfeifer et al. [Pfeifer 2010], la cohérence temporelle partielle de l'impulsion est introduite par une phase spectrale aléatoire du champ électrique. Cette phase aléatoire est reliée à la nature stochastique de l'émission spontanée qui est à la source de l'impulsion en régime SASE pour les lasers à électrons libres, ou en régime ASE pour les lasers XUV plasma. Le code basé sur ce modèle permet de générer des impulsions partiellement cohérentes temporellement, uniques à chaque tirage aléatoire de la phase spectrale, mais de mêmes propriétés spectrales et temporelles. Ces dernières sont mises en évidence lorsque l'on moyenne les grandeurs qui les caractérisent (spectre de puissance et degré de cohérence complexe) sur un nombre suffisant d'impulsions individuelles.

4.3.1 Etapes de la génération d'une impulsion partiellement cohérente

Les différentes étapes de la génération d'une impulsion partiellement cohérente temporellement sont représentées sur la figure 4.6 par les étapes A.1 à A.3 :

(A.1) On exprime le champ complexe $E_0(\nu - \nu_0)$ de la manière suivante :

$$E_0(\nu - \nu_0) = A(\nu - \nu_0)e^{i\phi(\nu - \nu_0)}$$

L'amplitude A_0 , réelle, est telle que : $A_0(\nu - \nu_0) = \sqrt{I_0(\nu - \nu_0)}$, où $I_0(\nu - \nu_0)$ est le spectre de l'impulsion en intensité, paramètre d'entrée du calcul dont on définit la forme et la largeur spectrale à mi-hauteur $\Delta\nu$. L'amplitude $E_0(\nu - \nu_0)$ est discrétisée en L cellules de taille $\delta\nu$. Dans chaque cellule la phase $\phi(\nu_k - \nu_0)$ ($k = 1$ à L) est un nombre aléatoire compris entre 0 et 2π .

Comme dans [Pfeifer 2010], on fait l'hypothèse de monochromaticité, c'est-à-dire que la largeur spectrale est très inférieure devant la fréquence centrale du rayonnement ($\Delta\nu \ll \nu_0$), c'est-à-dire que la période d'un cycle optique $T_0 = 1/\nu_0$ est très inférieure au temps de cohérence du rayonnement $\tau_c \propto 1/\Delta\nu$. Dans le domaine XUV, la période de la partie oscil-

lante du champ est de l'ordre de $T_0 \sim 10$ as. Cette hypothèse est donc tout à fait vérifiée dans le cas des lasers à électrons libres XUV, et elle l'est a fortiori pour les lasers XUV qui nous intéressent, puisque leur temps de cohérence typiquement 100 fois plus long, de l'ordre de $\tau_c \sim 1$ ps. Ainsi, on ne décrit pas la porteuse de l'impulsion qui varie beaucoup plus vite que l'enveloppe complexe du champ, et l'échelle de temps caractéristique sur laquelle l'impulsion subit des variations est de l'ordre de τ_c .

(A.2) Pour décrire $E_0(t)$ le champ complexe de l'impulsion dans le domaine temporel, on fait une transformée de Fourier inverse de $E_0(\nu - \nu_0)$. À cause de sa phase spectrale aléatoire, l'impulsion obtenue est infiniment longue temporellement ².

$$E_0(t) = \mathcal{F}^{-1}\{E_0(\nu - \nu_0)\} = \int_{-\infty}^{\infty} E_0(\nu - \nu_0).e^{i2\pi\nu t} d\nu.$$

(A.3) On multiplie ensuite $E_0(t)$ par un filtre temporel $F(t)$ afin de générer une impulsion partiellement cohérente de durée τ_{pulse} :

$$E_f(t) = E_0(t) \times F(t).$$

Dans la pratique, les paramètres d'entrée τ_{pulse} (durée d'impulsion, définie comme la largeur à mi-hauteur de $|F(t)|^2$) et $\Delta\nu$ (largeur spectrale) sont donnés sous la forme d'un seul paramètre : le nombre de modes temporels de l'impulsion m . Cette grandeur, plus pertinente pour notre étude, est définie comme le rapport entre la durée τ_{pulse} et la durée limite de Fourier τ_{FL} (définie comme la largeur à mi-hauteur de $|E_0(t)|^2$), imposée par la forme du spectre et sa largeur $\Delta\nu$: $\tau_{FL} = \alpha\Delta\nu$ (où α est un facteur de déconvolution qui dépend de la forme du spectre) :

$$m = \frac{\tau_{pulse}}{\tau_{FL}}.$$

Ce nombre de modes temporels caractérise la cohérence partielle de l'impulsion. Lorsqu'il tend vers l'infini ($m \rightarrow \infty$), l'impulsion est quasiment stationnaire et incohérente, tandis que lorsqu'il tend vers 1 ($m \rightarrow 1$), l'impulsion est quasiment parfaitement cohérente temporellement (ou "limitée par transformée de Fourier"), sa phase spectrale et sa phase temporelle sont plates).

Pour ce qui est de la forme de $F(t)$, on choisit dans un premier temps une enveloppe de la même forme que l'impulsion Fourier-limitée. Par exemple on utilisera une gaussienne si le spectre $I_0(\nu - \nu_0)$ est gaussien ou une exponentielle décroissante si le spectre est lorentzien. Rien n'impose dans le modèle que la forme du filtre temporel $F_0(t)$ soit celle de l'impulsion Fourier-limitée lorsque la phase spectrale est non-constante. Néanmoins, cette forme ne peut pas être complètement arbitraire. Si l'on souhaite lui donner une autre forme plus réaliste (qui corresponde par exemple au résultat d'un calcul Bloch-Maxwell du code COLAX, comme nous le discuterons plus loin), il faut qu'elle soit décrite par une fonction analytique qui tende progressivement vers la transformée de Fourier du spectre lorsque le nombre de modes temporels m tend vers 1.

2. Sa durée dépend en fait du maillage en fréquence et s'étend jusqu'à une valeur $T_s = 1/\delta\nu$, où T_s est la taille de l'échantillon du signal en temps et $\delta\nu$ la taille d'une maille en fréquence (voir section "maillage").

4.3.2 Calcul des grandeurs associées à l'enveloppe temporelle de l'impulsion

À partir de l'impulsion $E_f(t)$ ainsi générée, on peut ensuite calculer différentes grandeurs associées que nous allons maintenant discuter. Ces grandeurs et la façon dont elles sont obtenues sont résumées sur la figure 4.6 (étapes B à F). On distinguera les grandeurs calculées pour une impulsion unique (un tirage de la phase aléatoire $\phi(\nu_k - \nu_0)$) et celles moyennées sur un nombre suffisamment grand d'impulsions (ne différant entre elles que par le tirage de la phase aléatoire), c'est-à-dire des moyennes d'ensemble de ces grandeurs.

Spectre de puissance $I_f(\nu - \nu_0)$:

On calcule le champ de l'impulsion dans le domaine spectral $E_f(\nu - \nu_0)$ en effectuant une transformée de Fourier du champ dans le domaine temporel $E_f(t)$. Le spectre de puissance est donné par le module au carré de $E_f(t)$ (étape C.1) :

$$I_f(\nu - \nu_0) \propto |E_f[\nu - \nu_0]|^2.$$

Degré de cohérence complexe $\gamma(\tau)$:

La fonction d'autocorrélation de l'impulsion $\Gamma(\tau)$ dont la normalisation par sa valeur en zéro $\Gamma(0)$ donne le degré de cohérence complexe $\gamma(\tau)$ (étape F du schéma figure 4.6) peut être obtenu à partir de $E_f(t)$ par deux méthodes distinctes.

• Méthode 1 :

La première méthode consiste à calculer directement la fonction d'autocorrélation de l'impulsion en effectuant le produit de corrélation du champ électrique entre deux points séparés temporellement.

(D.1) Pour cela, on calcule le produit d'autocorrélation du champ $E_f(t)$ entre les instants t_1 et t_2 :

$$\Gamma_{2t}(t_1, t_2) = E_f(t_1)E_f^*(t_2).$$

(D.2) On intègre ensuite $\Gamma_{2t}(t_1, t_2)$ sur le temps en posant $\tau = t_2 - t_1$, le délai entre les points du champ corrélés, afin d'obtenir la fonction d'autocorrélation $\Gamma(\tau)$ en fonction du délai et telle que nous l'avons définie dans le chapitre 1.

$$\Gamma(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} E_f(t)E_f^*(t + \tau)dt.$$

• Méthode 2 :

D'après le théorème de Wiener - Khintchine (voir chapitre 1) la fonction d'autocorrélation du champ électrique $\Gamma(\tau)$ est donnée par la transformée de Fourier inverse du spectre de puissance. La seconde méthode consiste donc à calculer le spectre de l'impulsion $E_f(t)$ (étapes B et C.1), puis le degré de cohérence par transformées de Fourier inverse (étape C.2).

$$\Gamma(\tau) = \mathcal{F}^{-1}\{I_f(\nu - \nu_0)\} = \int_{-\infty}^{\infty} I_0(\nu - \nu_0).e^{i2\pi\nu\tau}d\nu$$

La première méthode permet de tracer une carte de la fonction d'autocorrélation à 2 temps

$\Gamma_{2t}(t_1, t_2)$, une grandeur qui n'est pas accessible expérimentalement. Mais, comme nous le verrons dans la suite, cette grandeur permet de caractériser totalement les propriétés de cohérence temporelle des impulsions générées par le modèle et donc de faciliter la compréhension et l'interprétation des résultats de notre étude. En revanche, le temps de calcul de la seconde méthode est considérablement plus court que la précédente pour des raisons que l'on discutera plus loin (4.3.3).

Le degré de cohérence complexe $\gamma(\tau)$ est la grandeur qui nous intéresse plus particulièrement pour l'interprétation de nos observations expérimentales. En effet la visibilité des franges est une mesure du module de $\gamma(\tau)$. Par contre il faut se souvenir que dans nos expériences la courbe de visibilité $V(\tau)$ est obtenue par un fit des mesures effectuées tir-à-tir en faisant varier le délai τ . Nos mesures mettent donc en jeu une moyenne statistique, sur un nombre qu'on espère suffisamment élevé d'impulsions monocoup.

Grandeurs moyennées sur N tirages de la phase :

Les grandeurs précédentes peuvent être calculées autant de fois que nécessaire, en changeant à chaque fois la phase aléatoire $\phi(\nu - \nu_0)$, afin de calculer leur moyenne statistique (moyenne d'ensemble sur un nombre N suffisamment grand). Le nombre de tirages N doit être tel que la moyenne d'une grandeur corresponde à son espérance mathématique. Nous verrons plus loin comment déterminer N en pratique.

On s'intéressera plus particulièrement à trois grandeurs moyennes :

- le spectre de puissance moyen $\langle I_f(\nu - \nu_0) \rangle_N$, ou la même grandeur normalisée $\langle S(\nu - \nu_0) \rangle_N$. C'est la grandeur que l'on cherche à caractériser dans nos expériences,
- le degré de cohérence complexe moyen $\langle \gamma(\tau) \rangle_N$, qui est la TF du spectre de puissance normalisé moyen,
- la moyenne du module du degré de cohérence complexe $\langle |\gamma(\tau)| \rangle_N$. Cette grandeur est particulièrement importante car c'est celle qui peut-être directement comparée à nos mesures expérimentales de visibilité des franges.

En effet, nous avons vu au chapitre 1 que le contraste des franges formées sur un détecteur par deux faisceaux qui interfèrent correspond au module de leur degré de cohérence complexe $|\gamma_{12}(\tau)|$. Dans nos mesures de cohérence temporelle avec l'interféromètre à bi-dièdre, nous collectons plusieurs interférogrammes pour chaque retard τ , non seulement pour ne pas être sensible aux fluctuations tir-à-tir des conditions de génération du laser XUV, mais surtout à cause de la nature stochastique du rayonnement en mode ASE. En effet, dans des conditions de génération identiques, chaque tir laser XUV - ASE produit une impulsion unique qui représente une réalisation de l'émission spontanée qui est un processus aléatoire. Nos mesures de visibilité sont ensuite fittées par une fonction analytique appropriée, ce qui permet d'obtenir une courbe de visibilité $V(\tau)$. Ces courbes de visibilité, dont on cherche ici à comprendre la forme, donnent donc l'espérance de la visibilité des franges pour chaque délai, c'est-à-dire la visibilité moyenne que l'on obtiendrait en faisant la mesure sur un très grand nombre d'impulsions. La grandeur pertinente à comparer à ces courbes expérimentales $V(\tau)$ est donc $\langle |\gamma(\tau)| \rangle_N$, la moyenne des modules du degré de cohérence d'un ensemble de N tirages d'impulsions de mêmes propriétés spectrales et temporelles.

Les trois grandeurs ci-dessus sont donc définies comme :

$$\langle S(\nu - \nu_0) \rangle_N = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N S(\nu - \nu_0)_k$$

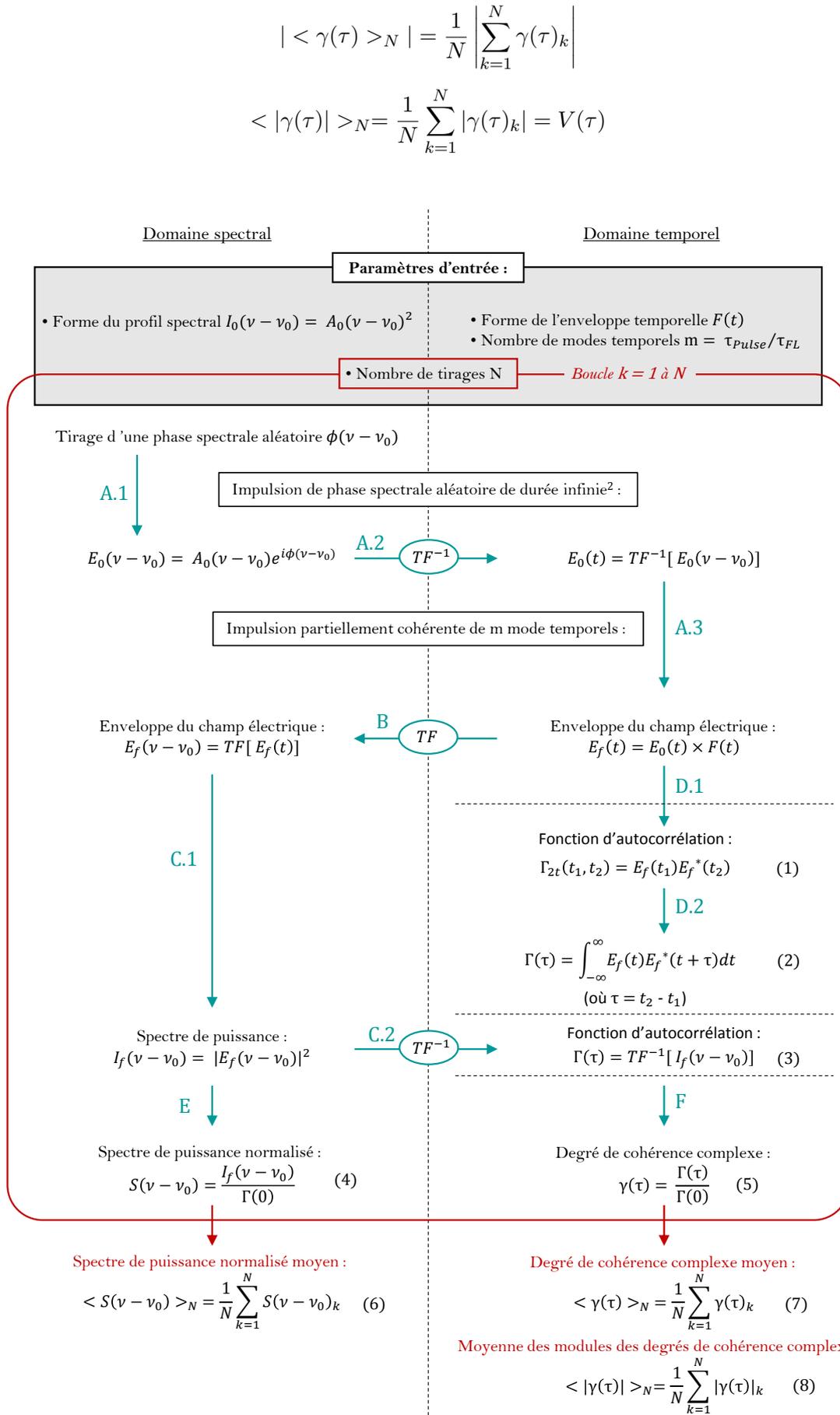


FIGURE 4.6 – Architecture du code utilisé pour calculer les grandeurs associées à l'impulsion partiellement cohérente temporellement (voir texte pour une description détaillée).

4.3.3 Implantation numérique du code

Dans ce paragraphe nous discutons brièvement plusieurs aspects de l'implantation numérique du modèle d'impulsion partiellement cohérente temporellement et des calculs des grandeurs associées.

Maillage :

Les transformées de Fourier du code sont calculées à l'aide d'un algorithme de *Fast Fourier Transform* (FFT). Cet algorithme de calcul de transformées de Fourier discrètes rapide nécessite que la taille L du signal soit une puissance de deux :

$$L = 2^\ell \quad (4.1)$$

Une maille représente une durée δt dans le domaine temporel et un intervalle de fréquence $\delta \nu$ dans le domaine fréquentiel. On a les relations suivantes :

$$L \times \delta t = \frac{1}{\delta \nu} \triangleq T_s \quad (4.2)$$

$$L \times \delta \nu = \frac{1}{\delta t} \triangleq F_s \quad (4.3)$$

$$L = T_s \cdot F_s \quad (4.4)$$

où T_s et F_s sont respectivement la taille du support en temps et du support en fréquence sur lesquels on fait le calcul. Le nombre de mailles L , en plus de la condition (4.1), doit être choisi de sorte à ce que T_s et F_s soient suffisamment grands devant respectivement la durée d'impulsion (définie par le nombre de modes temporels $\tau_{pulse} = m \cdot \tau_{FL}$) et la largeur spectrale $\Delta \nu$ de l'impulsion :

$$T_s = K_t \cdot \tau_{pulse} = K_t \cdot m \cdot \tau_{FL} \quad (4.5)$$

$$F_s = K_f \cdot \Delta \nu \quad (4.6)$$

où K_t et K_f sont des facteurs $\gg 1$ (au minimum > 10). Ces deux conditions s'ajoutent à celle imposée par la FFT (4.1) et assurent que les mailles de temps et de fréquence soient suffisamment petites pour décrire les grandeurs sur les plus petits temps et fréquences caractéristiques de leur évolution : $\delta t \ll \tau_{FL}$ et $\delta \nu \ll \Delta \nu$.

Les relations (4.4) à (4.6) impliquent donc que le nombre de mailles L est proportionnel à m (le nombre de modes temporels de l'impulsion). En conséquence, comme mentionné plus haut, le calcul du degré de cohérence complexe $\gamma(\tau)$ par la méthode 1 (autocorrélation à deux temps et intégration temporelle) est beaucoup plus long que par la méthode 2 (TF du spectre de puissance). En effet, pour un signal discrétisé sur L mailles, le calcul de $\gamma(\tau)$ par la méthode 1 nécessite L^2 multiplications. L'algorithme utilisé pour le calcul des transformées de Fourier discrètes dans le code est une FFT (*Fast Fourier Transform*) qui nécessite que le nombre de maille soit une puissance de 2 : $L = 2^\ell$. Dans le cas du calcul par la méthode 2, le calcul est décomposé en ℓ étapes successives ce qui permet de réduire le nombre de multiplications à $\frac{L}{2} \log_2(L)$. Ainsi, puisque l'on fait deux FFT successives, le nombre de multiplications total est réduit à $L \log_2(L)$.

Nous verrons dans la suite que les maillages en fréquence et en temps doivent être très serrés pour nos calculs. De plus, pour décrire des impulsions dont le nombre de modes temporels est élevé (i.e. longues impulsions de faible temps de cohérence) le nombre de mailles L doit être très grand. Concrètement, pour un nombre de modes temporels $m \sim 1000$, le nombre de mailles doit

être de $L \approx 10^5$, ce qui fait un nombre $L^2 \approx 10^{10}$ prohibitif de multiplications avec la première méthode et seulement $L \log_2(L) \approx 5 \times 10^5$ avec la deuxième basée sur des FFT.

Unités :

Dans la suite, nous choisissons d'exprimer les grandeurs temporelles en picosecondes et les grandeurs en fréquence en TéraHertz, son unité complémentaire, qui sont les échelles typiques des lasers XUV que nous étudions. Néanmoins, il faut noter que le même calcul est valable pour tous les couples vérifiant $u_{\text{temps}} = 1/u_{\text{fréq}}$. C'est le cas notamment des échelles fs/PHz par exemple, qui sont les échelles typiques des lasers XUV à électrons libres que nous avons évoqués au début de ce chapitre.

4.4 Rôle de la durée d'impulsion sur l'allure de la courbe de visibilité

Dans cette section nous allons étudier successivement les deux cas qui nous intéressent :

- impulsion avec une forte cohérence temporelle (τ_{pulse} proche du temps de cohérence τ_c),
- impulsion avec une faible cohérence temporelle ($\tau_{pulse} \gg \tau_c$).

Dans chaque cas nous calculerons les mêmes grandeurs, à partir de l'impulsion ou de l'ensemble d'impulsions partiellement cohérentes $E_f(t)$ générées par notre code :

- intensité $I_f(t)$
- spectre de puissance $I_f(\nu - \nu_0)$
- le degré de cohérence complexe $\gamma(\tau)$: sa partie réelle, sa phase, et son module.

Nous verrons ensuite dans chaque cas ce que deviennent ces grandeurs quand elles sont moyennées sur un grand nombre d'impulsions.

Dans tous les cas, on supposera que le spectre de l'impulsion $I_f(\nu - \nu_0)$ est une gaussienne de largeur à mi-hauteur $\Delta\nu = 1$ THz. Dans le domaine temporel l'impulsion Fourier limitée $|E_{FL}(t)|^2$ correspondant à ce spectre est une gaussienne de largeur à mi-hauteur $\tau_{FL} = 0,44$ ps. Le temps de cohérence correspondant est $\tau_c = 0,53$ ps. On rappelle que dans notre modèle, le paramètre pertinent est le nombre m de modes temporels, défini comme le rapport de la durée d'impulsion sur la durée Fourier-limitée : $m = \tau_{pulse}/\tau_{FL}$.

4.4.1 Cas d'une impulsion fortement cohérente temporellement ($\tau_{pulse} = 5 \cdot \tau_{FL}$)

Dans un premier temps, on s'intéresse au cas des impulsions dont la durée est proche de leur durée limite de Fourier, ce qui correspond aux lasers XUV TCE et OFI pour lesquels les formes des courbes de visibilité n'étaient pas comprises. On considère pour le filtre temporel $F(t)$ une durée d'impulsion (en intensité) $\tau_{pulse} = 5 \times \tau_{FL} \sim 2,2$ ps.

Sur la figure 4.7 (a) on montre l'amplitude du champ $E_f(t)$, calculée par notre modèle pour 3 tirages distincts de la phase spectrale aléatoire $\phi(\nu - \nu_0)$. On constate que les sauts de phase aléatoires conduisent à une forme temporelle complexe, et très différente d'un tirage à l'autre. Pour chacune de ces trois réalisations de $E_f(t)$ on calcule l'intensité $I_f(t)$ et le spectre de puissance $I_f(\nu - \nu_0)$ correspondants, représentés sur les figures 4.7 (b) et 4.7 (c) respectivement. On observe sur les deux figures des structures de "spikes". Les impulsions, différentes d'un tirage de la phase à l'autre, ont un spectre de puissance et une intensité $I(t)$ structurés en une succession d'environ m (nombre de modes) spikes.

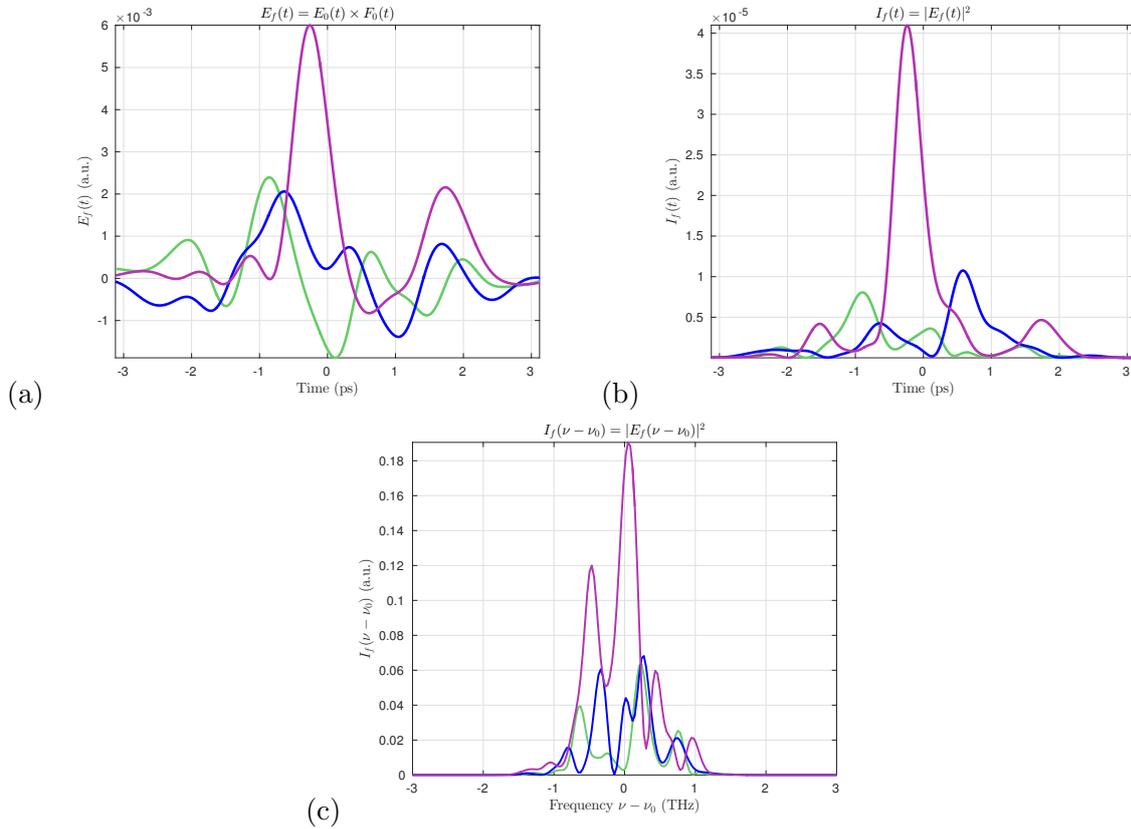


FIGURE 4.7 – (a) Champ $E_f(t)$, (b) intensité $I_f(t)$ et (c) spectre de puissance $I_f(\nu - \nu_0)$ de trois impulsions produites par trois tirages différents de la phase spectrale aléatoire $\phi(\nu - \nu_0)$ (correspondant à chaque couleur). Les trois grandeurs $E_f(t)$, $I_f(t)$ et $I_f(\nu - \nu_0)$ sont exprimées en unités arbitraires. Pour ces calculs la durée du filtre temporel (en intensité) est $\tau_{pulse} = 5 \times \tau_{FL}$.

On peut ainsi voir sur la figure 4.7 (b) que les intensités des trois impulsions représentées comportent environ 5 spikes chacune. En effet, la transformée de Fourier de $E_0(\nu - \nu_0)$ de phase spectrale aléatoire, donne un champ $E_0(t)$ qui comporte des variations brutales de la phase temporelle. Ces sauts de phase sont responsables des structures de spikes dans la forme temporelle de l'intensité $|E_0(t)|^2$. La durée moyenne de chaque spike est de l'ordre de la durée limite de Fourier τ_{FL} , elle-même liée à la largeur du spectre de puissance $\Delta\nu$ (durée de l'impulsion si la phase spectrale est constante). L'impulsion partiellement cohérente $E_f(t)$, représentée sur la figure 4.7 (a), est obtenue en multipliant $E_0(t)$ par un filtre temporel $F(t)$ dont la largeur à mi-hauteur (en intensité) τ_{pulse} vaut m fois la durée limite de Fourier τ_{FL} . Cela revient donc à "découper" $\sim m$ spikes dans l'impulsion infiniment longue $E_0(t)$.

Les spectres de puissance $I_f(t) = |E_f(t)|^2$ de la figure 4.7 (c) comportent eux aussi environ $m = 5$ spikes de largeur moyenne $\sim \Delta\nu/m$. On notera que c'est effectivement ce qui est observé sur les spectres monocoups expérimentaux obtenus sur les impulsions FEL de FLASH (figures 4.4 (b) et 4.5 (b)). En effet, multiplier l'impulsion $E_0(t)$ par un filtre temporel $F(t)$ de durée τ_{pulse}^E (correspondant à une durée en intensité $\tau_{pulse} = \sqrt{2} \cdot \tau_{pulse}^E = m \times \tau_{FL}$) revient, dans l'espace des fréquences, à convoluer le champ $E(\nu - \nu_0)$ par une fonction $F(\nu - \nu_0)$ de largeur spectrale $\frac{2 \cdot \ln(2)}{\pi \tau_{pulse}^E}$. Il en résulte un champ $E_f(\nu - \nu_0)$ correspondant au spectre initial $E_0(\nu - \nu_0)$, dont la phase est un nombre aléatoire dans chaque maille, lissé sur un intervalle spectral $\Delta\nu^E/m$.

Ainsi, la génération d'impulsions partiellement cohérentes par une phase spectrale aléatoire reproduit la nature stochastique du rayonnement ASE et permet de créer des impulsions à

l'allure très variable d'un tirage à l'autre, bien qu'elles soient générées à partir d'un même spectre $I_0(\nu - \nu_0)$ et d'un même filtre temporel $F(t)$. Par conséquent, la forme temporelle en intensité et le spectre de puissance de ces impulsions varient également fortement d'un tirage à l'autre. C'est aussi le cas de leur degré de cohérence complexe, comme nous allons le voir.

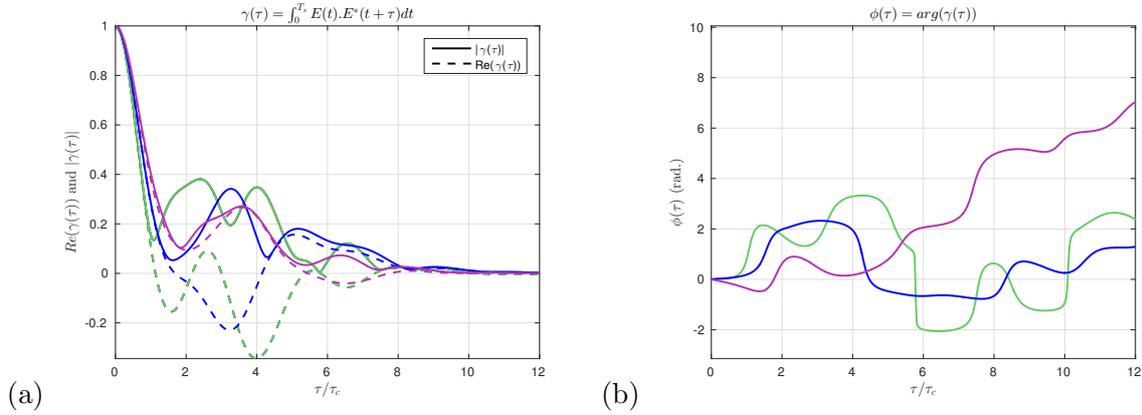


FIGURE 4.8 – (a) Partie réelle (courbes en trait plein) et module (courbes en pointillés), et (b) phase du degré de cohérence complexe pour les trois impulsions présentées sur la figure 4.7. Le délai est exprimé en unité réduite τ/τ_c , où $\tau_c \approx 0,53$ ps.

Sur la figure 4.8 sont représentés les degrés de cohérence complexes $\gamma(\tau)$ correspondant à chacune des trois impulsions de la figure 4.8 (a). Plus exactement nous avons tracé séparément la partie réelle et le module de $\gamma(\tau)$ (fig. 4.8 (a)) d'une part, et sa phase (fig. 4.8 (b)) d'autre part. Le délai τ est exprimé en unités réduites τ/τ_c , où τ_c est le temps de cohérence (ici égal à 0,53 ps). Sur la figure 4.8 (a), on peut voir que pour les trois tirages de $\phi(\nu - \nu_0)$, et pour des délais compris entre $\tau = 0$ et $\tau \approx \tau_c$, la partie réelle (traits pointillés) et le module (traits pleins) du degré de cohérence complexe sont superposés. Ceci se traduit par le fait que la phase (fig. 4.8 (b)) est proche de zéro dans cet intervalle de délais. De plus les courbes correspondant aux 3 tirages sont également superposées. Pour des délais supérieurs, jusqu'à environ $7,5 \times \tau_c$, les courbes se séparent. D'une part, pour un tirage (couleur) donné, la partie réelle de $\gamma(\tau)$ fluctue en prenant des valeurs négatives, ce qui se traduit par une phase non-nulle qui varie fortement avec le délai. Il en résulte que le module $|\gamma(\tau)|$ (toujours positif ou nul) n'est plus égal à la partie réelle. D'autre part, les structures qui apparaissent dans la partie réelle ou le module de $\gamma(\tau)$ varient fortement d'un tirage à l'autre.

Le contraste des franges d'interférences $V(\tau)$ étant une mesure de $|\gamma(\tau)|$ à un délai τ donné, on voit qu'il est possible de mesurer un contraste de franges non nul bien au-delà du temps de cohérence τ_c tel que donné par la largeur $\Delta\nu$ du spectre moyen.

Intéressons-nous maintenant aux moyennes des grandeurs représentées sur un plus grand nombre de tirages. Pour cela on répète les calculs présentés sur les figures 4.7 et 4.8 pour $N = 1000$ tirages différents de la phase spectrale et on calcule la valeur moyenne de chaque grandeur sur cet ensemble. Les figures 4.9 (a) et (b) représentent respectivement le spectre de puissance normalisé moyen $\langle S(\nu - \nu_0) \rangle_N$ et l'intensité moyenne en fonction du temps $\langle I_f(t) \rangle_N$ pour l'ensemble des 1000 tirages. On constate que chacune de ces deux grandeurs tend bien (à un facteur de normalisation près) vers sa valeur moyenne correspondante utilisée pour initier le calcul, c'est-à-dire $S_0(\nu - \nu_0)$ et $|F(t)|^2$. Celles-ci sont également représentées sur les figures par les courbes en traits pointillés. Cette convergence indique que le nombre de tirages est suffisamment élevé et que les moyennes des grandeurs tendent vers leurs espérances mathématiques. Puisque, une fois moyenné sur un grand nombre de réalisations, le spectre de puissance calculé tend vers une gaussienne, sa transformée de Fourier, qui est le degré de cohérence complexe

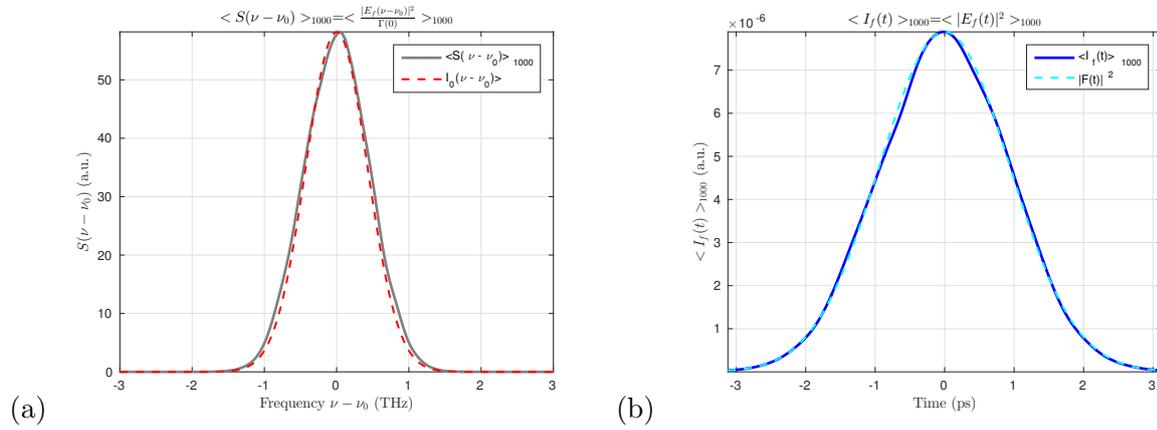


FIGURE 4.9 – (a) Spectre de puissance normalisé moyen sur 1000 tirages $\langle S(\nu - \nu_0) \rangle_{1000}$ (courbe grise) calculé à partir de 1000 impulsions générées par des tirages de la phase spectrale aléatoire. (b) Intensité moyenne en fonction du temps $\langle I_f(t) \rangle_{1000} = \langle |E_f(t)|^2 \rangle_{1000}$ (courbe bleu foncé). Les courbes en pointillés correspondent respectivement au spectre et au filtre temporel utilisés pour générer les impulsions partiellement cohérentes (sur la figure (a) c'est le spectre normalisé qui est représenté : $S_0(\nu - \nu_0) = I_0(\nu - \nu_0)/\Gamma(0)$).

moyenné $\langle \gamma(\tau) \rangle_N$ doit également tendre vers une gaussienne. C'est effectivement ce qui est obtenu en moyennant sur 1000 tirages, comme le montre la figure 4.10 (a), où sont représentés le module (trait plein bleu) et la partie réelle (pointillé vert) du degré complexe de cohérence moyenné $\langle \gamma(\tau) \rangle_{1000}$. On peut constater que les structures qui apparaissaient pour des délais $\tau > \tau_c$ ont pratiquement disparu et que les deux courbes représentant le module et la partie réelle sont presque parfaitement superposées à la même courbe gaussienne. On peut aussi le vérifier sur la figure 4.10 (b), où est représentée la phase $\Phi(\tau)$ du degré de cohérence moyen. Cette phase est effectivement très proche de zéro, son écart-type par rapport à zéro entre τ_c et $10 \times \tau_c$ est de 4,7%.

Ainsi, les structures que l'on observe sur la partie réelle du degré de cohérence complexe des différentes impulsions (courbes en pointillés de la figure 4.8 (a)) finissent par se compenser lorsque l'on moyenne sur un nombre d'impulsions N suffisamment élevé. Dans nos calculs on utilisera comme critère que l'écart-type de $\Phi(\tau)$ soit inférieur à 5% pour des délais τ compris entre 0 et $10 \times \tau_c$ pour déterminer ce nombre de tirages N à inclure dans la moyenne.

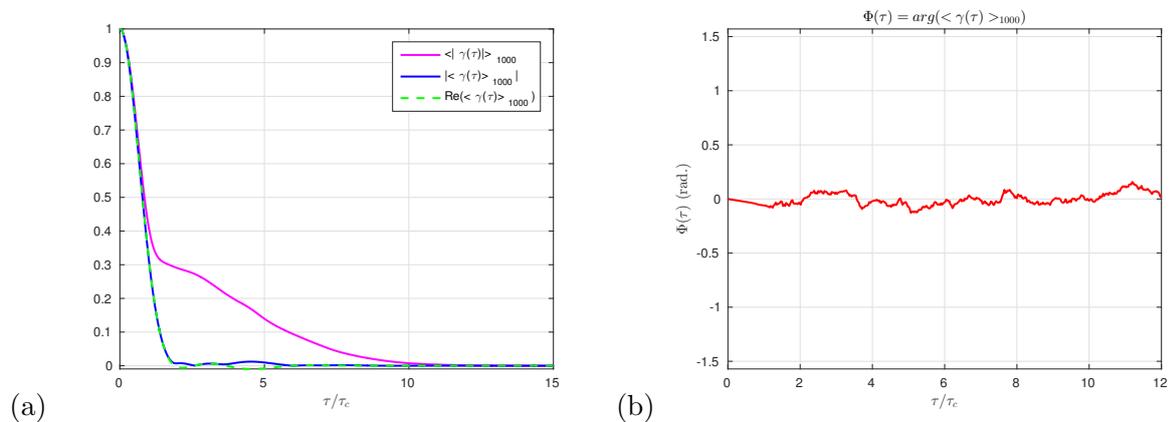


FIGURE 4.10 – (a) Module (trait bleu plein) et partie réelle (pointillés verts) de $\langle \gamma(\tau) \rangle_{1000}$, le degré de cohérence complexe moyenné sur 1000 tirages, et $\langle |\gamma(\tau)| \rangle_{1000}$ moyenne sur 1000 tirages des modules des degrés de cohérence complexes (trait plein rose). (b) Phase $\Phi(\tau)$ de $\langle \gamma(\tau) \rangle_{1000}$.

La courbe en trait plein rose représentée sur la figure 4.10 (a) est le résultat qui nous inté-

resse. Cette courbe représente non pas le module de la moyenne (courbe en trait plein bleu), mais la moyenne des modules du degré de cohérence $\langle |\gamma(\tau)| \rangle_{1000}$, c'est-à-dire la moyenne de 1000 courbes comme celles représentées en trait plein sur la figure 4.8 (a). Les structures apparaissant sur ces courbes individuelles étant toutes positives, elles conduisent à l'apparition d'un épaulement sur la courbe moyenne, pour $\tau > 2\tau_c$. L'allure générale de la courbe rappelle fortement celles observées sur nos courbes de visibilité expérimentales pour les lasers XUV TCE et OFI, comme nous le vérifierons plus quantitativement dans la section 4.5.

Nous allons maintenant présenter les mêmes calculs, mais pour une durée d'impulsion τ_{pulse} beaucoup plus grande que la durée limite de Fourier τ_{FL} .

4.4.2 Cas d'une impulsion faiblement cohérente temporellement ($\tau_{pulse} = 1000 \cdot \tau_{FL}$)

On s'intéresse maintenant au cas des impulsions quasi-stationnaires de durée supérieure de plusieurs ordres de grandeurs à leurs temps de cohérences, et correspondant aux lasers XUV QSS-l et QSS-d. On rappelle que dans ce cas les courbes de visibilité obtenues expérimentalement sont gaussiennes et que les spectres de puissance déduits de ces courbes sont en bon accord avec les prédictions numériques, aussi bien au niveau de leur forme, gaussienne, qu'au niveau de leurs largeurs spectrales $\Delta\nu$.

La figure 4.11 (a) montre le champ $E_f(t)$, pour trois tirages différents de la phase spectrale aléatoire. La seule différence avec les calculs précédents (courbes de la figure 4.7 (a)) est la durée τ_{pulse} , associée au filtre temporel gaussien $F(t)$ (plus précisément à son module au carré), qui est ici beaucoup plus longue : $\tau_{pulse} = 1000 \times \tau_{FL} \approx 440$ ps. Les figures 4.11 (b) et (c) représentent respectivement l'intensité en fonction du temps $I_f(t)$ et le spectre de puissance $I_f(\nu - \nu_0)$ pour chaque tirage. En comparant avec la figure 4.7, on pourrait avoir l'impression que l'impulsion a une variation temporelle plus "chahutée", mais ce n'est qu'une apparence due au changement d'échelle de l'axe horizontal. Comme dans le cas précédent, l'impulsion en intensité $I_f(t)$ comporte environ m spikes (ici 1000), de durée moyenne τ_{FL} ($= 0,44$ ps). Les spectres de puissance correspondants $I_f(\nu - \nu_0)$ comportent également environ $m = 1000$ spikes, mais leurs largeur moyenne $\sim \Delta\nu/m$ est ici beaucoup plus étroite que dans le cas précédent (figure 4.7 (c)).

Comme dans le cas précédent on utilise les 3 impulsions $E_f(t)$ de la figure 4.11 (a) pour calculer les degrés de cohérence complexes $\gamma(\tau)$ correspondants (représentés par leurs modules, parties réelles et phases). Les résultats sont représentés sur les figures 4.12 (a-b). Si on compare les courbes à celles des figures 4.8 (a-b), on constate que :

- dans la gamme de délais $\tau \leq \tau_c$ où le degré de cohérence n'est pas proche de zéro, le module et la partie réelle du degré de cohérence sont superposés pour chaque tirage, et superposés d'un tirage à l'autre, sur une même courbe gaussienne (correspondant à la transformée de Fourier du spectre).
- corrélativement, dans cette gamme $\tau \leq \tau_c$, et pour chaque tirage, la phase du degré de cohérence (fig. 4.12 (b)) est très proche de zéro.
- pour les délais plus grands ($\tau > \tau_c$), la phase s'écarte de zéro, et on observe sur les degrés de cohérence (partie réelle et module) des structures semblables à celles du cas $m = 5$ présenté précédemment. Mais leur amplitude est ici bien plus faible (elles ne dépassent jamais 10 % tandis qu'elles pouvaient atteindre jusqu'à 40 % pour les impulsions de $m = 5$).

Sur la figure 4.13 sont représentées les moyennes d'ensembles des grandeurs présentées sur la figure 4.12. On trouve que $N = 10$ tirages sont suffisants (au lieu de 1000 dans le cas de l'impulsion de 2 ps) pour satisfaire le critère défini précédemment. Les courbes moyennes obtenues sont

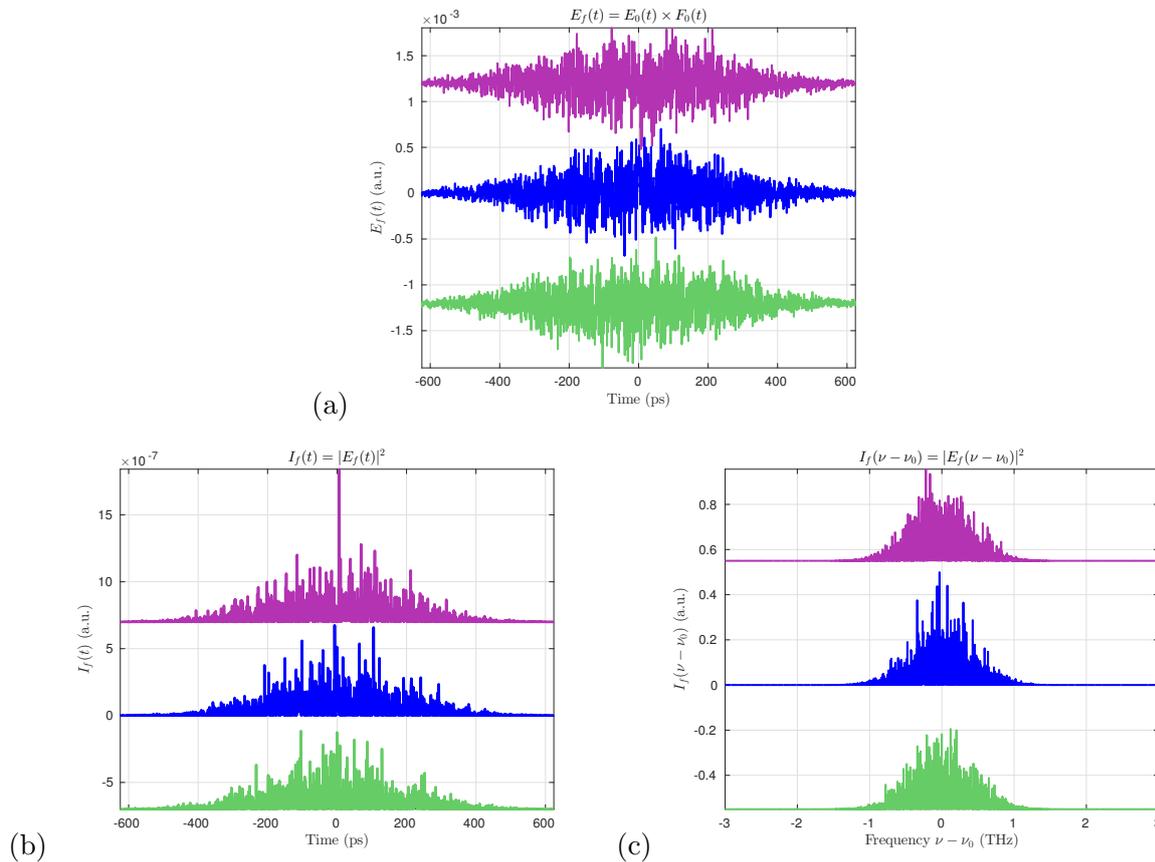


FIGURE 4.11 – (a) Champ $E_f(t)$, (b) intensité $I_f(t)$ et (c) spectre de puissance $I_f(\nu - \nu_0)$ calculés à partir de trois tirages différents de la phase spectrale aléatoire $\phi(\nu - \nu_0)$ pour $m = 1000$. Les trois grandeurs $E_f(t)$, $I_f(t)$ et $I_f(\nu - \nu_0)$ sont exprimées en unités arbitraires.

conformes à ce qui pouvait être déjà anticipé des courbes individuelles de la figure 4.13. Tandis que la partie réelle et le module du degré de cohérence moyen $\langle \gamma(\tau) \rangle_{10}$ tendent vers zéro pour les délais $\tau > \tau_c$, la moyenne du module $\langle |\gamma(\tau)| \rangle_{10}$ conserve une valeur positive non-nulle, mais beaucoup plus faible que dans le cas de l'impulsion courte. Il n'y a pas de formation d'un épaulement significatif et la forme de la courbe gaussienne pour $\tau > \tau_c$ n'est pas perturbée. Ce résultat rappelle à nouveau le comportement que nous avons observé expérimentalement avec les lasers XUV à impulsion longue. Nous le vérifierons quantitativement dans la section 4.5.

Degré de cohérence complexe à deux temps $\gamma(t, t')$:

Pour compléter la discussion sur le rôle de la durée d'impulsion sur l'autocorrélation d'une impulsion partiellement cohérente temporellement, on présente dans ce paragraphe des résultats de calculs réalisés à l'aide de la méthode 1 de calcul de l'autocorrélation du champ (voie D du schéma 4.6). Comme expliqué plus haut, cette méthode, quoique plus coûteuse en temps de calcul, permet le calcul direct de la fonction d'autocorrélation à deux temps $\Gamma(t, t') = E(t).E^*(t')$. Comme dans les paragraphes précédents, on part d'un spectre de puissance moyen $I_0(\nu - \nu_0)$ gaussien de largeur spectrale $\Delta\nu = 1$ THz, et d'un filtre temporel $F(t)$ gaussien.

La figure 4.14 (a) représente la carte de $\Gamma(t, t')$ d'une impulsion de $\tau_{pulse} = m \times \tau_{FL}$ avec $m = 100$. Nous sommes dans le cas d'une impulsion faiblement cohérente, semblable au cas discuté plus haut, mais le nombre de modes temporels a été réduit en raison du temps de calcul trop important avec cette méthode, comme discuté en section 4.3.3. La diagonale $t = t'$ ($\tau = 0$) sur la figure 4.14 (a) (pointillés) correspond à l'intensité de l'impulsion en fonction du temps $I_f(t) = E_f(t).E_f^*(t) = |E(t)|^2$, qu'on a représentée sur la figure 4.15 (a). Les figures 4.14 (b) et

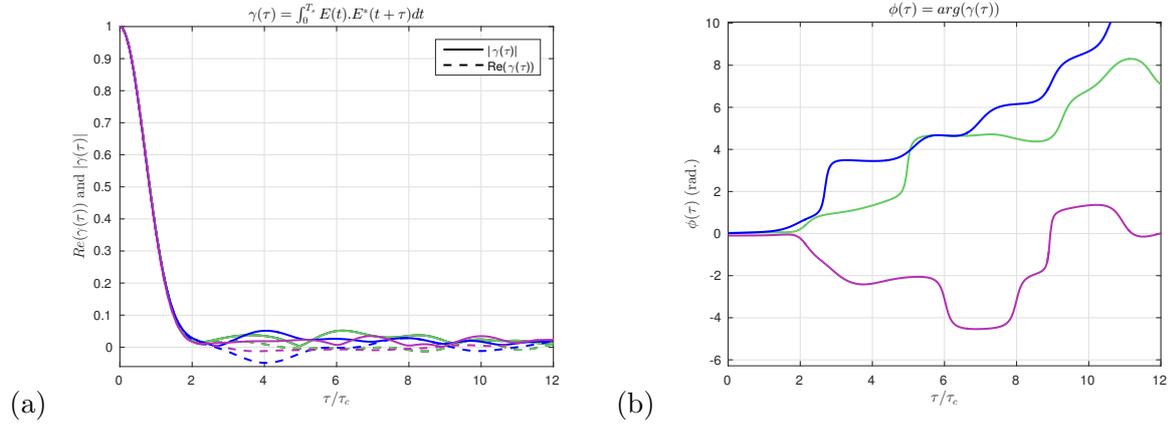


FIGURE 4.12 – (a) Parties réelles (courbes en trait plein) et modules (courbes en pointillés), et (b) phases des degrés de cohérence complexes des trois impulsions présentées sur la figure 4.11. Le délai est exprimé en unité réduite τ/τ_c , où $\tau_c \approx 0,53$ ps est le temps de cohérence théorique (défini à $1/e$) associé à un spectre de puissance gaussien de largeur $\Delta\nu = 1$ THz.

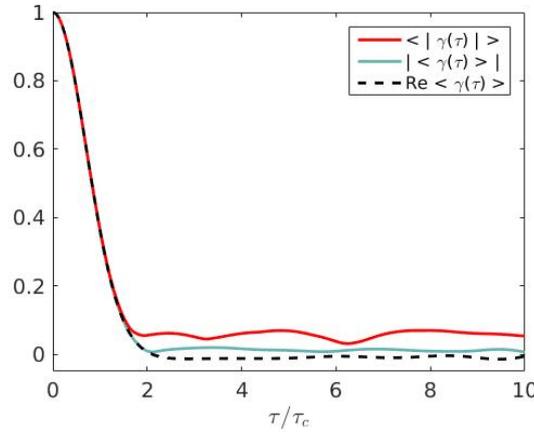


FIGURE 4.13 – Module (trait bleu plein) et partie réelle (pointilles noirs) de $\langle \gamma(\tau) \rangle_{10}$, le degré de cohérence complexe moyenné sur 10 tirages, et $\langle |\gamma(\tau)| \rangle_{10}$ moyenné sur 10 tirages des modules des degrés de cohérence complexes (trait plein rouge).

4.15 (b) sont respectivement des zooms des figures 4.14 (a) et 4.15 (a) sur une gamme de $8 \text{ ps} \times 8 \text{ ps}$. Ce zoom permet d’observer plus clairement les structures de $\Gamma(t, t')$, qui présentent une taille typique de l’ordre de la durée limite de Fourier de l’impulsion ($\tau_{FL} \approx 0,44$ ps).

Sur la carte zoomée de la figure 4.14 on a tracé en pointillés les droites ”iso-délais”, pour lesquelles le délai $\tau = t - t'$ entre les points du champ qui sont corrélés est constant. L’axe perpendiculaire représenté en trait plein est donc l’axe des délais $\tau = t - t'$. On passe de la fonction d’autocorrélation à deux temps $\Gamma(t, t')$ à la fonction d’autocorrélation en fonction du délai $\Gamma(\tau)$ en intégrant $\Gamma(t, t')$ le long de la direction représentée par les droites pointillées. Le degré de cohérence complexe de l’impulsion est obtenu en normalisant : $\gamma(\tau) = \Gamma(\tau)/\Gamma(0)$. Le degré de cohérence complexe ainsi obtenu est représenté sur la figure 4.15 (c) (partie réelle et module). La figure 4.15 (d) est un zoom entre $\tau = -8$ ps et 8 ps où on voit apparaître les structures de faible amplitude discutées dans le paragraphe précédent.

Les figures 4.16 (a) et 4.17 (a) représentent la carte de $\Gamma(t, t')$ pour une impulsion plus courte et plus cohérente temporellement, telle que $\tau_{pulse}/\tau_{FL} = m = 5$, et pour deux tirages différents de la phase aléatoire. Les autres figures (4.16 b-d) et 4.17 (b-d)) sont les intensités $I_f(t)$, et degrés de cohérence $\gamma(\tau)$ (partie réelle, module et phase) respectivement, calculés à partir de

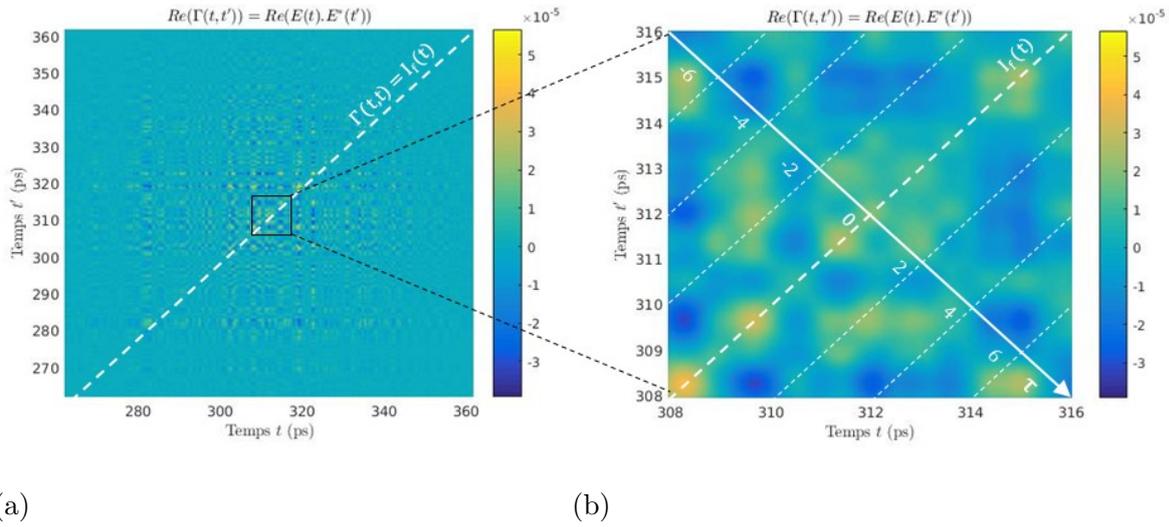


FIGURE 4.14 – (a) Carte représentant la partie réelle de la fonction d'autocorrélation à deux temps $Re(\Gamma(t, t'))$ d'une impulsion partiellement cohérente de $m = 100$ et (b) zoom sur une zone $\Delta t \times \Delta t'$ de $8 \text{ ps} \times 8 \text{ ps}$.

chaque carte. Si on compare ces courbes à celles du cas $m = 100$ présentées plus haut (figures 4.14 et 4.15), on peut faire plusieurs remarques :

- Les structures observées sur les cartes $\Gamma(t, t')$ sont similaires pour les deux durées ($m = 5$ et $m = 100$), aussi bien en termes de temps caractéristique ($\sim \tau_{FL} = 0,44 \text{ ps}$) que d'amplitude.
- Les spikes apparaissant sur les profils temporels ont eux aussi la même durée typique, seul leur nombre moyen diffère quand on passe de $m = 5$ à $m = 100$. De même leur amplitude est similaire pour les deux durées d'impulsion.
- En d'autres termes, les structures temporelles apparaissant dans $\Gamma(t, t')$ et dans $I_f(t) = \Gamma(t, t' = t)$ sont entièrement définies par le profil spectral moyen (et sa largeur) et par le tirage aléatoire de la phase spectrale.

Comme on l'a vu plus haut, le calcul du degré de cohérence à un temps, $\Gamma(\tau)$ s'effectue en intégrant $\Gamma(t, t')$ en temps le long des diagonales $\tau = \text{cte}$. On comprend alors que dans le cas $m = 100$ l'intégration va inclure un grand nombre de structures positives et négatives qui vont se compenser statistiquement et aboutir à des structures d'amplitude moyenne fortement diminuée. En d'autres termes, dans le cas d'une impulsion partiellement cohérente temporellement longue devant sa durée limite de Fourier (et donc devant la durée de ses modes longitudinaux), l'intégration temporelle équivaut à une moyenne d'ensemble.

Dans le cas $m = 5$ par contre, le faible nombre de structures ne permet pas cette compensation statistique. L'intégration temporelle n'équivaut pas à une moyenne d'ensemble. L'amplitude des structures présentes dans $\Gamma(\tau)$ pour $\tau > \tau_c$ est beaucoup plus prononcée (voir figures 4.16 (c) et 4.17 (c)). Pour ces impulsions, nous avons vu dans la section 4.4.1 que lorsque l'on moyenne les degrés de cohérence complexes $\gamma(\tau) = \Gamma(\tau)/\Gamma(0)$ sur un grand nombre de tirages, les structures observées se compensent et la partie réelle du degré de cohérence moyen $Re(\langle \gamma(\tau) \rangle)$ tend bien vers zéro pour $\tau > \tau_c$.

En résumé, le calcul du degré de cohérence à deux temps $\Gamma(t, t')$ nous permet de mieux comprendre le rôle de la durée d'impulsion (à travers le nombre de modes temporels m) sur l'amplitude des structures qui apparaissent sur le degré de cohérence complexe exprimé en fonc-

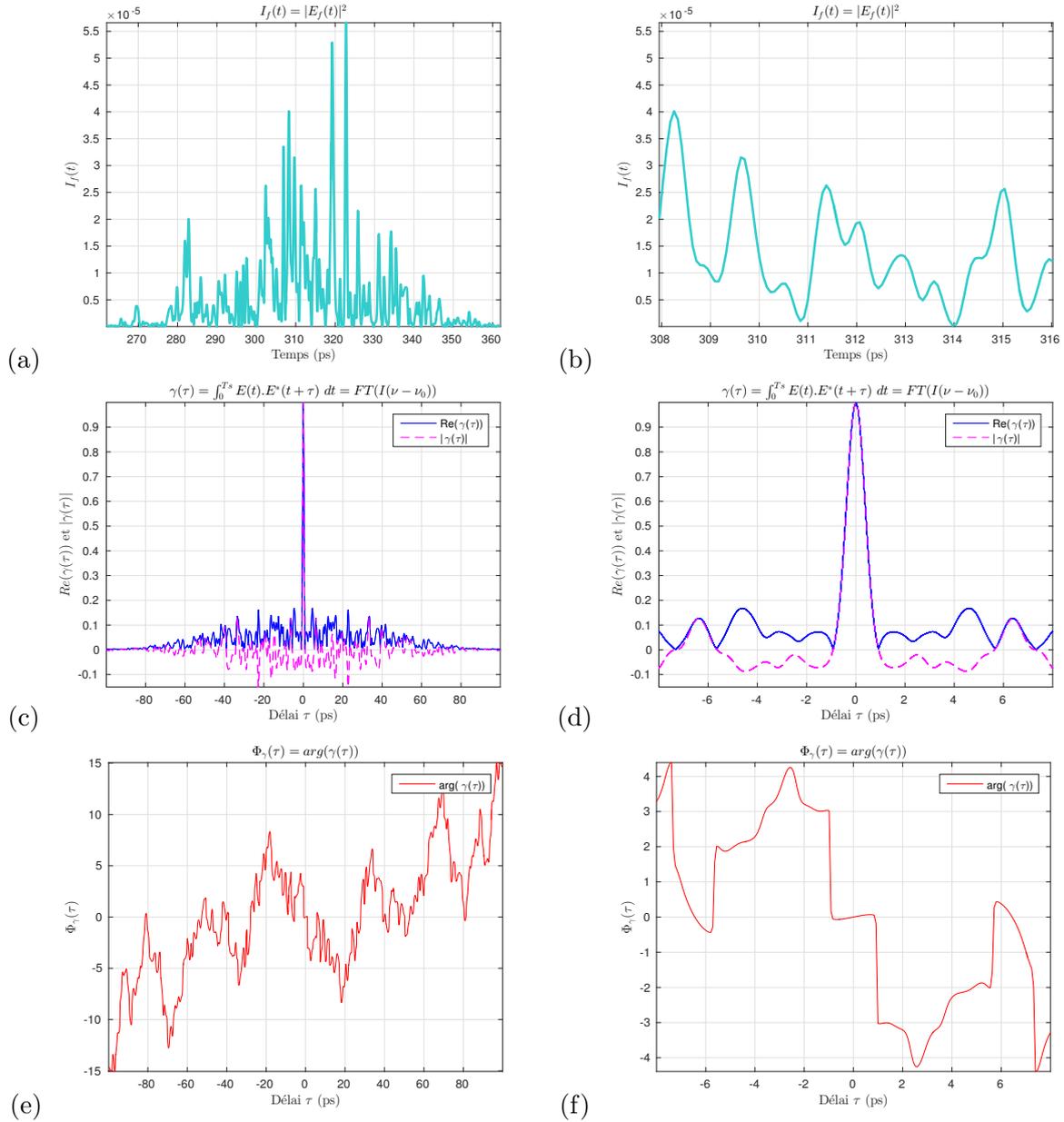


FIGURE 4.15 – (a) Intensité de l’impulsion en fonction du temps $I_f(t) = \Gamma(t, t) = |E_f(t)|^2$, ce qui correspond à la diagonale représentée en pointillés blancs $t = t'$ (i.e. $\tau = 0$) sur la carte 4.14 (a). (b) Zoom sur une gamme de 8 ps. (c) Partie réelle (courbe rose en pointillés) et module (courbe continue bleue) du degré de cohérence complexe $\gamma(\tau) = \Gamma(\tau)/\Gamma(0)$ de l’impulsion de $m = 100$. (d) Zoom sur une gamme de délais de $[-8; 8]$ ps. (e) Phase du degré de cohérence complexe $\gamma(\tau) = \Gamma(\tau)/\Gamma(0)$ de l’impulsion de $m = 100$. (f) Zoom sur une gamme de délais de $[-8; 8]$ ps.

tion du délai $\gamma(\tau)$.

Dans le cas d’impulsions longues quasi-stationnaires, c’est l’intégration temporelle sur un grand nombre de modes m qui fait tendre statistiquement la corrélation entre des modes temporels successifs vers 0, équivalant à une moyenne d’ensemble. Dans ce cas, le module du degré de cohérence complexe $|\gamma(\tau)|$ est presque égal à sa partie réelle $Re(\gamma(\tau))$, elle-même liée au spectre de puissance moyen du rayonnement par une transformée de Fourier. Ainsi, malgré la nature stochastique du rayonnement qui produit des impulsions différentes à chaque tir, les degrés de cohérence complexes de chaque impulsion sont quasiment identiques. Expérimentalement cela a plusieurs conséquences : d’une part, seul un petit nombre d’impulsions de tirs par délai τ

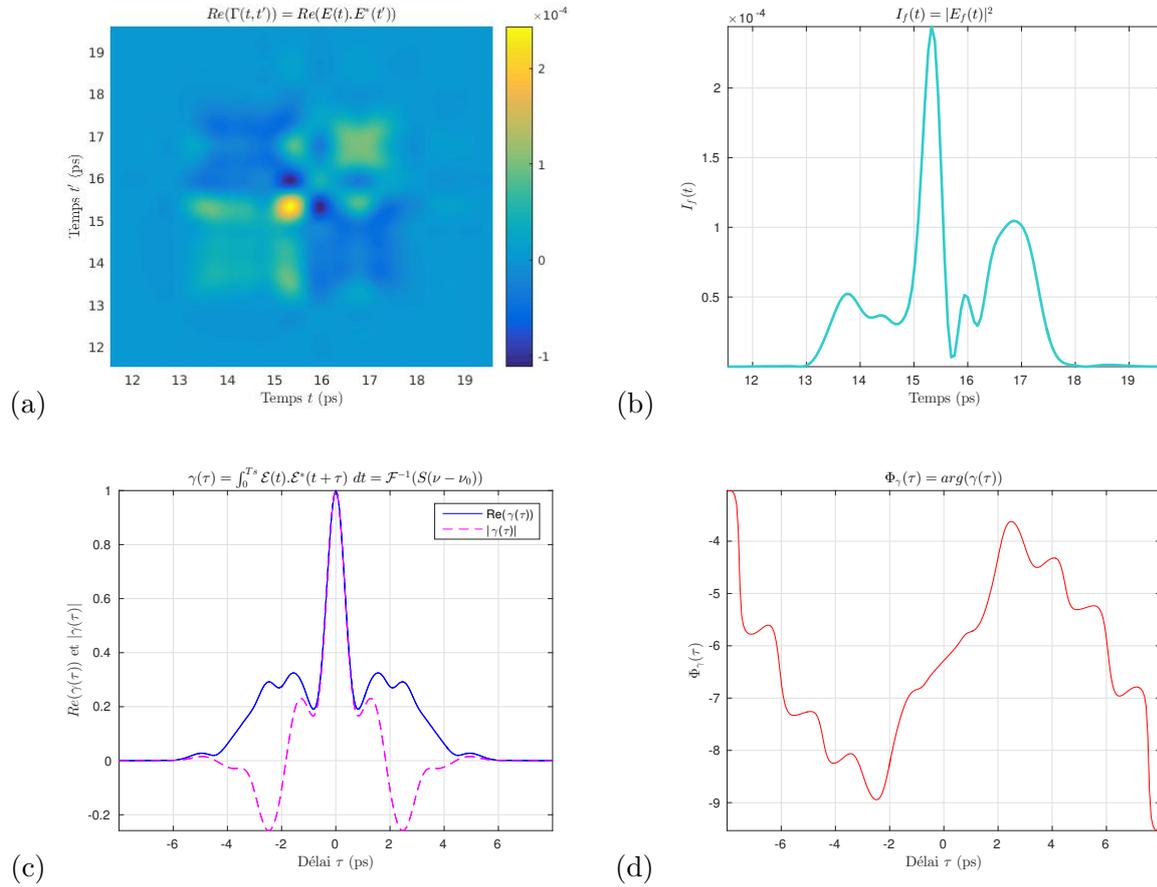


FIGURE 4.16 – Impulsion partiellement cohérente de $m = \tau_{pulse}/\tau_{FL} = 5$. (a) Carte représentant la partie réelle de la fonction d'autocorrélation à deux temps $Re(\Gamma(t, t'))$ d'une impulsion partiellement cohérente de $m = \tau_{pulse}/\tau_{FL} = 5$. (b) Intensité de l'impulsion de $m = 5$ en fonction du temps $I_f(t) = |E_f(t)|^2$, ce qui correspond à la diagonale $t = t'$ sur la figure (a). (c) Partie réelle (courbe rose en pointillés) et module (courbe continue bleue) du degré de cohérence complexe $\gamma(\tau) = \Gamma(\tau)/\Gamma(0)$ de l'impulsion, correspondant respectivement à une intégration de la carte de $Re(\Gamma(t, t'))$ (a) et au module de l'intégration de $Re(\Gamma(t, t'))$ parallèlement à la diagonale $t = t'$ (puis normalisées par $|\Gamma(\tau = 0)|$). (d) Phase du degré de cohérence complexe $\phi(\tau) = arg(\gamma(\tau))$.

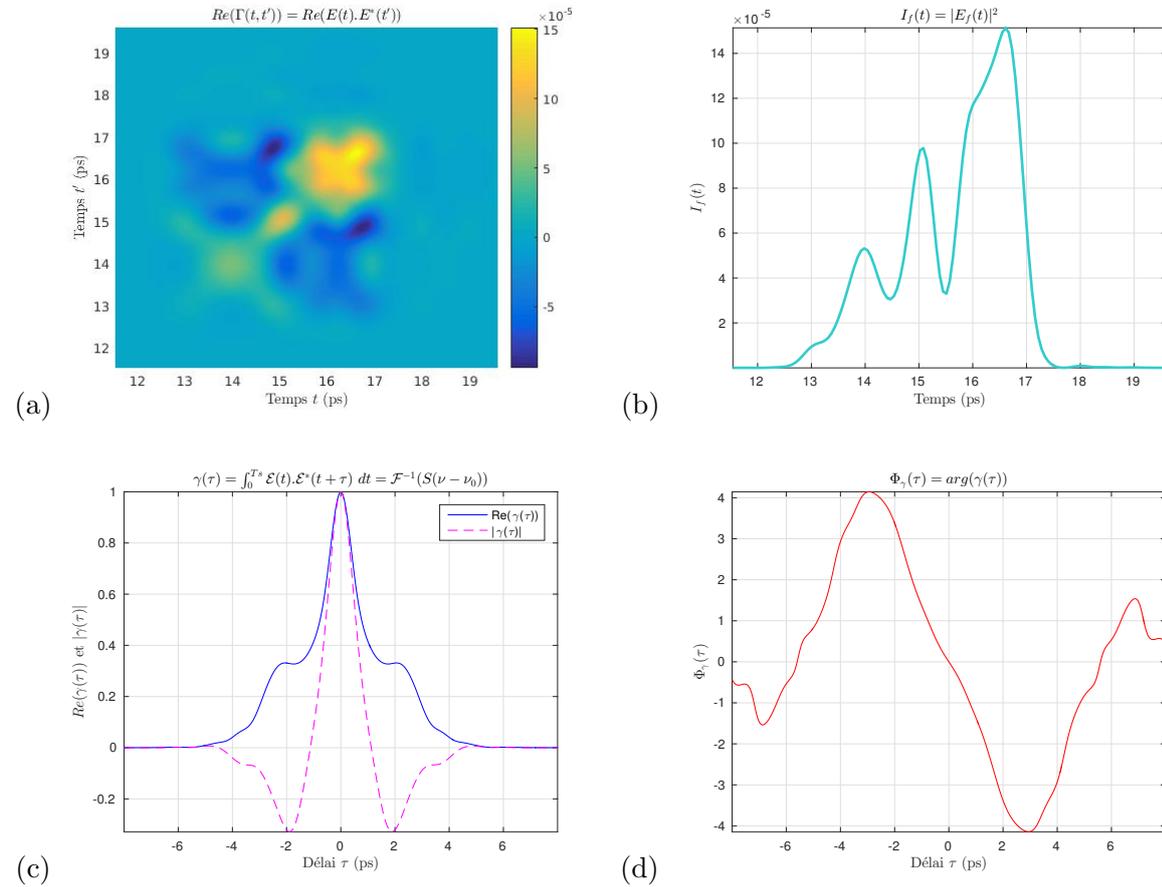


FIGURE 4.17 – Idem figure 4.16 ($\tau_{pulse}/\tau_{FL} = m = 5$) mais pour un autre tirage de la phase spectrale aléatoire.

suffit pour mesurer la courbe de visibilité $V(\tau)$ expérimentalement, et d'autre part le spectre de puissance moyen du rayonnement peut être déduit directement des courbes de visibilité en effectuant une transformée de Fourier :

$$\gamma(\tau) = |\gamma(\tau)|.e^{i\phi(\tau)}$$

$$\lim_{m \rightarrow \infty} \phi(\tau) = 0 \Rightarrow \gamma(\tau) \approx |\gamma(\tau)| \propto V(\tau)$$

$$\Rightarrow \langle S(\nu - \nu_0) \rangle \propto \int_{\tau_{pulse}} V(\tau).e^{-i2\pi\nu\tau} d\tau$$

En revanche, le cas des impulsions courtes, quasi-cohérentes temporellement, est plus complexe. La corrélation des modes temporels de l'impulsion entre eux ne s'annule pas lorsqu'on les somme sur la durée totale de l'impulsion car ils sont en trop petit nombre. Pour pouvoir obtenir le spectre moyen du rayonnement à partir d'une mesure d'autocorrélation en champ, il faudrait d'une part réaliser des mesures sur un grand nombre d'impulsions afin de s'approcher au maximum d'une moyenne d'ensemble, et d'autre part mesurer simultanément le module **et** la phase du degré de cohérence de chaque impulsion. Le fait que l'on n'a pas accès à la phase dans nos mesures (la position des franges ne peut être mesurée avec une précision suffisante) et que l'on ne moyenne que les modules a pour conséquence d'additionner toutes les corrélations entre modes temporels des impulsions dans le domaine positif et de faire apparaître en moyenne un épaulement sur $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$, et donc sur la courbe de visibilité $V(\tau)$. En conclusion, pour ces impulsions, seule la partie centrale de la courbe de visibilité ($\sim [-\tau_c; \tau_c]$) peut conduire au spectre de puissance moyen par une transformée de Fourier. Les épaulements ($|\tau| \geq \tau_c$) en revanche, donnent une indication sur la durée totale moyenne de l'impulsion, comme nous allons le montrer maintenant à partir des données expérimentales discutées au début de ce chapitre.

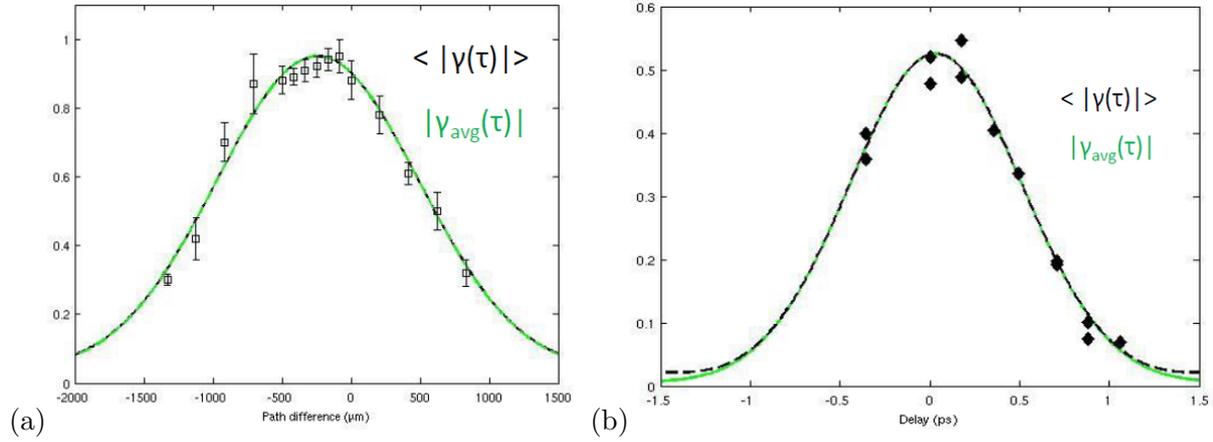


FIGURE 4.18 – Comparaison des calculs avec (a) la mesure laser XUV QSS-d d’argon ($m \approx 630$) et (b) la mesure QSS-l de zinc ($m \approx 160$).

4.5 Utilisation du modèle pour la ré-estimation des largeurs spectrales à partir des données expérimentales.

À la lumière des résultats que nous venons de discuter, nous sommes maintenant en mesure de réinterpréter les courbes de visibilité obtenues sur des lasers XUV à impulsions courtes et de proposer une nouvelle estimation des largeurs spectrales correspondantes. Dans un premier temps, vérifions que les impulsions lasers XUV quasi-stationnaires QSS-d (décharge capillaire [Urbanski 2012b]) et QSS-l (généralisé par laser, mesure présentée dans le chapitre précédent [Le Marec 2015]) appartiennent bien à la catégorie des impulsions au nombre de modes temporels suffisamment élevé pour que le spectre de puissance puisse être déduit directement des courbes de visibilité à partir d’une transformée de Fourier.

La figure 4.18 reproduit les données expérimentales des mesures de visibilité (points et barres d’erreur) sur le laser XUV QSS-d d’argon (a) et QSS-l de zinc en (b). Dans chaque cas, la courbe verte (module du degré de cohérence complexe moyen) et les courbes en pointillés (moyenne des modules des degrés de cohérences complexes) représentent les résultats de nos simulations. Les moyennes incluent 10 tirages de la phase spectrale aléatoire. Dans les deux cas, les impulsions sont générées à partir d’un profil spectral gaussien en prenant comme largeur spectrale celle que l’on peut déduire de la transformée de Fourier de la courbe de visibilité gaussienne (16,6 mÅ pour le QSS-d et 11,7 mÅ pour le QSS-l). Les durées des filtres temporels (en intensité) utilisés pour les calculs sont les durées d’impulsion mesurées pour ces deux lasers XUV (1,2 ns pour le QSS-d, $m \approx 630$; et 150 ps pour le QSS-l, $m \approx 160$). On constate que dans les deux cas les deux courbes calculées sont superposées entre elles et qu’elles reproduisent bien la forme gaussienne sur laquelle s’alignent les données expérimentales. Il faut également souligner que cette convergence des moyennes vers leurs espérances est obtenue pour un faible nombre de tirages (ici 10). Conformément à ce qui a été présenté plus haut pour des impulsions de nombre de modes temporels m élevé.

On s’intéresse maintenant aux lasers XUV TCE. Comme nous l’avons rappelé au début de ce chapitre, deux mesures ont été réalisées à l’aide de l’interféromètre à bi-dièdre : sur un laser XUV d’argent nickelloïde [Guilbaud 2006b] et sur un laser XUV de molybdène nickelloïde [Meng 2011] (figure 4.1). Les données expérimentales correspondantes sont à nouveau présentées sur les figures 4.19 et 4.20.

Nous avons vu dans la partie précédente que dans le cas d’impulsions courtes seule la partie centrale de la moyenne des degrés de cohérence complexes $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$, et donc de la courbe de visibilité $V(\tau)$, rend compte de la forme et de la largeur spectrale du rayonnement. Pour repro-

duire l'allure des courbes de visibilité expérimentales avec notre modèle de cohérence partielle, nous procédons donc en deux étapes :

- Dans une première étape, la partie centrale de la courbe de visibilité expérimentale ($|\tau| < |\tau_c|$) est utilisée pour déterminer la largeur spectrale de l'enveloppe gaussienne initiale $I_0(\nu - \nu_0)$ à entrer dans le calcul. Le résultat de cet ajustement donne les courbes gaussiennes en pointillés sur les figures 4.19 (a) et 4.20 (a). Les largeurs spectrales obtenues par cette méthode sont de $\Delta\lambda_{(m)} = 1,8 \text{ m\AA}$ pour le laser Ni-like Ag, et de $\Delta\lambda_{(m)} = 5,5 \text{ m\AA}$ pour celles le laser Ni-like Mo. Dans les deux cas, ces largeurs sont plus que deux fois plus grandes que celles évaluées initialement à partir de la transformée de Fourier de la courbe de visibilité correspondante. Ces nouvelles valeurs sont en meilleur accord avec les prédictions des calculs de transfert radiatif (voir tableau 4.1).
- Dans une deuxième étape, le deuxième paramètre de notre calcul, la durée de l'impulsion, est ensuite ajusté en faisant varier le nombre de modes temporels dans nos simulations. Les courbes en trait plein sur les figures 4.19 (a) et 4.20 (a) montrent le résultat de nos calculs, à chaque fois pour deux durées d'impulsion légèrement différentes. La moyenne est effectuée à chaque fois sur 1000 tirages de la phase aléatoire.

On constate que, dans les deux cas, nos calculs reproduisent remarquablement bien les données expérimentales, en particulier la hauteur et l'étendue de l'épaule. Il faut en effet souligner que les durées que nous avons utilisées dans chaque calcul sont proches de celles mesurées, ou estimées pendant l'expérience correspondante. Ainsi pour le laser Ni-like Ag (Fig. 4.19), notre ajustement montre une durée comprise entre 5 et 6 ps ($m = 3, 2 - 3, 8$), pour une durée mesurée de 6 ps. Pour le laser Ni-like Mo (Fig. 4.20), nous avons utilisé des durées comprises entre 2 et 2,7 ps ($m = 2, 1 - 2, 8$), pour une largeur spectrale de $\Delta\lambda = 5,5 \text{ m\AA}$. On voit ainsi que le modèle permet de remonter à une très bonne estimation de la durée temporelle de l'impulsion, et que cette information est en quelque sorte "encodée" dans nos données expérimentales. Nous reviendrons sur ce résultat intéressant à la fin de ce chapitre.

Pour illustrer à nouveau la fluctuation tir-à-tir inhérente à ces impulsions partiellement cohérentes, nous avons représenté sur les figures 4.19 (b) et 4.20 (b) les modules du degré de cohérence complexe de 5 tirages différents pour l'une des deux durées d'impulsion. L'intérêt de ces figures est de donner une idée des fluctuations tir-à-tir que l'on peut attendre sur la visibilité des franges d'interférences observées à un délai τ donné, uniquement dues à la nature stochastique de l'ASE. On mesure ainsi l'importance d'accumuler un grand nombre de données pour les mesures sur ce type de source. Il faut noter d'ailleurs que la première mesure sur le laser Ni-like Ag [Guilbaud 2006b] a été réalisée sur l'installation LULI 100 TW, dont le faible taux de répétition (2 à 3 tirs/heure) a considérablement limité le nombre de tirs pour la mesure (~ 5 tirs / délai pour 9 délais différents seulement) et conduit à des barres d'incertitude importantes. Ceci pourrait expliquer qu'un désaccord persiste entre la largeur spectrale ré-estimée par nos simulations ($\Delta\lambda_{(m)} = 1,8 \text{ m\AA}$) et celle prédite par les calculs de transfert radiatif ($\Delta\lambda_{(\text{tr})} = 3 - 4 \text{ m\AA}$), même s'il est amélioré par rapport à la mesure initiale ($\Delta\lambda_{(V)} = 0,73 \text{ m\AA}$). Dans le cas du laser Ni-like Mo, où les données expérimentales résultent d'un nombre beaucoup plus grand de tirs (5 à 10 tirs par délai, pour 17 délais), la largeur spectrale ré-estimée par nos calculs ($\Delta\lambda_{(m)} = 5,5 \text{ m\AA}$) est en très bon accord avec le calcul de transfert radiatif ($\Delta\lambda_{(\text{tr})} = 6,1 \text{ m\AA}$). Enfin, nos calculs montrent que, dans les deux cas, les courbes de visibilité expérimentales sont bien compatibles avec un profil spectral gaussien, contrairement à ce que la forme de des courbes laissait supposer initialement.

Pour terminer nous présentons sur la figure 4.21 le cas de la mesure sur un laser XUV OFI en mode ASE [Guilbaud 2010]. On voit que nos calculs (moyenne sur 1000 tirages) reproduisent ici encore très bien les données expérimentales. L'épaule est plus difficile à distinguer de

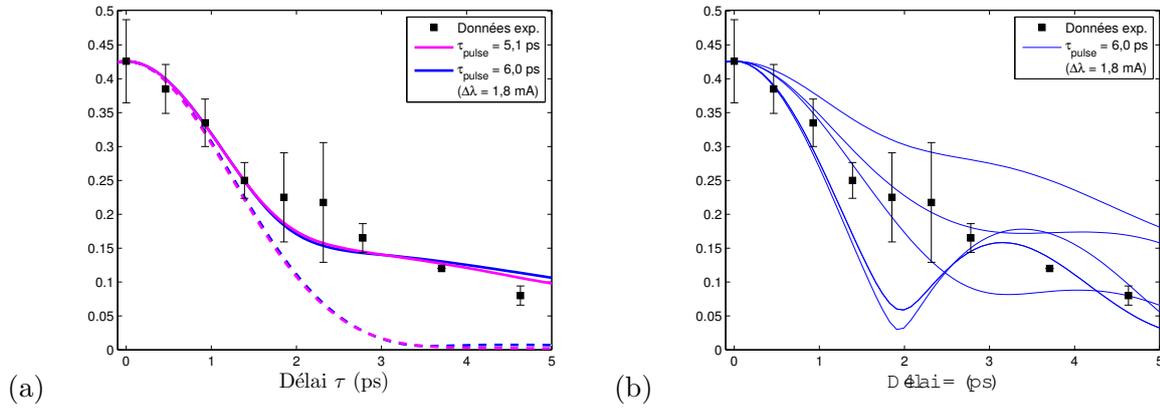


FIGURE 4.19 – Résultats expérimentaux des mesures réalisées sur le laser XUV TCE d'argent à 13,9 nm (carrés noirs) comparés à des calculs à l'aide du code de cohérence partielle. (a) Modules (lignes continues) et parties réelles (lignes pointillées) des degrés de cohérence complexes moyens calculés à partir de $N = 1000$ tirages, pour une largeur spectrale de $\Delta\lambda = 1,8 \text{ m\AA}$ et deux durées d'impulsion différentes : $\tau_{pulse} = 5,1 \text{ ps}$ (en rose, correspond à $m = 3,2$) et $\tau_{pulse} = 6,0 \text{ ps}$ (en bleu, correspond à $m = 3,8$). (b) Modules des degrés de cohérence complexes de 5 tirages individuels pour une largeur spectrale de $\Delta\lambda = 1,8 \text{ m\AA}$ et une durée d'impulsion $\tau_{pulse} = 6,0 \text{ ps}$ rendant compte des fluctuations tir-à-tir de la visibilité des franges d'interférence que l'on peut attendre expérimentalement sur un tel laser XUV.

la "partie centrale" de la courbe de visibilité, utilisée pour remonter au profil spectral. C'est pourquoi nous avons ajusté nos calculs aux données expérimentales en faisant varier légèrement à la fois la largeur spectrale et la durée de l'impulsion. Cet ajustement conduit à une largeur spectrale (profil gaussien) $\Delta\lambda_{(m)} \approx 3,2 - 3,5 \text{ m\AA}$ pour une durée d'impulsion de 5,9-6,8 ps, en bon accord avec la durée d'impulsion estimée pendant cette expérience ($\tau_{pulse} \approx 5 \text{ ps}$). Il faut remarquer que pour ce laser XUV OFI le nombre de modes temporels m est très proche de 1, l'impulsion est quasiment limitée par Fourier.

Le tableau 4.1 résume l'ensemble des informations tirées des courbes expérimentales des figures 4.18 à 4.21 pour les différents types de lasers XUV, en particulier les nouvelles valeurs de largeurs spectrales déduites de nos simulations.

On peut se demander comment évaluer la précision avec laquelle nos simulations permettent de ré-estimer les largeurs spectrales des sources quasi-cohérentes temporellement à partir des mesures d'autocorrélation en champ. On voit bien sur les figures (b) des figures 4.19, 4.20 et 4.21 que les fluctuations de module du degré de cohérence complexe calculé sont plus faibles aux délais courts où celui-ci ne dépend que du spectre de puissance de l'impulsion. La précision des largeurs spectrales ré-estimées $\delta(\Delta\lambda)$ peut être évaluée de la manière suivante :

$$\frac{\delta(\Delta\lambda)}{\Delta\lambda} \left(= \frac{\delta(\tau_c)}{\tau_c} \right) \approx \frac{\delta(V)}{V_{max}}$$

où $\delta(\tau_c)$ désigne l'incertitude sur le temps de cohérence correspondant à la largeur spectrale $\Delta\lambda$, $\delta(V)$ désigne la taille de la barre d'erreur moyenne de la visibilité entre 0 et τ_c et V_{max} la visibilité maximum (à $\tau = 0$). Pour les cas que nous avons présentés ci-dessus, cela donne une précision relative $\frac{\delta(\Delta\lambda)}{\Delta\lambda}$ d'environ 20 % pour le laser Ni-like Ag ($\delta(\Delta\lambda) \approx 0,4 \text{ m\AA}$) et de 10 % pour le laser Ni-like Mo ($\delta(\Delta\lambda) \approx 0,6 \text{ m\AA}$) et le laser OFI ($\delta(\Delta\lambda) \approx 0,4 \text{ m\AA}$).

Pour conclure cette partie consacrée à l'utilisation de nos simulations pour ré-interpréter les données expérimentales, il faut rappeler que le modèle que nous avons utilisé a été initialement

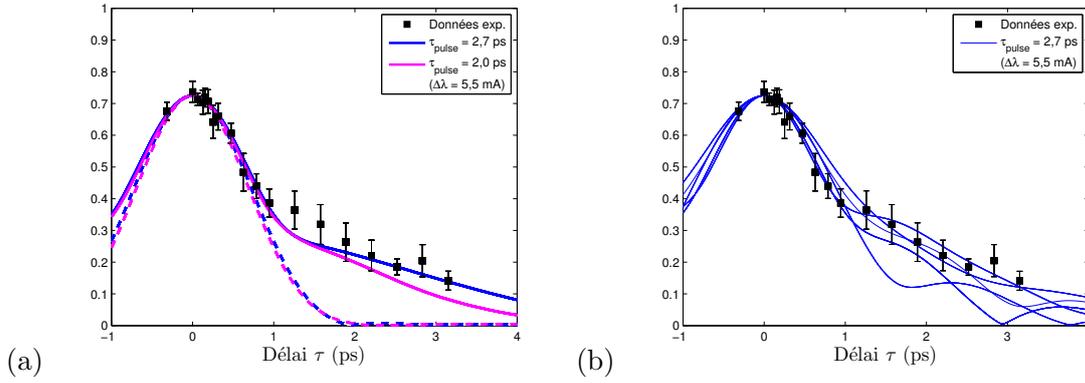


FIGURE 4.20 – Résultats expérimentaux des mesures réalisées sur le laser XUV TCE de molybdène à 18,9 nm (carrés noirs) comparés à des calculs à l’aide du code de cohérence partielle. (a) Modules (lignes continues) et parties réelles (lignes pointillées) des degrés de cohérence complexes moyens calculés à partir de $N = 1000$ tirages, pour une largeur spectrale de $\Delta\lambda = 5,5 \text{ mÅ}$ et deux durées d’impulsion différentes : $\tau_{pulse} = 2,0 \text{ ps}$ (en rose, correspond à $m = 2,1$) et $\tau_{pulse} = 2,7 \text{ ps}$ (en bleu, correspond à $m = 2,8$). (b) Modules des degrés de cohérence complexes de 5 tirages individuels pour une largeur spectrale de $\Delta\lambda = 1,8 \text{ mÅ}$ et une durée d’impulsion $\tau_{pulse} = 2,7 \text{ ps}$ rendant compte des fluctuations tir-à-tir de la visibilité des franges d’interférence que l’on peut attendre expérimentalement sur un tel laser XUV.

Mesures					
Lasers XUV	QSS-d Ar [1]	QSS-1 Zn [2]	TCE Ag [3]	TCE Mo [4]	OFI Kr [5]
λ_0 (nm)	46,9	21,2	13,9	18,9	32,8
τ_{pulse} (ps)	~ 1200	~ 150	6	2,8 [6]	~ 5
Fit de $V(\tau)$	Gaussienne	Gaussienne	Décroissance exponentielle	Somme de 2 gaussiennes	Décroissance exponentielle
$S_{(V)}(\nu - \nu_0)$	Gaussienne	Gaussienne	Lorentzienne	Somme de 2 gaussiennes	Lorentzienne
$\Delta\lambda_{(V)}$ (mÅ)	16,6	$11,7 \pm 1,2$	$0,73 \pm 0,06$	$2,4 \pm 0,2^*$	$3,1 \pm 0,3$

* : la valeur indiquée est une valeur quadratique et non une largeur à mi-hauteur (voir texte).

Prédictions numériques (calculs de transfert radiatif 1D)					
$S_{(tr)}(\nu - \nu_0)$	Gaussienne	Gaussienne	Gaussienne	Gaussienne	Gaussienne
$\Delta\lambda_{(tr)}$ (mÅ)	16,6	11,7	[3 - 4]	6,1	3,25

Calculs de cohérence partielle					
$S_{(m)}(\nu - \nu_0)$	Gaussienne	Gaussienne	Gaussienne	Gaussienne	Gaussienne
$\Delta\lambda_{(m)}$ (mÅ)	16,6	11,7	1,8	5,5	[3,25 - 3,5]
$\frac{\Delta\lambda_{(m)}}{\lambda_0} (\times 10^{-5})$	3,5	5,5	1,3	2,9	[1,0 - 1,1]
m (mÅ)	~ 610	~ 260	[3,2 - 3,8]	[2,1 - 2,8]	[1,2 - 1,5]
$\tau_{pulse(m)}$ (ps)	1200	150	[5,1 - 6,0]	[2,0 - 2,7]	[5,8 - 6,8]

TABLE 4.1 – Tableau récapitulatif résumant pour les différents lasers XUV caractérisés expérimentalement avec l’interféromètre à bi-dièdre : les largeurs spectrales déduites des mesures directement à partir de la transformée de Fourier de la courbe de visibilité $\Delta\lambda_{(V)}$ (sont également précisées la fonction utilisée pour le fit de $V(\tau)$ et la durée d’impulsion), les largeurs spectrales issues des calculs de transfert radiatif $\Delta\lambda_{(tr)}$, et les largeurs spectrales $\Delta\lambda_{(m)}$ et nombres de modes et de durées d’impulsion $\tau_{pulse(m)}$ associées pour lesquels les calculs de cohérence partielle reproduisent l’allure des courbes de visibilité expérimentales. Références : [1] = [Urbanski 2012b], [2] = [Le Marec 2015], [3] = [Guilbaud 2006b], [4] = [Meng 2011], [5] = [Guilbaud 2010], [6] = [Meng 2012a].

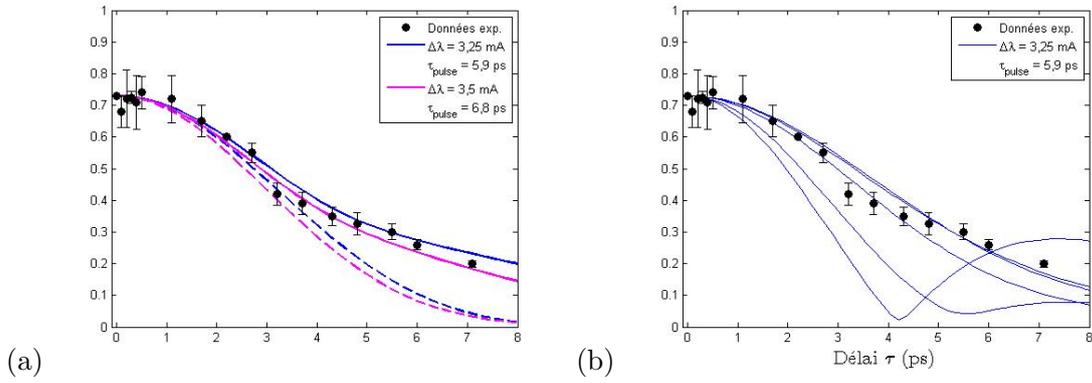


FIGURE 4.21 – Résultats expérimentaux des mesures réalisées sur le laser XUV OFI de krypton à 32,8 nm (carrés noirs) comparés à des calculs à l’aide du code de cohérence partielle. (a) Modules (lignes continues) et parties réelles (lignes pointillées) des degrés de cohérence complexes moyens calculés à partir de $N = 1000$ tirages, pour une largeur spectrale de $\Delta\lambda = 3,5$ mÅ et une durée d’impulsion $\tau_{pulse} = 5,9$ ps (en rose, correspond à $m = 1,2$) et de $\Delta\lambda = 3,25$ mÅ et une durée d’impulsion $\tau_{pulse} = 6,8$ ps (en bleu, correspond à $m = 1,5$). (b) Modules des degrés de cohérence complexes de 5 tirages individuels pour une largeur spectrale de $\Delta\lambda = 3,25$ mÅ et une durée d’impulsion $\tau_{pulse} = 5,9$ ps rendant compte des fluctuations tir-à-tir de la visibilité des franges d’interférence que l’on peut attendre expérimentalement sur un tel laser XUV.

proposé pour des impulsions SASE d’un laser à électrons libres. Les conclusions de notre étude s’appliquent donc également à ce type de source, et plus généralement à toutes les sources de nature stochastiques. Nous avons donc appliqué notre modèle aux mesures effectuées à FLASH par Mitzner et al. [Mitzner 2008], que nous avons évoquées au début de ce chapitre. Les résultats sont présentés dans la figure 4.22 ci-dessous. Nos calculs (figure de droite) reproduisent globalement plutôt bien la courbe de visibilité expérimentale (figure de gauche), même si nous ne retrouvons pas les pics secondaires mesurés expérimentalement de chaque côté du pic central. Les valeurs de largeur spectrale et de durée que nous avons utilisées pour ces calculs ($\Delta\lambda \approx 0.17$ nm et $\tau_{pulse} \approx 29$ fs pour $\lambda = 23,9$ nm, c’est-à-dire $m \approx 5$) sont en bon accord avec les valeurs expérimentales données par les auteurs.

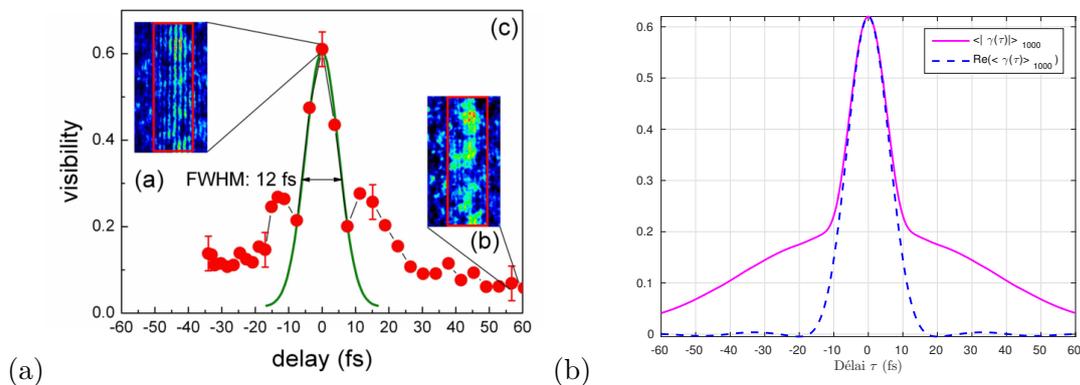


FIGURE 4.22 – (a) Figure 3 de [Mitzner 2008] représentant la courbe de visibilité mesurée sur le XFEL FLASH. (b) Moyenne des modules du degré de cohérence complexe (rose continu) et partie réelle des degrés de cohérence complexes (bleu pointillés) calculés par le code de cohérence partielle pour $m = 5$.

4.6 Comparaison avec des simulations détaillées du code COLAX pour un laser XUV TCE

Les résultats précédents ont été obtenus à partir d'un modèle simple, en supposant une phase spectrale aléatoire. On peut toutefois se demander si ce modèle rend bien compte des propriétés physiques "réelles" des lasers XUV fonctionnant en ASE. Pour le vérifier nous avons utilisé le code COLAX que nous avons présenté dans le chapitre 1. Rappelons que le code résoud de façon couplée les équations d'évolution pour le champ électrique, la polarisation et les populations correspondant à la transition laser XUV, au cours de son amplification dans le plasma. L'émission spontanée, qui constitue le germe de l'amplification en régime ASE, est introduite par le biais d'un terme source, comme nous allons le rappeler ci-dessous. A partir du champ électrique calculé en fonction du temps $E(t)$, dans le plan de sortie du plasma, on peut en déduire les mêmes grandeurs que celles que nous avons obtenues de notre modèle : l'intensité en fonction du temps $I(t)$, le spectre intégré temporellement $S(\nu - \nu_0)$, la fonction d'autocorrélation $\Gamma(\tau)$, ainsi que le module du degré de cohérence complexe $|\gamma(\tau)|$. On peut ainsi comparer les prédictions de COLAX pour ces grandeurs à celles que nous avons obtenues à l'aide du modèle de cohérence partielle pour un nombre de modes longitudinaux similaire. Les simulations COLAX que nous présentons dans cette section ont été effectuées avec une géométrie 1D (direction de propagation), dans le cas d'un laser XUV TCE d'argent nickeloïde opérant en ASE, correspondant aux simulations présentées dans [Larroche 2013a].

4.6.1 Traitement de l'émission spontanée et effet des approximations temporelles dans COLAX

Avant de présenter les résultats obtenus nous allons d'abord discuter l'effet de différents niveaux d'approximations dans le traitement des équations des différentes grandeurs. L'émission spontanée est modélisée par un terme source aléatoire S dans l'équation de la polarisation atomique (eq. 4.7)

$$\frac{\partial P}{\partial t} = -\frac{1}{T_2}P - i\omega.D.E + S \quad (4.7)$$

Le temps de corrélation de S est supposé très court devant les échelles de temps considérées. En effet, ce terme doit induire des fluctuations dans la polarisation atomique, mais le spectre de celle-ci doit reproduire le spectre de la raie intrinsèque, c'est-à-dire un spectre lorentzien de largeur à mi-hauteur $1/T_2$ (où T_2 est le temps de déphasage du dipôle atomique). On rappelle en effet que l'élargissement Doppler n'est pas pris en compte dans COLAX (voir chapitre 1). Pour étudier l'effet des fluctuations sur le spectre de la polarisation, on considère le système simplifié suivant :

$$\frac{dP}{dt} = -\frac{1}{T_2}P + S \quad (4.8)$$

$$\frac{dE}{dt} = -\alpha P \quad (4.9)$$

On constate que la fonction d'autocorrélation de P est une exponentielle décroissante en T_2 , ce qui correspond bien à un spectre lorentzien de largeur à mi-hauteur $1/T_2$. En effet, si l'on écrit la fonction l'autocorrélation de S la manière suivante :

$$\langle S(t_1).S^*(t_2) \rangle = F\delta(t_1 - t_2)$$

où F est un facteur de normalisation fixé de manière à reproduire le taux d'émission spontanée. L'autocorrélation de P s'écrit :

$$\langle P(t_1).P^*(t_2) \rangle = \frac{F.T_2}{2}e^{-|t_1-t_2|/T_2}$$

En pratique, à chaque pas de temps on définit une variable aléatoire représentant la variation de la polarisation atomique induite par l'émission spontanée pendant le pas de temps δt . Cette variable est la somme d'un très grand nombre de variables aléatoires de même loi représentant les événements individuels d'émission, c'est donc une variable de loi de probabilité gaussienne, définie par une moyenne nulle et sa variance égale à $F\delta t$.

Pour rendre possible la présente étude, la possibilité de faire varier le germe du générateur aléatoire d'une simulation à l'autre a été introduite dans le code COLAX (collaboration avec O. Larroche, CEA/DAM). Ceci permet donc de générer des impulsions ASE différentes, pour les mêmes conditions initiales du plasma amplificateur. Sans cette modification, les simulations COLAX étaient toutes basées sur le même germe aléatoire, reproduisant à chaque simulation exactement la même forme temporelle de l'impulsion XUV amplifiée.

Sur la figure 4.23 sont représentés les résultats obtenus pour trois simulations COLAX, effectuées à partir du même plasma amplificateur, pour trois configurations du code différentes, correspondant à des degrés d'approximations différents (pour ces trois cas, le germe aléatoire de l'émission spontanée n'a pas été changé) :

- $D_{dyn} - P_{dyn}$: Inversion de populations D et polarisation atomique P dynamiques, ce qui revient à résoudre les équations de Bloch-Maxwell décrites dans le chapitre 2.
- $D_{QSS} - P_{dyn}$: Inversion de populations D quasi-statique et polarisation atomique P dynamique. L'inversion de population s'établit de façon quasi-statique, lorsque que le temps caractéristique de relaxation des populations atomiques vers l'équilibre collisionnel-radiatif T_1 est petit devant le temps effectif de variation du champ électrique et de la polarisation atomique. Dans un tel régime, il ne peut pas y avoir d'oscillations de Rabi. En pratique, cela signifie que dans le calcul on ne résout pas les équations d'évolution générales gouvernant les populations atomiques en fonction des taux de transition γ_{ij} et des flux de population R_i qui alimentent les états de la transition à partir des autres états extérieurs. L'équation sur l'inversion de population devient alors :

$$\frac{\partial D}{\partial t} = \frac{1}{T_1} \left(D_0 - D - \frac{c}{8\pi\omega T_2} \cdot \frac{Re(iP.E^*)}{I_{sat}} \right)$$

où D_0 est la densité d'inversion d'équilibre et I_{sat} l'intensité de saturation.

- $D_{QSS} - P_{adiab}$: Inversion de populations D quasi-statique et polarisation atomique P adiabatique. La polarisation évolue adiabatiquement si son temps caractéristique d'amortissement T_2 est petit devant les temps caractéristiques d'évolution du système. Ceci revient à ré-écrire l'équation (4.7) de la manière suivante :

$$0 = -\frac{1}{T_2} P - i\omega.D.E + S$$

On voit ainsi que faire cette hypothèse revient à injecter directement le terme source d'émission spontanée dans l'équation de propagation du champ électrique.

La figure 4.23 montre, pour ces trois degrés d'approximation, le profil temporel de l'intensité $I(t)$ (Fig. 4.23(a)), le module du degré de cohérence complexe $|\gamma(\tau)|$ (Fig. 4.23(a)) et le spectre de puissance normalisé $S(\nu - \nu_0)$ (Fig. 4.23(c)). Ces deux dernières grandeurs sont intégrées sur une durée $\Delta T = 10$ ps, un peu plus longue que la durée de l'impulsion $I(t)$.

Dans le cas (iii) où la polarisation est adiabatique, on peut voir sur les figures 4.23 (b) et (c) (courbes vertes) que le terme source d'émission spontanée S dans l'équation de la polarisation conduit effectivement à un rayonnement incohérent, de type bruit blanc : le degré de cohérence complexe $\gamma(\tau)$ est nul (ou très faible) en tout point sauf pour $\tau = 0$; et le spectre de puissance est (relativement) plat.

Sur la figure 4.23 (a) la comparaison des profils temporels d'intensité pour les cas (ii) ($D_{QSS} -$

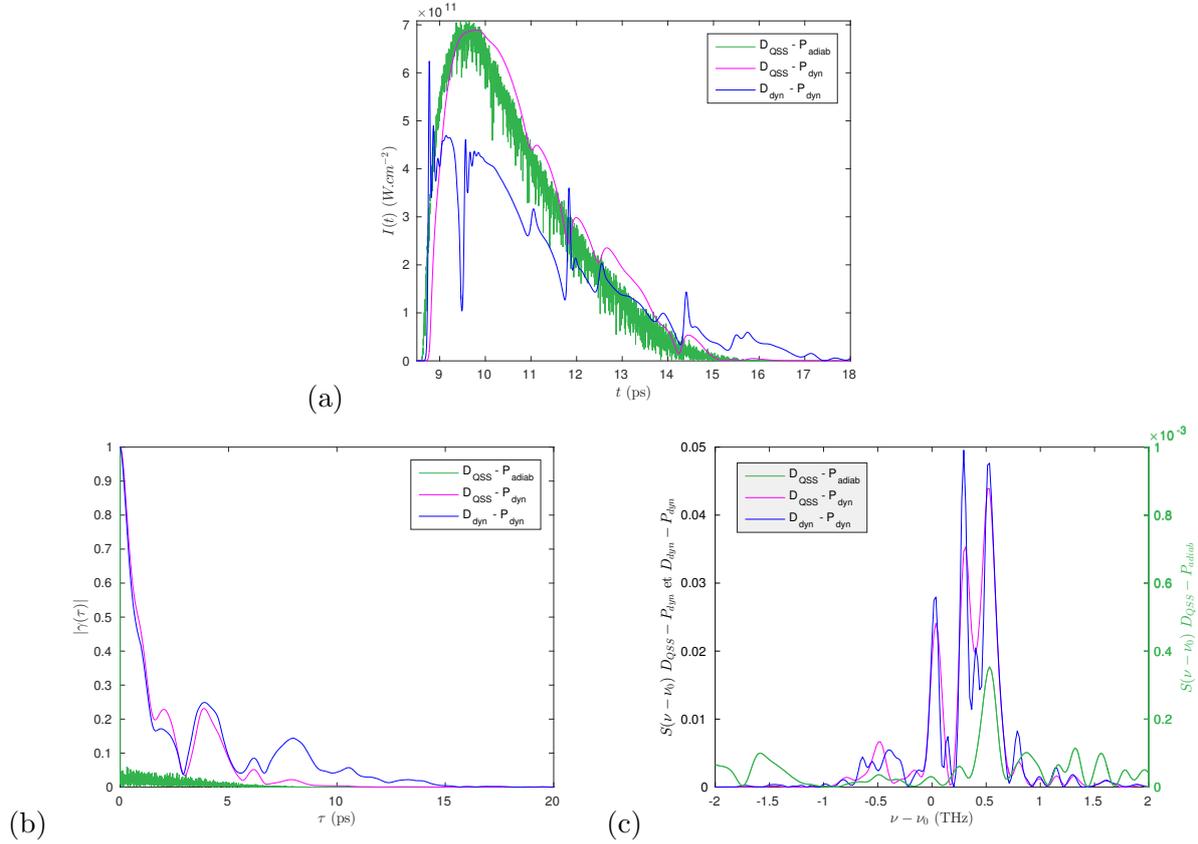


FIGURE 4.23 – (a) Profil temporel de l’intensité $I(t)$, (b) module du degré de cohérence complexe $|\gamma(\tau)|$ et (c) le spectre de puissance normalisé $S(\nu - \nu_0)$ ($|\gamma(\tau)|$ et $S(\nu - \nu_0)$ sont intégrées $\Delta T = 10$ ps), pour les trois degrés d’approximation ($D_{dyn} - P_{dyn}$), ($D_{QSS} - P_{dyn}$) et ($D_{QSS} - P_{adiab}$) (voir texte).

P_{dyn} , courbe rose) et (i) ($D_{dyn} - P_{dyn}$, courbe bleue) montre que le traitement dynamique de l’inversion de population est ici nécessaire. On voit en effet sur la courbe bleue apparaître des structures dues à des oscillations de Rabi, qui ne peuvent pas être reproduites dans l’approximation (ii). On discutera plus en détail au chapitre suivant les différents régimes d’amplification des lasers XUV, ainsi que de l’effet de l’apparition d’oscillations de Rabi sur leur spectre, en mode ASE ou en mode injecté.

Les courbes présentées dans la figure 4.23 ont aussi pour but de vérifier que la présence d’oscillations de Rabi au cours de l’amplification n’a pas d’incidence majeure sur l’allure du module du degré de cohérence complexe et du spectre de puissance, comme on peut le vérifier en comparant les courbes bleues et roses des figures 4.23 (b) et (c), respectivement. On remarque pour ces deux grandeurs des structures qui rappellent celles qui sont calculées avec le modèle de cohérence partielle, comme nous allons maintenant l’étudier plus en détail.

4.6.2 Simulations COLAX : effet du nombre de modes longitudinaux

Dans cette section nous étudions à l’aide du code COLAX l’effet du nombre m de modes longitudinaux de l’impulsion sur la forme du degré de cohérence. Pour faire varier ce nombre m simplement à partir de la même simulation plasma, nous avons pris deux longueurs du plasma amplificateur différentes : $800 \mu\text{m}$ et 3mm . Tous les calculs présentés ont été réalisés avec le niveau d’approximation le plus détaillé, où la variation temporelle de la polarisation et de l’inversion de population sont traitées explicitement (cas (i) ci-dessus).

La figure 4.24 (a) représente le profil temporel de l’intensité $I_f(t)$ à la sortie du plasma de longueur $800 \mu\text{m}$, pour 3 simulations différentes, dans lesquelles seul diffère le germe aléatoire

servant au terme source d'émission spontanée. On constate que l'allure générale des impulsions est la même d'une simulation à l'autre, mais que les structures sur des échelles de temps plus rapides (quelques centaines de fs) fluctuent, faisant apparaître dans certains cas la présence d'oscillations de Rabi. La durée de l'impulsion (estimée approximativement à mi-hauteur sur le profil temporel $I_f(t)$) est de l'ordre de 1,5-2 ps. Le spectre (intégré temporellement) correspondant est représenté sur la figure 4.24 (c). On constate que le profil spectral présente des structures de "spikes", qui diffèrent d'une simulation à l'autre, mais leur nombre est toujours à peu près le même, environ 4. Ce nombre représente, comme on l'a vu plus haut, le nombre de modes temporels dans l'impulsion. C'est aussi ce que l'on peut déduire de la figure 4.24 (c) qui présente les courbes du module du degré de cohérence complexe calculé pour les 3 simulations. On constate que le temps de cohérence (correspondant à $|\gamma(\tau)| = 1/e$) est de l'ordre de 0,6 ps, soit 2 à 3 fois plus court que la durée d'impulsion. Pour les délais $\tau > \tau_c$, on retrouve sur les courbes du module du degré de cohérence complexe des structures très similaires à celles que nous avons calculées avec le modèle de cohérence partielle.

Les courbes de la figure 4.25 représentent les mêmes grandeurs que celles de la figure 4.24, mais pour le plasma de 3 mm. Les données hydrodynamiques et le gain sont également différents (pris à une distance différente de la cible dans le résultat de la simulation EHYBRID). On peut voir sur la figure 4.25 (a) que la durée de l'impulsion $I(t)$ est dans ce cas environ deux fois plus longue, de l'ordre de 5 ps. Sur le spectre de puissance normalisé $S(\nu - \nu_0)$ présenté sur la figure 4.25 (c), on retrouve des structures de spikes, mais en plus grand nombre (environ une dizaine). Enfin le module du degré de cohérence complexe $|\gamma(\tau)|$, ce qui nous permet d'évaluer le temps de cohérence $\tau_c \sim 0,8$ ps. On observe également des structures pour les délais $\tau > \tau_c$. Les deux cas choisis correspondent donc à des nombres de modes longitudinaux différents : environ $m \approx 2,5$ pour $L = 800 \mu m$ et $m \approx 8,5$ pour $L = 3 mm$. On va voir maintenant comment se comportent les grandeurs moyennées, pour chaque cas. Pour cela, on répète les calculs COLAX pour une série de N tirages différents (i.e. avec différents germes du générateur aléatoire de l'émission spontanée). Pour l'impulsion la plus courte (plasma de $L = 800 \mu m$), on prend $N = 200$, et un nombre un peu plus petit $N = 40$ pour l'impulsion plus longue (plasma $L = 3 mm$).

La figure 4.26 présente le degré de cohérence moyenné sur 200 tirages (i.e. 200 simulations) pour le cas $L = 800 \mu m$. Sur la courbe rose, correspondant à la moyenne du module $\langle |\gamma(\tau)| \rangle_N$, on voit apparaître un épaulement, très similaire à ce qui avait été observé avec le modèle de cohérence partielle. Les courbes bleue et verte représentent respectivement le module et la partie réelle du degré de cohérence complexe moyenné sur les 200 tirages. Ces deux courbes coïncident, et correspondent à la transformée de Fourier du spectre moyen, qui est présenté sur la figure 4.26 (b). Les simulations détaillées du code COLAX confirment donc bien le comportement particulier que nous avons mis en évidence avec le modèle de cohérence partielle, lorsque la durée de l'impulsion est proche du temps de cohérence. Ce modèle simple rend très bien compte des propriétés de cohérence temporelle des impulsions lasers XUV, comme on peut le voir sur les figures 4.26 (c) et (d) qui montrent les valeurs moyennes du degré de cohérence (module et partie réelle) et du spectre, calculés par le modèle de cohérence partielle, pour une impulsion ayant des caractéristiques similaires en terme de nombre longitudinaux ($m = 3,5$) et largeur spectrale (ou temps de cohérence). On note en particulier que la forme et l'étendue de l'épaulement sur la courbe $\langle |\gamma(\tau)| \rangle_N$ sont très similaires.

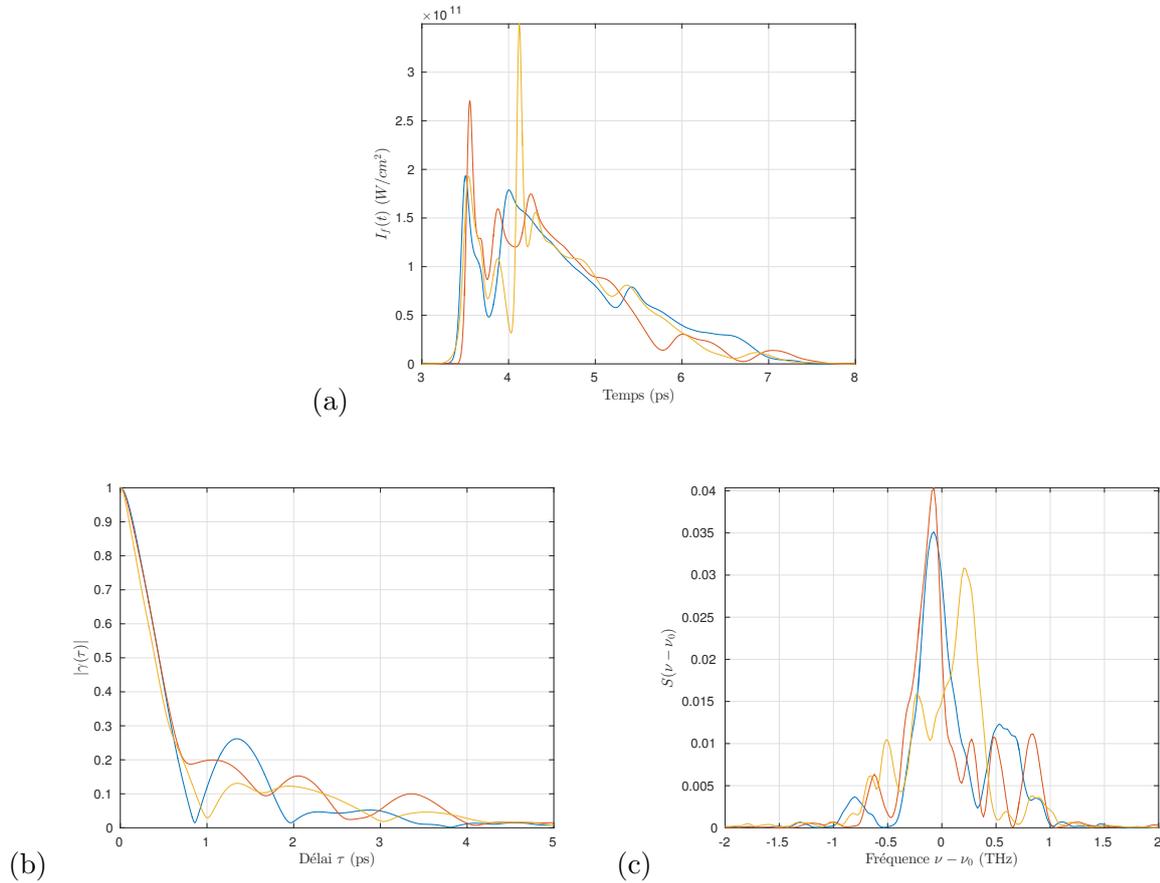


FIGURE 4.24 – (a) Profil temporel de l’intensité à la sortie du plasma amplificateur $I_f(t)$, (b) module du degré de cohérence complexe $|\gamma(\tau)|$ et (c) spectre de puissance normalisé $S(\nu - \nu_0)$ de trois impulsions laser XUV TCE ASE d’Ag calculées par des simulations COLAX en 1 dimension pour une longueur de plasma amplificateur de 800 μm .

Il ne faut pas comparer ces résultats de façon trop strictement quantitative. On rappelle en effet que les simulations avec le modèle de cohérence partielle sont basées sur une forme gaussienne des enveloppes temporelle et spectrale, ce qui n’est pas le cas dans les simulations COLAX. Ainsi le spectre moyen calculé par COLAX (Fig. 4.26 (b)) est un profil de Voigt (dont la contribution lorentzienne est probablement surestimée par rapport à l’expérience, puisque l’élargissement Doppler n’est pas inclus dans COLAX). D’autre part l’enveloppe temporelle de l’intensité (Fig. 4.26 (a)) n’est pas non plus gaussienne. Elle présente une forme typique, déjà observée dans des expériences, avec un front de montée abrupt et une décroissance plus lente, qui conduit à une forme différente de l’épaulement sur $\langle |\gamma(\tau)| \rangle_N$. On note néanmoins que pour un nombre de modes longitudinaux comparable, fixé de manière à ce que l’étendue en délai de l’épaulement soit la même, la hauteur de cet épaulement est également sensiblement la même : $\sim 0,35$.

La figure 4.27 présente les mêmes courbes que la figure 4.26, mais pour la simulation correspondant au plasma de longueur $L = 3 \text{ mm}$. On rappelle que dans ce cas, la durée de l’impulsion XUV était plus longue, environ 5 ps, pour un nombre de modes longitudinaux évalué à $m=8,5$. On voit sur la figure 4.27 (b) que la hauteur de l’épaulement est un peu plus faible que dans le cas précédent ($\sim 0,25$ au lieu de $\sim 0,35$). C’est aussi ce que l’on trouve lorsque l’on utilise le modèle de cohérence partielle, comme le montre la figure 4.27 (c).

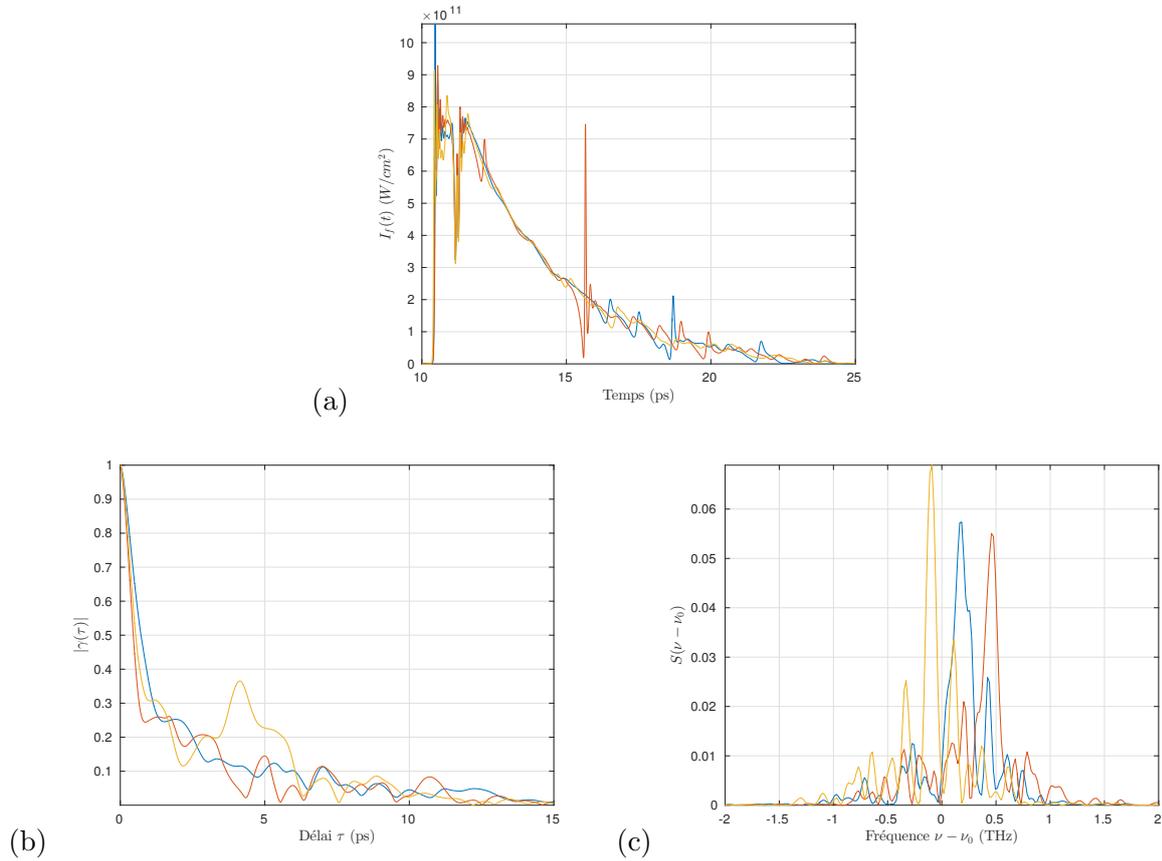
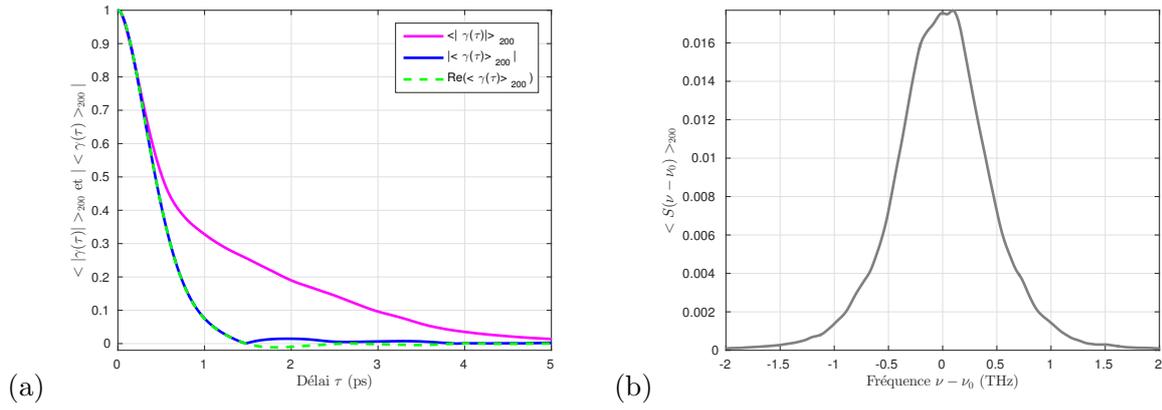


FIGURE 4.25 – (a) Profil temporel de l’intensité à la sortie du plasma amplificateur $I_f(t)$, (b) module du degré de cohérence complexe $|\gamma(\tau)|$ et (c) spectre de puissance normalisé $S(\nu - \nu_0)$ de trois impulsions laser XUV TCE ASE d’Ag calculées par des simulations COLAX en 1 dimension pour une longueur de plasma amplificateur de 3 mm.

En conclusion les calculs réalisés à partir du code de simulation détaillée COLAX confirment la présence d’un épaulement qui apparaît sur la courbe de la moyenne des modules du degré de cohérence complexe, lorsque la durée de l’impulsion est proche du temps de cohérence, c’est à dire lorsque le nombre de modes longitudinaux est petit.

Dans la section suivante, en utilisant le modèle de cohérence partielle, on étudie de façon plus systématique les paramètres qui semblent contrôler l’allure de cet épaulement (hauteur, étendue, aire) : les formes de l’enveloppe spectrale et du profil temporel de l’impulsion, et m le nombre de modes temporels.

COLAX ($L = 800 \mu\text{m}$, 200 tirages) :



Modèle de cohérence partielle ($m = 3, 5 : \Delta\nu = 0,77 \text{ THz}$ et $\tau_{pulse} = 2,0 \text{ ps}$) :

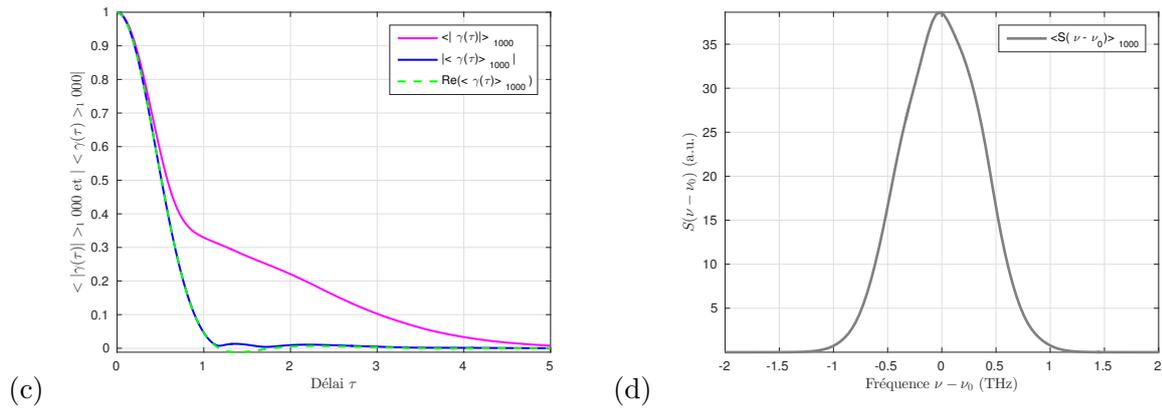


FIGURE 4.26 – (a) Moyenne et partie réelle du module du degré de cohérence complexe et (b) spectre de puissance normalisé moyen de 200 impulsions générées par COLAX avec une longueur de plasma amplificateur $L = 800 \mu\text{m}$. (c) Moyenne et partie réelle du module du degré de cohérence complexe et (d) spectre de puissance normalisé moyen de 1000 impulsions générées par le code de cohérence partielle pour $m = 3, 5$: avec $\Delta\nu = 0,77 \text{ THz}$ et $\tau_{pulse} = 2,0 \text{ ps}$.

4.7 Etude systématique des caractéristiques de l'épaulement avec la durée d'impulsion

La figure 4.28 montre l'évolution de la moyenne du module du degré de cohérence complexe $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$, calculée par le modèle de cohérence partielle, lorsque l'on fait varier le nombre de modes longitudinaux m entre 1 (impulsion Fourier limitée) et $m = 100$. Les données d'entrée sont les mêmes que celles utilisées dans la section 4.4 (spectre $I(\nu - \nu_0)$ gaussien $\Delta\nu = 1 \text{ THz}$, enveloppe temporelle $F(t)$ gaussienne) et chaque courbe résulte d'une moyenne sur 500 tirages de la phase spectrale aléatoire. On voit clairement le comportement évoqué plus haut : la durée de l'impulsion (le nombre m) est encodée dans la hauteur et l'extension de l'épaulement qui se forme de chaque côté du pic central. Plus m est grand, plus la hauteur diminue et son extension en temps augmente. Rappelons que le pic central a une forme gaussienne, liée à notre choix d'une enveloppe gaussienne dans le modèle. Nous allons voir que dans nos conditions l'épaulement est lui aussi très bien représenté par une forme gaussienne.

Pour étudier de façon plus quantitative l'évolution de l'épaulement en fonction de m , nous utilisons la représentation de la figure 4.29 afin de fitter indépendamment le pic central et l'épaulement sur les courbes de la figure 4.28. On définit ainsi :

- $\gamma_{FL}(\tau)$: pic central gaussien (tirets bleus), lié au spectre, dont l'expression est donnée

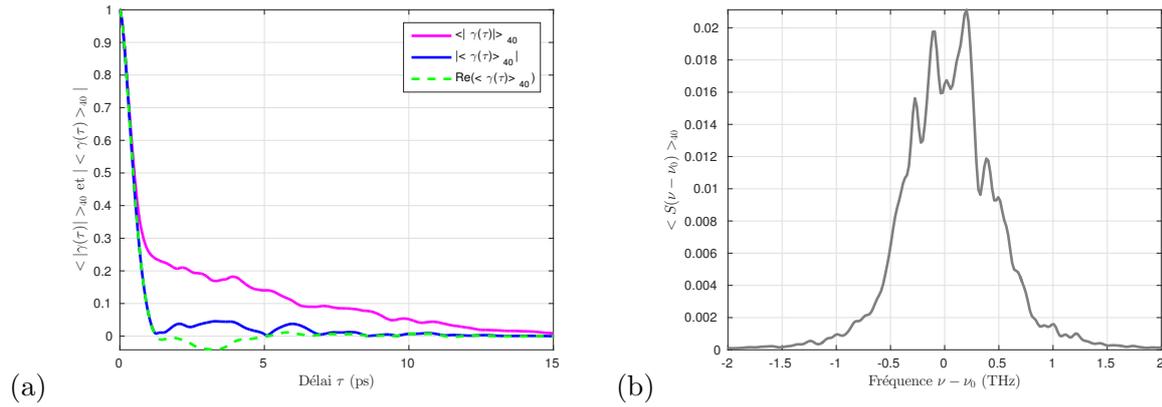
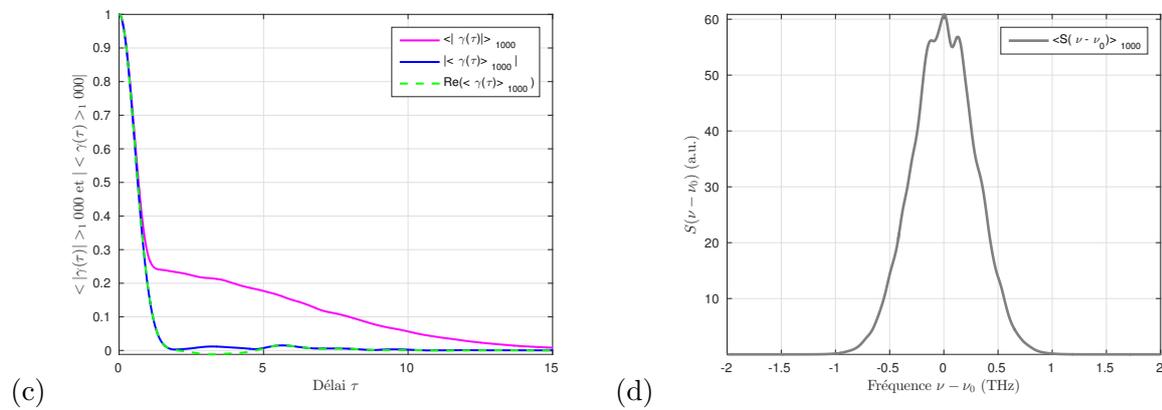
COLAX ($L = 3$ mm, 40 tirages) :Modèle de cohérence partielle ($m = 10$: $\Delta\nu = 0,67$ THz et $\tau_{pulse} = 6,6$ ps) :

FIGURE 4.27 – (a) Moyenne et partie réelle du module du degré de cohérence complexe et (b) spectre de puissance normalisé moyen de 40 impulsions générées par COLAX avec une longueur de plasma amplificateur $L = 3$ mm. (c) Moyenne et partie réelle du module du degré de cohérence complexe et (d) spectre de puissance normalisé moyen de 1000 impulsions générées par le code de cohérence partielle pour $m = 10$: avec $\Delta\nu = 0,67$ THz et $\tau_{pulse} = 6,6$ ps.

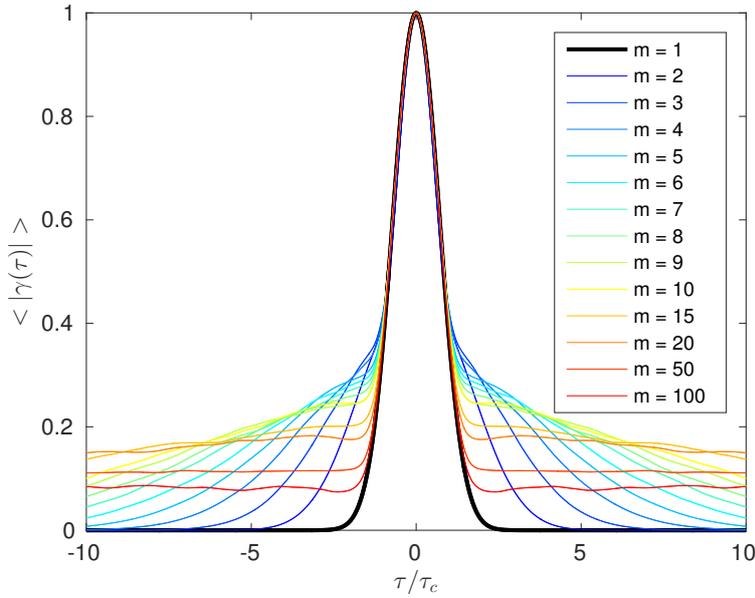


FIGURE 4.28 – Moyennes des modules des degrés de cohérence complexes $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$ calculés par le code de cohérence partielle pour 500 tirages, pour différents nombres de modes m (dont la valeur pour chaque courbe est indiquée dans la légende). La courbe noire représente $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$ pour une impulsion Fourier limitée, i.e. pour $m = 1$. Le calcul est réalisé pour une enveloppe spectrale et une enveloppe temporelle gaussiennes et la même largeur spectrale $\Delta\nu = 1$ THz.

par $\gamma_{FL}(\tau) = \exp\left\{-\left(\frac{\tau}{\tau_c}\right)^2\right\} = \exp\left\{-4 \ln(2) \cdot \left(\frac{\tau}{\Delta\gamma_{FL}}\right)^2\right\}$, où $\Delta\gamma_{FL}$ est la largeur à mi-hauteur du pic et τ_c est le temps de cohérence temporelle, défini comme la demi-largeur à $1/e$. On a $\Delta\gamma_{FL} = 2 \cdot \sqrt{\ln(2)} \times \tau_c = 2 \cdot \tau_{FL}$, où τ_{FL} est la durée (en intensité) de l'impulsion Fourier limitée. On rappelle que pour un nombre d'impulsions N suffisamment élevé

$$\lim_{N \rightarrow \infty} \langle \gamma(\tau) \rangle_N = \gamma_{FL}(\tau).$$

– $\gamma_m(\tau)$: épaulement (tirets rouges), lié à la durée de l'impulsion (et au nombre m), que l'on cherche à caractériser.

Nous trouvons que, pour toutes les valeurs de m représentées sur la figure 4.28, la courbe $\gamma_m(\tau)$ représentant l'épaulement s'ajuste parfaitement par une fonction gaussienne de hauteur h_m et de largeur à mi-hauteur $\Delta\gamma_m$. On écrit donc :

$$\gamma_m(\tau) = h_m \cdot \exp\left\{-4 \ln(2) \cdot \left(\frac{\tau}{\Delta\gamma_m}\right)^2\right\}$$

La figure 4.30 représente la largeur à mi-hauteur $\Delta\gamma_m$ (déduites de ces fits gaussiens) en fonction du nombre de modes longitudinaux m . Plus exactement, on a tracé le rapport $\Delta\gamma_m/\Delta\gamma_{FL}$ (largeur FWHM de l'épaulement sur celle du pic central) en fonction de m .

On voit que les points s'alignent parfaitement sur une droite de pente 1, on a donc $\Delta\gamma_m = m \cdot \Delta\gamma_{FL} = 2 \cdot \tau_{pulse}$, où τ_{pulse} est la durée (en intensité) du filtre temporel $|F(t)|^2$. Si on exprime la largeur $\Delta\gamma_m$ en fonction du filtre $F(t)$ en amplitude $\tau_{pulse}^E = \sqrt{2} \cdot \tau_{pulse}$, on trouve $\Delta\gamma_m = \sqrt{2} \cdot \tau_{pulse}^E$. Rappelons que $F(t)$ est une fonction gaussienne de largeur à mi-hauteur τ_{pulse}^E . La largeur de son autocorrélation est $\sqrt{2} \cdot \tau_{pulse}^E$. On trouve donc que la forme de l'épaulement est donné par l'autocorrélation du filtre temporel $F(t)$ représentant l'enveloppe temporelle moyenne de l'impulsion.

On s'intéresse maintenant à la hauteur h_m de l'épaulement, toujours en fonction de m , en

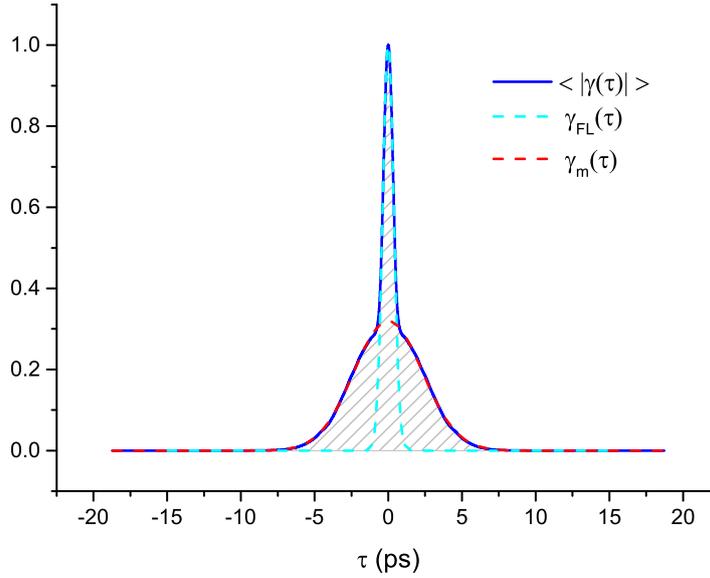


FIGURE 4.29 – Forme générale de $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$ (trait plein) et séparation des deux contributions correspondant au pic central $\gamma_{FL}(\tau)$ (tirets bleus) et à l'épaulement $\gamma_m(\tau)$ (tirets rouges). L'aire hachurée représente l'intégrale de la moyenne du module du degré de cohérence : $\int d\tau \langle |\gamma(\tau)| \rangle$.

utilisant des fits gaussiens γ_m définis plus haut. La figure 4.31 représente les hauteurs mesurées pour les différents m représentés sur la figure 4.28. La courbe en trait plein est le fit par la fonction $h_m = 0,68 \cdot \frac{1}{\sqrt{m}} + 0,03$. Cette forme fonctionnelle est plus difficile à interpréter et à relier à des quantités physiques que ce que nous avons pu faire pour la largeur $\Delta\gamma_m$. Nous tenterons toutefois de proposer un début d'interprétation à la fin de cette section.

Enfin, nous avons mesuré l'aire sous chacune des 3 courbes représentées sur la figure 4.29 à savoir : l'aire totale A sous la courbe $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$ (représentée par toute la partie hachurée), l'aire A_{FL} sous le pic central en tirets bleus $\gamma_{FL}(\tau)$ et l'aire A_m sous la courbe en tirets rouges représentant l'épaulement $\gamma_m(\tau)$:

$$\begin{cases} A = \int_{-\infty}^{\infty} \langle |\gamma(\tau)| \rangle d\tau \\ A_m = \int_{-\infty}^{\infty} \gamma_m(\tau) d\tau \\ A_{FL} = \int_{-\infty}^{\infty} \gamma_{FL}(\tau) d\tau = \int_{-\infty}^{\infty} \langle |\gamma(\tau)| \rangle d\tau \end{cases}$$

Sur la figure 4.32 nous avons représenté le rapport A/A_{FL} en fonction du nombre de modes longitudinaux m . Ce rapport est parfaitement décrit par la fonction :

$$\frac{A}{A_{FL}} = \sqrt{m}. \quad (4.10)$$

Ce résultat est suffisamment remarquable pour qu'il nous paraisse pouvoir être démontré mathématiquement, démonstration qui dépasse toutefois le cadre de ce travail de thèse.

On peut néanmoins retrouver une partie de ce résultat à partir des fonctions gaussiennes $\gamma_m(\tau)$ et $\gamma_{FL}(\tau)$ utilisées pour représenter l'épaulement et le pic central de $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$. Lorsque l'on intègre ces fonctions en utilisant l'intégrale de Gauss $\int_{-\infty}^{\infty} e^{-\alpha x^2} dx = \sqrt{\frac{\pi}{\alpha}}$, on trouve :

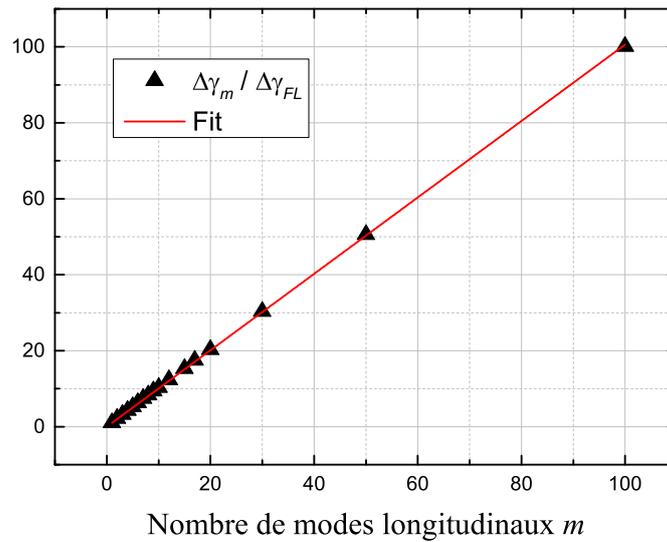


FIGURE 4.30 – Rapport entre la largeur à mi-hauteur de l'épaulement $\Delta\gamma_m$ et celle du pic central $\Delta\gamma_{FL}$, en fonction du nombre de modes longitudinaux m . Chaque point correspond à une courbe de la figure 4.28. La courbe en trait plein montre le fit linéaire de pente égale 1 et d'ordonnée à l'origine nulle sur lequel s'alignent ces points.

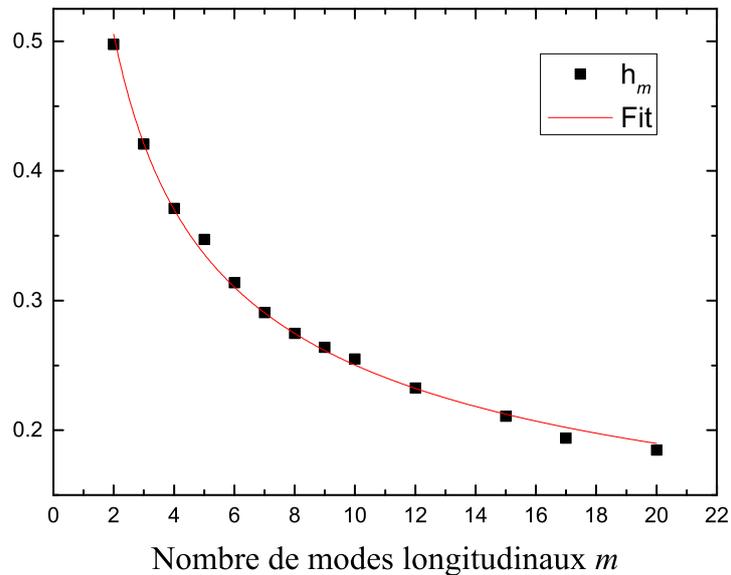


FIGURE 4.31 – Hauteur de l'épaulement, représenté par la fonction gaussienne γ_m , en fonction du nombre de modes longitudinaux m . Chaque point correspond à une courbe de la figure 4.28. La courbe en trait plein est le fit de ces points par la fonction : $h_m = 0,68 \cdot \frac{1}{\sqrt{m}} + 0,03$.

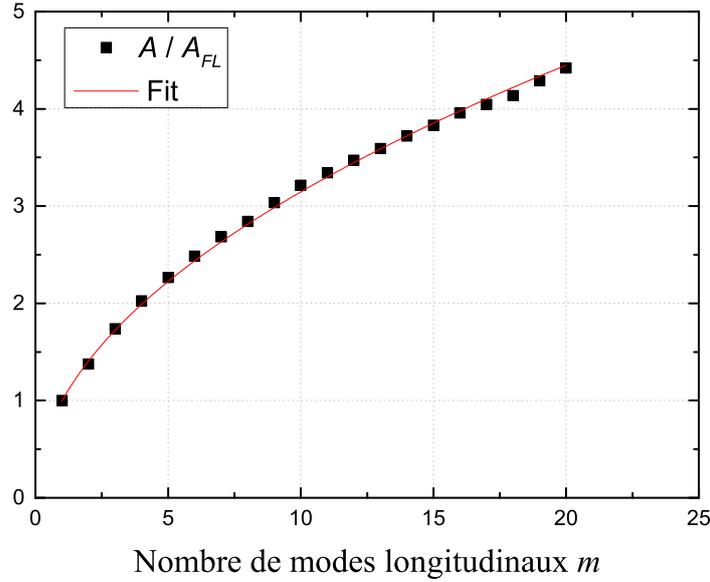


FIGURE 4.32 – Rapport entre l'aire totale A soutenue par la courbe $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$ et l'aire A_{FL} du pic central γ_{FL} , tracé en fonction du nombre de modes longitudinaux m . Chaque point correspond à une courbe de la figure 4.28. La courbe en trait plein est le fit de ces points par la fonction : $A/A_{FL} = \sqrt{m}$.

$$A_{FL} = \sqrt{\pi} \times \tau_c = \sqrt{\frac{\pi}{\ln(2)}} \times \tau_{FL}$$

$$A_m = \sqrt{\frac{\pi}{4\ln(2)}} \times \Delta\gamma_m \times h_m = \sqrt{\frac{\pi}{4\ln(2)}} \times 2.m.\tau_{FL} \times h_m.$$

Le rapport A_m/A_{FL} se simplifie et on trouve :

$$\frac{A_m}{A_{FL}} = m \times h_m.$$

On a vu plus haut que la hauteur h_m pouvait être représentée par la fonction $h_m = 0,68 \cdot \frac{1}{\sqrt{m}} + 0,03$. Pour de petites valeurs de m ($m \leq 10$), on peut ignorer le terme constant et écrire $h_m \approx 0,68 \cdot \frac{1}{\sqrt{m}}$. On retrouve alors que le rapport A_m/A_{FL} (qui n'est pas strictement identique au rapport A/A_{FL} considéré dans la figure 4.32) est proportionnel à \sqrt{m} .

Pour conclure, l'étude systématique que nous avons réalisée montre que plusieurs des caractéristiques de l'épaulement qui apparaît sur la courbe de la moyenne $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$, s'expriment simplement en fonction du nombre de modes longitudinaux m qui composent l'impulsion. Ainsi l'aire totale sous la courbe $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$ est égale à \sqrt{m} fois celle du pic central correspondant à la transformée de Fourier du spectre. La largeur à mi-hauteur $\Delta\gamma_m$ est donnée par m fois la largeur à mi-hauteur du pic central (ou encore 2 fois la durée d'impulsion en intensité τ_{pulse}). Enfin, la hauteur h_m de la fonction décrivant l'épaulement γ_m diminue en $1/\sqrt{m}$ lorsque m augmente. En collaboration avec Olivier Larroche (CEA-B3), nous avons cherché à comprendre l'origine de ce comportement, et nous proposons une première interprétation.

On se représente l'impulsion pour une réalisation donnée k (dans le domaine temporel) $E_k(t)$, comme une succession de m impulsions élémentaires $E_0(t)$ Fourier limitées ayant le même spectre, i.e. de même durée en champ τ_{FL}^E ($= \sqrt{2\ln(2)} \cdot \tau_c$ pour un spectre gaussien), de phase temporelle plate choisie aléatoirement, et espacées d'une durée de l'ordre de τ_{FL}^E en moyenne. Toutes ces impulsions élémentaires ont le même spectre donc la même fonction d'autocorrélation

$\Gamma_0(\tau) = \int E_0(t).E^*(t + \tau) dt$. On définit ces impulsions telles que $\int |E(t)|^2 dt = \Gamma(0) = 1$ de sorte que la courbe $\gamma_0(\tau)$ est équivalente à $\Gamma_0(\tau)$ (où $\gamma_0(\tau)$ est le degré de cohérence complexe). Qualitativement, pour $|\tau| < \tau_c$, on s'attend à ce que le signal d'autocorrélation $\Gamma_k(\tau) = \int E_k(t).E_k^*(t + \tau)dt$ reproduise la fonction d'autocorrélation de l'impulsion élémentaire $\gamma_0(\tau)$ additionnée m fois à elle-même, soit : $\Gamma_k(\tau) \approx m \times \gamma_0(\tau)$. Pour $|\tau| > \tau_c$, les fonction de corrélation mutuelle de paires d'impulsions élémentaires s'additionnent. Pour chaque paire, on obtient la fonction d'autocorrélation de l'impulsion de départ $\gamma_0(\tau^*)$ (où τ^* est défini tel que : $\tau = n.\tau_{FL}^E + \tau^*$) affectée d'un déphasage global aléatoire égal à la différence entre les phases aléatoires des deux impulsions sélectionnées. C'est donc un nombre aléatoire dont l'espérance est nulle et l'écart-type de l'ordre de $|\gamma_0(\tau^*)|$. La somme des corrélations mutuelles des paires d'impulsions élémentaires sur l'impulsions totale correspond donc à la somme de m nombres choisis avec la même loi de probabilité de moyenne nulle et de variance $|\gamma_0(\tau^*)|^2$. La loi des grands nombres nous dit que cette somme va tendre à avoir pour m grand une loi de probabilité de moyenne nulle et de variance égale à la somme des variances $m.|\gamma(\tau^*)|^2$, donc d'écart-type $\sqrt{m}.|\gamma(\tau^*)|$.

En divisant l'ensemble de la fonction $\Gamma_k(\tau)$ ainsi construite par m pour ramener à 1 sa valeur en $\tau = 0$, on trouve bien une partie centrale donnée par $\gamma_0(\tau)$ suivie pour des délais plus grands d'une contribution dont le module attendu décroît en $\sqrt{m}/m = 1/\sqrt{m}$. On a donc un degré de cohérence complexe $\gamma_k(\tau)$ pour une réalisation k qui a une partie centrale égale à $\gamma_0(\tau)$ et des ailes de longueur $\approx m.\tau_c$, constituées de valeurs complexes de module $\approx \sqrt{m}.|\gamma_0(\tau)|$ et de phase aléatoire. Si on en prend le module et qu'on moyenne sur N réalisations, on obtient bien des ailes \sqrt{m} fois plus basses que la partie centrale. Par contre, si on ajoute les N fonctions de corrélation complexes $\Gamma_k(\tau)$ avant d'en prendre le module, on obtient de nouveau une réduction relative d'un facteur \sqrt{N} pour la partie dans les ailes où la phase est aléatoire. Lorsque l'on fait la moyenne en divisant par N , on trouve alors que le module de la moyenne $\langle |\gamma_k(\tau)| \rangle_N$ a un comportement en $1/\sqrt{mN}$ dans les ailes. On retrouve alors le comportement observé, c'est-à-dire que le module de la moyenne tend vers zéro lorsque soit m (nombre de modes longitudinaux), soit N (nombre de réalisations dans la moyenne d'ensemble), soit les deux deviennent grands.

4.8 Perspectives : Mesures d'autocorrélations en champ avec un interféromètre monocoup

Dans cette section nous discutons le principe d'une expérience qui n'a pu être réalisée au cours de ma thèse en raison du retard de réouverture de l'installation LASERIX, suite à son déménagement du site de l'ENSTA Palaiseau à celui du LAL sur le campus de la faculté d'Orsay. Cette expérience, à présent prévue pour le deuxième semestre 2016, vise à vérifier expérimentalement les résultats des simulations que nous avons présentées dans ce chapitre. Pour cela nous avons proposé d'utiliser l'interféromètre XUV monocoup, développé par Olivier Guilbaud au LPGP dans le cadre du projet OASIS financé par le LABEX PALM, et auquel notre groupe est associé. Cet interféromètre, dont nous allons décrire le principe, permet de réaliser en un tir une autocorrélation en champ de l'impulsion, en mesurant sur le même interférogramme la variation de la visibilité des franges sur une gamme de délais choisie.

Plus précisément, nous souhaitons étudier dans cette expérience les points suivants :

- Les structures qui apparaissent aux $|\tau| \geq \tau_c$ sur les modules des degrés de cohérence complexes $|\gamma_k(\tau)|$ pour chaque réalisation k , c'est à dire pour chaque tir.
- La forme de la moyenne des modules $\langle |\gamma(\tau)| \rangle_N$ sur ensemble de N tirs identiques, et la présence des épaulements aux délais $|\tau| \geq \tau_c$.

- L'évolution de ces structures et de ces épaulements en fonction des paramètres de l'impulsion laser XUV, en particulier sa durée (ou plus exactement son nombre de modes longitudinaux).

L'étude des formes moyennes des courbes $\langle |\gamma(\tau)| \rangle_N$ sur un ensemble de tirs sera menée simultanément avec le nouvel interféromètre monocoup OASIS du LPGP, et avec "l'ancien" interféromètre multicoup de l'ISMO.

4.8.1 Principe de l'interféromètre XUV monocoup OASIS

L'interféromètre XUV OASIS est inspiré de celui proposé en 1996 par Chilla et al. [Chilla 1996] et dont la première démonstration expérimentale avec un laser XUV TCE de paladium nickel-loïde a été réalisée en 2013 [Wang 2013]. Il s'agit d'un interféromètre de Mach-Zehnder dont les deux séparatrices sont des réseaux de diffraction. Le principe est représenté sur la figure 4.33 (tirée de [Wang 2013]). Le faisceau incident, après collimation et filtrage spectral par deux miroirs multicouche, est diffracté sur le premier réseau de diffraction (G1). L'ordre 0 (que nous appellerons "D1-0" pour "ordre 0 de la première diffraction") et l'ordre 1 (que nous appellerons "D1-1") sont chacun réfléchis par une série de deux miroirs en incidence rasante (avec une couverture d'or) et redirigés vers le deuxième réseau (G2) de sorte à en émerger colinéairement et se recombiner pour interférer à la surface d'un détecteur CCD.

Le faisceau dans l'ordre 0 (D1-0) conserve les propriétés du faisceau incident, comme une réflexion spéculaire. En revanche le faisceau diffracté dans le premier ordre de diffraction (D1-1) est inhomogène : son front d'énergie est incliné d'un angle θ par rapport à son front d'onde (ou plan équiphase) qui reste perpendiculaire à la direction de propagation du faisceau. Ainsi, le faisceau D1-1 acquiert un retard dépendant de la position dans la direction transverse. Les faisceaux D1-0 et D1-1 sont redirigés vers le réseau G2 par des miroirs en incidence rasante. Le premier ordre de diffraction du faisceau D1-1 par G2 (que nous appellerons "D2-1") et l'ordre 0 de diffraction du faisceau D1-0 ("D2-0") se superposent et interfèrent.

Si les faisceaux D1-0 et D1-1 ne subissent qu'une seule réflexion pour être envoyés vers G2, le retard transverse introduit sur D2-1 par la diffraction sur G2 compense celui qui avait été introduit par G1 sur D1-1. L'astuce du montage de Chilla et al. est d'introduire une deuxième réflexion entre les deux réseaux, afin "d'inverser" le retard sur l'axe transverse introduit par la première diffraction sur R1 de manière à ce qu'il s'ajoute à celui introduit par le deuxième réseau R2. Cela permet, en un seul tir, de faire interférer des points du champ du faisceau incident avec un délai variable sur la direction transverse et donc de faire une mesure de cohérence temporelle "monocoup". L'interféromètre OASIS, schématisé sur la figure 4.34, repose sur le même principe, mais il est beaucoup plus compact car il est basé sur un schéma d'interféromètre de type Michelson : il ne comporte qu'une seule séparatrice (un seul réseau de diffraction en réflexion) et deux miroirs de renvoi (miroirs multicouches en incidence normale) pour chaque ordre de diffraction. À l'aller les faisceaux D1-1 et D1-0 issus de la diffraction à l'ordre 1 et 0, sont respectivement envoyés sur les miroirs M1 et M0 en incidence normale. Au retour, après réflexion sur les miroirs et diffraction sur le réseau, l'ordre 0 de diffraction de D1-1 (D2-0) et l'ordre 1 de diffraction de D1-0 (D2-1) se superposent et interfèrent à la surface du détecteur CCD.

Dans cette configuration, les délais transverses acquis à l'aller par D1-1 (diffraction à l'ordre 1 du faisceau incident), et au retour par D2-1 (diffraction à l'ordre 1 de D1-0), sont bien en sens inverses et s'ajoutent comme dans l'interféromètre de Chilla et al.

Comme on peut le voir sur le schéma de la figure 4.33, la diffraction introduit une anamorphose γ du faisceau, donnée par :

$$\gamma = \frac{\cos(\beta)}{\cos(i)} \quad (4.11)$$

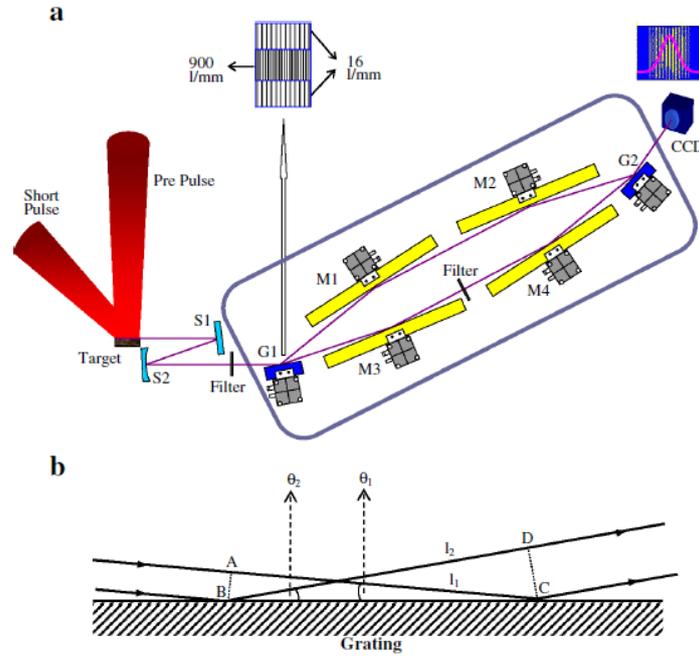


FIGURE 4.33 – Figure 1 de [Wang 2013], principe de fonctionnement de l’interféromètre de Chilla et al. démontré ici pour la première fois par Wang et al. sur un laser XUV.

où β est l’angle de diffraction à l’ordre 1 défini par rapport à la normale (voir fig. 4.34). Deux rayons du faisceau incident distants de Δx_0 dans le faisceau incident seront donc distants de $\Delta x = \gamma \cdot \Delta x_0$. Dans la configuration de l’interféromètre OASIS ces rayons seront distants de Δx sur le détecteur, contrairement à la configuration de Chilla et al. où elle est compensée par le passage sur le deuxième réseau.

L’angle θ entre le front d’énergie équiamplitude et le front d’onde équiphase de l’onde inhomogène produite par la diffraction est constant au cours du temps et de la propagation. Entre deux points du front d’énergie de l’onde inhomogène D1-1 distants de Δx dans la direction transverse, il introduit un retard relatif Δt transverse :

$$\Delta t_{(1\text{passage})} = \frac{\Delta x}{c} \cdot \tan(\theta). \quad (4.12)$$

Le retard entre deux rayons réfléchis à l’ordre p par deux traits successifs du réseau est $\delta t = \frac{p\lambda}{c}$, donc dans notre cas $\delta t = \frac{\lambda}{c}$. Le retard transverse Δt entre deux points du front d’énergie de D1-1 distants de Δx est égal à δt multiplié par le nombre de traits interceptés par le faisceau diffracté sous l’angle i : $N \cdot \frac{\Delta x}{\cos(\beta)}$ (N est le nombre de traits du réseau par unité de longueur). Le délai relatif total entre deux points espacés de Δx est donc multiplié par deux car les deux délais transverse (celui de D1-1 et celui de D2-1) sont opposés et s’additionnent lorsque D2-1 se recombine avec D2-1 (ordre 0 de diffraction de D1-1). On obtient ainsi une nouvelle expression du retard en fonction de Δx , distance transverse sur le détecteur :

$$\Delta t = \Delta t_{(2\text{passages})} = \frac{2N\lambda}{c \cdot \cos(\beta)} \times \Delta x. \quad (4.13)$$

4.8.2 Description du projet d’expérience

L’expérience sera réalisée sur un laser XUV TCE de titane néonoïde émettant à $\lambda = 32,6$ nm. Il sera envoyé avec un angle d’incidence rasante ($\pi/2 - i$) de 6° sur un réseau de longueur $L = 40$ mm et de $N = 5670$ traits/mm. Le détecteur utilisé sera une CCD. L’intervalle de différence de marche total sera de 6 mm, ce qui correspond à un intervalle de délai transverse

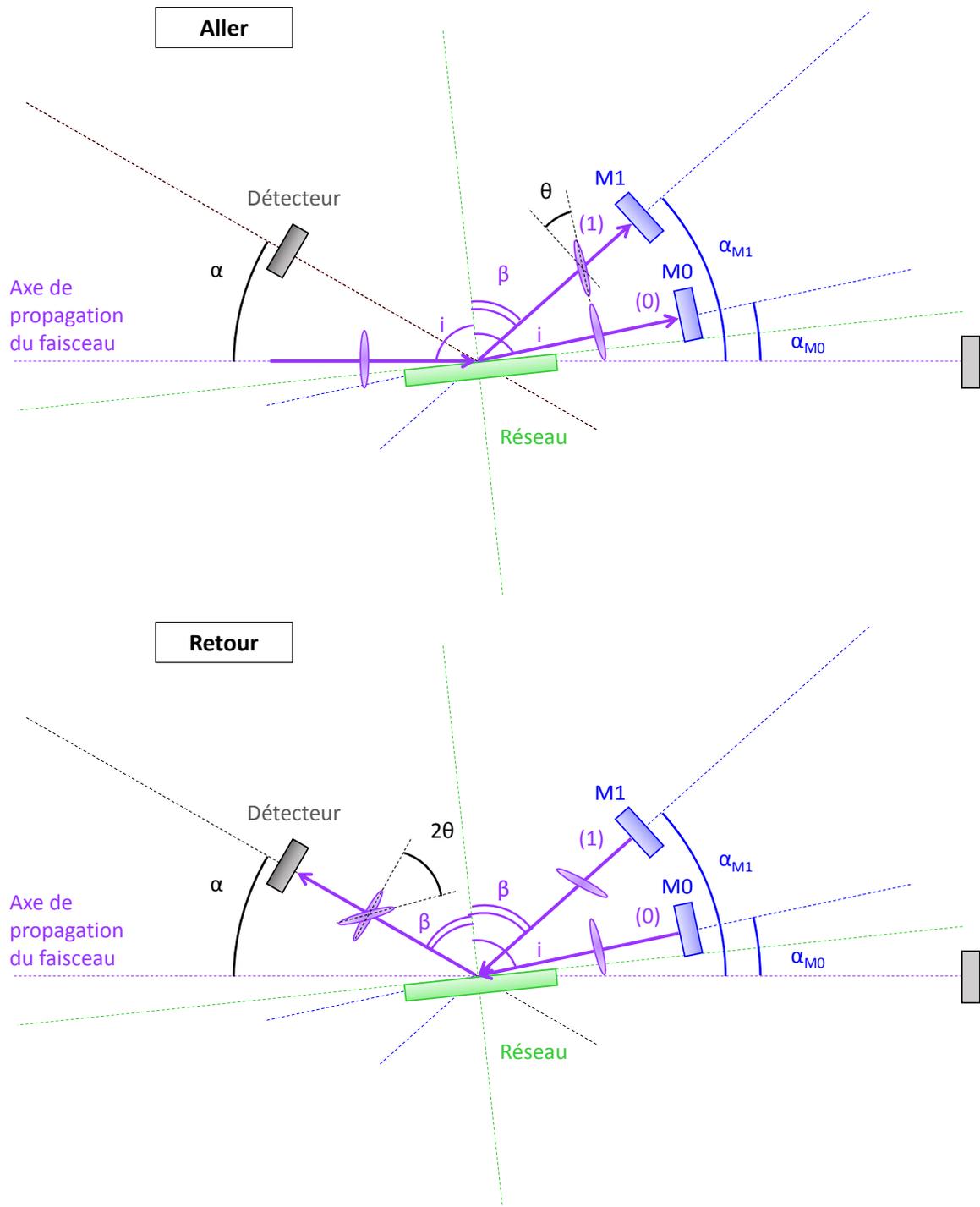


FIGURE 4.34 – Schéma du trajet du faisceau, à l'aller et au retour, dans l'interféromètre monocoup OASIS. Les enveloppes des impulsions sont représentées par l'ovale violet sur les trajets des faisceaux. On peut voir que les deux impulsions recombinées sont inclinées d'un angle 2θ l'une par rapport à l'autre

$\Delta t = 18$ ps. Le délai nul peut être centré sur le détecteur ($\tau = \pm 9$ ps), ou décalé vers l'un des bords du détecteur afin d'atteindre des délais supérieurs à 9 ps. En effet, on souhaite observer les structures qui apparaissent aux délais $|\tau| > \tau_c$ dans les calculs du module du degré de cohérence $|\gamma(\tau)|$ d'une impulsion partiellement cohérente, ainsi que l'épaulement qui se forme lorsque ces structures sont moyennées sur le $|\gamma(\tau)|$ d'un grand nombre d'impulsions. Nous avons vu que l'extension de l'épaulement était de l'ordre de la durée d'impulsion, que nous estimons, pour le laser XUV de Ti néonoïde, à environ ~ 4 ps, la durée de la fenêtre d'amplification qui a été mesurée ici [Guilbaud 2015]). L'intervalle de délai transverse est donc suffisant.

Il faut également s'assurer que la résolution sera suffisante pour l'observation des structures dont l'extension est de l'ordre de τ_c . Si on utilise la même configuration que dans l'expérience de Wang et al. [Wang 2013], les franges sont "verticales", c'est à dire perpendiculaires à l'axe transverse sur lequel le délai entre les deux faisceaux qui interfèrent varie. Dans ce cas, la limite de résolution en délai est donnée par la valeur de l'interfrange. Cet interfrange peut être ajusté en faisant varier l'angle entre les miroirs de renvoi M0 et M1, mais il ne peut pas être trop faible (≥ 5 pixels) afin de pouvoir calculer la visibilité des franges.

On peut également incliner les miroirs M0 et M1 suivant un axe dans le plan de propagation des faisceaux afin d'obtenir des franges "horizontales", c'est à dire parallèles à l'axe transverse sur lequel le délai varie. Dans ce cas, la résolution est maximale puisqu'elle est de la taille d'un pixel (13 μm), ce qui correspond à une différence de marche de 8 μm , ou un délai de 26 fs.

Enfin, afin de faire varier le nombre de modes longitudinaux dans l'impulsion deux possibilités sont envisagées :

- La première méthode serait de faire varier la longueur L du plasma pour ajuster la largeur spectrale par le rétrécissement par le gain (on rappelle que $\Delta\nu \propto 1/\sqrt{G.L}$ où G est le gain), et donc le temps de cohérence du laser XUV qui est inversement proportionnel à sa largeur spectrale. Cette méthode est facile à exécuter mais comporte des inconvénients. La gamme sur laquelle on peut faire varier la longueur du plasma est assez réduite : 2 à 4 mm. En effet, on ne peut pas trop réduire la longueur du plasma car le niveau de signal risque de devenir trop faible sur le détecteur. Or, en augmentant la longueur du plasma de 2 mm à 4 mm, on n'augmenterait le temps de cohérence que d'un facteur de $\sqrt{2}$. Par ailleurs, on ne connaît pas précisément l'effet de cette augmentation de longueur sur la durée d'impulsion. Les simulations effectuées avec le code COLAX indiquent toutefois que l'effet sur la durée d'impulsion serait faible.

- La deuxième méthode consisterait à faire varier la durée de l'impulsion de pompe pour faire varier celle de l'impulsion XUV. Des mesures réalisées sur un laser XUV de molybdène nickel-loïde ont montré qu'en augmentant la durée de l'impulsion de pompe d'environ 1 ps à 8 ps la durée d'impulsion laser XUV était augmentée d'un facteur ~ 2 (pour un angle GRIP de 23°) [Meng 2012a]. Même si les méthodes ci-dessus ne garantissent pas que l'on sera capable de faire varier indépendamment la durée d'impulsion et le temps de cohérence de l'impulsion, elles devraient nous permettre d'explorer plusieurs valeurs du rapport de ces deux grandeurs (et donc du nombre m) et de vérifier les lois d'échelle que nous avons présentées dans la section précédente.

4.9 Conclusions

Nous avons utilisé un modèle de cohérence temporelle partielle développé par T. Pfeifer et al. [Pfeifer 2010] pour décrire des impulsions XFEL SASE, afin de calculer les traces d'auto-corrélation en champ de telles impulsions. Les résultats permettent de reproduire l'allure des courbes de visibilité expérimentales obtenues à la fois sur des lasers XUV délivrant des impulsions longues (QSS-l et QSS-d), et sur des lasers XUV délivrant des impulsions courtes, dont

la durée est proche du temps de cohérence τ_c (OFI et TCE). Nous avons ainsi pu interpréter l'origine de l'épaulement apparaissant sur les courbes de visibilité expérimentales des lasers XUV OFI et TCE, qui n'était pas comprise jusqu'à maintenant. Les mêmes calculs montrent que cet épaulement, lié au nombre de modes longitudinaux m dans l'impulsion, s'aplanit lorsque celle-ci devient très longue devant τ_c (conformément à nos mesures sur les lasers XUV QSS-d et QSS-l, dont les courbes de visibilité ne présentent pas d'épaulement).

Les mesures d'autocorrélation en champ ayant été réalisées dans le cadre d'une campagne expérimentale de caractérisation de la largeur spectrale des différents types de lasers XUV, la compréhension de l'origine de l'épaulement nous a permis de réévaluer les largeurs spectrales des lasers XUV OFI et TCE à partir des courbes de visibilité. Les largeurs spectrales ainsi obtenues sont en meilleur accord avec les prédictions numériques pour ces lasers XUV.

Des calculs plus réalistes du champ électrique d'impulsions lasers XUV ASE TCE, basés sur les équations de Bloch-Maxwell avec un terme stochastique pour décrire l'émission spontanée, reproduisent la même structure en "piques" (*spikes*) dans les domaines temporel et spectral que les impulsions générées par le modèle de cohérence temporelle partielle. La trace d'autocorrélation moyenne obtenue sur un grand nombre d'impulsions générées par le code Bloch-Maxwell présente également un épaulement. Ces résultats appuient les résultats issus du modèle de cohérence temporelle partielle, et soulignent les similarités entre les sources XFEL SASE et lasers XUV ASE, bien que basées sur des principes de génération très différents. La structure en piques dans les domaines temporel et spectral est caractéristique de ces sources, et due à leurs natures stochastiques.

La présence de l'épaulement sur les courbes de visibilité lorsque l'impulsion comporte peu de modes longitudinaux est due au fait que l'on ne puisse pas mesurer la phase du degré de cohérence complexe. Cependant, une étude systématique de l'épaulement avec la durée d'impulsion moyenne montre que cet artefact pourrait nous permettre d'extraire plus d'informations de nos mesures d'autocorrélation en champ : plusieurs de ses caractéristiques (aire, étendue, hauteur) s'expriment simplement en fonction du nombre de modes longitudinaux m qui composent l'impulsion. Ces résultats sont donc très prometteurs compte-tenu de la difficulté expérimentale de la mise en œuvre d'une mesure de durée d'impulsion d'un XFEL SASE ou laser XUV ASE avec les méthodes actuelles, comparée à la relative simplicité d'une mesure d'autocorrélation en champ.

Etude du comportement temporel des lasers XUV injectés

5.1 Introduction

Nous avons vu que les travaux actuels visant à réduire la durée d’impulsion des lasers XUV injectés pour atteindre le domaine femtoseconde suivent deux voies distinctes :

- élargir la bande spectrale du gain de l’amplificateur afin de réduire la durée limite de Fourier de l’harmonique amplifiée,
- favoriser et contrôler l’apparition d’oscillations de Rabi au cours de l’amplification de cette harmonique.

C’est le deuxième aspect que nous allons discuter dans ce chapitre. D’après les simulations numériques effectuées avec le code COLAX, ou par d’autres groupes [Kim 2009, Oliva 2011, Tissandier 2012], des oscillations de Rabi peuvent survenir au cours de l’amplification d’une harmonique d’ordre élevé dans un plasma de laser XUV. Les oscillations de Rabi induisent, comme nous allons le voir en détail, des structures temporelles à la fois ultra-courtes (jusqu’à une dizaine de femtosecondes) et très intenses ($\sim 10^{12}$ W/cm²). La trace de ces oscillations de Rabi n’a toutefois encore jamais été mise en évidence expérimentalement. Une des premières raisons est que nous ne disposons pas, à l’heure actuelle, de diagnostic permettant de mesurer le profil temporel d’une impulsion laser XUV injecté avec une résolution temporelle et une dynamique suffisantes.

Au cours de cette thèse nous avons tenté de détecter la trace des oscillations de Rabi dans le signal d’autocorrélation en champ d’impulsions laser XUV injecté, à l’aide de l’interféromètre utilisé dans les précédents chapitres. Ces mesures, réalisées sur l’installation LASERIX et au LOA, n’ont pas abouti et ne seront pas discutées dans ce mémoire. Pour tenter de préciser un peu mieux d’une part les conditions d’apparition des oscillations de Rabi, et d’autre part leur possible manifestation sur des grandeurs accessibles expérimentalement, nous avons effectué plusieurs études basées sur une description Bloch-Maxwell de l’amplification d’harmonique dans le plasma laser XUV. Ces études ont été menées en collaboration avec O. Larroche (CEA Bruyères-le-Chatel), auteur du code COLAX que nous avons déjà utilisé au chapitre précédent pour étudier l’amplification en mode ASE.

Nous présentons d’abord une étude théorique, menée principalement par Olivier Larroche au début de cette thèse [Larroche 2013b], et dont nous avons étudié plus particulièrement l’implication sur des amplificateurs laser XUV existants. Cette étude permet de mettre en évidence la compétition entre deux temps caractéristiques dans le transfert de l’énergie stockée dans l’inversion de population au champ électrique, et de la présence d’un seuil d’inversion de population entre deux régimes d’amplification caractérisés par des coefficients d’amplification différents.

A l’aide du code COLAX, utilisé dans une configuration simplifiée, nous avons ensuite étudié la manifestation des oscillations de Rabi sur deux grandeurs qui sont directement accessibles dans nos expériences : le profil spectral de la raie laser, d’une part, et le signal d’auto corrélation en

champ (par mesure interférométrique multi-tirs ou mono-tir) d'autre part.

5.2 Régimes d'amplification adiabatique et dynamique : existence d'un seuil

5.2.1 Echelles de temps de la formation et l'amplification du rayonnement laser XUV :

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, les équations de Bloch-Maxwell permettent de décrire l'amplification du rayonnement laser XUV dans le cadre de l'approximation d'enveloppe lentement variable. Cette approximation peut être faite dans notre cas puisque la période d'un cycle optique $2\pi/\omega$ d'un laser XUV est de l'ordre de quelques dizaines d'attosecondes, ce qui est, comme nous allons le voir, bien inférieur aux échelles de temps caractéristiques des phénomènes en jeu lors de l'amplification et de la propagation du rayonnement dans le plasma amplificateur d'un laser XUV (même lorsqu'il est opéré en mode injecté).

Ainsi, la propagation de l'amplitude complexe du champ électrique E , polarisé en z et se propageant dans le plan (x, y) , peut être décrite dans le cadre de l'approximation par l'équation de propagation paraxiale :

$$\frac{2i\omega}{c} \left(\frac{1}{c} \frac{\partial E_{\pm}}{\partial t} + \frac{\partial E_{\pm}}{\partial y} \right) \pm \frac{\partial^2 E_{\pm}}{\partial x^2} = -\frac{\omega^2}{c^2} \left(\frac{-\omega_p^2}{\omega(\omega + i\nu)} E_{\pm} + 4\pi P_{\pm} \right). \quad (5.1)$$

Dans cette équation apparaît le temps d'amortissement collisionnel des ondes électromagnétiques se propageant dans le plasma dû aux collisions électron-ion $T_c = 1/\nu = (\omega/\omega_p)^2 \nu_{ei}^{-1}$. L'amplitude complexe de l'enveloppe temporelle de la densité de polarisation P qui apparaît dans le membre de droite de l'équation (5.1) de propagation du champ électrique E est régie par :

$$\frac{\partial P_{\pm}}{\partial t} = -\gamma_d P_{\pm} - i \frac{d^2}{\hbar} (\rho_h - \rho_b) E_{\pm} + S \quad (5.2)$$

où $\gamma_d = 1/T_2$ est le taux de déphasage du dipôle atomique, principalement dû aux collisions élastiques avec les électrons libres du plasma, provoquant un élargissement spectral homogène de la transition laser. d est l'élément de matrice dipolaire entre les niveaux de la transition laser haut (h) et bas (b). Les densités de population des niveaux haut et bas, respectivement ρ_h and ρ_b , sont gouvernées par les équations (5.3) et (5.4) :

$$\frac{\partial \rho_h}{\partial t} = -\frac{1}{2\hbar} \text{Im} (P_+ E_+^* + P_- E_-^*) + \sum_k a_{hk} \rho_k + R_h \quad (5.3)$$

$$\frac{\partial \rho_b}{\partial t} = +\frac{1}{2\hbar} \text{Im} (P_+ E_+^* + P_- E_-^*) + \sum_k a_{bk} \rho_k + R_b \quad (5.4)$$

où a_{hk} et a_{bk} sont les taux de transition du système collisionnel-radiatif, donnés par :

$$a_{hh} = -(D_{hb} + D_h), \quad a_{bb} = -(C_{bh} + D_b), \quad a_{hb} = C_{bh}, \quad a_{bh} = D_{hb}.$$

Avec D_{bh} la somme des taux de désexcitation collisionnelle et radiative de l'état supérieur vers l'état inférieur, D_h (resp. D_b) la somme des taux de décroissance de la population de l'état supérieur (resp. inférieur) par excitation ou désexcitation vers les états extérieurs au système à deux niveaux de la transition laser et C_{bh} le taux d'excitation collisionnelle de l'état inférieur vers l'état supérieur de la transition laser. Les coefficients R_h et R_b sont les sommes des flux de population vers respectivement l'état supérieur et l'état inférieur par excitation ou désexcitation depuis les états extérieurs au système. L'absorption et l'émission stimulée sont prises en compte

par le premier terme du membre de droite des équations (5.3) et (5.4).

Pour faire apparaître les échelles de temps caractéristiques de l'évolution des populations de la transition laser, on peut les décrire par l'équation suivante, mettant en jeu la densité d'inversion de population réduite $D = \frac{d^2}{\hbar\omega} \cdot (\rho_h - \rho_b)$:

$$\frac{\partial D}{\partial t} = \frac{D_{eq} - D}{T_1} + \frac{d^2}{\hbar^2\omega} Im(PE^*) \quad (5.5)$$

où T_1 est le temps de recouvrement du gain ou de repompage de la transition, que l'on peut représenter par le temps de retour à une inversion d'équilibre D_{eq} . Une autre échelle de temps caractéristique qui n'apparaît pas explicitement dans cette équation est donnée par la fréquence de Rabi asymptotique Ω_{R_0} , définie plus en détail plus loin, qui correspond à la fréquence de Rabi du champ électrique atteint si toute l'énergie emmagasinée dans l'inversion de population lui est transférée.

Ces deux temps caractéristiques apparaissent explicitement dans l'équation (5.5) lorsque l'on remplace la polarisation par son expression dans la limite adiabatique $P = -i\frac{\omega DE}{\gamma_d}$ (c'est-à-dire en posant $\frac{\partial P}{\partial t} = 0$ dans l'équation (5.2), voir plus bas) :

$$\frac{\partial D}{\partial t} = \frac{1}{T_1} \left[D_{eq} - D \left(1 + \left(\frac{\Omega_R}{\Omega_{R_{sat}}} \right)^2 \right) \right]. \quad (5.6)$$

Pour résumer, le système d'équations Bloch-Maxwell (5.1, 5.2, 5.5) présente différentes échelles de temps :

- $T_2 = 1/\gamma_d$ le temps de déphasage du dipôle atomique, lié à la largeur spectrale intrinsèque de la transition,
- T_1 le temps de recouvrement du gain ou de repompage de la transition laser,
- $T_c = (\omega/\omega_p)^2 \nu_{ei}^{-1}$ le temps d'amortissement collisionnel des ondes électromagnétiques se propageant dans le plasma dû aux collisions électron-ion.
- $T_{R_0} = 1/\Omega_{R_0}$ la période de Rabi asymptotique atteinte si toute l'énergie emmagasinée dans l'inversion de population D_0 est transmise à l'onde amplifiée, où $(\Omega_{R_0})^2 = 4\pi\omega^2 D_0$. Nous verrons un peu plus loin comment cette expression peut être obtenue.
- $\tau_{\text{plasma}} = L_{\text{plasma}}/c$ la durée de propagation à travers le plasma amplificateur.

5.2.2 Gain faible-signal "adiabatique" :

Dans le chapitre 3 nous avons décrit l'amplification du rayonnement laser à partir de l'équation de transfert radiatif, qui repose sur l'émissivité et le gain résolu spectralement, eux-mêmes exprimés en fonction des taux d'émission spontanée et stimulée de la transition laser. En intégrant spectralement les expressions obtenues nous avons également pu décrire l'amplification de l'intensité du rayonnement le long de sa propagation dans le milieu amplificateur et nous avons vu que pour de petits signaux, c'est-à-dire lorsque l'inversion de population n'est pas affectée par l'émission stimulée, celle-ci est exponentielle et peut approximativement être décrite par l'équation $I(y) = I_0 \cdot e^{g_0 \times y}$, où le coefficient d'amplification longitudinal de l'intensité du rayonnement par unité de longueur g_0 est le gain dit "faible-signal" au centre de la raie laser.

Les équations de Bloch-Maxwell modélisent la formation et l'amplification du rayonnement laser dans le domaine temporel en prenant en compte les phases du champ et de la polarisation atomique. Cela permet de révéler des comportements non-stationnaires de l'amplification, liés par exemple à des oscillations de Rabi, qui ne sont pas pris en compte dans la description précédente. Pour exprimer un gain linéaire analogue au gain faible-signal dans le cadre du système d'équations Bloch-Maxwell, on fait l'hypothèse d'une amplification convective, c'est-à-dire que

les dérivées temporelles s'annulent à y donné (où y est la direction d'amplification) $\frac{\partial E}{\partial t} = 0$ et $\frac{\partial P}{\partial t} = 0$. On se place de plus dans le régime des faibles signaux n'affectant pas la densité d'inversion de population, c'est-à-dire avec $\frac{\partial D}{\partial t} = 0$, l'inversion de population est constante $D = D_0$. En négligeant les effets de diffraction et de dispersion, on obtient le système suivant :

$$\begin{cases} \frac{1}{c} \frac{\partial E}{\partial t} + \frac{\partial E}{\partial y} = i \frac{2\pi\omega}{c} P \\ 0 = -\gamma_d i P + \omega D E \\ \frac{\partial D}{\partial t} = 0 \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} \frac{1}{c} \frac{\partial E}{\partial t} + \frac{\partial E}{\partial y} = \frac{2\pi\omega^2 D_0}{\gamma_d c} E \\ P = -i \frac{\omega D_0}{\gamma_d} E \\ D = D_0 \end{cases} \quad (5.7)$$

En reportant l'expression de la polarisation dans l'équation du champ électrique du système (5.7), on obtient bien, pour l'intensité du signal, une croissance exponentielle avec un coefficient de croissance :

$$G_{ad} = \frac{4\pi\omega^2 D_0}{\gamma_d c}. \quad (5.8)$$

Ce gain linéaire est équivalent au gain faible-signal décrit plus haut, on voit notamment qu'il est proportionnel à la densité d'inversion de population et inversement proportionnel à la largeur spectrale de la raie (de l'ordre de γ_d , le taux de déphasage de la polarisation atomique, comparable à l'élargissement collisionnel de la raie). On rappelle que ce gain linéaire est obtenu en faisant l'hypothèse d'une amplification "adiabatique", et n'a donc de sens que lorsque les temps d'évolution sont longs devant l'inverse de la largeur de raie intrinsèque.

5.2.3 Régime d'amplification dynamique, notion de seuil

Réduction du système : modèle simplifié

Pour étudier le comportement temporel de l'amplification en dehors du cas adiabatique, on va se placer dans des conditions simplifiées, résumées par le schéma de la figure 5.1. On néglige ici la dimension spatiale, on ne s'intéresse qu'à l'évolution temporelle d'un système homogène ("0D") et isolé, constitué des états haut et bas de la transition laser. Initialement le système est dans l'état "pompe", avec une inversion de population D_0 , et le champ E est nul. Dans l'état final, l'inversion de population est consommée et l'énergie est intégralement transmise au champ qui atteint une valeur asymptotique E_0 . On néglige toute interaction avec l'environnement extérieur, en supposant en particulier le temps de repompe T_1 infini.

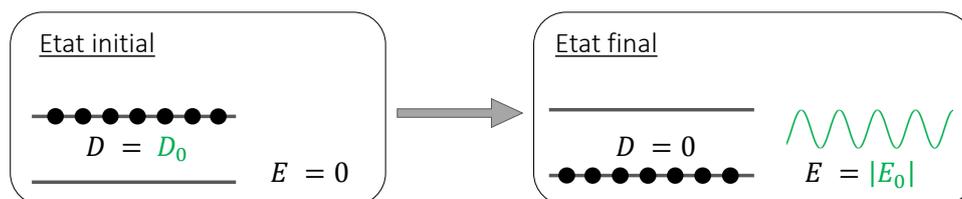


FIGURE 5.1 – Schéma représentant le système considéré pour l'étude présentée : une transition en inversion de population initiale D_0 dont toute l'énergie stockée est transmise au champ électrique E qui atteint une valeur asymptotique de E_0 lorsque l'inversion de population s'est vidée.

Le système d'équation (5.1 - 5.5) se réduit à :

$$\left\{ \begin{array}{l} (i) \quad \frac{dE}{dt} = 2\pi\omega i P \\ (ii) \quad \frac{d(iP)}{dt} = -\gamma_d iP + \omega DE \\ (iii) \quad \frac{dD}{dt} = -\frac{d^2}{\hbar^2\omega} \operatorname{Re}(iPE^*) \end{array} \right. \quad (5.9)$$

Ce système fermé dont toute l'énergie est échangée entre la densité d'inversion de population et le champ électrique permet de faire apparaître une échelle de temps caractéristique intrinsèque de la transition : la fréquence de Rabi asymptotique que nous avons mentionnée au début de cette section. C'est la fréquence de Rabi atteinte lorsque toute l'énergie stockée dans l'inversion de population a été transmise au champ électrique, qui atteint sa valeur asymptotique stationnaire. Nous montrons ici comment on obtient son expression et nous verrons dans la suite que cette échelle de temps joue un rôle important dans le régime d'amplification.

En remplaçant dans l'équation (iii) du système (5.9) la polarisation atomique par son expression en fonction du champ électrique déduite de l'équation (i), on obtient l'équation de conservation de l'énergie du système suivante :

$$\frac{dD}{dt} = -\frac{d^2}{\hbar^2\omega} \operatorname{Re} \left(\frac{1}{2\pi\omega} \frac{dE}{dt} E^* \right) \Rightarrow \frac{d}{dt} \left(4\pi\omega^2 D + \frac{d^2 |E|^2}{\hbar^2} \right) = 0$$

On voit apparaître la fréquence de Rabi $\Omega_R = \frac{d|E|}{\hbar}$. Dans l'état initial, le système est en inversion de population initiale D_0 et le champ électrique est nul, on peut donc écrire :

$$D(t) + \frac{\Omega_R(t)^2}{4\pi\omega^2} = D_0$$

Cette expression nous permet de définir une fréquence de Rabi asymptotique, la fréquence de Rabi atteinte lorsque l'inversion de population s'est vidée et que toute l'énergie du système a été transmise au champ électrique :

$$\Omega_{R_0} = \sqrt{4\pi\omega^2 D_0} \quad (5.10)$$

On voit que cette fréquence de Rabi asymptotique est proportionnelle à la racine carrée de l'inversion de population initiale. Nous allons voir dans la suite que cette échelle de temps intrinsèque de la transition laser varie beaucoup selon les types de lasers XUV existants, basés sur des techniques de pompage très différentes, et que cela donne des indications sur le régime d'amplification dans lequel pourraient opérer ces lasers.

Taux d'amplification : étude de stabilité du système autour de l'état initial

On s'intéresse dans un premier temps à l'évolution temporelle de l'amplification du signal du système décrit par le système (5.9) autour de son état initial. En faisant une étude de stabilité du système (5.9) autour de cet état nous allons déterminer le taux réel d'amplification et le comparer au gain faible-signal G_0 (relation (5.8)).

La linéarisation du système autour du point d'équilibre $(E, iP, D) = (0, 0, D_0)$ correspondant

à l'état initial (inversion de population $D = D_0$, champ électrique nul), prend la forme :

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} E \\ iP \\ D \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 2\pi\omega & 0 \\ \omega D_0 & -\gamma_d & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E \\ iP \\ D \end{pmatrix} \Rightarrow \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} E \\ iP \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 2\pi\omega \\ \omega D_0 & -\gamma_d \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E \\ iP \end{pmatrix}$$

La réponse de ce système soumis à une faible perturbation $E, iP \propto e^{\Omega t}$ conduit à l'équation suivante :

$$\Omega^2 + \gamma_d \Omega - 2\pi\omega^2 D_0 = 0. \quad (5.11)$$

Afin de comparer le taux d'amplification Ω du champ électrique au gain faible signal adiabatique, on réécrit l'équation précédente en fonction du gain faible signal correspondant $G = 2 \times \Omega/c$, ce qui conduit à l'équation :

$$G^2 + \frac{2\gamma_d}{c} G - \frac{2\gamma_d}{c} G_{ad} = 0 \quad (5.12)$$

où l'on a fait apparaître le gain linéaire adiabatique établi plus haut $G_{ad} = \frac{4\pi\omega^2 D_0}{\gamma_d c}$. L'équation (5.12) admet la solution réelle amplificatrice :

$$G = 2 G_{ad}^* \left(\sqrt{1 + \frac{G_{ad}}{G_{ad}^*}} - 1 \right) \quad (5.13)$$

où

$$G_{ad}^* = \frac{\gamma_d}{2c}. \quad (5.14)$$

Dans l'expression du coefficient de gain G on a fait apparaître un gain adiabatique seuil G_{ad}^* , autour duquel nous allons étudier les deux limites asymptotiques de G , c'est-à-dire lorsque $G_{ad} \ll G_{ad}^*$ et $G_{ad} \gg G_{ad}^*$.

Dans la limite $G_{ad} \ll G_{ad}^*$, c'est-à-dire pour une faible inversion de populations initiale D_0 , on trouve facilement que l'expression du gain, donnée par (5.13), tend vers le gain faible-signal adiabatique $G \approx G_{ad}$. Dans ce régime, l'amplification du rayonnement laser est adiabatique, la croissance du signal se fait de manière exponentielle pour les petits-signaux avec un coefficient d'amplification G_{ad} comme cela est décrit classiquement en théorie des lasers.

On voit dans l'expression (5.13) que le gain G est toujours inférieur au gain adiabatique G_{ad} . Ainsi, lorsque l'hypothèse d'une amplification adiabatique n'est pas valable, l'évaluation du coefficient d'amplification du rayonnement avant saturation en employant l'expression du gain faible-signal G_{ad} conduirait à une surestimation de celui-ci. En particulier, dans la limite de forte densité d'inversion de population $G_{ad} \gg G_{ad}^*$, le gain tend vers un gain "purement dynamique" G_{dyn} donné par l'expression :

$$G_{dyn} = 2\sqrt{G_{ad}G_{ad}^*} = \frac{2\omega}{c}\sqrt{2\pi D_0}. \quad (5.15)$$

Il est intéressant de remarquer que, dans cette limite, l'expression du gain dynamique G_{dyn} ne dépend plus du taux de déphasage de la polarisation atomique γ_d , c'est-à-dire que le taux d'amplification ne dépend plus de la largeur intrinsèque de la raie laser, comme c'était le cas dans le régime adiabatique.

Le rapport G_{ad}/G_{ad}^* (gain adiabatique sur gain seuil), qui apparaît dans l'équation (5.13), est équivalent au rapport entre deux temps caractéristiques du système : le temps de déphasage du dipôle atomique $T_2 = 1/\gamma_d$ et la période de Rabi asymptotique $T_{R_0} = 1/\Omega_{R_0}$. On a en effet :

$$\frac{G_{ad}}{G_{ad}^*} = 2 \left(\frac{\Omega_{R_0}}{\gamma_d} \right)^2. \quad (5.16)$$

En régime adiabatique, la variation de la polarisation atomique est lente devant le temps de déphasage du dipôle et l'on peut réécrire l'équation sur la polarisation de la manière suivante :

$$0 = -\gamma_d iP + \omega DE. \quad (5.17)$$

La densité de polarisation est proportionnelle au champ électrique et en quadrature de phase avec celui-ci ($iP \propto E$). Ceci a pour conséquence que la densité d'inversion de population varie avec le module au carré du champ électrique, donc avec l'intensité du rayonnement ($Re(iPE) \propto |E|^2$).

Dans le régime dynamique, en revanche, la polarisation n'a plus une phase constante par rapport au champ électrique. La présence du champ électrique n'induit donc pas une diminution immédiate de l'inversion de population comme en régime adiabatique, ce qui aboutit à une amplification plus lente.

En d'autres termes, dans le régime adiabatique, le temps de déphasage du dipôle $1/\gamma_d$ est très court devant la période de Rabi asymptotique $2\pi/\Omega_{R_0}$. Il contrôle donc l'échelle de temps sur laquelle évolue la densité d'inversion de population D et la largeur spectrale du rayonnement laser. Dans le régime dynamique, la période de Rabi asymptotique est très courte comparée au temps de déphasage du dipôle, c'est alors le champ électrique qui contrôle l'échelle de temps d'évolution de la densité d'inversion de population en induisant des oscillations de Rabi. Le profil spectral de la raie laser est alors contrôlé par cette évolution temporelle cohérente.

Réponse temporelle autour de la solution stationnaire : étude de stabilité du système autour de l'état final

La linéarisation du système autour du point d'équilibre $(E, iP, D) = (E_0, 0, 0)$ correspondant à l'état final (inversion de population $D = 0$, champ E_0) prend la forme :

$$\begin{cases} \frac{\partial E}{\partial t} = 2\pi\omega iP \\ \frac{\partial iP}{\partial t} = -\gamma_d iP + \omega DE_0 \\ \frac{\partial D}{\partial t} = -\frac{d^2}{\hbar^2\omega} Re(iPE_0^*) \end{cases} \quad (5.18)$$

La réponse du système soumis à une faible perturbation $D, iP \propto e^{\Omega t}$ conduit à l'équation suivante :

$$\begin{aligned} \Omega^2 + \gamma_d \Omega + \frac{1}{2} \frac{d^2 |E_0|^2}{\hbar^2} &= 0 \\ \Rightarrow \Omega^2 + \gamma_d \Omega + \frac{1}{2} (\Omega_{R_0})^2 &= 0 \end{aligned}$$

On obtient donc pour le taux de variation temporelle $\Omega_I = 2\Omega$ de l'intensité du rayonnement, l'équation d'un oscillateur harmonique amorti de fréquence propre Ω_{R_0} et de taux d'amortissement γ_d :

$$\Omega_I^2 + 2\gamma_d \Omega_I + (\Omega_{R_0})^2 = 0. \quad (5.19)$$

Ainsi, dans la réponse temporelle du système lorsqu'il atteint son état final, on retrouve les deux cas limites discutés plus haut, selon que le rapport entre la fréquence de Rabi asymptotique et le taux de déphasage du dipôle est très faible ou très élevé (c'est-à-dire, d'après la relation (5.16), $G_{ad}/G_{ad}^* \gg 1$ et $\ll 1$).

Dans le cas où $G_{ad} \ll G_{ad}^*$, représenté sur le panneau gauche de la figure 5.2, la fréquence de Rabi est négligeable devant le taux de déphasage du dipôle atomique. Le système est dans un régime apériodique et le champ électrique atteint adiabatiquement sa solution stationnaire (figure 5.2

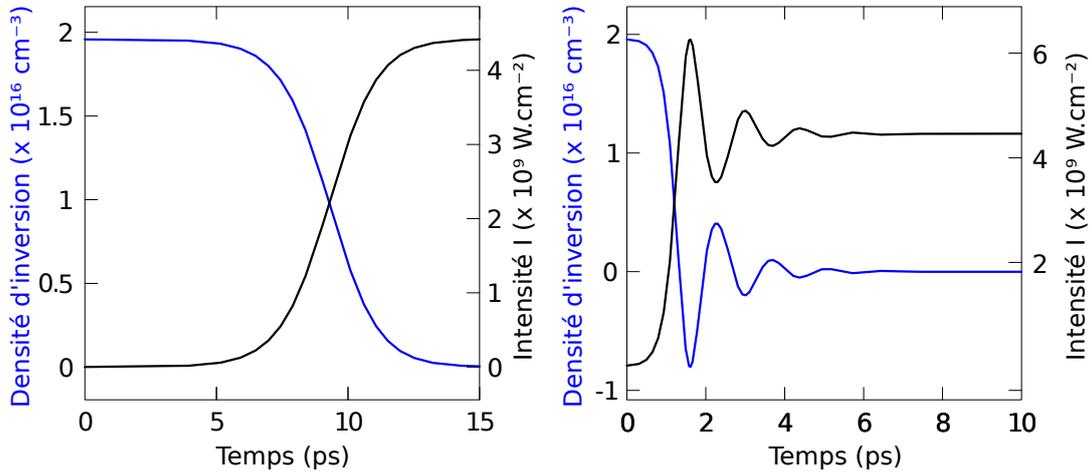


FIGURE 5.2 – Densité d'inversion de population (bleu) et intensité du champ électrique (noir) en fonction du temps pour deux rapports G_{ad}/G_{ad}^* différents de part et d'autre du seuil G_{ad}^* : sous le seuil $G_{ad}/G_{ad}^* = 0,1$ (gauche) et au-dessus du seuil $G_{ad}/G_{ad}^* = 10$ (droite).

gauche). Le panneau droit de la figure 5.2 montre le cas $G_{ad} \gg G_{ad}^*$, lorsque la fréquence de Rabi est très supérieure au taux de déphasage du dipôle. La densité d'inversion de population oscille alors à $\sim \Omega_{R0}$ autour de zéro, provoquant des oscillations similaires dans l'intensité du champ. Puis les oscillations s'amortissent avec un temps caractéristique $1/\gamma_d$ jusqu'à la solution stationnaire où l'inversion de population est nulle et toute l'énergie du système est transférée dans le champ électrique.

Application aux différents types de lasers XUV existants

On voit donc que selon la valeur relative du gain adiabatique G_{ad} , et du seuil G_{ad}^* , le système en inversion de population dans lequel on injecte une petite perturbation aura ou non tendance à évoluer de façon dynamique en induisant des oscillations de Rabi. Afin de relier le critère que nous avons obtenu à des systèmes laser XUV existants nous présentons dans le tableau 5.1 les valeurs des grandeurs pertinentes de cette étude pour les quatre différents types de lasers XUV déjà discutés dans les chapitres précédents.

Les valeurs de gain faible-signal G sont celles issues de mesures et valeurs du taux de déphasage du dipôle $\gamma_d = 1/T_2$ sont déduites de simulations numériques. Les valeurs du gain seuil G_{ad}^* sont calculées d'après la relation (5.14) en fonction de T_2 et les valeurs du gain adiabatique G_{ad} sont déduites à partir des gains mesurés G en inversant la relation (5.13) :

$$G_{ad} = G \left(1 + \frac{G}{4G_{ad}^*} \right). \quad (5.20)$$

On constate que les quatre types de lasers XUV correspondent à des valeurs très différentes du rapport G_{ad}/G_{ad}^* . Les lasers XUV à impulsion courte (OFI et TCE), qui fonctionnent avec une forte densité d'inversion, paraissent plus favorables pour une amplification en régime dynamique que les deux lasers XUV à impulsion longue (QSS-d et QSS-l) qui fonctionnent à des densités d'inversion plus faibles. Injecter les lasers XUV quasi-stationnaires QSS-d et QSS-l ne serait donc a priori pas favorable à la génération d'oscillations de Rabi. En revanche, les lasers XUV TCE et OFI, qui sont, par ailleurs, les deux types de lasers XUV dans lesquels l'injection d'harmonique a été démontrée expérimentalement, opèrent d'après notre critère dans un régime dynamique. Les simulations numériques basées sur les équations de Bloch - Maxwell montrent en effet la manifestation d'oscillations de Rabi pour ces deux types de lasers XUV [Oliva 2011, Tissandier 2011], bien que cela n'ait pas encore été mis en évidence expérimentalement.

laser XUV	$T_2 = \gamma_d^{-1}$ (ps)	G (cm^{-1})	G_{ad} (cm^{-1})	$\frac{G_{ad}}{G_{ad}^*}$
OFI	2 [1] / 7.2 [2]	60 [2]	168/451	20/196
TCE	1,3 [3,4]	60 [5]	130	10
QSS-d	18 [6]	1,2 [7]	1,6	1,8
QSS-1	0,9 [3]	7 [8]	7,7	0,4

TABLE 5.1 – Valeurs des différents paramètres pertinents pour les quatre types de lasers XUV opérationnels : gain réel mesuré G , gain adiabatique G_{ad} déduit de la relation (5.20), gain seuil G_{ad}^* donné par la relation (5.14), et taux de déphasage du dipôle atomique $T_2 = 1/\gamma_d$. Références : [1]=[Tissandier 2012], [2]=[Tissandier 2010], [3]=[Meng 2012b], [4]=[Calisti 2013], [5]=[Luther 2005], [6]=[Urbanski 2012b], [7]=[Rocca 1996], [8]=[Rus 2002].

Notre étude fait apparaître deux paramètres importants jouant un rôle sur l'apparition des oscillations de Rabi, la densité d'inversion d'une part et le taux de déphasage du dipôle (lié à la largeur spectrale intrinsèque de la raie laser) d'autre part. Une densité d'inversion de population élevée et un faible taux de déphasage du dipôle (donc une largeur spectrale étroite) semblent donc favoriser l'apparition d'oscillations de Rabi. Ainsi, d'après cette étude (et dans le cadre des limites simplificatrices que nous avons utilisées) élargir la bande spectrale des lasers XUV ne serait pas favorable à l'apparition d'oscillations de Rabi mais tendrait plutôt à augmenter le seuil entre les deux régimes d'amplification du rayonnement et à la ramener vers un régime adiabatique.

5.2.4 Perspectives de l'étude : effet de la propagation

L'étude 0D présentée dans la section précédente a permis de mettre en évidence un temps caractéristique intrinsèque du système, la période de Rabi asymptotique, liée à la densité d'inversion de population et jouant un rôle majeur dans le régime d'amplification dans lequel opère un laser XUV. Cette étude a toutefois été menée dans le cadre du modèle simplifié d'un système homogène (pas d'amplification spatiale) et isolé (pas de repompage de l'inversion de population). Pour aller vers des systèmes plus proches de la réalité, il faudrait introduire l'effet de propagation spatiale, dans une géométrie 1D. Les premières simulations que nous avons effectuées à l'aide du code COLAX semble indiquer à nouveau la présence d'un seuil entre régime adiabatique et dynamique. Cette étude devra toutefois être poursuivie au delà de ce travail de thèse.

5.3 Spectres et fonctions d'autocorrélation calculés par COLAX : signes d'oscillations de Rabi ?

5.3.1 Introduction

Nous avons vu que les simulations Bloch-Maxwell prédisent l'apparition d'oscillations de Rabi au cours de l'amplification des lasers XUV en particulier en mode injecté. Le contrôle de ces oscillations constitue l'une des deux voies de recherche visant à réduire la durée d'impulsion des lasers XUV. Or, à ce jour, leur manifestation n'a jamais été mise en évidence expérimentalement. Le moyen le plus immédiat serait de pouvoir observer la trace de ces oscillations de Rabi dans le profil temporel en intensité de l'impulsion, par la présence des pics intenses qui en résultent. Toutefois il n'existe actuellement pas de diagnostic temporel monocoup offrant une résolution suffisante dans le domaine XUV. En effet, la résolution temporelle des caméras à balayage de fente (caméras "streak") haute-résolution dans le domaine XUV, qui ont été utilisées à plusieurs reprises pour mesurer la durée des lasers XUV ASE [Meng 2012a], est limitée au mieux à ~ 700 fs

(en fait plus concrètement 1 à 2 ps). Cette résolution n'est donc pas suffisante pour mettre en évidence des pics d'intensités dont la durée prédite par les simulations peut atteindre quelques dizaines de femtosecondes. Nous avons donc recherché comment la présence d'oscillations de Rabi se manifestait dans le degré de cohérence complexe d'une impulsion, ainsi que dans son spectre, deux grandeurs accessibles expérimentalement.

Dans cette partie, nous présentons des résultats de simulations Bloch-Maxwell réalisées à l'aide du code COLAX, pour une impulsion harmonique injectée dans un plasma laser XUV d'Ag nickeloïde pompé en régime transitoire et par onde progressive. Les données hydrodynamiques EHYBRID utilisées comme données d'entrée sont les mêmes que celles utilisées dans le chapitre précédent. Les simulations seront également réalisées sur une seule dimension suivant l'axe (Oy) longitudinal de propagation du rayonnement dans le plasma, car on se concentre ici uniquement sur les aspects spectral et temporel. Enfin pour modéliser le pompage par une onde progressive, l'évolution temporelle des données hydrodynamiques et atomiques sont projetées sur l'axe (Oy) en étant translatées de $y/v_{o.p.}$ à chaque pas de temps, où $v_{o.p.} = c$ représente la vitesse de l'onde progressive.

5.3.2 Amplification d'une harmonique d'ordre élevé dans un plasma de laser XUV

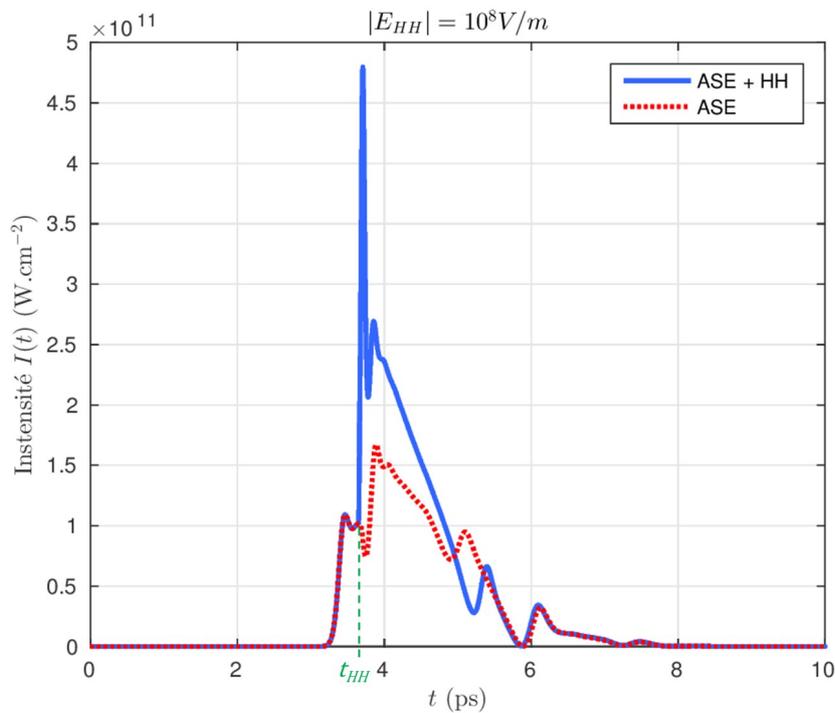


FIGURE 5.3 – Profils temporels de l'intensité à la sortie du plasma (bleu) d'une impulsion de laser XUV injecté par une harmonique d'ordre élevé d'amplitude incidente $|E_{HH}| = 10^8$ V/m (ce qui correspond à une intensité de $I_{HH} = 1,3 \times 10^9$ W.cm $^{-2}$) à un délai d'injection $t_{inj} = 1$ ps par rapport au pompage et (pointillés rouges) à l'impulsion ASE produite par le même germe du générateur aléatoire.

La figure 5.3 présente en trait bleu continu le profil temporel de l'intensité à la sortie d'un plasma de 800 μm de long, à l'entrée duquel on a injecté une impulsion harmonique d'ordre élevé (HH) de 20 fs à mi-hauteur, de profil temporel gaussien, de phase spectrale plate (impulsion limitée par Fourier) et d'amplitude $|E_{HH}| = 10^8$ V/m (i.e. d'intensité $I_{HH} = 1,3 \times 10^9$ W.cm $^{-2}$). La courbe en trait pointillé rouge représente le profil temporel de l'impulsion ASE seule (sans injection). On a utilisé dans les deux cas la même source d'émission spontanée, i.e. le même

tirage aléatoire pour le germe du terme source correspondant. L'impulsion HH est injectée avec un délai de 1 ps après le début de la simulation, qui correspond au front montant du profil temporel de gain faible signal (i.e. non perturbé par l'émission stimulée) à l'entrée du plasma. Ce profil temporel du gain est représenté sur la figure 5.4. L'impulsion HH, qui se propage environ à c dans le plasma amplificateur de $800 \mu\text{m}$, le traverse donc en environ 2,7 ps et sort de celui-ci à l'instant $t_{HH} \approx 3,7$ ps du calcul (repéré sur la figure 5.3). Sur le profil temporel de l'intensité de l'impulsion injectée, le rayonnement sortant du plasma avant l'instant t_{HH} correspond à de l'ASE. Les impulsions injectée et ASE sont d'ailleurs parfaitement superposées avant t_{HH} . Après cet instant, on peut voir que l'impulsion injectée ne correspond pas simplement à la superposition du champ de sillage (produit par le passage de l'harmonique, voir section 5.2) amplifié et de l'ASE. Les deux types de rayonnements entrent en compétition dans leur amplification. Or ils sont de nature très différente, puisque l'ASE est issue d'un processus stochastique, l'émission spontanée de la transition laser qui est incohérente, tandis que le champ de sillage est quant à lui produit par la polarisation rémanente après l'interaction de l'harmonique avec les populations de la transition laser [Al'miev 2007]. Pour isoler le phénomène que l'on souhaite étudier, la manifestation des oscillations de Rabi dans le degré de cohérence et le spectre d'une impulsion injectée, l'étude que nous allons présenter a été réalisée sans émission spontanée (c'est-à-dire sans terme source dans l'équation de la polarisation).

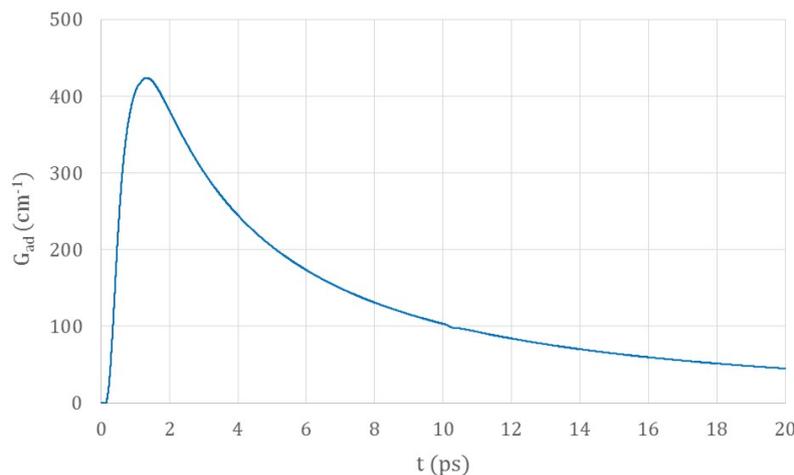


FIGURE 5.4 – Evolution temporelle du gain adiabatique à l'entrée du plasma dans lequel est injecté l'impulsion HH. Pour modéliser le pompage en onde progressive, cette évolution temporelle se propage le long du plasma à la vitesse v_{op} de ce pompage.

La figure 5.5 illustre la formation de l'impulsion au cours de la propagation de l'harmonique à quatre instants du calcul, correspondant à quatre positions y le long du plasma. Le profil spatial de l'intensité de l'impulsion est représenté par la courbe en trait continu vert, la courbe en pointillés orange représente le profil spatial du gain dynamique au même instant. Sur la figure (a), à l'instant 1,5 ps du calcul, donc 0,5 ps après l'injection de l'harmonique, on peut voir celle-ci qui s'est propagée de $150 \mu\text{m}$ et le champ de sillage qui s'est formé derrière son passage. Le profil spatial du gain dynamique est quant à lui très proche du profil temporel du gain faible-signal de la figure 5.4 : l'amplification du rayonnement n'a pas encore d'effet sur l'inversion de population. Sur les figures (b)-(d) on voit que le champ de sillage est amplifié de plusieurs ordres de grandeur, alors que l'harmonique est elle-même très peu amplifiée. Le gain dynamique prend à partir de $t=2,5$ ps des valeurs négatives, là où le sillage est maximal, ce qui est caractéristique de la présence d'oscillations de Rabi. On voit se former des oscillations dans le profil d'intensité du champ de sillage, dont les maxima correspondent à peu près à des minima (de valeurs négatives) du profil de gain dynamique. Sur la figure 5.5 (d), on voit deux pics d'oscilla-

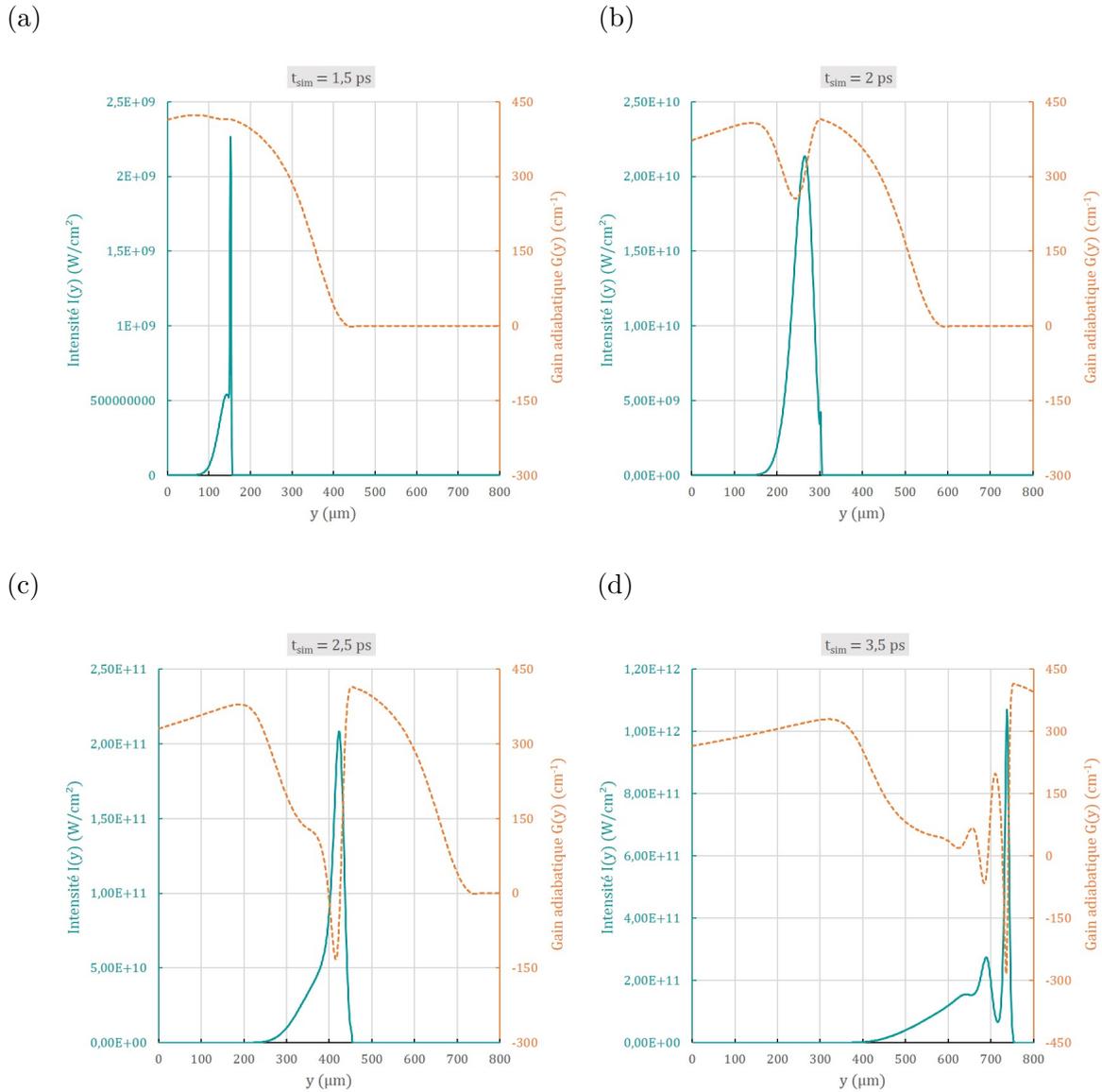


FIGURE 5.5 – Profils calculés par COLAX de l’intensité et du gain dynamique le long du plasma dans la direction de propagation Oy , à différents instants du calcul : (a) $t = 1,5$ ps, (b) $t = 2$ ps, (c) $t = 2,5$ ps et (d) $t = 3,5$ ps.

tion suivis de l’impulsion de sillage, dont la durée a augmenté en se propageant et en s’amplifiant.

On peut remarquer dès à présent ici que, contrairement au régime d’amplification faible-signal, le profil spatial du gain est ici fortement perturbé par le passage de l’impulsion, de sorte que celle-ci ne “voit plus” un gain constant le long de sa propagation, comme elle le ferait dans le cas d’un pompage en onde progressive. Une des conséquences, qui a été déjà abordée dans la section précédente, est que le profil temporel de l’impulsion à la sortie du plasma ne peut pas être simplement interprété à partir des échelles temporelles de réponse du plasma. En effet le profil spatial du gain et la propagation de l’impulsion dans ce profil jouent un rôle important. Ainsi le temps d’amortissement des oscillations de Rabi, donné par le temps de déphasage du dipôle $1/\gamma_d$, ne peut pas être strictement donné par l’extension spatiale sur laquelle elles sont observées sur la figure 5.5, ni sur les profils temporels que nous présenterons plus loin.

5.3.3 Paramètres contrôlant le profil temporel de l'impulsion laser XUV injecté

Nous nous intéressons à deux paramètres de l'injection qui contrôlent le profil temporel de l'impulsion amplifiée :

- l'amplitude crête $|E_{HH}|$ du champ électrique de l'impulsion harmonique, car la fréquence de Rabi est proportionnelle au module du champ électrique du rayonnement avec lequel elles interagissent ;
- l'instant d'injection t_{HH} de l'harmonique dans le plasma, car le gain a un profil temporel avec une durée finie.

La modification de l'un de ces deux paramètres produit des impulsions de différents profils temporels, comme le montre la figure 5.6. Chaque graphique de cette figure correspond à une amplitude du champ de l'impulsion HH différente : $|E_{HH}| = 10^7$ V/m, $|E_{HH}| = 10^8$ V/m et $|E_{HH}| = 10^9$ V/m (de haut en bas), correspondant à des intensités $I_{HH} = 1,3 \times 10^7$ W.cm⁻², $I_{HH} = 1,3 \times 10^9$ W.cm⁻² et $I_{HH} = 1,3 \times 10^{11}$ W.cm⁻² respectivement. Les deux premières valeurs correspondent à un encadrement réaliste de ce qui peut être réalisé expérimentalement avec des sources harmoniques existantes. Sur chaque graphique on a représenté le profil temporel de l'intensité à la sortie du plasma, pour 5 valeurs du délai d'injection : 0,1 ps, 1 ps, 2 ps, 3 ps et 5 ps. L'aire jaune représentée sur chaque graphique correspond à l'émission ASE (sans injection) du même plasma, moyennée sur 200 simulations effectuées avec des tirages aléatoires différents de l'émission spontanée.

À partir des profils temporels de la figure 5.6, on peut faire les observations suivantes :

- Pour les trois niveaux d'injection $|E_{HH}|$ considérés, l'intensité maximum de l'impulsion amplifiée (donnée par celle du premier pic) est la plus forte pour un délai d'injection $t_{HH} = 1$ ps, qui coïncide à peu près avec le maximum de l'impulsion ASE.
- Pour les trois instants d'injection pour lesquels l'amplification de l'harmonique est forte ($t_{HH} = 1, 2, 3$ ps), l'intensité maximum atteinte par l'impulsion harmonique amplifiée est supérieure de un à deux ordres de grandeur à celle de l'impulsion ASE, tandis que sa durée est plus courte.
- Au délai d'injection optimal $t_{HH} = 1$ ps, le premier pic qui apparaît dans l'impulsion est extrêmement court (moins de 100 fs) et intense. Son intensité maximum dépasse celle du deuxième pic et celle sillage qui suit, d'un facteur qui va de ~ 2 (pour le niveau d'injection le plus faible) à ~ 8 (pour le niveau d'injection le plus fort).
- Par rapport à l'intensité I_{HH} de l'impulsion HH incidente (elle-même pratiquement pas amplifiée), l'intensité de ce premier pic est beaucoup plus élevée, dépassant 10^{12} W/cm² pour le niveau d'injection le plus élevé. Le facteur d'amplification diminue quand le niveau d'injection augmente, passant de $\sim 5 \cdot 10^4$ pour $|E_{HH}| = 10^7$ V/m, à ~ 30 pour le niveau d'injection le plus élevé ($|E_{HH}| = 10^9$ V/m).
- On voit apparaître au maximum trois pics avant l'amortissement des oscillations de Rabi et l'émission de sillage. Le temps caractéristique d'amortissement est de l'ordre de 300 fs, ce qui est comparable avec la valeur de $1/\gamma_d$ fournie pour les données hydrodynamiques du plasma. Il faut se souvenir cependant que la propagation joue un rôle important dans la forme temporelle de l'impulsion, de sorte que les temps caractéristiques intrinsèques du système ne peuvent pas être simplement extraits de façon directe.

On voit donc que le niveau et le délai d'injection sont des paramètres clefs qui contrôlent la structure temporelle de l'impulsion amplifiée, en particulier l'intensité et la durée du premier pic intense correspondant au déclenchement des oscillations de Rabi.

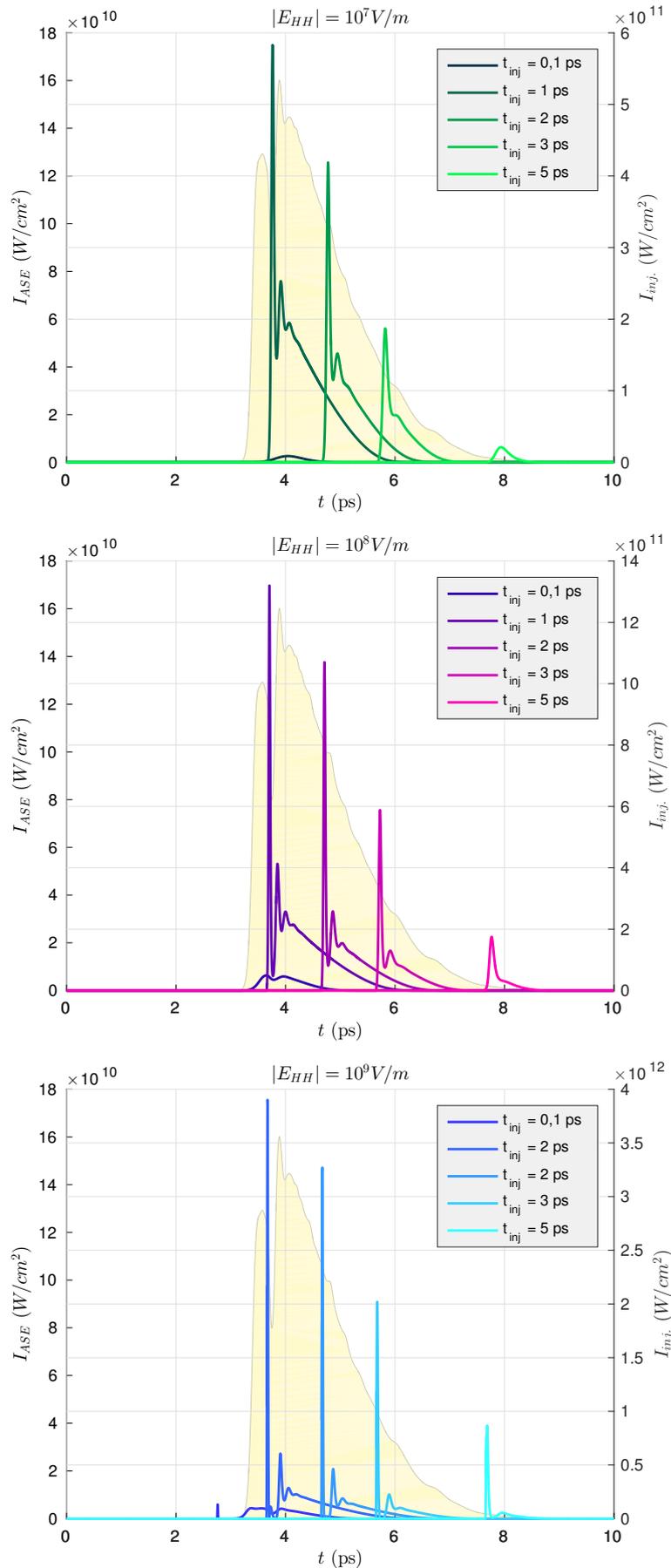


FIGURE 5.6 – Profils temporels de l'intensité des impulsions à la sortie du plasma de laser XUV pour différents délais d'injection ($t_{inj} = [0; 1; 1; 2; 3; 5]$ ps) pour trois amplitudes de l'harmonique d'ordre élevé incidente différentes (haut) $|E_{HH}| = 10^7$ V/m, (milieu) $|E_{HH}| = 10^8$ V/m et (bas) $|E_{HH}| = 10^9$ V/m. Courbe en fond jaune : impulsion ASE (sans injection).

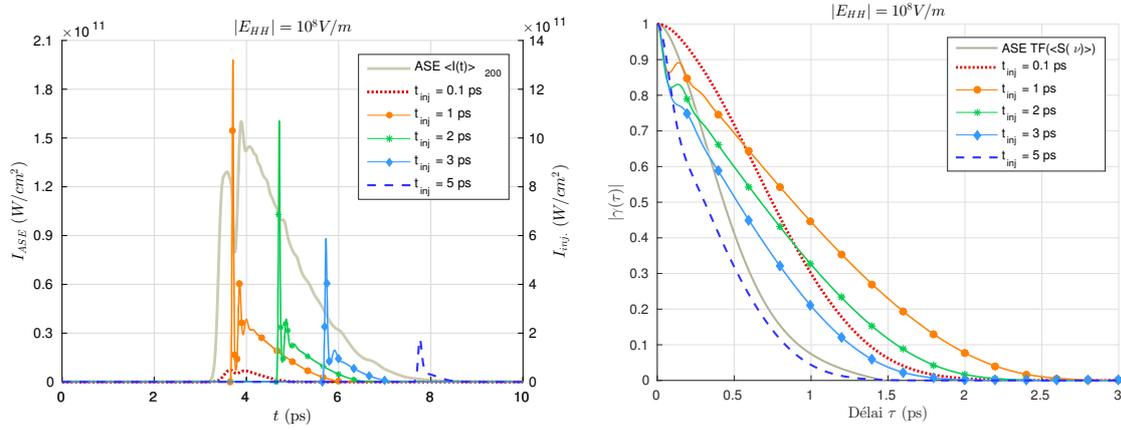


FIGURE 5.7 – (a) Profils temporels de l’intensité des impulsions à la sortie du plasma pour différents délais d’injection et pour $|E_{HH}| = 10^8$ V/m; (b) modules des degrés de cohérence complexes $|\gamma(\tau)|$ correspondants.

5.3.4 Degrés de cohérence temporelle et profils spectraux

On s’intéresse maintenant à la trace de ces structures temporelles dans le degré de cohérence complexe $\gamma(\tau)$ pour ces différents paramètres. La figure 5.7 (b) représente le module du degré de cohérence $|\gamma(\tau)|$ calculé à partir du profil temporel des impulsions correspondant au cas $|E_{HH}| = 10^8$ V/m, pour différents délais d’injection. Ces profils temporels sont rappelés sur la figure 5.7 (a) avec les mêmes codes couleurs pour faciliter la lecture.

La trace des pics dus aux oscillations de Rabi apparaît dans les courbes $|\gamma(\tau)|$, correspondant aux temps d’injection $t_{HH} = 1, 2$ et 3 ps, sous la forme de modulations aux délais les plus courts. La première modulation (à $\tau = 0$) correspond à l’autocorrélation des deux pics apparaissant au début de l’impulsion. La deuxième modulation correspond à la corrélation du premier pic avec le deuxième, elle est située à un délai correspondant à l’intervalle de temps les séparant ($\tau \approx 0,2$ ps). Néanmoins on voit que, bien que les pics dans les profils temporels des impulsions soient très intenses, ils donnent lieu à des modulations de faible amplitude dans le module du degré de cohérence. Expérimentalement, l’observation de ces modulations paraît donc difficile à réaliser, surtout avec un interféromètre multi-tirs nécessitant un scan en délai, comme celui que nous avons utilisé dans nos expériences.

On constate également sur la figure 5.7 (b) que le temps de cohérence τ_c (tel que $|\gamma(\tau_c)| = 1/e$) varie significativement d’un temps d’injection à l’autre, et est plus grand (sauf pour $t_{HH} = 5$ ps) que le temps de cohérence calculé pour l’impulsion ASE (courbe en trait plein gris). Ceci sera discuté plus en détail dans la partie suivante.

Sur la figure 5.8 nous avons représenté les profils spectraux (intégrés temporellement) correspondant aux impulsions représentées sur la figure 5.7 (a) (avec le même code couleur pour les différents temps d’injection). Le maximum de ces profils spectraux a été normalisé à 1 afin de faciliter la comparaison de leurs formes et de leurs largeurs à mi-hauteur. La trace des oscillations de Rabi se manifeste par des ”side-bands”, ou pics latéraux, de part et d’autre du pic central. La hauteur de ces pics latéraux n’atteint toutefois pas plus de quelques pourcents de celle du pic central, rendant là encore leur observation expérimentale très difficile. On constate enfin que la largeur du pic central (sauf pour $t_{HH} = 5$ ps) est inférieure à la largeur spectrale de l’impulsion ASE (moyennée sur 200 tirages), ce qui traduit le même comportement que celui mentionné plus haut pour le module du degré de cohérence.

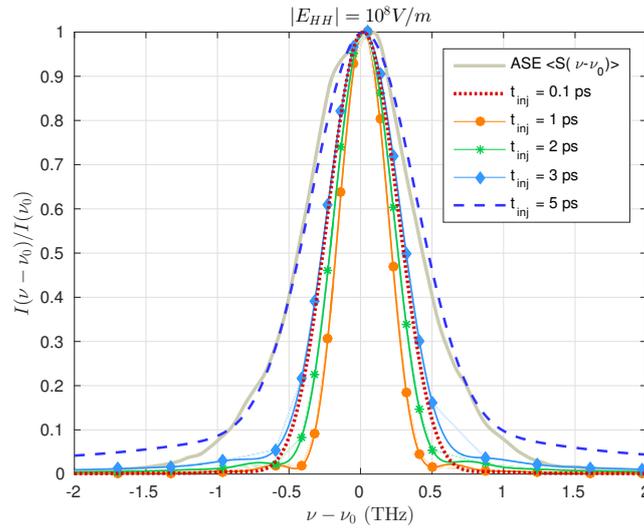


FIGURE 5.8 – Spectres de puissance (normalisés à 1 au centre) calculés à partir des profils temporels de la figure 5.7 (a) pour les mêmes délais d'injection et la même impulsion harmonique d'amplitude $|E_{HH}| = 10^8$ V/m).

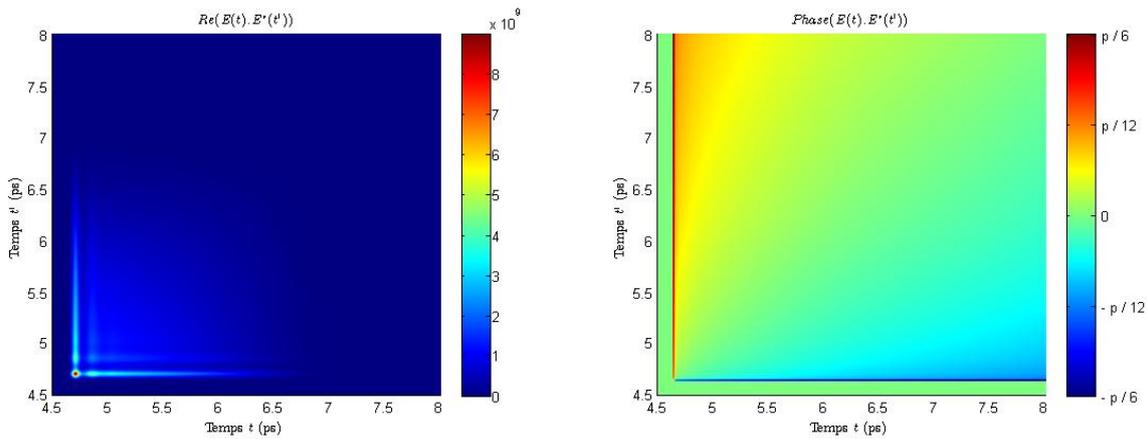


FIGURE 5.9 – Partie réelle (a) et phase (b) de la fonction d'autocorrélation à deux temps de l'impulsion obtenue avec un délai d'injection de 2 ps et une harmonique injectée d'amplitude de $|E_{HH}| = 10^8$ V/m.

En conclusion, les calculs que nous avons présentés indiquent que ni le degré de cohérence, ni le spectre de l'impulsion harmonique amplifiée ne paraissent pouvoir constituer des diagnostics suffisamment sensibles pour mettre en évidence expérimentalement la présence d'oscillations de Rabi. Cela est dû au fait que ces deux observables sont intégrées temporellement, et que la partie "oscillante" dans le profil temporel de l'impulsion ne représente qu'une faible partie de son énergie totale. La plus grande part de l'énergie est contenue dans la deuxième partie de l'impulsion, correspondant au champ de sillage non-oscillant.

Afin de mieux représenter l'effet de l'intégration temporelle, on utilise à nouveau la fonction d'autocorrélation linéaire à deux temps $\Gamma(t, t') = E(t).E^*(t')$ que nous avons introduite au chapitre 4. La figure 5.9 représente la partie réelle de $\Gamma(t, t')$ calculée pour l'impulsion correspondant au temps d'injection $t_{HH} = 2$ ps de la figure 5.7 (a). Rappelons que la diagonale ($t=t'$) de cette représentation 2D correspond au profil temporel d'intensité de l'impulsion. En suivant

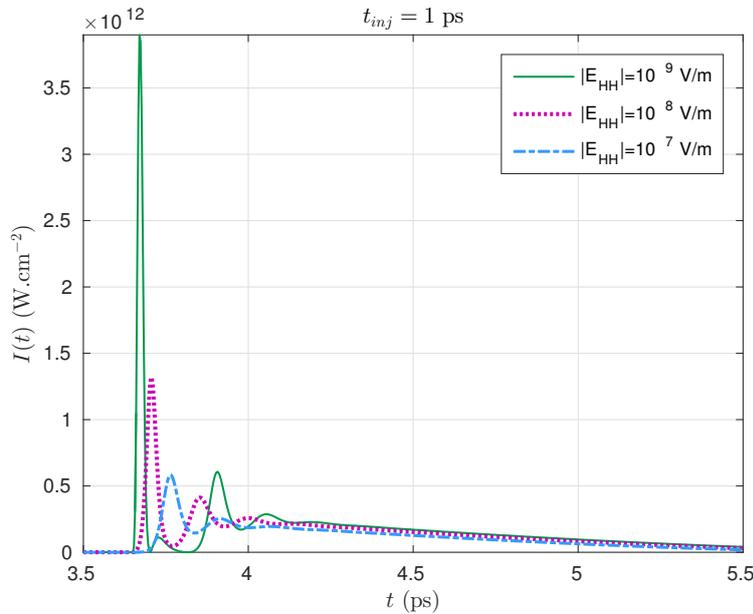


FIGURE 5.10 – Profils temporels en intensité pour trois impulsions HH injectées à $t_{HH} = 1$ ps, pour les 3 valeurs de $|E_{HH}|$ considérées précédemment (indiquées dans l'insert).

cette diagonale on retrouve donc les deux pics intenses et brefs du début de l'impulsion, suivis de la partie sillage qui s'étend sur ~ 2 ps. L'échelle temporelle en abscisse et en ordonnée tient compte du fait que l'impulsion débouche en sortie de plasma à $t \sim 4,7$ ps.

En dehors de la diagonale on voit à t (ou t') = 4,9 ps la trace de la corrélation du premier pic avec le second, puis aux temps plus grands, la corrélation de ces pics avec le reste de l'impulsion (sillage). Si l'on s'intéresse maintenant à la phase de $\Gamma(t, t')$, sur la figure 5.9 (b), on constate que celle-ci est quasiment nulle dans toute la partie correspondant à l'autocorrélation de la partie non-oscillante de l'impulsion. La phase spectrale du champ dans cette partie de l'impulsion est donc plate, et l'impulsion correspondante est limitée par Fourier.

On avait vu plus haut (Fig. 5.8 (b)) que le temps de cohérence de l'impulsion, dominé par celui de la partie non-oscillante, variait en fonction du temps d'injection de l'harmonique, et qu'il était plus grand que celui calculé pour l'impulsion ASE. Nous venons par ailleurs de voir que cette partie non-oscillante de l'impulsion avait une phase plate. Le produit d'autocorrélation de cette partie de l'impulsion ne dépend donc que de son enveloppe temporelle et de sa durée, qui varie elle-même en fonction des paramètres de l'injection.

La figure 5.10 représente le profil temporel en intensité des trois impulsions injectées à $t_{HH} = 1$ ps pour les trois niveaux d'injection $|E_{HH}|$ considérés précédemment. On voit que la valeur de $|E_{HH}|$ a un impact très important sur la partie oscillante de l'impulsion, en particulier sur la position temporelle des pics, leur durée et leur intensité maximum. Par contre elle a un effet négligeable sur la partie non-oscillante du champ de sillage, que ce soit sur sa durée ou sur son intensité. Ceci est confirmé par les courbes de la figure 5.11 qui montrent les modules des degrés de cohérence $|\gamma(t)|$, calculés pour ces trois impulsions. On retrouve aux délais courts la trace des oscillations de Rabi discutée plus haut, et l'effet important du niveau d'injection $|E_{HH}|$ sur cette partie des courbes. Aux délais plus longs, dominés par la contribution du sillage, l'effet du niveau d'injection est beaucoup plus faible (et serait d'ailleurs plus difficile à mettre en évidence expérimentalement).

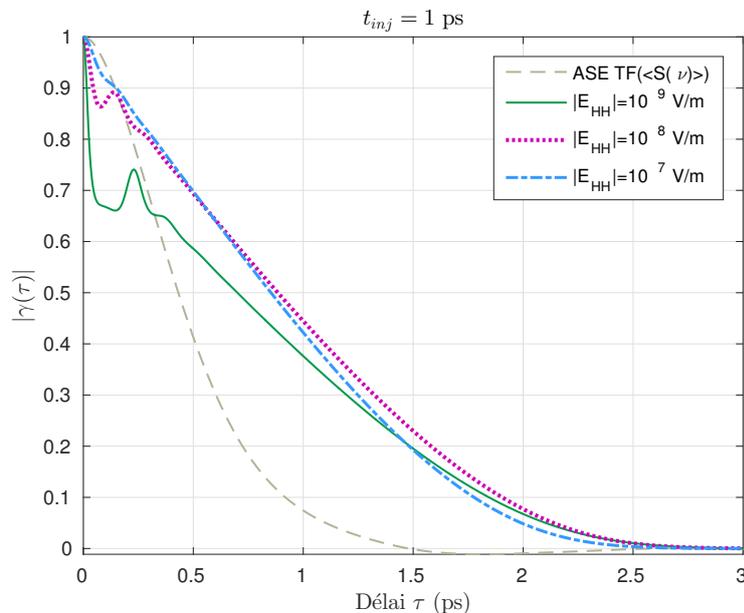


FIGURE 5.11 – Module du degré de cohérence $|\gamma(\tau)|$ calculé pour les trois impulsions représentées sur la figure 5.10.

La partie non-oscillante de l'impulsion, correspondant au champ de sillage, paraît donc être contrôlée par les conditions du plasma, et en particulier par le gain dans lequel il se développe et s'amplifie au cours de la propagation. Si l'on se reporte à la figure 5.5 montrant l'évolution de l'impulsion et du gain dans le plasma au cours de la propagation, on voit que le gain est plus élevé au niveau de la queue du champ de sillage qu'à son début (dans la zone suivant immédiatement la partie oscillante les oscillations), où le gain est proche de zéro. Par ailleurs l'étendue spatiale de la zone dans laquelle se développe et s'amplifie le champ de l'impulsion dépend du temps d'injection t_{HH} . Ceci peut expliquer la variation de la durée de la partie sillage de l'impulsion en fonction de ce paramètre. Ainsi lorsque l'impulsion HH est injectée à temps proche du maximum de gain ($t_{HH} = 1$ ps dans le cas étudié ici), la zone de gain élevé dans laquelle le champ de sillage pourra se développer est plus étendue, ce qui va se traduire par une durée plus longue. Au contraire, à $t_{HH} = 5$ ps, le gain a déjà beaucoup diminué (voir figure 5.4) et le champ de sillage ne pourra se développer que sur une zone spatiale plus courte, correspondant à une durée plus courte.

La variation du temps de cohérence d'un laser XUV injecté avec le temps d'injection serait intéressante à vérifier expérimentalement avec notre interféromètre, ou avec l'interféromètre monocoup discuté à la fin du chapitre 4. Pour cette étude il serait important de réduire au maximum la contribution de l'ASE pour isoler le mieux possible celle de l'émission cohérente induit par l'impulsion harmonique injectée. Ceci pourrait se faire notamment en se plaçant suffisamment loin de la source pour séparer angulairement l'ASE (peu collimatée) de l'harmonique amplifiée (très collimatée).

5.4 Conclusions

Dans ce chapitre nous avons étudié les propriétés temporelles des lasers XUV injectés afin de mieux comprendre les paramètres contrôlant l'apparition d'oscillations de Rabi au cours de l'amplification. La génération des oscillations de Rabi, dont la durée peut descendre jusqu'à ~ 10 fs, est en effet actuellement considérée comme un moyen prometteur de produire des lasers XUV femtosecondes.

Une étude temporelle 0D basée sur les équation de Bloch-Maxwell a permis de mettre en évidence deux régimes d'amplification, adiabatique et dynamique, autour d'un seuil d'inversion de population, lié à la largeur spectrale de la raie laser. Ce seuil permet de prédire, dans les limites du modèle simplifié utilisé, si l'amplification du rayonnement injecté suivra une évolution adiabatique, bien décrite par des équations de transfert radiatif, ou dynamique, induisant des oscillations de Rabi. Les valeurs calculées de ce seuil pour les quatre types de lasers XUV opérationnels montrent que les lasers XUV à fort gain, de type OFI ou TCE, sont plus favorables à l'apparition des oscillations de Rabi. Notre étude indique aussi qu'en augmentant la largeur spectrale des lasers XUV (en jouant sur les conditions hydrodynamiques du plasma), on risque d'augmenter le seuil d'inversion de population séparant les deux régimes. Enfin nous montrons qu'en régime dynamique, le coefficient de gain est plus faible qu'en régime adiabatique.

Nous avons ensuite exploré la possibilité de détecter la trace d'oscillations de Rabi dans le profil spectral, ou dans les traces d'autocorrélation en champ de l'impulsion. Nos résultats montrent que bien que la structure temporelle présente des pics intenses ($10^{11} - 10^{12} \text{ W/cm}^2$) et brefs (~ 100 fs), induits par les oscillations de Rabi, difficilement décelables sur ces deux grandeurs accessibles expérimentalement à cause de l'intégration temporelle du signal. La mesure du profil temporel de l'intensité en un tir, avec une résolution de quelques dizaines de femtosecondes semble être la seule méthode adaptée. L'intensité maximum des pics, leur durée et leur écart temporel sont très sensibles aux deux paramètres d'injection que nous avons étudiés : l'amplitude $|E_{HH}|$ de l'impulsion harmonique incidente, et l'instant t_{HH} où elle est injectée par rapport au maximum du profil temporel de gain. La durée du champ de sillage, qui suit la partie dominée par les oscillations de Rabi, apparaît très sensible à l'instant d'injection t_{HH} mais peu sensible au niveau d'injection $|E_{HH}|$. La mesure de cette durée, et sa variation avec les différents paramètres, semble pouvoir être réalisée à partir d'une mesure d'autocorrélation, car la phase y est quasiment plate.

Conclusion et perspectives

Conclusion

L'objectif des travaux de cette thèse est d'améliorer la compréhension des propriétés spectrales et temporelles des lasers XUV, nécessaire pour les travaux visant à réduire leur durée d'impulsion au domaine femtoseconde. La technique d'injection, où le plasma amplificateur de laser XUV est utilisé pour amplifier une impulsion harmonique d'ordre élevé femtoseconde, est considérée comme un moyen prometteur d'atteindre cet objectif. Néanmoins, l'étroite largeur spectrale des plasmas amplificateur de lasers XUV (environ 100 fois plus étroite que celle de l'harmonique injectée) ne permet pas de conserver la durée femtoseconde de celle-ci. Pour produire des impulsions femtosecondes avec des lasers XUV injectés, les efforts doivent donc se concentrer à la fois sur la caractérisation expérimentale des largeurs spectrales des lasers XUV en relation avec les conditions hydrodynamiques du plasma, et sur la compréhension des mécanismes de l'amplification dans ces systèmes à l'aide d'études théoriques et de simulations numériques.

L'étude temporelle basée sur l'analyse des équations de Bloch-Mawell présentée dans la partie 5.2 du chapitre 5 [Larroche 2013b], a fait apparaître l'existence d'un seuil, lié à la largeur spectrale de la raie laser. Ce seuil permet de prédire, dans les limites du modèle simplifié utilisé, si l'amplification du rayonnement injecté suivra une évolution adiabatique, bien décrite par des équations de transfert radiatif, ou dynamique, induisant des oscillations de Rabi. Les valeurs calculées de ce seuil pour les quatre types de lasers XUV opérationnels montrent que les lasers XUV à fort gain, de type OFI ou transitoire (TCE), sont plus favorables à l'apparition des oscillations de Rabi. C'est par ailleurs ces deux types de lasers XUV qui peuvent actuellement opérer en mode injecté. Notre étude indique aussi qu'en augmentant la largeur spectrale des lasers XUV (en jouant sur les conditions hydrodynamiques du plasma), on risque d'augmenter le seuil d'inversion de population séparant les deux régimes. On voit alors que l'exploitation des oscillations de Rabi pour produire des impulsions lasers XUV injectés femtosecondes s'oppose à l'autre voie envisagée pour réduire la durée d'impulsion qui consiste à élargir spectralement la transition laser XUV afin de réduire la durée limite de Fourier associée. Nous montrons également qu'en régime dynamique, le coefficient de gain est plus faible qu'en régime adiabatique. La deuxième étude présentée dans la partie 5.3 de ce chapitre a été réalisée à partir du code COLAX utilisé en monodimensionnel, pour évaluer la possibilité de détecter la trace d'oscillations de Rabi dans le profil spectral, ou dans les traces d'autocorrélation en champ de l'impulsion. En effet, la manifestation d'oscillations de Rabi n'a encore jamais été mise en évidence expérimentalement. Nos résultats montrent que bien que la structure temporelle présente des pics intenses et brefs, ils sont difficilement décelables sur ces deux grandeurs accessibles expérimentalement, à cause de l'intégration temporelle du signal. Le temps de cohérence de l'impulsion du laser XUV injecté est dominé par celui du sillage qui suit les oscillations de Rabi. Nous montrons que ce temps de cohérence est très sensible aux conditions d'injection. D'après les simulations, le temps de cohérence qui serait mesuré à l'aide de notre méthode expérimentale serait principalement lié à la durée du champ de sillage de l'impulsion. Cette dernière semble dépendre peu du niveau d'injection mais plutôt être contrôlée par le gain dans lequel le champ de sillage se développe et s'amplifie au cours de sa propagation.

Nous avons caractérisé la largeur spectrale du laser XUV quasi-stationnaire généré sur l'installation laser PALS, clôturant ainsi la campagne de caractérisation expérimentale des largeurs spectrales des différents types de lasers XUV opérationnels, en relation avec les paramètres du

plasma amplificateur, entamée il y a 10 ans. La mesure, présentée dans le chapitre 3, a permis d'améliorer la qualité des résultats obtenus lors d'une première expérience effectuée en 2012, et de confirmer une largeur spectrale 2 à 10 fois plus grande que celle des autres types de lasers XUV caractérisés précédemment. Ces mesures sont en très bon accord avec des simulations numériques de transfert radiatif basées sur l'hypothèse d'une amplification stationnaire et adiabatique. D'après l'étude temporelle présentée dans la partie 5.2, le régime d'amplification tendrait en effet à être adiabatique dans ce type de laser XUV, à faible gain. Bien que l'injection d'harmonique n'ait encore jamais été démontrée sur ce type de laser XUV, notre mesure indique que le laser XUV de PALS serait compatible avec une durée d'impulsion amplifiée significativement inférieure à la picoseconde (durée limite de Fourier correspondante : 570 fs) [Le Marec 2015].

Les mesures effectuées à PALS ont également confirmé un comportement déjà remarqué avant le début de cette thèse, mais pas encore étudié ni compris. Alors que les mesures effectuées sur des lasers XUV à impulsion relativement longues devant le temps de cohérence indiquaient un profil spectral gaussien et une largeur spectrale mesurée en bon accord avec les simulations numériques, les mesures effectuées sur des lasers XUV à impulsions courtes étaient plus difficiles à interpréter et l'accord des mesures avec la théorie était moins bon. Des observations similaires faites sur les lasers XUV à électrons libres en mode SASE (Self-Amplified Spontaneous Emission) nous ont incités à adapter un modèle d'impulsions partiellement cohérentes développé par d'autres auteurs pour décrire les propriétés spectrales et temporelles de ces sources. L'étude que nous avons menée à partir de ce modèle, présentée dans le chapitre 4, a révélé l'effet de la cohérence partielle et de la durée d'impulsion sur les mesures d'autocorrélation en champ des lasers XUV ASE. Nos simulations reproduisent très bien les différentes observations expérimentales et permettent de réévaluer les largeurs spectrales, en améliorant l'accord avec les prédictions théoriques. Notre travail met non seulement en évidence des propriétés communes entre les lasers XUV plasma et les lasers X à électrons libres, pourtant basées sur un mode de génération très différents, mais ouvre également des perspectives sur l'utilisation de notre méthode interférométrique pour une mesure simultanée de la largeur spectrale et de la durée d'impulsion de la source SASE ou ASE [Le Marec 2016].

Perspectives

Plusieurs prolongements peuvent être proposés à ces travaux. Il serait nécessaire de poursuivre l'étude des mécanismes de l'amplification dans les lasers XUV injectés (partie 5.2) afin de savoir notamment si le seuil mis en évidence dans l'étude temporelle (5.2) persiste, s'il se déplace, lorsque l'on se rapproche de systèmes plus réalistes. En effet, pour l'étude nous avons isolé deux temps caractéristiques fondamentaux dans l'apparition d'oscillations de Rabi (la période de Rabi asymptotique T_{R_0} et le temps d'amortissement de la polarisation atomique T_2), afin de réaliser une étude analytique, ce qui nous a conduit à faire des hypothèses très fortes mais nécessaires à la compréhension. Nous avons ainsi supprimé le recouvrement du gain en faisant l'hypothèse d'un temps de recouvrement T_1 infini. Or, dans les systèmes réels, ce temps est du même ordre de grandeur que T_2 . Le repeuplement de l'inversion de population devrait avoir un impact sur les oscillations de Rabi et les oscillations associées produites dans le champ de l'impulsion. Par ailleurs, l'amplification n'étant pas stationnaire, il est également intéressant d'investiguer l'effet de la propagation dans le plasma amplificateur sur les oscillations de Rabi. Ces études peuvent être menés à l'aide de simulations COLAX.

Comme cela a été mentionné au chapitre 4, des expériences sont prévues sur la plateforme

LASERIX afin de mettre en évidence les structures caractéristiques observées dans les calculs d'autocorrélation d'impulsions laser XUV ASE à l'aide d'un interféromètre monocoup. Il est également prévu de poursuivre l'étude basée sur le modèle de cohérence partielle afin de pouvoir utiliser les mesures d'autocorrélation du champ comme diagnostic de la durée moyenne ainsi que du profil temporel moyen d'impulsions laser XUV ASE et XFEL SASE.

Enfin, la variation du temps de cohérence des lasers XUV injectés avec le délai d'injection, mises en évidence par les simulations COLAX monodimensionnelles présentées à la fin du chapitre 5, serait intéressante et aisée à vérifier expérimentalement. En revanche, la caractérisation expérimentale d'oscillations de Rabi devrait être rendue possible grâce à un diagnostic de l'enveloppe temporelle du champ électrique d'une impulsion XUV, basé sur du THz-streaking, en cours de développement dans le cadre du Lidex OPT2X.

Publications liées à cette thèse

Publication du Chapitre 3

PHYSICAL REVIEW A **92**, 033852 (2015)

Measurement of a subpicosecond coherence time in a quasi-steady-state XUV laser

Andréa Le Marec,^{*} Limin Meng,[†] and Annie Klisnick
CNRS, Université Paris-Sud, ISMO UMR 8214, F-Orsay, France

Michaela Kozlova and Jaroslav Nejd
*IoP ASCR, ELI Beamlines Project, CZ-Prague, Czech Republic
and IPP ASCR, CZ-Prague, Czech Republic*

Fabien Tissandier
ENSTA ParisTech, CNRS, Ecole Polytechnique, LOA UMR 7639, F-Palaiseau, France

Olivier Guilbaud
CNRS, Université Paris-Sud, LPGP UMR 8214, F-Orsay, France

Annette Calisti
Aix Marseille Université, CNRS, PIIM UMR 7345, F-Marseille, France
(Received 8 July 2015; published 28 September 2015)

We have carried out a detailed characterization of the temporal coherence and spectral bandwidth of the Ne-like Zn XUV laser, collisionally pumped in the quasi-steady-state (QSS) regime and operated at saturation. The measured coherence time $\tau_c = 680 \pm 70$ fs is significantly shorter than previously observed with other types of collisional XUV lasers, using the same measurement technique. Additional measurements performed below saturation were used to investigate gain narrowing of the spectral width of the lasing line. Our experimental data are well reproduced by calculations performed with a one-dimensional radiative transfer numerical code, taking the measured gain as an input. We show that our results are consistent with spectral measurements of QSS XUV lasers reported by different authors in the 1990s, although they were based on slightly different pumping conditions and measurement techniques.

DOI: [10.1103/PhysRevA.92.033852](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.92.033852)

PACS number(s): 42.55.Vc



Measurement of a subpicosecond coherence time in a quasi-steady-state XUV laser

Andréa Le Marec,^{*} Limin Meng,[†] and Annie Klisnick
 CNRS, Université Paris-Sud, ISMO UMR 8214, F-Orsay, France

Michaela Kozlova and Jaroslav Nejdil
 IoP ASCR, ELI Beamlines Project, CZ-Prague, Czech Republic
 and IPP ASCR, CZ-Prague, Czech Republic

Fabien Tissandier
 ENSTA ParisTech, CNRS, Ecole Polytechnique, LOA UMR 7639, F-Palaiseau, France

Olivier Guilbaud
 CNRS, Université Paris-Sud, LPGP UMR 8214, F-Orsay, France

Annette Calisti
 Aix Marseille Université, CNRS, PIIM UMR 7345, F-Marseille, France
 (Received 8 July 2015; published 28 September 2015)

We have carried out a detailed characterization of the temporal coherence and spectral bandwidth of the Ne-like Zn XUV laser, collisionally pumped in the quasi-steady-state (QSS) regime and operated at saturation. The measured coherence time $\tau_c = 680 \pm 70$ fs is significantly shorter than previously observed with other types of collisional XUV lasers, using the same measurement technique. Additional measurements performed below saturation were used to investigate gain narrowing of the spectral width of the lasing line. Our experimental data are well reproduced by calculations performed with a one-dimensional radiative transfer numerical code, taking the measured gain as an input. We show that our results are consistent with spectral measurements of QSS XUV lasers reported by different authors in the 1990s, although they were based on slightly different pumping conditions and measurement techniques.

DOI: [10.1103/PhysRevA.92.033852](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.92.033852)

PACS number(s): 42.55.Vc

I. INTRODUCTION

The last 10–15 years have seen the emergence of bright coherent sources in the extreme ultraviolet (XUV) range based on free-electron lasers (FEL) [1,2], high-order harmonic generation (HHG) [3], and plasma-based XUV lasers [4]. XUV FELs have achieved extremely high focused intensities with which new regimes of interaction with matter are now explored [5,6]. HHG sources can deliver ultrashort attosecond pulses, allowing one to investigate the electron dynamics of fundamental processes in atoms, molecules or surfaces [7–9]. Plasma-based XUV lasers, generated by collisional excitation pumping in plasmas produced from high power lasers or fast electrical discharges, have slightly different but complementary characteristics. They have been used for a broad range of applications including dense plasma diagnostics [10–12], nanopatterning [13], or photoionization of molecular clusters [14]. Depending on the technique used to generate the plasma amplifier, the output energy varies from $\sim 1 \mu\text{J}$ to several mJ with pulse durations ranging from ~ 1 ps to ~ 1 ns. Recent advances in the development of these sources include operation at an increased repetition rate of 100 Hz [15], tailoring of the driving laser pulse to improve the pumping efficiency [16,17], or saturated operation below 10 nm with

a compact laboratory-scale laser driver [18]. Another major step forward has been achieved with the demonstration and subsequent development of injection-seeded XUV lasers. In the seeded mode, a femtosecond HH pulse, resonant with the XUV laser line, is injected at one end of the pumped plasma, which acts as an amplifier. The properties of the output amplified beam are dramatically improved over the unseeded, amplification of the spontaneous emission (ASE) mode, with a significantly reduced divergence, improved wavefront and spatial coherence, and a defined linear polarization [19,20]. Seeding was also considered and recently demonstrated for free-electron lasers to overcome the significant shot-to-shot variation of the temporal shape of the pulse induced by the so-called SASE operation mode [2,21].

Following the first demonstration with weak amplification in 1995 [22], strong amplification of an HHG seed pulse has been achieved in two types of collisionally pumped XUV plasma amplifiers: optical-field ionized plasmas from gaseous targets [23] and transient pumping plasmas from solid targets [24,25]. In both cases the duration of the amplified seed pulse, which was directly measured [26] or indirectly estimated [27], was of ~ 1 to few picoseconds, significantly longer than the initial HH pulse (~ 30 fs). This temporal broadening is the result of the strong spectral narrowing experienced by the broadband HH pulse as it enters the plasma and is then amplified within the narrow gain bandwidth associated with the XUV laser line [28]. Enlarging the spectral bandwidth of XUV laser amplifiers is thus a requirement in order to preserve the femtosecond time scale of the amplified pulse. The spectral bandwidth

^{*} andrea.le-marec@u-psud.fr

[†]Present address: Institute of Fluid Physics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang, China.

mismatch between seed and amplifier was also shown from numerical simulations to control the onset of a dynamical regime of amplification [29], leading to Rabi oscillations with period of a few tens of femtoseconds and subsequent modulations in the amplified XUV pulse temporal and spectral profiles. It is thus important to have a detailed knowledge of the spectral properties of the different types of XUV lasers, which have been or could be considered for seeding. Using a wavefront-division interferometer specifically designed for that purpose [30], temporal coherence and corresponding spectral linewidth of three types of collisional XUV lasers have been characterized at different laboratories over the last few years: OFI-pumped Ni-like Kr ($\lambda = 32.8$ nm) [27], transient Ni-like Mo ($\lambda = 18.9$ nm) [31], and capillary-discharge Ne-like Ar ($\lambda = 46.9$ nm) [32]. The measured frequency linewidths $\Delta\nu$ (FWHM) range from 7.5×10^{10} Hz for the OFI Kr pumped laser, to 2.3×10^{11} Hz for the capillary-discharge Ar laser. The associated Fourier-transform limit durations (i.e., the ultimate minimum duration achievable) corresponding to these values are of ~ 5 ps and ~ 2 ps, respectively, and they are consistent with the measured durations of seeded XUV lasers mentioned above.

As discussed in [33], a promising way to enlarge the spectral bandwidth of the plasma amplifier would be to increase the electron density in the amplifier, inducing a proportional increase of the contribution of collisional broadening to the overall line profile. Such an increase of the electron density was successfully achieved for the OFI-pumped Kr laser using a preformed plasma waveguide [34]. For transient pumping XUV lasers, a frequency-doubled driving laser could be used to induce the required heating at a higher electron density, as suggested in [26]. Finally, collisional XUV lasers pumped in the quasi-steady-state (QSS) regime, such as the Ne-like zinc laser discussed in this paper, were also considered in numerical simulations as a promising way to achieve a very high peak power of multitenns of GW, using a chirped picosecond HH pulse to extract the \sim mJ energy stored in those systems [35]. Since QSS pumped XUV lasers are generated from a relatively long ~ 500 -ps driving pulse incident at normal incidence on the target, they operate at both higher electron density and higher ionic temperature compared to the other types of collisional XUV lasers. As a result, the contributions of both collisional and Doppler broadenings to the overall linewidth are expected to be larger. With the motivation to provide experimental benchmarking to numerical simulations, we have carried out an experiment aimed at characterizing the spectral bandwidth of the QSS Ne-like Zn emitting at 21.2 nm, which is generated at the Prague Asterix Laser System (PALS) facility in Prague, Czech Republic [36]. We performed a preliminary experiment in 2012 [37], that indicated that the spectral bandwidth $\Delta\nu$ was actually larger than that of the other types of XUV lasers. However, due to some experimental difficulties, which will be explained below, the experimental arrangement was subsequently improved, and a new measurement campaign was carried out. The obtained results, described in this paper, not only provide a refined and more reliable measurement, but are further supported by the observation of gain narrowing of the XUV laser linewidth below and at saturation, and by a comparison to the predictions of numerical simulations.

In Sec. II, we briefly recall the main features of the QSS-pumped Ne-like Zn laser generated at PALS. We then describe the wavefront interferometer and the method that was used to measure the temporal coherence of this laser, from which its spectral linewidth was inferred. In Sec. III, we present the results of the measurement performed on the double-pass operated, fully saturated, zinc laser. The measured coherence time is found to be shorter by factors ranging from 2.6 to 8 than those previously measured, with the same instrument, with other types of collisional XUV lasers. The inferred spectral width is consistent with earlier measurements performed independently in other laboratories for QSS-pumped XUV lasers emitted at slightly different wavelengths. In Sec. IV, we present additional measurements performed in the single-pass configuration, where the zinc laser operates in the small-signal gain regime, below saturation. The experimental data are well reproduced by the predictions of numerical simulations based on a frequency-dependent, one-dimensional radiative transfer model. We show that a femtosecond broadband HH pulse injected in the Ne-like Zn amplifier would retain a pulse duration significantly below 1 ps (namely ~ 500 fs).

II. EXPERIMENTAL SETUP AND METHOD

The QSS Ne-like zinc laser characterized in this work emits at $\lambda = 21.22$ nm (transition $(2p_{1/2}^5 3s_{1/2})_{J=0} \rightarrow (2p_{1/2}^5 3s_{1/2})_{J=1}$). The conditions of generation and the main characteristics of this source are described in detail in [36]. The amplifier plasma is generated by irradiating a 3-cm-long zinc slab target with the PALS iodine laser at fundamental wavelength (1.315 μ m) in a pump sequence composed of an ~ 2 J–300-ps prepulse followed after 10 ± 0.5 ns by a ~ 600 J–350-ps main pulse. A population inversion is achieved in the spatial region slightly below the plasma critical density ($N_c = 6.5 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$) and temporally close to the peak of the main pulse, when the plasma temperature is maximum. The plasma conditions in the gain zone are not known precisely, but estimated as $N_e \sim 2\text{--}5 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$; $kT_e = 200\text{--}300$ eV; $kT_i = 150\text{--}200$ eV from numerical simulations [38]. Due to the relatively long-lasting (~ 100 ps) and low gain (few cm^{-1}) typically obtained in this QSS pumping regime, saturation is achieved using a half-cavity allowing a double pass in the amplifier [36]. The half-cavity consisted of a Mo:Si flat multilayer mirror with 30% reflectivity around 21 nm placed at a distance of ~ 7 mm from the target. The zinc laser can also be operated in single pass by shifting the half-cavity mirror out of the XUV laser beam path. Figure 1 shows the experimental setup with the different diagnostics implemented along the XUV laser beamline. The spectral width of the zinc laser line was inferred from the temporal coherence of the XUV laser pulse, measured through a first-order autocorrelation of the XUV laser field. We used a dedicated wavefront-division interferometer with variable path difference, designed and fabricated at Institut d'Optique, Orsay, France, a decade ago. This interferometer is based on a pair of highly polished, flat roof-shaped mirrors arranged in a Fresnel-like geometry [39]. The mirrors are slightly tilted towards each other (tilt angle $\theta \sim 1\text{--}2$ mrad) along their common edge. After reflection under a grazing angle of $\alpha = 6^\circ$ the XUV laser beam is thus divided into two half-beams that partially overlap. Interference

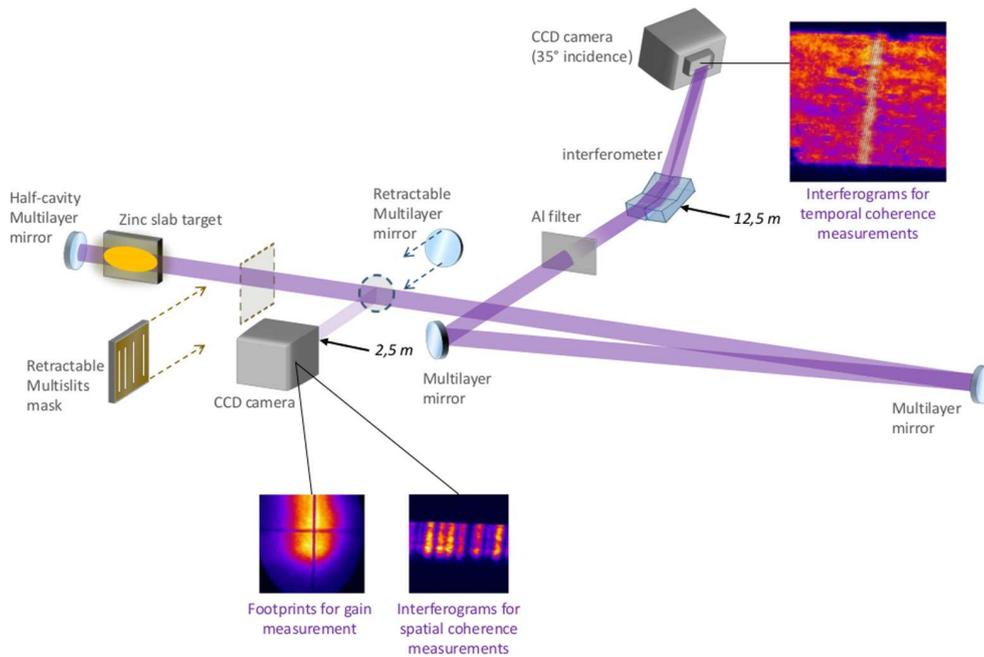


FIG. 1. (Color online) Experimental setup showing the path of the double-pass zinc XUV laser beam to the wavefront-division interferometer. A distance of 12.5 m from the source was required to optimize the maximum fringe visibility. The beam path was folded with two flat Mo:Si multilayer mirrors used at near-normal and 45° incidence, respectively. A footprint monitor and a spatial coherence diagnostic could be inserted in the beam path for additional beam characterization.

fringes are formed in the overlapping region and detected on a back-illuminated XUV CCD. In order to increase the apparent fringe spacing to ~ 5 pixels/fringe, the camera is tilted to be hit at an incidence angle $\beta = 35^\circ$. The fringe spacing is given by $i = \lambda/\varepsilon \times (D + d)/(D \sin(\beta))$, where $D = 1200$ cm (respectively, $d = 750$ cm) is the distance from the roof-shaped mirrors to the XUV laser output plane (respectively, to the detector) and ε is the angle between the interfering beams: $\varepsilon = 4\alpha \approx 0.54$ mrad in the present case. One of the roof-shaped mirrors is mobile and can be accurately translated in the vertical direction z to induce a controlled longitudinal path difference $\Delta\ell$, or delay τ , between the interfering half-beams, given by $\Delta\ell = c\tau = 2\Delta z \sin(2\alpha)$, where Δz is the mirror displacement. The use of roof-shaped mirrors with two reflections in each interferometer arm, instead of simple flat mirrors, ensures that the transverse distance between the overlapping points in each half-beam remain unchanged when varying the path difference. Hence, the variation of fringe visibility induced by the delay between the interfering beams is solely due to the finite temporal coherence of the XUV pulse, at a fixed degree of spatial coherence. A similar method involving wavefront division and temporal delay with slightly different design geometries was used at the FLASH free-electron laser facility to characterize the temporal coherence of the XUV pulse at several wavelengths [40,41]. Compared to these systems, the main originality of our instrument lies in a single-piece interfering element, contained in a compact vacuum chamber, hence allowing a relatively easy implementation in different laboratories. The degree of spatial coherence of the XUV laser beam at the position of the interferometer controls the maximum fringe visibility at zero path difference. This reference position of the interferometer was accurately

determined (within a few fs accuracy) prior to the experimental campaign. In the ASE mode, the degree of spatial coherence of XUV lasers is limited, leading to maximum visibilities smaller than 100%. The spatial coherence length increases with the distance from the source, hence allowing one to a certain extent to adapt the distance with the desired maximum visibility. In the first experimental campaign performed at PALS the interferometer was implemented at distances of 5–7 m from the source, based on an earlier estimation of the spatial coherence length. However, the maximum visibility did not exceed 30% which severely limited the quality of the measurements [37]. During the second experiment, the distance was increased to 12.5 m, through folding the XUV laser beam path with two Mo:Si multilayer mirrors, as shown in Fig. 1. With such a large distance, the maximum visibility could be increased to ~ 50 –60%, as will be shown in the next section. Moreover, a multislit array with different separations could be inserted in the beam path to record a single-shot diffraction pattern on an XUV CCD camera at 2.5 m from the source [42]. This diagnostic was used to verify that the degree of spatial coherence did not vary significantly from one shot to the other, since this is a strong requirement in our measurement based on a multishot delay scan.

The image in the upper right part of Fig. 1 shows the fringe pattern from a typical single-shot interferogram recorded with the tilted CCD camera. The transverse size of the overlapping zone is $\Delta X = \varepsilon d \approx 400$ μm (≈ 700 μm in the CCD detector plane), which is approximately 1/150 of the transverse beam size at the detection plane, owing to the beam divergence of ~ 5 mrad in the horizontal direction. Each interferogram obtained at a given delay τ between the interfering beam is then numerically processed, by applying a fast Fourier

transform (FFT) of the signal in a small sliding window over the region containing the interference fringes, after background subtraction. This yields a two-dimensional map of the fringe visibility $V(x,y,\tau)$, where in each window the visibility is calculated from $V = 2.S_1/S_0$ where S_1 the first-order peak (corresponding to the fringe modulation) and S_0 is the zero-order peak of the FFT signal in the spatial frequency domain. For a quasimonochromatic radiation the visibility of the interference fringes is related to the modulus of the complex degree of coherence $|\gamma_{12}(\tau)|$ through $V(\tau) = 2\sqrt{I_1 I_2}/(I_1 + I_2)|\gamma_{12}(\tau)|$. The ratio preceding $|\gamma_{12}(\tau)|$ introduces a correction by a factor <1 when the intensities I_1 , I_2 of the interfering beams are unbalanced. Since the XUV laser beam is not spatially uniform, but exhibits structures on a spatial scale smaller than the overlapping zone, the visibility map is not uniform either, but displays variations of typically $\pm 10\%$. We assume that within the small overlapping region sampled by the interferometer the degree of spatial coherence of the beam is constant, so that the variations of fringe visibility are only caused by randomly distributed beam nonuniformities. Since the visibility is maximum when $I_1 = I_2$ we identify the maximum value of the measured visibility over the fringe zone to the modulus of the degree of coherence for the given delay τ . We further check in the visibility map and in the corresponding histogram that this value is not an “accident,” i.e., that it occurs in a significant number of pixels.

The measurement of the coherence time τ_c of the zinc XUV laser pulse was performed by acquiring a series of single-shot interferograms for several temporal delays between -300 fs and $+1$ ps and by plotting the measured visibilities $V(\tau)$. We use the definition of the coherence time τ_c as the temporal delay between the interfering beams at which the fringe visibility $V(\tau)$ is reduced by a factor $1/e$ of its maximum value $V(0)$. It should be noted that within the small spectral bandwidth ($\Delta\lambda \approx 3$ nm) defined by the Mo:Si multilayer mirrors and the aluminum filter used, the incoherent, long-lasting thermal emission from the plasma adds an unknown contribution to the interference signal that cannot be subtracted. However, it can be easily shown that, if this incoherent emission is uniform over the fringe zone, it reduces the fringe visibility by a constant factor, which does not depend on the temporal delay τ . Thus, the contribution of incoherent thermal plasma emission may partly explain why the fringe visibility did not exceed $\sim 60\%$, even at 12.5 m from the source. However, this contribution does not affect our measurement of the coherence time.

The spectral width of the zinc XUV laser line is then inferred by first fitting the experimental data $V(\tau)$ with an appropriate analytical function (Gaussian in the present case). Following the Wiener-Khinchin theorem, the spectral power density and the complex degree of coherence are the Fourier transform pairs. As a result, the frequency linewidth $\Delta\nu$ [full width at half maximum (FWHM)] is related to the coherence time τ_c defined above by $\Delta\nu = 2\sqrt{\ln 2/\pi}\tau_c = 0.53/\tau_c$ for a Gaussian visibility curve (and corresponding Gaussian spectral profile).

III. LINEWIDTH OF THE DOUBLE-PASS SATURATED LASER

A first series of measurements was carried out with the zinc laser operated in double pass. In this case, as will be

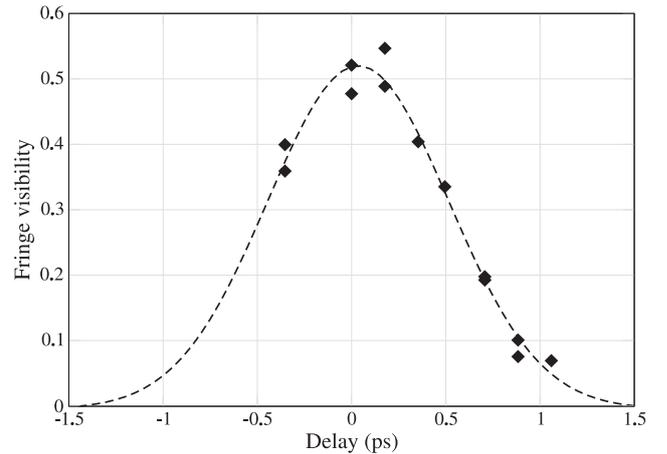


FIG. 2. Measured fringe visibility as a function of the temporal delay for the double-pass, 3-cm plasma length configuration. Each data point (solid diamonds) was measured in a single-shot interferogram.

shown below, the amplification reaches saturation. Figure 2 summarizes the values of visibility measured from each single-shot interferogram for increasing values of the temporal delay. In spite of the limited number of shots in a series, the data can be well fitted with a Gaussian function, which is shown by the dotted line in Fig. 2. As already mentioned in the previous section, the maximum visibility at zero temporal delay is relatively low, slightly larger than 50%.

The coherence time, defined as the temporal delay at which the visibility drops by $1/e$, is measured as $\tau_c = 680 \pm 70$ fs. Such a value is consistent with one of the measurements performed during the first experimental campaign at PALS ($\tau_c \sim 0.7$ ps [37]). This confirms that the coherence time of the saturated QSS zinc laser is significantly shorter than those previously measured for other types of collisional XUV lasers using the same instrument. They ranged from 1.8 ps for the transient pumping Ni-like Mo laser at $\lambda = 18.9$ nm [31] to 5.5 ps for the OFI-pumped Ni-like Kr laser at $\lambda = 32.8$ nm [27]. This shorter coherence time is correspondingly and physically related to a spectral width that is ~ 3 – 10 times larger, and is the result of the QSS zinc laser being operated at both higher electron density and higher ionic temperature. Such a feature is also supported by the few earlier measurements of QSS-pumped XUV laser linewidth reported by other authors in the mid-1990s [43–45]. Table I summarizes the spectral widths measured in these earlier works compared to the measurement presented here. Although this comparison is useful, it should be kept in mind that the experiments differ

TABLE I. Comparison of the measured spectral widths of the present work and earlier works for the same laser transition.

Element	λ_0 (nm)	Reference	GL	$\Delta\nu$ (Hz)	τ_c (ps)
Zn	21.2	[This work]	~ 15 (sat.)	7.8×10^{11}	0.68
Se	18.2	[43]	10	1.2×10^{12}	0.45
Ge	19.6	[44]	5	2.0×10^{12}	0.27
Y	15.5	[45]	~ 20 (sat.)	1.6×10^{12}	0.33

by several aspects, which we will briefly summarize, so that a strict quantitative comparison of the $\Delta\nu$ values given in Table I would not be relevant. The first difference relates to the measurement method. In the works by Koch *et al.* [43] and Yuan *et al.* [44] the measurement was made directly in the spectral domain, using a high-resolution grating spectrometer. The measurement reported in [45] was based on the same method of temporal autocorrelation of the XUV laser field used in the present work, but with an amplitude-division interferometer involving XUV multilayer beamsplitters. The second difference relates to the element used to generate the XUV laser plasma. All the results shown in Table I relate to the same transition $(2p_{1/2}^5 3p_{1/2})_{J=0} \rightarrow (2p_{1/2}^5 3s_{1/2})_{J=1}$ as the one considered in Ne-like Zn in this work, but the experiments were done with different elements at different lasing wavelengths: $\lambda = 18.2$ nm in Ne-like Se [43], $\lambda = 19.6$ nm in Ne-like Ge [44], and $\lambda = 15.5$ nm in Ne-like Y [45]. Note that the latter element is a particular case as the $(2p_{1/2}^5 3p_{1/2})_{J=0} \rightarrow (2p_{1/2}^5 3s_{1/2})_{J=1}$ line in Ne-like yttrium is blended with another component $(2p_{3/2}^5 3p_{3/2})_{J=2} \rightarrow (2p_{3/2}^5 3s_{1/2})_{J=1}$ of the same $3p - 3s$ transition array [46]. Although in all the experiments the XUV laser plasma was pumped in the QSS regime, the parameters of the pump laser were slightly different. In particular, in [45] the yttrium plasma was generated with a frequency-doubled laser pulse ($\lambda = 0.53$ μm), leading to an increased electron density (Ne $\sim 1.2 \times 10^{21} \text{cm}^{-3}$ [47]) in the gain zone. Finally different gain-length product (GL) values were achieved in each experiment; they are indicated in Table I. This information is particularly relevant since, as will be discussed in detail in the next section, the width of the XUV laser line exhibits a strong decreasing dependence with GL ($\Delta\nu \propto 1/\sqrt{GL}$) due to gain narrowing. This narrowing slows down when the amplification enters the saturation regime [43] reaching a typical value $\Delta\nu_{\text{sat}} \approx \Delta\nu_0/\sqrt{(GL)_{\text{sat}}} \approx \Delta\nu_0/4$. While saturation was achieved in our work, as well as in the work by Celliers *et al.*, the measurements in Se and Ge correspond to smaller GL , significantly below saturation.

Keeping in mind all these different experimental conditions, several trends can be pointed out from the comparison of the measured linewidths summarized in Table I. First, our measurement in Ne-like zinc is consistent with the results obtained in Ne-like selenium and Ne-like germanium, if we take into account the different values of GL , as will be shown in the next section. Second, a larger saturated linewidth is observed in the saturated Ne-like yttrium laser, which was generated at a slightly higher electron density with a 2ω pump laser pulse. Finally, all the measured linewidths correspond to coherence times (shown in the last column in Table I) that are significantly shorter than 1 ps. Compared to the other types of collisional XUV lasers, namely based on OFI, transient or capillary-discharge pumping, QSS-pumped XUV lasers thus appear to have a broader spectral linewidth, which is more favorable to the amplification of a seed pulse with a femtosecond time scale.

IV. SPECTRAL GAIN NARROWING

The measurement discussed in the previous section was done for a 3-cm-long Zn plasma and a double-pass config-

uration for which, as it will be shown later, saturation is reached. In order to obtain a more detailed knowledge about the spectral properties of the Zn plasma amplifier we carried out two additional series of measurements in which the zinc laser was operated in single pass, in the small-signal gain regime (below saturation), for two different plasma lengths: 2 and 3 cm. Below saturation, the amplified intensity drops down exponentially when the plasma length is shortened, so that it was not possible to extend the measurement to plasmas shorter than 2 cm due to a weak level of signal. The main goal of these measurements was to investigate the gain narrowing of the spectral line, from which more detailed information about the broadening of the line before amplification can be extracted and compared to the predictions of numerical simulations. For both series, the measured autocorrelation signal was fitted with a Gaussian function, from which coherence times of $\tau_c = 480 \pm 30$ fs and $\tau_c = 440 \pm 110$ fs were inferred for the 3-cm- and 2-cm-long targets, respectively. The corresponding spectral bandwidths are $\Delta\nu = 1.1 \pm 0.1 \times 10^{12}$ Hz for the 2-cm plasma and $\Delta\nu = 1.2 \pm 0.3 \times 10^{12}$ Hz for the 3-cm plasma. Both these $\Delta\nu$ values are close, but significantly larger than the one found in the double-pass configuration, showing clear evidence of gain narrowing for the longest amplification length. These results were compared to the predictions of a one-dimensional (1D) model simulation that calculates the frequency-dependent intensity of the XUV laser line along the plasma amplifier, taking into account Doppler and collisional broadening, and gain saturation. More precisely, the model solves the following time-independent, unidirectional radiative transfer equation [43]:

$$\frac{d\mathcal{I}}{dz}(v, z) = \frac{J_0}{V(v_0)} \left[1 + \frac{g_0}{J_0} \mathcal{I}(v, z) \right] \times \int_0^\infty \frac{S(u)\phi(v, u)du}{1 + \int_0^\infty \mathcal{I}(v')\phi(v', u)dv'}, \quad (1)$$

where $\mathcal{I}(v, z)$ and J_0 are normalized to the saturation intensity I_{sat} : $\mathcal{I}(v, z) = I(v, z)/I_{\text{sat}}$, $J_0 = j_0/I_{\text{sat}}$. $I(v, z)$ is the spectral intensity along the positive direction of amplification z , j_0 , and g_0 are, respectively, the emissivity and gain at line center. $S(u)$ and $\phi(u)$ are, respectively, the normalized inhomogeneous (Gaussian) and homogeneous (Lorentzian) intrinsic line profiles, and $V(v_0)$ is the normalized Voigt profile resulting from their convolution. The width of the Gaussian and Lorentzian components were computed from the PPP lineshape code, a multielectron radiator line broadening code developed to calculate spectral line profiles for a general emitter in a plasma [48], for a range of electron temperature and density, and ion temperature relevant to the Zn XUV amplifier. The normalized emissivity $J_0 = j_0/I_{\text{sat}}$ was computed for the same plasma conditions using atomic data from the literature: $J_0 = 5.5 \times 10^{-7}$.

The gain coefficient g_0 was experimentally determined by measuring the time-integrated signal from the single-pass zinc laser for plasma lengths of 2, 2.5, and 3 cm from beam footprint images recorded at 2.5 m from the source (see Fig. 1). The measured experimental data, shown in Fig. 3, were fitted with the usual Linford formula [49], which describes the spectrally integrated output intensity of the XUV laser as a function of length in the small-signal gain regime. The fit yields a gain

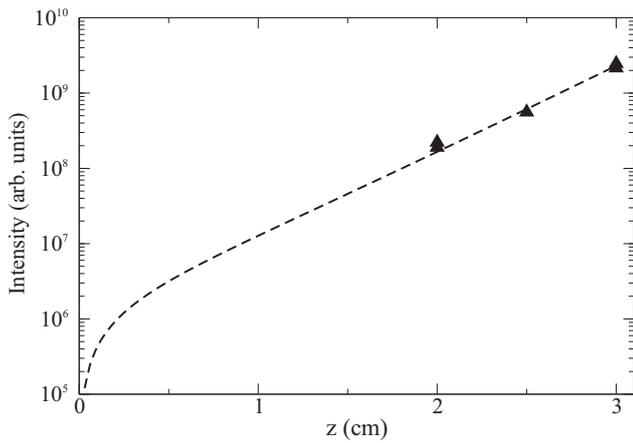


FIG. 3. Output intensity of the single-pass Ne-like Zn laser versus plasma length. The experimental data are fitted with the Linford function, yielding a gain $g_0 = 2.83 \pm 0.36 \text{ cm}^{-1}$.

$g_0 = 2.83 \pm 0.36 \text{ cm}^{-1}$. This value is significantly smaller than the gain of $\sim 7 \text{ cm}^{-1}$ evaluated earlier for the same XUV laser [36], likely due to less optimal pumping conditions.

Equation (1), which accounts for saturation effects, can also be used to calculate the output intensity and the spectral width of the lasing line in the double-pass configuration. In this case, the frequency-dependent intensity calculated at the output of a first 3-cm plasma is multiplied by an effective (frequency-independent) coupling efficiency factor R_{eff} before being injected in the second 3-cm plasma. The coupling efficiency factor R_{eff} includes the reflectivity of the half-cavity mirror ($R = 30\%$) as well as geometrical losses [36]. Taking a beam divergence of 5 mrad and a gain region size of $100 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m}$ would lead to $\sim 20\%$ of the reflected beam being effectively re-injected in the gain region and $R_{\text{eff}} \sim 6\%$. The value of R_{eff} can also be estimated by adjusting it until the calculated ratio between double-pass and single-pass intensities, computed from the radiative transfer simulation, equals to the experimental one. An experimental ratio of ~ 6.6 was measured from the interferogram images obtained in double-pass and in single-pass configurations, by integrating the signal over the area intercepted by the mirrors. The value of R_{eff} inferred with this method is smaller ($R_{\text{eff}} \sim 0.3\%$). It should be noted, however, that the calculations of the evolution of $\Delta\nu$ presented below are not significantly affected by the value of R_{eff} . Our radiation transfer calculations also indicate that the output intensity in double-pass configuration is saturated, even for this small value of R_{eff} . Close to the output of the plasma during the second pass, the computed gain is reduced to $g_{2\text{-pass}} \approx 0.86 \text{ cm}^{-1}$, i.e., $\sim 30\%$ of the small-signal gain value.

The linewidths inferred from the measurements in single-pass and double-pass configurations are plotted in Fig. 4. The data are well reproduced by the results of our model simulation (solid line) based on Eq. (1), in which the measured values $g_0 = 2.83 \text{ cm}^{-1}$ and $R_{\text{eff}} = 0.3\%$ were used as input data. As mentioned earlier, the value of R_{eff} has a negligible effect on the bandwidth calculated in double-pass (i.e., for $3 \text{ cm} < z \leq 6 \text{ cm}$). Taking $R_{\text{eff}} = 6\%$ as considered above

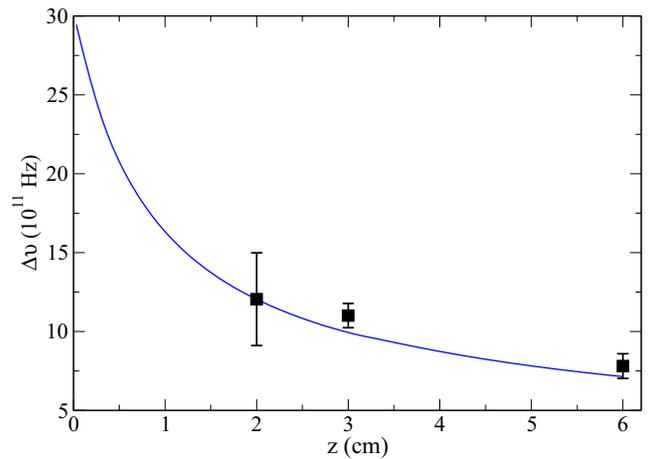


FIG. 4. (Color online) (Black squares) Measured linewidth $\Delta\nu$ for three different amplification lengths: 2 and 3 cm in single pass and 6 cm in double pass. The experimental data are well reproduced by the 1D-radiative transfer calculation (solid line) using the experimentally measured gain as an input value.

would result in a calculated $\Delta\nu$ at $z = 6 \text{ cm}$ that is only $\sim 0.4\%$ narrower than the one plotted in Fig. 4, and would thus still fall within the experimental error bar. The best agreement with the experimental data was found by adjusting the intrinsic linewidth $\Delta\nu$ (at $z = 0$) to $2.9 \times 10^{12} \text{ Hz}$, with an homogeneous (Lorentzian) component of $1.7 \times 10^{12} \text{ Hz}$ and an inhomogeneous (Gaussian) component of $1.9 \times 10^{12} \text{ Hz}$, corresponding to $N_e = 5.5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, $kT_e = 300 \text{ eV}$, $kT_i = 200 \text{ eV}$.

As noted in the previous section, our measured linewidths are consistent with those measured in Ne-like Se by Koch *et al.* [43], which were also measured for different plasma lengths. This can be seen in Fig. 5, where both sets of data are plotted versus a common gain-length product horizontal

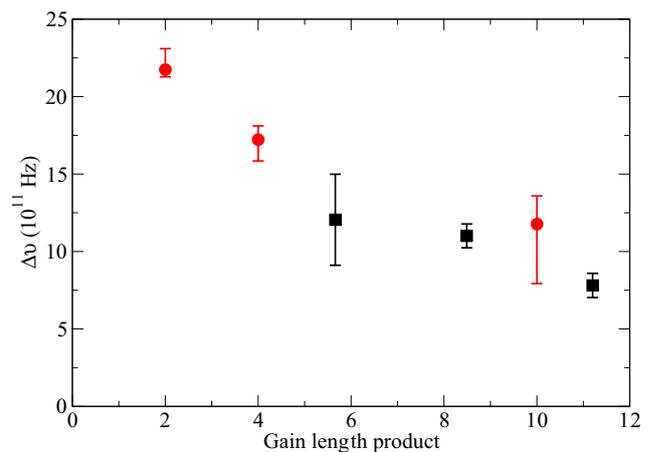


FIG. 5. (Color online) (Black squares) Same data as in Fig. 4, but plotted as a function of the gain-length product. For the largest GL corresponding to the double-pass configuration, an effective value is used. (Red full circles) Adapted from [43] (Fig. 11), measured linewidths in Ne-like Se. Although the two sets of data were obtained from distinct methods, they exhibit a very good consistency.

scale. For the double-pass case we have used an effective gain-length value estimated from the relation [36] $(GL)_{\text{eff}} = 2g_0L + \ln(R_{\text{eff}}) \approx 11$. The Se data were adapted from Fig. 11 in [43]. The intrinsic linewidth evaluated by the authors from their measurements is $\Delta\nu_0 = 2.9 \times 10^{12}$ Hz, similar to the one we used to simulate our experimental data. It should be reminded that the measurements in Se were made directly in the frequency domain, using a high-resolution spectrometer.

Using the 1D-radiative transfer code with the same gain and spectral bandwidth as measured for the Zn laser line we have simulated the amplification of an external seed having a ~ 50 times broader spectral width ($\Delta\lambda/\lambda = 10^{-2}$). At the output of the 6-cm plasma (double pass), the spectral width of the amplified seed is calculated to be $\sim 4.5\%$ larger than the ASE one, thus consistent with a pulse duration of ~ 500 fs.

V. CONCLUSIONS

In conclusion, we have carried out a detailed characterization of the temporal coherence and spectral bandwidth of the Ne-like Zn XUV laser generated at PALS in the QSS

pumping regime and operated either below or above saturation. In all cases, the measured coherence times are significantly below 1 ps. The QSS zinc XUV laser is found to have a broader bandwidth than the previously investigated collisional XUV lasers, due to its more favorable plasma conditions for spectral broadening. Gain narrowing of the lasing line was also observed. The measured data are consistent with radiative transfer calculations using the gain values measured during the same experimental campaign. Finally, the spectral bandwidth of the zinc XUV laser appears to be compatible with an efficient adiabatic amplification of subpicosecond pulses which could be generated by seeding it with a femtosecond high-order harmonic pulse.

ACKNOWLEDGMENTS

This work has received funding from EC's Seventh Framework Programme (LASERLAB-EUROPE, Grant Agreement No. 284464, and ELI: EXTREME LIGHT INFRASTRUCTURE Project No. CZ.1.05/1.1.00/02.0061), as well as from ECOP (Projects No. CZ.1.07/2.3.00/30.0057 and No. CZ.1.07/2.3.00/20.0279).

-
- [1] J. Feldhaus, J. Arthur, and J. B. Hastings, *J. Phys. B: At. Mol. Opt.* **38**, S799 (2005).
- [2] E. Allaria, R. Appio, L. Badano, W. Barletta, S. Bassanese, S. Biedron, A. Borga, E. Busetto, D. Castronovo, P. Cinquegrana *et al.*, *Nat. Photonics* **6**, 699 (2012).
- [3] K. Midorikawa, Y. Nabekawa, and A. Suda, *Prog. Quantum Electron.* **32**, 43 (2008).
- [4] S. Suckewer and P. Jaegle, *Laser Phys. Lett.* **6**, 411 (2009).
- [5] B. Nagler, U. Zastra, R. R. Fäustlin, S. M. Vinko, T. Whitcher, A. Nelson, R. Sobierajski, J. Krzywinski, J. Chalupsky, E. Abreu *et al.*, *Nat. Phys.* **5**, 693 (2009).
- [6] C. Bostedt, E. Eremina, D. Rupp, M. Adolph, H. Thomas, M. Hoener, A. De Castro, J. Tiggesbäumker, K.-H. Meiwes-Broer, T. Laarmann *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 093401 (2012).
- [7] S. Baker, J. S. Robinson, C. Haworth, H. Teng, R. Smith, C. Chirilă, M. Lein, J. Tisch, and J. Marangos, *Science* **312**, 424 (2006).
- [8] R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, A. Baltuska, V. Yakovlev, F. Bammer, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann *et al.*, *Nature* (London) **427**, 817 (2004).
- [9] C. La-O-Vorakiat, M. Siemens, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, S. Mathias, M. Aeschlimann, P. Grychtol, R. Adam, C. M. Schneider, J. M. Shaw, H. Nembach, and T. J. Silva, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 257402 (2009).
- [10] H. Tang, O. Guilbaud, G. Jamelot, D. Ros, A. Klisnick, D. Joyeux, D. Phalippou, M. Kado, M. Nishikino, M. Kishimoto *et al.*, *Appl. Phys. B* **78**, 975 (2004).
- [11] J. Nejd, M. Kozlová, T. Mocek, and B. Rus, *Phys. Plasmas* **17**, 122705 (2010).
- [12] L. Gartside, G. Tallents, A. Rossall, E. Wagenaars, D. Whittaker, M. Kozlová, J. Nejd, M. Sawicka, J. Polan, M. Kalal *et al.*, *High Energy Density Phys.* **7**, 91 (2011).
- [13] L. Urbanski, A. Isoyan, A. Stein, J. Rocca, C. Menoni, and M. Marconi, *Opt. Lett.* **37**, 3633 (2012).
- [14] S. Heinbuch, F. Dong, J. Rocca, and E. Bernstein, *J. Chem. Phys.* **126**, 244301 (2007).
- [15] B. A. Reagan, M. Berrill, K. A. Wernsing, C. Baumgarten, M. Woolston, and J. J. Rocca, *Phys. Rev. A* **89**, 053820 (2014).
- [16] R. A. Banici, G. V. Cojocaru, R. G. Ungureanu, R. Dabu, D. Ursescu, and H. Stiel, *Opt. Lett.* **37**, 5130 (2012).
- [17] O. Delmas, M. Pittman, K. Cassou, O. Guilbaud, S. Kazamias, G. V. Cojocaru, O. Neveu, J. Demailly, E. Baynard, D. Ursescu *et al.*, *Opt. Lett.* **39**, 6102 (2014).
- [18] F. Staub, C. Imesch, D. Bleiner, and J. Balmer, *Opt. Commun.* **285**, 2118 (2012).
- [19] M. Berrill, D. Alessi, Y. Wang, S. R. Domingue, D. H. Martz, B. M. Luther, Y. Liu, and J. J. Rocca, *Opt. Lett.* **35**, 2317 (2010).
- [20] J. P. Goddet, S. Sebban, J. Gautier, P. Zeitoun, C. Valentin, F. Tissandier, T. Marchenko, G. Lambert, M. Ribières, D. Douillet *et al.*, *Opt. Lett.* **34**, 2438 (2009).
- [21] S. Ackermann, A. Azima, S. Bajt, J. Bödewadt, F. Curbis, H. Dachraoui, H. Delsim-Hashemi, M. Drescher, S. Düsterer, B. Faatz *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 114801 (2013).
- [22] T. Ditmire, M. Hutchinson, M. Key, C. Lewis, A. MacPhee, I. Mercer, D. Neely, M. Perry, R. Smith, J. Wark *et al.*, *Phys. Rev. A* **51**, R4337(R) (1995).
- [23] P. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, P. Balcou, F. Burgy, D. Douillet *et al.*, *Nature* (London) **431**, 426 (2004).
- [24] Y. Wang, E. Granados, M. A. Larotonda, M. Berrill, B. M. Luther, D. Patel, C. S. Menoni, and J. J. Rocca, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 123901 (2006).
- [25] O. Guilbaud, S. Kazamias, K. Cassou, O. Delmas, J. Demailly, O. Neveu, D. Ros, E. Baynard, M. Pittman, M. Shazad, A. Rossal, G. J. Tallents, A. Le Marec, L. Klisnick, A. Lu, P. Zeitoun, G. V. Cojocaru, R. G. Ungureanu, B. R. A., and D. Ursescu, in

- 14th International Conference on X-Ray Lasers 2014* (Springer Proceedings in Physics, in press, 2015).
- [26] Y. Wang, M. Berrill, F. Pedaci, M. M. Shakya, S. Gilbertson, Z. Chang, E. Granados, B. M. Luther, M. A. Larotonda, and J. J. Rocca, *Phys. Rev. A* **79**, 023810 (2009).
- [27] O. Guilbaud, F. Tissandier, J.-P. Goddet, M. Ribière, S. Sebban, J. Gautier, D. Joyeux, D. Ros, K. Cassou, S. Kazamias, A. Klisnick, J. Habib, P. Zeitoun, D. Benredjem, T. Mocek, J. Nedjl, S. de Rossi, G. Maynard, B. Cros, A. Boudaa, and A. Calisti, *Opt. Lett.* **35**, 1326 (2010).
- [28] F. Tissandier, S. Sebban, M. Ribière, J. Gautier, P. Zeitoun, G. Lambert, A. B. Sardinha, J.-P. Goddet, F. Burgy, T. Lefrou *et al.*, *Phys. Rev. A* **81**, 063833 (2010).
- [29] O. Larroche and A. Klisnick, *Phys. Rev. A* **88**, 033815 (2013).
- [30] A. Klisnick, O. Guilbaud, D. Ros, K. Cassou, S. Kazamias, G. Jamelot, J.-C. Lagron, D. Joyeux, D. Phalippou, Y. Lechantre *et al.*, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **99**, 370 (2006).
- [31] L. M. Meng, D. Alessi, O. Guilbaud, Y. Wang, M. Berrill, B. Luther, S. R. Domingue, D. H. Martz, D. Joyeux, S. D. Rossi, J. J. Rocca, and A. Klisnick, *Opt. Express* **19**, 12087 (2011).
- [32] L. Urbanski, M. C. Marconi, L. M. Meng, M. Berrill, O. Guilbaud, A. Klisnick, and J. J. Rocca, *Phys. Rev. A* **85**, 033837 (2012).
- [33] A. Calisti, S. Ferri, C. Mossé, B. Talin, A. Klisnick, L. Meng, D. Benredjem, and O. Guilbaud, *High Energy Density Phys.* **9**, 516 (2013).
- [34] A. Depresseux, E. Oliva, J. Gautier, F. Tissandier, J. Nejd, M. Kozlova, G. Maynard, J. P. Goddet, A. Tafzi, Lifschitz, A. H. T. Kim, S. Jacquemot, V. Malka, K. Ta Phuoc, C. Thaury, P. Rousseau, G. Iaquaniello, T. Lefrou, A. Flacco, B. Vodungbo, G. Lambert, A. Rousse, P. Zeitoun, and S. Sebban, *Nat. Photon.* (to be published).
- [35] E. Oliva, M. Fajardo, L. Li, M. Pittman, T. Le, J. Gautier, G. Lambert, P. Velarde, D. Ros, S. Sebban *et al.*, *Nat. Phot.* **6**, 764 (2012).
- [36] B. Rus, T. Mocek, A. R. Präg, M. Kozlová, G. Jamelot, A. Carillon, D. Ros, D. Joyeux, and D. Phalippou, *Phys. Rev. A* **66**, 063806 (2002).
- [37] L. Meng, A. Klisnick, M. Kozlova, K. Bohacek, M. Krus, J. Prokupek, L. Urbanski, M. Marconi, M. Berrill, J. Rocca *et al.*, in *X-Ray Lasers 2012* (Springer, New York, 2014), pp. 175–180.
- [38] B. Rus, Ph.D thesis, Université Paris-Sud, 1995.
- [39] F. Polack, D. Joyeux, J. Svatoš, and D. Phalippou, *Rev. Sci. Instrum.* **66**, 2180 (1995).
- [40] R. Mitzner, B. Siemer, M. Neeb, T. Noll, F. Siewert, S. Roling, M. Rutkowski, A. Sorokin, M. Richter, P. Juranic *et al.*, *Opt. Express* **16**, 19909 (2008).
- [41] W. Schlotter, F. Sorgenfrei, T. Beeck, M. Beye, S. Gieschen, H. Meyer, M. Nagasono, A. Föhlisch, and W. Wurth, *Opt. Lett.* **35**, 372 (2010).
- [42] M. Kozlova, J. Nejd, A. Klisnick, A. Le Marec, L. Meng, F. Tissandier, T. Fok, L. Wegrzynski, A. Bartnik, P. Wachulak *et al.*, in *SPIE Optical Engineering + Applications* (International Society for Optics and Photonics, Bellingham, 2013), pp. 884904–884904.
- [43] J. A. Koch, B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. L. Matthews, J. H. Underwood, P. J. Batson, R. W. Lee, R. A. London, and S. Mrowka, *Phys. Rev. A* **50**, 1877 (1994).
- [44] G. Yuan, Y. Kato, K. Murai, H. Daido, and R. Kodama, *J. Appl. Phys.* **78**, 3610 (1995).
- [45] P. Celliers, F. Weber, L. Da Silva, T. Barbee, R. Cauble, A. Wan, and J. Moreno, *Opt. Lett.* **20**, 1907 (1995).
- [46] P. Holden, M. Nantel, B. Rus, and A. Sureau, *J. Phys. B: At. Mol. Opt.* **28**, 1369 (1995).
- [47] L. Da Silva, B. J. MacGowan, S. Mrowka, J. Koch, R. A. London, D. L. Matthews, and J. H. Underwood, *Opt. Lett.* **18**, 1174 (1993).
- [48] A. Calisti, F. Khelifaoui, R. Stamm, B. Talin, and R. W. Lee, *Phys. Rev. A* **42**, 5433 (1990).
- [49] G. J. Linford, E. R. Peressini, W. R. Sooy, and M. L. Spaeth, *Appl. Opt.* **13**, 379 (1974).

Publication du Chapitre 4



Evidence of partial temporal coherence effects in the linear autocorrelation of extreme ultraviolet laser pulses

ANDRÉA LE MAREC,¹ OLIVIER GUILBAUD,² OLIVIER LARROCHE,³ AND ANNIE KLISNICK^{1,*}

¹ISMO, CNRS, Univ. Paris-Sud, Université Paris-Saclay, F-91405 Orsay Cedex, France

²LPGP, CNRS, Univ. Paris-Sud, Université Paris-Saclay, F-91405 Orsay Cedex, France

³CEA DIF, Bruyères le Châtel, 91297 Arpaçon Cedex, France

*Corresponding author: annie.klisnick@u-psud.fr

Received 19 May 2016; revised 15 June 2016; accepted 17 June 2016; posted 24 June 2016 (Doc. ID 266577); published 15 July 2016

Evidence of partial temporal coherence effects in the linear autocorrelation of XUV laser pulses.

ANDREA LE MAREC,¹ OLIVIER GUILBAUD,² OLIVIER LARROCHE,³ AND ANNIE KLISNICK^{1,*}

¹ISMO, CNRS, Univ. Paris-Sud, Université Paris-Saclay, F-91405 Orsay Cedex, France

²LPGP, CNRS, Univ. Paris-Sud, Université Paris-Saclay, F-91405 Orsay Cedex, France

³CEA DIF, Bruyères le Châtel, 91297 Arpajon Cedex, France

*Corresponding author: annie.klisnick@u-psud.fr

Received XX Month XXXX; revised XX Month, XXXX; accepted XX Month XXXX; posted XX Month XXXX (Doc. ID XXXXX); published XX Month XXXX

We study how the degree of temporal coherence of plasma-based XUV lasers operated in the amplification of spontaneous emission mode, is encoded in the shape of the linear autocorrelation function, obtained from the variation of the fringe visibility while varying the delay in a variable path-difference interferometer. We discuss the implications of this effect when the technique is used to infer the spectral properties of the source. Our numerical simulations, based on a partial coherence model developed by other authors for X-ray free electron lasers, are in good agreement with previously reported set of measurements, illustrating similar statistical properties for both sources.

OCIS codes: (140.7240) UV, EUV, and X-ray lasers; (030.1640) Coherence; (120.3180) Interferometry; (140.2600) Free-electron lasers (FELs).

<http://dx.doi.org/10.1364/OL.99.099999>

The recent emergence of ultrashort coherent sources in the extreme ultraviolet (XUV) and soft X-ray range domains [1-3], stimulates a growing need for an accurate and reliable characterization of their spatial, temporal and spectral properties. The temporal coherence of the source is an important parameter. It can be characterized through a linear autocorrelation of the electric field, by measuring the variation of the fringe visibility while scanning the delay between the split pulses in a variable path-difference interferometer. The measured visibility function is proportional to the modulus of the degree of coherence of the radiation $|\gamma(\tau)|$. In principle the power spectral density and the spectral bandwidth of the source can also be inferred from this measurement through a Fourier transform, following the Wiener – Khinchin theorem [4]. Successful implementations of this technique using different types of interferometer configurations were reported for the characterization of high-order harmonics [5], XUV free-electron lasers [6, 7] and plasma-based XUV lasers [8-11]. Although single-shot measurement of the temporal coherence was reported recently [12], the other experiments essentially rely on a large number of laser shots, proportional to the number of delays included in the scan. For each delay step τ the

measured visibility is averaged over several single-shot interferograms to account for shot-to-shot fluctuations. The resulting fitted visibility curve $V(\tau)$ can thus be seen as the (ensemble) average of the modulus $\langle |\gamma(\tau)| \rangle$. The phase of the complex degree of coherence, which would correspond to the fringe position, is not included in the average. This will be shown to have important implications on the visibility curve behaviour.

In this paper we use a partial coherence model initially proposed by Pfeifer et al [13] to revisit the interpretation of a series of experimental data previously obtained with the above technique, while implementing our wavefront-division interferometer [14] on four types of collisionally-excited, plasma-based XUV lasers. The experiments were carried out at different laboratories, in collaboration with the local source-developing teams. The main motivation of the series of measurements, reported in several papers [9-11, 14, 15], was to provide a comprehensive survey of the spectral bandwidth of different types of currently operational XUV lasers. This is required to progress towards the generation of shorter, subpicosecond laser sources [12]. The pulse duration of the four types of XUV lasers covered by our survey range between ~ 1 ns to a few picoseconds. The coherence times τ_c obtained from our measurements were found to lie between 0.5 and 5 ps, corresponding to an extremely narrow spectral bandwidth $\Delta\lambda/\lambda$ of typically $1-5 \cdot 10^{-5}$. A remarkable feature emerged from the overall set of experiments regarding the shape of the visibility curve $V(\tau)$ displayed by the measured data points. In the case of long pulse XUV lasers, for which the duration $\tau_{\text{pulse}} \gg \tau_c$, a Gaussian shape was systematically observed [10, 15]. For short pulse XUV lasers, with $\tau_{\text{pulse}} \sim \tau_c$, more complex and variable shapes for $V(\tau)$ were found, which were fitted by other functional forms such as a decreasing exponential function [11], or a sum of two Gaussians [9]. Similar visibility curves with complex and variable shapes were also reported by several authors from measurements involving XUV free-electron pulses [6, 7, 16]. It was noted that the measured visibility curves (involving both positive and negative values of τ) consisted in a central gaussian peak, connected to the coherence time, and a slower decay at longer delays. This behaviour was attributed [17] to the multi-spike structure of single-shot pulses in either the spectral or the temporal domains. These structures are typical of free-electron lasers operated in the self-amplified spontaneous emission (SASE) mode. The visibility decay at longer delays was related

to the contribution of the correlation between individual spikes, with a timescale connected to the photon pulse duration [16].

To investigate this behaviour in more details and to get a better understanding of the different shapes of visibility curves observed with plasma-based XUV lasers, we adapted a numerical model initially proposed by Pfeifer et al [13] to describe partially coherent SASE free-electron laser pulses. The essence of this model, described in detail in [13], is to generate sets of individual ("single-shot") spectra and temporal pulse profiles, based on the knowledge of their (ensemble) average spectrum $\bar{I}(\nu)$ and pulse duration τ_{pulse} . The spectral amplitude is expressed as $E_0(\nu) = \sqrt{\bar{I}(\nu)} \cdot e^{i\phi(\nu)}$ and is discretized with a sampling interval $\delta\nu = |\nu_{i+1} - \nu_i| \ll 1/\tau_{\text{pulse}}$. For the calculations presented in this paper we assume a Gaussian average spectrum $\bar{I}(\nu)$ with full-width-half-maximum (FWHM) $\Delta\nu$, but the general conclusions of our study would not be modified if a different spectral shape were used. The Fourier-transform limit duration of the intensity temporal profile associated to a Gaussian spectrum (with flat spectral phase) is $\tau_{\text{FL}} = 2 \cdot \ln(2) / \pi \Delta\nu = \sqrt{\ln(2)} \cdot \tau_c$, where τ_c is the coherence time defined such as $|\gamma(\tau_c)| = 1/e$.

To account for the stochastic nature of the pulse, relevant to both SASE X-FELs or ASE plasma-XUV lasers, a discrete random spectral phase distribution $\phi(\nu)$ is used, i.e. a set of independent numbers between 0 and 2π are generated at each sampled frequency ν_i . The temporal pulse profile $E_f(t)$ is then calculated by taking the Fourier transform of $E_0(\nu)$ and multiplying it with a Gaussian temporal-amplitude filter $F_0(t)$. The temporal duration (FWHM) of this temporal filter is $\sqrt{2} \cdot \tau_{\text{pulse}} = m \cdot \sqrt{2} \cdot \tau_{\text{FL}}$, where m is a variable parameter typically representing the number of longitudinal modes in the pulse. Figure 1 (left panel) shows examples of single-shot temporal profiles $E_f^k(t)$ calculated for three different random spectral phase distributions of the same average Gaussian spectrum, with $\Delta\nu = 1$ THz. The pulse duration is short, with $\tau_{\text{pulse}} = 2.2$ ps ($m = 5$). The center panel of Fig. 1 shows the corresponding single-shot spectra $I^k(\nu)$. It can be seen that both spectral and temporal profiles exhibit spiky structures, which change from one pulse to the other, due to a different random spectral phase distribution. The number of spikes in the temporal profiles $E_f^k(t)$ is approximately given by the ratio $m = \tau_{\text{pulse}} / \tau_{\text{FL}}$ (here $m = 5$). There is approximately the same number of spikes in the spectral profile, the typical width of each spike being $\approx \Delta\nu / 5 = 0.2$ THz.

The three temporal profiles shown in Fig. 1 can be used to calculate their corresponding normalized autocorrelation function, or modulus of the degree of temporal coherence $|\gamma^k(\tau)| = \frac{|\Gamma^k(\tau)|}{\Gamma^k(0)}$, where

$\Gamma^k(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_f^k(t) E_f^{k*}(t + \tau) dt$. The results are shown in the right panel of Fig. 1, where $|\gamma^k(\tau)|$ is plotted as a function of the reduced delay τ/τ_c . For delays shorter than the coherence time (i.e. $\tau/\tau_c < 1$) one can see that the three curves are overlapped and follow a Gaussian form, given by the Fourier-transform of the average Gaussian spectral profile considered here. For larger delays ($\tau/\tau_c > 1$) the spiky and fluctuating features of $E_f^k(t)$ give rise in the autocorrelation function $|\gamma^k(\tau)|$ to oscillating structures, which differ from one pulse to the other.

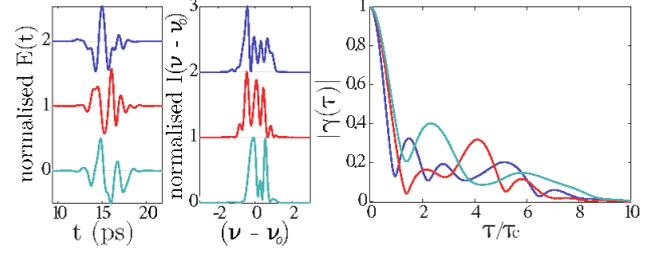


Figure 1: (Left) Single-shot temporal pulse profiles $E_f^k(t)$ calculated from the partial coherence model for three different random spectral phase distributions and for a short duration $\tau_{\text{pulse}} = 5 \cdot \tau_{\text{FL}}$. (Center) Corresponding single-shot spectra $I^k(\nu)$. (Right) Degree of temporal coherence, $|\gamma^k(\tau)|$ calculated from each temporal profile. Oscillating structures, different from one pulse to the other, are observed at delays larger than τ_c ($\tau/\tau_c > 1$ in the horizontal scale).

We then proceed by averaging over 1000 traces $|\gamma^k(\tau)|$ like those shown in Fig. 1, i.e. calculated from the same statistical pulse sample. This is analog to experimentally averaging over single-shot measurements of the fringe visibility for each delay. Figure 2 (left) shows the result of the calculated average (solid line), again plotted as a function of the reduced delay τ/τ_c . Also plotted in the same figure (dashed line) is the modulus of the averaged complex degree of coherence $\langle |\gamma^k(\tau)| \rangle$ over the same 1000 pulses. In this average the phase information of $\gamma^k(\tau)$ for each pulse is thus included. The resulting curve coincides with the Fourier-transform of the average Gaussian spectrum, in agreement with the Wiener-Khinchin theorem. By contrast the curve corresponding to the averaged modulus $\langle |\gamma^k(\tau)| \rangle$ exhibits a shoulder for delays $\tau > \tau_c$, which distorts the apparent overall shape in a way similar to the experimentally observed ones [9, 11, 14]. It should be noted that in their paper Pfeifer et al. obtained similar shoulder features, while their partial coherence model was applied to the calculation of the average second-order autocorrelation function of SASE free-electron laser pulses [13].

The same calculations of the average degree of coherence were repeated for a new set of individual pulses corresponding to a significantly longer pulse duration $\tau_{\text{pulse}} = 101$ ps ($m = 230$). The results are shown in Fig. 2 (right). The dotted line curve displaying $\langle |\gamma^k(\tau)| \rangle$ is identical to the short pulse case shown in the left panel of Fig. 2, since the same average Gaussian spectrum with $\Delta\nu = 1$ THz was considered in both cases. On the solid line curve corresponding to the average modulus $\langle |\gamma^k(\tau)| \rangle$, one can see that the shoulder for delays $\tau > \tau_c$ has been almost completely washed-out compared to the short pulse case. This is a consequence of $\gamma^k(\tau)$ being integrated over a longer temporal duration for each individual pulse, thus involving a larger number of longitudinal modes (or temporal spikes), with an average reduced correlation. This can also be found from the fact that in the long pulse case only 10 pulses were sufficient for the statistical average $\langle |\gamma^k(\tau)| \rangle$ to converge to the Fourier transform of the Gaussian spectrum (instead of 1000 pulses in the short pulse case). The absence of a noticeable shoulder in the $\langle |\gamma^k(\tau)| \rangle$ curve leads to an apparent overall gaussian shape, which is again consistent with our experimental observations for long pulse XUV lasers [10, 15].

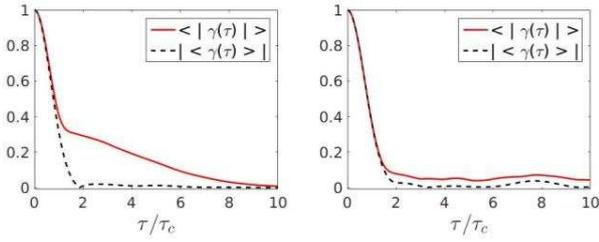


Figure 2: (left) Average modulus of the degree of coherence $\langle |\gamma^k(\tau)| \rangle$ (solid lines) and modulus of the average degree of coherence $|\langle \gamma^k(\tau) \rangle|$ (dashed lines), calculated for a set of 1000 autocorrelation traces such as those shown in Fig 1. Pulse duration $\tau_{\text{pulse}} = 5 \cdot \tau_{\text{FL}} = 2.2$ ps. (right) Same as left panel but with a longer pulse duration $\tau_{\text{pulse}} = 230 \cdot \tau_{\text{FL}} = 101$ ps, and 10 autocorrelation traces included in the averages. The horizontal scale is in units of the reduced delay τ/τ_c .

In summary the partial coherence model, used to generate pulses with random spectral phase, reproduces remarkably well the behaviour of the visibility curve shapes, observed from the set of experiments with the same wavefront-division interferometer on XUV laser pulses of different durations. The calculations presented above show that the experimental autocorrelation traces, obtained by measuring the fringe visibility from an ensemble of many laser shots, contain information on both the average spectrum and the pulse duration. For long pulse XUV lasers, for which the pulse duration is much larger than the coherence time τ_c the visibility curve can directly be used to infer the spectral properties of the source through a Fourier transform. For short pulse XUV lasers characterized by $\tau_{\text{pulse}} \sim$ a few τ_c (namely $\tau_{\text{pulse}} \sim 1$ -10 ps) however, only the visibility measured for delays smaller than τ_c can provide information about the coherence time and the related spectral width. The visibility data measured for $\tau > \tau_c$ are essentially governed by the pulse duration.

This led us to revisit the interpretation of two previous measurements performed with short pulse, transient XUV lasers, in Ni-like Ag [14] and Ni-like Mo [9]. In these experiments the amplifying plasma was generated by a succession of a long (a few 100 ps) pulse and a short picosecond pulse to achieve collisional excitation pumping and transient population inversion between the lasing levels (transition $3d^9 4d - 3d^9 4p$ J 0-1 in Ni-like ions). The XUV beam was directed towards a wavefront-division interferometer with variable path-difference, which was set at a distance of ~ 3 meters from the source. More details about the experimental setup and the measurements are given in [9, 14]. The experimental data of the measured visibilities $V(\tau)$, adapted from the corresponding papers, are shown in Fig. 3. Each data point is the average of the visibility measured over 5 to 10 single-shot interferograms, and the error bar represents the standard deviation. In both cases one can see that the experimental data at large delays exhibit a shoulder feature analog to the predictions of the partial coherence model, shown in Fig. 2 (left panel). The two sets of data are quantitatively well reproduced by our calculations using this model, as shown by the dashed and solid line curves in each figure. The dashed line corresponds to the modulus of the averaged complex degree of coherence $|\langle \gamma^k(\tau) \rangle|$ (or the modulus of the Fourier-transform of the average spectrum) while the solid line displays the average of its modulus $\langle |\gamma^k(\tau)| \rangle$. Both quantities have been averaged over of 1000 individual pulses of the same statistical set, with values of $\Delta\nu$ and τ_{pulse} indicated in each figure. Those values were chosen to optimize the agreement with the experimental data. The pulse durations (5.1 - 6 ps for Ni-like Ag and 2 - 2.7 ps for Ni-like Mo) used to fit the data are consistent with the experimental ones [18, 19]. The

updated values of $\Delta\nu$ (0.28 THz and 0.46 THz respectively) are 2-3 times larger than previously evaluated and are in better agreement with the predictions of radiative transfer simulations described in Refs [9] and [14].

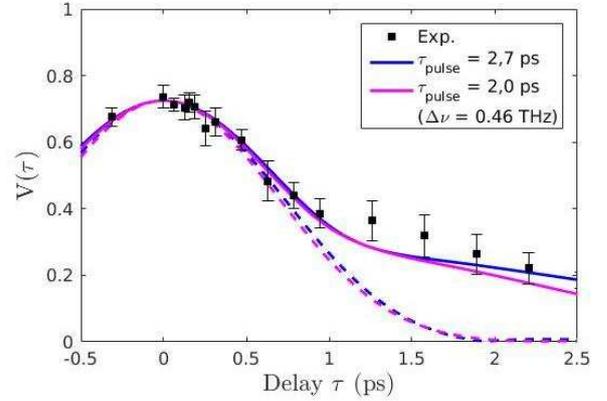
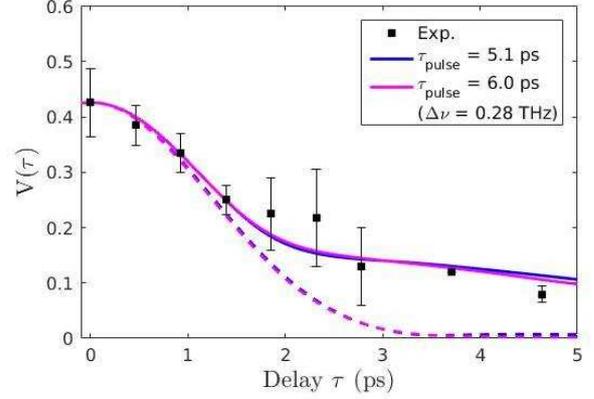


Figure 3: Measured visibility curves $V(\tau)$ from two different short pulse, transient XUV lasers: (top) Ni-like Ag at 13.9 nm (data adapted from [14]); (bottom) Ni-like Mo at 19.9 nm (data adapted from [9]). In each figure the dashed and solid curves show the modulus of the averaged degree of temporal coherence $|\langle \gamma^k(\tau) \rangle|$ and the average of its modulus $\langle |\gamma^k(\tau)| \rangle$ respectively, calculated from the partial coherence model with an average over 1000 individual pulses. The input values for $\Delta\nu$ and τ_{pulse} in each case are indicated in the inset.

The interpretation of the shoulder feature experimentally observed in the visibility curves of short pulse ASE XUV lasers, using the partial coherence model of Pfeifer et al. [13], is supported by detailed calculations of the amplified electric field based on the two-dimensional Maxwell-Bloch code COLAX [20, 21]. This code (here used in a one-dimensional geometry) calculates the temporal evolution of the complex electric field envelope associated to the ASE XUV laser radiation, while propagating along the amplifying plasma. Spontaneous emission is included through a stochastic source term in the equation describing the evolution of the medium polarization [20]. The distribution of populations in the lasing levels (here $3d^9 4d$ and $3d^9 4p$ in Ni-like Ag) and relevant plasma quantities, in time and along the propagation direction, are obtained from an independent one-dimensional hydrocode EHYBRID [22, 23], assuming a traveling-wave pumping geometry.

The temporal variation of the electric field at the output of the plasma calculated from COLAX is then used to evaluate the modulus of the

degree of temporal coherence $|\gamma^k(\tau)|$, as well as its ensemble average $\langle |\gamma^k(\tau)| \rangle$, both plotted in Figure 4. In the left panel of Fig. 4 the autocorrelation from three individual pulses, calculated from three different simulations (identical input parameters, but a different random source term for spontaneous emission), are shown to illustrate the shot-to-shot fluctuation for delays larger than 1 ps. Oscillating structures similar to those calculated with the partial coherence model (Fig. 1, right panel) are apparent. When averaged over 200 individual pulses (solid line in the right panel of Fig. 4) those structures lead to the shoulder feature already discussed. When the phase of $\gamma^k(\tau)$ is included in the average, the resulting $\langle \gamma^k(\tau) \rangle$ curve (dashed line) shows a near-Gaussian shape corresponding to a near-Gaussian average spectrum with $\Delta\nu \sim 0.8$ THz.

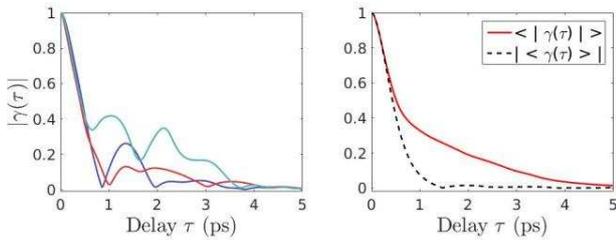


Figure 4: Simulations with the Maxwell – Bloch COLAX code for a Ni-like Ag (13.9 nm) XUV laser operated in ASE. (left) Modulus of the degree of temporal coherence $|\gamma^k(\tau)|$ for 3 individual pulses differing by the initial random source, spontaneous-emission term; (right) Ensemble average over 200 pulses of $\langle |\gamma^k(\tau)| \rangle$ and $\langle \gamma^k(\tau) \rangle$.

In conclusion, using a numerical model initially developed by Pfeifer et al. [13] to describe partially coherent SASE free-electron laser pulses, we have clarified the origin of the shoulder feature previously observed in a set of experimental visibility curves with short-pulse XUV lasers, for which $\tau_{\text{pulse}} \sim$ a few τ_c . The same model also consistently reproduces the trend that the shoulder becomes non detectable when the pulse duration is much longer than the coherence time, as a result of temporal integration. The presence of a shoulder feature is also reproduced from calculations of the amplified electric field, using a Maxwell-Bloch description with a stochastic source term for the spontaneous emission. The observed behaviour is a result of the spiky, fluctuating structures of the pulse in both the spectral and temporal domain. These structures are typical of both ASE plasma-based XUV lasers and SASE free-electron lasers, although they are characterized by distinct timescales (\sim sub-ps to picosecond versus few femtoseconds). The shoulder feature, which could be considered as an artifact of the measurement, actually yields additional information on the pulse temporal properties, namely its average duration (or number of longitudinal modes). Such information would be lost if the phase of the complex degree of coherence (or the fringe position in the interferograms) was included in the multishot, ensemble average.

Funding. Fondation de Coopération Scientifique Paris-Saclay, RTRA Triangle de la Physique (2012-0333T_OASIS); EU 7th Framework Programme, LASERLAB-Europe (284464)

Acknowledgment. We thank P. Chavel (LCF, Institut d’Optique Graduate School) and C. Bourassin-Bouchet (ISMO) for the stimulating discussions.

References

1. P. Bucksbaum, T. Möller and K. Ueda, eds., *J. Phys. B* **46**, 16 (2013)
2. K. Midorikawa, Y. Nabekawa, and A. Suda, *Prog. Quantum Electron.* **32**, 43 (2008).
3. S. Suckewer and P. Jaeglé, *Laser Phys. Lett.* **6**, 411 (2009).
4. J. W. Goodman, *Statistical Optics* (Wiley, New York, 1985), p. 74.
5. C. Lynga, M. B. Gaarde, C. Delfin, M. Bellini, *Phys. Rev. A* **60**, 4823 (1999).
6. R. Mitzner, B. Siemer, M. Neeb, T. Noll, F. Siewert, S. Røling, M. Rutkowski, A. Sorokin, M. Richter, P. Juranic, K. Tiedtke, J. Feldhaus, W. Eberhardt, and H. Zacharias, *Opt. Express* **16**, 19909 (2008).
7. W. F. Schlotter, F. Sorgenfrei, T. Beeck, M. Beye, S. Gieschen, H. Meyer, M. Nagasono, A. Föhlich, and W. Wurth, *Opt. Lett.* **35** 372 (2010).
8. R. F. Smith, J. Dunn, J. R. Hunter, J. Nilsen, S. Hubert, S. Jacquemot, C. Remond, R. Marmoret, M. Fajardo, P. Zeitoun, L. Vanbostal, C. L. S. Lewis, M.-F. Ravet, and F. Delmotte, *Opt. Lett.* **28**, 2261 (2003).
9. L. M. Meng, D. Alessi, O. Guilbaud, Y. Wang, M. Berrill, B. Luther, S. R. Domingue, D. H. Martz, D. Joyeux, S. D. Rossi, J. J. Rocca, and A. Klisnick, *Opt. Express* **19**, 12087 (2011).
10. L. Urbanski, M. C. Marconi, L. M. Meng, M. Berrill, O. Guilbaud, A. Klisnick, and J. J. Rocca, *Phys. Rev. A* **85**, 033837 (2012).
11. F. Tissandier, S. Sebban, M. Ribière, J. Gautier, P. Zeitoun, G. Lambert, A. B. Sardinha, J.-P. Goddet, F. Burgy, T. Lefrou, C. Valentin, A. Rousse, O. Guilbaud, A. Klisnick, J. Nejd, T. Mocek, and G. Maynard, *Phys. Rev. A* **81**, 063833 (2010).
12. Y. Wang, L. Yin, S. Wang, M. C. Marconi, J. Dunn, E. Gullikson, and J. J. Rocca, *Opt. Lett.* **38**, 5004 (2013).
13. T. Pfeifer, Y. Jiang, S. Dusterer, R. Moshhammer, and J. Ullrich, *Opt. Lett.* **35**, 3441 (2010).
14. O. Guilbaud, A. Klisnick, D. Joyeux, D. Benredjem, K. Cassou, S. Kazamias, D. Ros, D. Phalippou, G. Jamelot, and C. Moller, *Eur. Phys. J. D* **40**, 125 (2006).
15. A. Le Marec, L. Meng, A. Klisnick, M. Kozlova, J. Nejd, F. Tissandier, O. Guilbaud, A. Calisti, *Phys. Rev. A* **92**, 033852 (2015).
16. A. Singer, F. Sorgenfrei, A. P. Mancuso, N. Gerasimova, O. M. Yefanov, J. Gulden, T. Gorniak, T. Senkbeil, A. Sakdinawat, Y. Liu, D. Attwood, S. Dziarzhytski, D. D. Mai, R. Treusch, E. Weckert, T. Salditt, a Rosenhahn, W. Wurth, and I. A. Vartanyants, *Opt. Express*, **20**, 17480 (2012).
17. S. Røling, B. Siemer, M. Wöstmann, H. Zacharias, R. Mitzner, A. Singer, K. Tiedtke, and I. A. Vartanyants, *Phys. Rev. Special Topics - Accelerators and Beams*, **14**, 080701 (2011).
18. Y. Abou-Ali, G. J. Tallents, M. Edwards, R. E. King, G. J. Pert, S. J. Pestehe, F. Strati, R. Keenan, C. L. S. Lewis, S. Topping, O. Guilbaud, A. Klisnick, D. Ros, R. Clarke, D. Neely, M. Notley, and A. Demir, *Opt. Commun.* **215**, 397 (2003)
19. L. Meng, A.-C. Bourgaux, S. Bastiani-Ceccotti, O. Guilbaud, M. Pittman, S. Kazamias, K. Cassou, S. Daboussi, D. Ros, A. Klisnick, A., *Appl. Phys. Lett.* **101**, 141125 (2012).
20. O. Larroche, D. Ros, A. Klisnick, A. Sureau, C. Möller, and H. Guennou, *Phys. Rev. A*, **62**, 043815 (2000).
21. O. Larroche and A. Klisnick, *Phys. Rev. A*, **88**, 033815 (2013).
22. G. J. Pert, *J. Fluid Mech.* **131**, 401 (1983).
23. F. de Dortan, M. Busquet, A. Bar-Shalom, M. Klapisch, J. Oreg, B. Rus, M. Kozlova, J. Nejd, *X-Ray Lasers 2008*, Springer Proceedings in Physics, Vol. 130 (Springer-Verlag, Berlin, 2009), p. 231.

References (complete format)

1. P. Bucksbaum, T. Möller and K. Ueda, Eds, Special issue on "Frontiers of free electron laser science", *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **46**(16) (2013)
2. K. Midorikawa, Y. Nabekawa, and Suda, "XUV multiphoton processes with intense high-order harmonics," *Prog. Quantum Electron.* **32**(2), 43–88 (2008) [doi:10.1016/j.pquantelec.2008.04.001].
3. S. Suckewer and P. Jaeglé, "X-Ray laser: past, present, and future," *Laser Phys. Lett.* **6**(6), 411–436 (2009) [doi:10.1002/lapl.200910023].
4. J. W. Goodman, *Statistical Optics* (Wiley, New York, 1985), p. 74.
5. C. Lyngå, M. B. Gaarde, C. Delfin, M. Bellini, T. W. Hänsch, A. L' Huillier, and C.-G. Wahlström, "Temporal coherence of high-order harmonics," *Phys. Rev. A* **60**(6), 4823–4830 (1999).
6. R. Mitzner et al., "Direct autocorrelation of soft-x-ray free-electron-laser pulses by time-resolved two-photon double ionization of He," *Phys. Rev. A* **80**(2), 8–11 (2009) [doi:10.1103/PhysRevA.80.025402].
7. W. F. Schlotter, F. Sorgenfrei, T. Beeck, M. Beye, S. Gieschen, H. Meyer, M. Nagasono, A. Föhlich, and W. Wurth, "Longitudinal coherence measurements of an extreme-ultraviolet free-electron laser," *Opt. Lett.* **35**(3), 372–374 (2010).
8. Raymond F. Smith, James Dunn, James R. Hunter, Joseph Nilsen, Sebastien Hubert, Sylvie Jacquemot, Christian Remond, Remy Marmoret, Marta Fajardo, Philippe Zeitoun, Laurent Vanbostal, Ciaran L. S. Lewis, Marie Françoise Ravet, and Franck Delmotte, "Longitudinal coherence measurements of a transient collisional x-ray laser," *Opt. Lett.* **28**(22), 2261–2263 (2003).
9. L. M. Meng, D. Alessi, O. Guilbaud, Y. Wang, M. Berrill, B. Luther, S. R. Domingue, D. H. Martz, D. Joyeux, S. D. Rossi, J. J. Rocca, and A. Klisnick, "Temporal coherence and spectral linewidth of an injection-seeded transient collisional soft x-ray laser," *Opt. Express* **19**(13), 12087–12092 (2011).
10. L. Urbanski, M. C. Marconi, L. M. Meng, M. Berrill, O. Guilbaud, A. Klisnick, and J. J. Rocca, "Spectral linewidth of a Ne-like Ar capillary discharge soft-x-ray laser and its dependence on amplification beyond gain saturation," *Phys. Rev. A* **85**(3), 033837 (2012) [doi:10.1103/PhysRevA.85.033837].
11. F. Tissandier, S. Sebban, M. Ribière, J. Gautier, P. Zeitoun, G. Lambert, A. B. Sardinha, J.-P. Goddet, F. Burgy, T. Lefrou et al., "Observation of spectral gain narrowing in a high-order harmonic seeded soft-x-ray amplifier," *Phys. Rev. A* **81**(6), 063833 (2010) [doi:10.1103/PhysRevA.81.063833].
12. Y. Wang, L. Yin, S. Wang, M. C. Marconi, J. Dunn, E. Gullikson, and J. J. Rocca, "Single-shot soft x-ray laser linewidth measurement using a grating interferometer," *Opt. Lett.* **38**(23), 5004–5007 (2013).
13. T. Pfeifer, Y. Jiang, S. Düsterer, R. Moshhammer, and J. Ullrich, "Partial-coherence method to model experimental free-electron laser pulse statistics," *Opt. Lett.* **35**(20), 3441–3443 (2010).
14. 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* **40**(1), 125–132 (2006) [doi:10.1140/epjd/e2006-00154-7].
15. A. Le Marec, L. Meng, A. Klisnick, M. Kozlova, J. Nejd, F. Tissandier, O. Guilbaud, A. Calisti, "Measurement of a subpicosecond coherence time in a quasi-steady-state XUV laser," *Phys. Rev. A* **92**(3), 033852 (2015) [doi:10.1103/PhysRevA.92.033852].
16. A. Singer, F. Sorgenfrei, A. P. Mancuso, N. Gerasimova, O. M. Yefanov, J. Gulden, T. Gorniak, T. Senkbeil, A. Sakdinawat, Y. Liu, D. Attwood, S. Dziarzhytski, D. D. Mai, R. Treusch, E. Weckert, T. Salditt, A. Rosenhahn, W. Wurth, and I. A. Vartanyants, "Spatial and temporal coherence properties of single free-electron laser pulses," *Opt. Express* **20**(16), 17480–17495 (2012).
17. S. Roling, B. Siemer, M. Wöstmann, H. Zacharias, R. Mitzner, A. Singer, K. Tiedtke, and I. A. Vartanyants, "Temporal and spatial coherence properties of free-electron-laser pulses in the extreme ultraviolet regime," *Phys. Rev. Spec. Top. - Accel. Beams* **14**(8), 080701 (2011) [doi:10.1103/PhysRevSTAB.14.080701].
18. Y. Abou-Ali, G. J. Tallents, M. Edwards, R. E. King, G. J. Pert, S. J. Pestehe, F. Strati, R. Keenan, C. L. S. Lewis, S. Topping, O. Guilbaud, A. Klisnick, D. Ros, R. Clarke, D. Neely, M. Notley, and A. Demir, "Measurement of the duration of X-ray lasing pumped by an optical laser pulse of picosecond duration," *Opt. Commun.* **215**(4-6), 397–406 (2003) [doi:10.1016/S0030-4018(02)02246-0].
19. L. Meng, A.-C. Bourgaux, S. Bastiani-Ceccotti, O. Guilbaud, M. Pittman, S. Kazamias, K. Cassou, S. Daboussi, D. Ros, A. Klisnick, "Temporal characterization of a picosecond extreme ultraviolet laser pumped in grazing incidence," *Appl. Phys. Lett.* **101**(14), 141125 (2012) [doi:10.1063/1.4757878].
20. O. Larroche, D. Ros, A. Klisnick, A. Sureau, C. Möller, and H. Guennou, "Maxwell-Bloch modeling of x-ray-laser-signal buildup in single- and double-pass configurations," *Phys. Rev. A* **62**(4), 043815, APS (2000).
21. O. Larroche and A. Klisnick, "Two-dimensional Maxwell-Bloch simulation of quasi- π -pulse amplification in a seeded XUV laser," *Phys. Rev. A* **88**(3), 033815 (2013) [doi:10.1103/PhysRevA.88.033815].
22. G. J. Pert, "The hybrid model and its application for studying free expansion", *Journal of Fluid Mechanics*, 131, pp 401-426 (1983) [doi:10.1017/S0022211208300138X].
23. F. de Dortan, M. Busquet, A. Bar-Shalom, M. Klapisch, J. Oreg, B. Rus, M. Kozlova, J. Nejd, *X-Ray Lasers 2008*, Springer Proceedings in Physics, Vol. 130 (Springer-Verlag, Berlin, 2009), p. 231.

Inversion density threshold for Rabi oscillations and modified small-signal gain in extreme-ultraviolet lasers

Olivier Larroche,^{1,*} Limin Meng,² Andréa Le Marec,² and Annie Klisnick²

¹CEA DIF, Bruyères le Châtel, 91297 Arpajon Cedex, France

²ISMO, CNRS, Université Paris-Sud, 91405 Orsay Cedex, France

*Corresponding author: olivier.larroche@cea.fr

Received May 7, 2013; accepted June 6, 2013;
posted June 10, 2013 (Doc. ID 190228); published July 10, 2013

An expression is proposed for a threshold discriminating between classical quasi-steady-state amplification and a strong pumping regime where a new dynamic behavior shows up in plasma-based extreme-ultraviolet (XUV) lasers. The criterion derived is applied to laser systems currently investigated in various laboratories. It is found that only high-gain XUV laser systems can be driven in that dynamic regime, associated with Rabi oscillations. For those systems, the small-signal dynamic gain accounting for the exponential amplification of the laser intensity is shown to be significantly smaller than the adiabatic value usually inferred from numerical simulations. © 2013 Optical Society of America

OCIS codes: (140.7240) UV, EUV, and X-ray lasers; (270.3430) Laser theory.

<http://dx.doi.org/10.1364/OL.38.002505>

Inversion density threshold for Rabi oscillations and modified small-signal gain in XUV lasers

Olivier Larroche,^{1,*} Limin Meng,² Andréa Le Marec,² and Annie Klisnick²

¹CEA DIF, Bruyères le Châtel, 91297 Arpaçon Cedex, France

²ISMO, CNRS, Université Paris-Sud, 91405 Orsay Cedex, France

*Corresponding author: olivier.larroche at cea.fr

Compiled June 7, 2013

An expression is proposed for a threshold discriminating between classical quasi-steady-state amplification and a strong-pumping regime where a new dynamical behavior shows up in plasma-based XUV lasers. The criterion derived is applied to laser systems currently investigated in various laboratories. It is found that only high-gain XUV laser systems can be driven in that dynamical regime, associated with Rabi oscillations. For those systems the small-signal dynamic gain accounting for the exponential amplification of the laser intensity is shown to be significantly smaller than the adiabatic value usually inferred from numerical simulations. © 2013 Optical Society of America

OCIS codes: 140.7240, 270.3430.

Over the last ~ 15 years XUV lasers, pumped by collisional excitation in multi-charged ions and operated in a single-pass, amplification of spontaneous emission (ASE) mode, have been successfully generated in plasmas produced with a large variety of experimental techniques, using either high-power optical lasers or fast electrical discharges [1]. This leads to different types of XUV laser systems, with distinct output properties and plasma parameters in the gain region. In particular the small-signal gain values achieved range from less than 1 cm^{-1} for the discharge pumped XUV lasers [2] up to $\sim 100 \text{ cm}^{-1}$ for the so-called transient XUV lasers, pumped in a swept-gain geometry with a high-intensity picosecond laser pulse [1]. For those very high-gain systems, the classical assumption of convective, quasi-steady-state amplification might not be valid anymore. That assumption is also violated in the case of the more recently demonstrated seeded XUV lasers, where a femtosecond resonant XUV pulse, usually obtained from high-order harmonics generation (HHG), is injected into the plasma amplifier [3, 4]. In this regime, non-stationary behavior can occur, involving, e.g., Rabi oscillations. This has important implications since the latter have been recently considered a promising way of generating seeded XUV lasers with femtosecond duration [5], while in the adiabatic regime the amplified pulse duration cannot be shorter than $\sim 1 \text{ ps}$ due to the extremely narrow gain bandwidth [6]. In this paper, we propose a way of discriminating between the classical, adiabatic regime and the new strong-pumping, dynamical regime at work in such systems.

The evolution of resonant radiation in an XUV laser medium is described by the following set of Maxwell-Bloch equations [5, 7–10], in the frame of the slowly-varying envelope approximation, assuming a one-dimensional dependency of all quantities only, in cgs units, where ω is the angular frequency of the XUV laser transition, c is the speed of light, E is the complex envelope

of the electric field of the wave propagating in the positive y direction, ω_p is the plasma frequency, and ν_{ei} is the electron-ion collision frequency leading to damping of the electromagnetic waves:

$$\frac{2i}{\omega} \left(\frac{\partial E}{\partial t} + c \frac{\partial E}{\partial y} \right) = \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\nu_{ei})} E - 4\pi P \quad (1)$$

The time-envelope approximation is valid here since the laser period $2\pi/\omega \sim$ a few tens of attoseconds, is much shorter than the shortest pulses to be amplified ($\sim 15 \text{ fs}$ for the HHG pulse).

P on the right-hand side of Eq. (1) is the complex amplitude of the time-enveloped polarization density, governed by

$$\frac{\partial P}{\partial t} = -\gamma P - i \frac{d^2}{\hbar} (\rho_u - \rho_l) E \quad (2)$$

where γ is the dipole-dephasing rate, d is the dipole operator matrix element between the laser transition states. The population densities, including those of the upper and lower states of the laser transition ρ_u and ρ_l are governed by

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} = (\delta_{iu} - \delta_{il}) \frac{1}{2\hbar} \text{Im}(PE^*) + \gamma_{ij} \rho_j + R_i \quad (3)$$

Equations (2) and (3) assume the same value of the transition frequency ω for all ions, or in other words that inhomogeneous broadening can be neglected (see [11, 12] for a discussion of that point). The relevant atomic quantities, namely γ , the pumping population fluxes R_i and excitation/decay rates γ_{ij} are obtained from an outside collisional-radiative package.

The quantities used here are linked to classical notions of laser theory [13, 14]. The total dipole dephasing time $T_2 = \gamma^{-1}$ is related to the homogeneous spectral width and the inversion recovery time T_1 can be taken as the reciprocal of the largest eigenvalue of the matrix $[\gamma_{ij}]$.

Classical results [13,14] are found from the ‘‘adiabatic’’ hypothesis whereby a time variation of the inversion density much slower than γ is assumed, so that Eq. (2) can be Fourier-transformed in time keeping $\rho_u - \rho_l$ constant. The equation for the Fourier component at angular frequency Ω then reads

$$P(\Omega) \sim \frac{1}{\Omega + i\gamma} \frac{d^2}{\hbar} (\rho_u - \rho_l) E(\Omega)$$

and a stationary convective amplification regime is found. Namely, inserting the latter expression for the polarization density into the Fourier transform of equation (1), leaving aside dispersive terms for now, and multiplying by the complex conjugate, we obtain

$$\frac{d}{dy} |E(\Omega)|^2 = \frac{G_{ad}}{1 + \frac{\Omega^2}{\gamma^2}} |E(\Omega)|^2$$

with the spatial gain coefficient at line center:

$$G_{ad} = \frac{4\pi\omega^2}{c\gamma} \frac{d^2}{\hbar\omega} (\rho_u - \rho_l) \quad (4)$$

In the small-signal limit (when the field is not strong enough to significantly react on the populations through absorption or stimulated emission), this leads to an exponential amplification of the propagating waves.

In contrast, in direct numerical simulations of the system (1)-(3) [5, 9, 10], femtosecond HHG pulses incident on the left boundary of the system (at $y = 0$) are seen to lead to an oscillatory radiation wake with corresponding variations in the population inversion density. This behavior is interpreted as Rabi oscillations, and in this paper we investigate under what physical conditions is such a scenario indeed expected to occur.

To focus on the point under study, reduced equations are obtained from the full system (1)-(3) for the 0-D (completely homogeneous), conservative case (negligible pumping rate, i.e. large inversion recovery time T_1), using the following units: time: ω^{-1} ; ion density: $\hbar\omega/d^2$; electric field and polarization density: $\hbar\omega/d$:

$$\begin{aligned} \frac{dE}{dt} &= 2\pi iP \\ \frac{d(iP)}{dt} &= -\frac{\gamma}{\omega} iP + DE \\ \frac{dD}{dt} &= -\mathbf{Re}(iPE^*) \end{aligned} \quad (5)$$

where $D = \rho_u - \rho_l$. In the large- T_1 limit, the total population $\rho_u + \rho_l$ remains constant, and the quantity

$$\frac{|E|^2}{4\pi} + \rho_u - \rho_l$$

is conserved, which states that energy is exchanged between the excited ions and the amplified wave.

System (5) is numerically solved from the initial condition: $D = D_0 > 0$, $E = 0$, small seeding P . The behavior found can be understood from a linear stability analysis

in the vicinity of the fixed point $D = D_0$, $E = P = 0$. Assuming an exponential time dependency for small perturbations: $E, iP \propto e^{\Omega t}$, leads to the dispersion relation:

$$G^2 + \frac{2\gamma}{c}G - \frac{2\gamma}{c}G_{ad} = 0$$

where $G = 2\omega\Omega/c$ is the small-signal gain and G_{ad} is given by Eq. (4), with the following amplifying solution:

$$G = 2G_{ad}^* \left(\sqrt{1 + \frac{G_{ad}}{G_{ad}^*}} - 1 \right) \quad (6)$$

where $G_{ad}^* = \gamma/2c$. Two different asymptotic values of the gain G are found on either side of the following inversion density (or adiabatic gain) threshold

$$\frac{G_{ad}}{G_{ad}^*} = 8\pi \frac{\omega^2}{\gamma^2} \frac{d^2}{\hbar\omega} (\rho_u - \rho_l) = 1 \quad (7)$$

For a weak inversion density $G_{ad} \ll G_{ad}^*$, one recovers the adiabatic small-signal gain $G \sim G_{ad}$. In the opposite limit of strong inversion, we get the dynamic growth rate: $G \sim G_{dy} = 2\sqrt{G_{ad}G_{ad}^*}$. The above criterion amounts to a comparison of the rate of amplification with the dipole dephasing rate γ , a mere rephrasing of the adiabaticity condition. It is also worth noticing that, in contrast with the adiabatic gain G_{ad} , the dynamic small-signal gain G_{dy} does not depend on the dipole dephasing time T_2 .

Let us point out that, although G from Eq. (6) is an increasing function of G_{ad} (or of the inversion density), it is always (particularly in the strong inversion regime) smaller than the adiabatic small-signal gain value G_{ad} from Eq. (4). This is due to the fact that, when the adiabatic assumption ceases to be valid, the polarization density starts lagging behind the electric field, leading to slower amplification (although still faster than γ). One would then overestimate the amplification by using the classical (weak inversion) gain value without caution in the dynamic regime, as will be shown below with existing XUV lasers. Actually, from a measured value of the gain G , one can, for comparison with available calculations from the inversion density, get back to the equivalent adiabatic gain by inverting formula (6):

$$G_{ad} = G \left(1 + \frac{G}{4G_{ad}^*} \right) \quad (8)$$

consistently finding G_{ad} larger than the measured G (and all the more so in the dynamic regime).

The temporal evolution found numerically for the involved quantities in those two regimes is displayed in Fig. 1. In the strong inversion regime, the system undergoes some Rabi oscillations before reaching the asymptotically stationary solution where the inversion density and the polarization density both vanish, leaving the initial pumping energy in the form of wave energy:

$$\frac{|E_0|^2}{4\pi} = D_0.$$

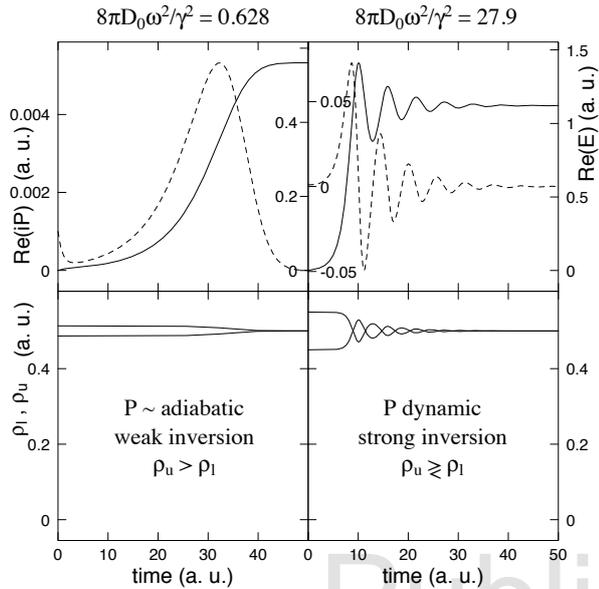


Fig. 1. Amplification of a small seed in an initially inverted medium, in the case of a weak (left) or strong (right) inversion density. Top: complex amplitudes of the polarization density P (dashed curves, scales on the left) and electric field E (solid curves, scales on the right). Bottom: populations of the laser transition states.

A linear analysis of the system for small perturbations about that asymptotic state shows that, in the strong-inversion limit, the behavior displayed in Fig. 1 is indeed an oscillation at the Rabi frequency dE_0/\hbar , damped with a rate equal to γ . This also amounts to a comparison between the dipole-dephasing rate γ and the asymptotic Rabi frequency dE_0/\hbar (with E_0 here expressed in dimensional units), which is essentially the criterion derived by Siegman ([14], chapter 5). However, his analysis applies to the case of a constant large-amplitude signal impinging onto an absorbing medium, whereas in the present case we consider the field that is reached if all the available energy stored in the inverted medium is transferred to the amplified waves. Note that our criterion is actually a threshold on inversion density, applying even well before the wave has reached amplitudes large enough for Rabi oscillations to come into play. As a consequence, even the initial linear, small-signal amplification stage will proceed differently depending on whether the inversion threshold is reached or not, as discussed above.

The criterion just derived has been computed for the main XUV laser schemes currently under study in various laboratories worldwide. As mentioned in the introduction, they rely on different pumping techniques, leading to significantly different conditions in the lasing region and gain values achieved. Relevant parameters for each case, as drawn from the literature [2, 10, 12, 15–18], the calculated threshold gain G_{ad}^* and the equivalent adiabatic gain G_{ad} recovered from the measured value G are gathered in Table 1. The G gain values shown are derived

from experimental measurements of the exponential increase of the XUV laser intensity with the plasma amplifier length. The T_2 values, related to the homogeneous spectral width of the lasing line, are derived from numerical simulations and relevant atomic data. Because the homogenous component of the XUV laser spectral linewidth is always blended with a non-negligible contribution of inhomogeneous broadening, it cannot be measured directly. However recent experiments carried out by some of us (LM, AK) and collaborators have shown that the measured amplified linewidths were consistent with the homogeneous component predicted by the calculations [6, 16, 17, 19].

By comparing the calculated threshold gain G_{ad}^* with the typical gain achieved for each XUV laser system, it can be seen that for the two quasi-steady state (QSS) pumped systems, the measured gains are around (QSS-discharge) or even below (QSS-laser) the calculated threshold. For these two XUV lasers, seeding with a femtosecond HHG pulse is thus not expected to lead to Rabi oscillations. This is in strong contrast with the first two systems (OFI and TCE, see Table caption), which have gains significantly above the dynamic regime threshold. Seeding with HHG was actually demonstrated for these two systems [3, 4, 10], but no evidence of Rabi oscillations was reported until now. Finally the measured gain G is much smaller than the corresponding small-signal adiabatic gain $G_{ad}(G)$. The latter quantity should thus be used instead of G for comparison with existing simulations based on Eq. (4), which don't take into account the small-signal gain modification that occurs for strong inversion, as discussed in this paper.

XRL	T_2	G	G_{ad}^*	$G_{ad}(G)$
OFI	2 [10]/7.2 [19]	60 [19]	8.3/2.3	168/451
TCE	1.3 [12, 17]	60 [15]	12.8	130
QSS-d	18 [16]	1.2 [2]	0.9	1.6
QSS-l	0.9 [17]	7 [18]	18.5	7.7

Table 1. Relevant parameters for various existing XUV laser systems, pumped with different techniques: OFI: optical-field ionization (Ni-like Kr, 32.8 nm) [10]; TCE: transient collisional excitation (Ni-like Mo, 18.9 nm) [15]; QSS: quasi-steady state pumping in plasmas produced by electrical discharge (QSS-d, Ne-like Ar, 46.9 nm) [2], and by high-power laser (QSS-l, Ne-like Zn, 21.2 nm) [18]. For each system, T_2 (ps) is the atomic relaxation time defined in the text; G (cm^{-1}) is the small-signal gain typically achieved; G_{ad}^* (cm^{-1}) is the minimum small-signal adiabatic gain value required for Rabi oscillations to come into play, as calculated from Eq. (7), and $G_{ad}(G)$ is the corresponding adiabatic gain from Eq. (8).

References

1. A. Klisnick, “Plasma-based XUV lasers”, in “Short-Wavelength Imaging and Spectroscopy Sources”, Proc. of SPIE Vol. 8678, 867803 (2012), and references therein.

2. J. J. Rocca, D. P. Clark, J. L. A. Chilla and V. N. Shlyaptsev, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1476 (1996).
3. Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, P. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A. S. Morlens, J. P. Rousseau and C. Valentin, *Nature* **431**, 426 (2004).
4. Y. Wang, E. Granados, M. A. Larotonda, M. Berrill, B. M. Luther, D. Patel, C. S. Menoni and J. J. Rocca, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 123901 (2006).
5. E. Oliva, P. Zeitoun, M. Fajardo, G. Lambert, D. Ros, S. Sebban and P. Velarde, *Phys. Rev. A* **84**, 013811 (2011).
6. L. M. Meng, D. Alessi, O. Guilbaud, Y. Wang, M. Berrill, B.M. Luther, S. R. Domingue, D. H. Martz, D. Joyeux, S. De Rossi, J. J. Rocca and A. Klisnick, *Opt. Express* **19**, 12087 (2011).
7. O. Larroche, D. Ros, A. Klisnick, A. Sureau, C. Möller and H. Guennou, *Phys. Rev. A* **62**, 043815 (2000).
8. I. R. Al'miev, O. Larroche, D. Benredjem, J. Dubau, S. Kazamias, C. Möller and A. Klisnick, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 123902 (2007).
9. C. M. Kim, K. A. Janulewicz, H. T. Kim and J. Lee, *Phys. Rev. A* **80**, 053811 (2009).
10. F. Tissandier, S. Sebban, J. Gautier, Ph. Zeitoun, E. Oliva, A. Rouse and G. Maynard, *Appl. Phys. Lett.* **101**, 251112 (2012).
11. J. A. Koch, B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. L. Matthews, J. H. Underwood, P. J. Batson, R. W. Lee, R. A. London and S. Mrowka, *Phys. Rev. A* **50**, 1877 (1994).
12. A. Calisti, S. Ferri, C. Mossé, B. Talin, A. Klisnick, L. Meng, D. Benredjem and O. Guilbaud, accepted for publication in *High Energy Density Physics* (2013).
13. A. Yariv, *Quantum electronics*, 3rd edition, Wiley, New York (1989).
14. A. E. Siegman, *Lasers*, University Science Books, Mill Valley (1986).
15. B. M. Luther, Y. Wang, M. A. Larotonda, D. Alessi, M. Berrill, M. C. Marconi, J. J. Rocca and V. N. Shlyaptsev, *Opt. Lett.* **30**, 165 (2005).
16. L. Urbanski, M. C. Marconi, L. M. Meng, M. Berrill, O. Guilbaud, A. Klisnick and J. J. Rocca, *Phys. Rev. A* **85**, 033837 (2012).
17. L. M. Meng, A. Klisnick, M. Kozlová, K. Bohacek, M. Krus, J. Prokupek, L. Urbanski, M. C. Marconi, M. Berrill, J. J. Rocca, O. Guilbaud, F. Tissandier, S. Sebban, P. Zeitoun, A. Calisti, S. Ferri, C. Mossé and B. Talin, *Proc. of 13th ICXRL*, in press (2013).
18. B. Rus, T. Mocek, A. R. Präg, M. Kozlová, G. Jamelot, A. Carillon, D. Ros, D. Joyeux and D. Phalippou, *Phys. Rev. A* **66**, 063806 (2002).
19. F. Tissandier, S. Sebban, M. Ribière, J. Gautier, Ph. Zeitoun, G. Lambert, A. Barszczak Sardinha, J.-Ph. Goddet, F. Burgy, T. Lefrou, C. Valentin, A. Rouse, O. Guilbaud, A. Klisnick, J. Nejd, T. Mocek and G. Maynard, *Phys. Rev. A* **81**, 063833 (2010).

References

1. A. Klisnick, "Plasma-based XUV lasers", in "Short-Wavelength Imaging and Spectroscopy Sources", Proc. of SPIE Vol. 8678, 867803 (2012), and references therein.
2. J. J. Rocca, D. P. Clark, J. L. A. Chilla and V. N. Shlyaptsev, "Energy extraction and achievement of the saturation limit in a discharge-pumped table-top soft x-ray amplifier", Phys. Rev. Lett. **77**, 1476 (1996).
3. Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, P. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A. S. Morlens, J. P. Rousseau and C. Valentin, "A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam", Nature **431**, 426 (2004).
4. Y. Wang, E. Granados, M. A. Larotonda, M. Berrill, B. M. Luther, D. Patel, C. S. Menoni and J. J. Rocca, "High brightness injection-seeded soft x-ray laser amplifier using a solid target", Phys. Rev. Lett. **97**, 123901 (2006).
5. E. Oliva, P. Zeitoun, M. Fajardo, G. Lambert, D. Ros, S. Sebban and P. Velarde, "Comparison of natural and forced amplification regimes in plasma-based soft-x-ray lasers seeded by high-order harmonics", Phys. Rev. A **84**, 013811 (2011).
6. L. M. Meng, D. Alessi, O. Guilbaud, Y. Wang, M. Berrill, B.M. Luther, S. R. Domingue, D. H. Martz, D. Joyeux, S. De Rossi, J. J. Rocca and A. Klisnick, "Temporal coherence and spectral linewidth of an injection-seeded transient collisional soft x-ray laser", Opt. Express **19**, 12087 (2011).
7. O. Larroche, D. Ros, A. Klisnick, A. Sureau, C. Möller and H. Guennou, "Maxwell-Bloch modeling of x-ray-laser-signal build-up in single and double-pass configurations", Phys. Rev. A **62**, 043815 (2000).
8. I. R. Al'miev, O. Larroche, D. Benredjem, J. Dubau, S. Kazamias, C. Möller and A. Klisnick, "Dynamical description of transient X-ray lasers seeded with high-order harmonics radiation through Maxwell-Bloch numerical simulations", Phys. Rev. Lett. **99**, 123902 (2007).
9. C. M. Kim, K. A. Janulewicz, H. T. Kim and J. Lee, "Amplification of a high-order harmonic pulse in an active medium of a plasma-based x-ray laser", Phys. Rev. A **80**, 053811 (2009).
10. F. Tissandier, S. Sebban, J. Gautier, Ph. Zeitoun, E. Oliva, A. Rouse and G. Maynard, "Three-dimensional Maxwell-Bloch calculation of the temporal profile of a seeded soft x-ray laser pulse", Appl. Phys. Lett. **101**, 251112 (2012).
11. J. A. Koch, B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. L. Matthews, J. H. Underwood, P. J. Batson, R. W. Lee, R. A. London and S. Mrowka, "Experimental and theoretical investigation of neonlike selenium x-ray laser spectral linewidths and their variation with amplification", Phys. Rev. A **50**, 1877 (1994).
12. A. Calisti, S. Ferri, C. Mossé, B. Talin, A. Klisnick, L. Meng, D. Benredjem and O. Guilbaud, "Line profiles of Ni-like collisional XUV laser amplifiers: particle correlation effects", accepted for publication in High Energy Density Physics (2013).
13. A. Yariv, *Quantum electronics*, 3rd edition, Wiley, New York (1989).
14. A. E. Siegman, *Lasers*, University Science Books, Mill Valley (1986).
15. B. M. Luther, Y. Wang, M. A. Larotonda, D. Alessi, M. Berrill, M. C. Marconi, J. J. Rocca and V. N. Shlyaptsev, "Saturated high-repetition-rate 18.9-nm tabletop laser in nickellike molybdenum", Opt. Lett. **30**, 165 (2005).
16. L. Urbanski, M. C. Marconi, L. M. Meng, M. Berrill, O. Guilbaud, A. Klisnick and J. J. Rocca, "Spectral linewidth of a Ne-like Ar capillary discharge soft x-ray laser and its dependence on amplification beyond gain-saturation", Phys. Rev. A **85**, 033837 (2012).
17. L. M. Meng, A. Klisnick, M. Kozlova, K. Bohacek, M. Krus, J. Prokupek, L. Urbanski, M. C. Marconi, M. Berrill, J. J. Rocca, O. Guilbaud, F. Tissandier, S. Sebban, P. Zeitoun, A. Calisti, S. Ferri, C. Mossé and B. Talin, "Temporal coherence and spectral linewidth of neon-like XUV lasers pumped in the quasi-steady state regime", in *Proceedings of the 13th International Conference on X-Ray Lasers, Paris, June 11-15 2012*, in press (2013).
18. B. Rus, T. Mocek, A. R. Präg, M. Kozlová, G. Jamelot, A. Carillon, D. Ros, D. Joyeux and D. Phalippou, "Multimillijoule, highly coherent x-ray laser at 21 nm operating in deep saturation through double-pass amplification", Phys. Rev. A **66**, 063806 (2002).
19. F. Tissandier, S. Sebban, M. Ribière, J. Gautier, Ph. Zeitoun, G. Lambert, A. Barszczak Sardinha, J.-Ph. Goddet, F. Burgy, T. Lefrou, C. Valentin, A. Rouse, O. Guilbaud, A. Klisnick, J. Nejd, T. Mocek and G. Maynard, "Observation of spectral gain narrowing in a high-order harmonic seeded soft-x-ray amplifier", Phys. Rev. A **81**, 063833 (2010).

Bibliographie

- [Afanas' ev 1989] Yurii Valentinovich Afanas' ev et Vyacheslav Nikolaevich Shlyaptsev. *Formation of a population inversion of transitions in Ne-like ions in steady-state and transient plasmas*. Quantum Electronics, vol. 19, no. 12, pages 1606–1612, 1989. 26
- [Alessi 2011] David Alessi, Yong Wang, BM Luther, Liang Yin, DH Martz, MR Woolston, Yanwei Liu, M Berrill et JJ Rocca. *Efficient excitation of gain-saturated sub-9-nm-wavelength tabletop soft-X-ray lasers and lasing down to 7.36 nm*. Physical Review X, vol. 1, no. 2, page 021023, 2011. 27
- [Allaria 2010] Enrico Allaria, Carlo Callegari, Daniele Cocco, William M Fawley, Maya Kiskinova, Claudio Masciovecchio et Fulvio Parmigiani. *The FERMI@ Elettra free-electron-laser source for coherent x-ray physics : photon properties, beam transport system and applications*. New Journal of Physics, vol. 12, no. 7, page 075002, 2010. 22
- [Al'miev 2007] IR Al'miev, O Larroche, D Benredjem, J Dubau, Sophie Kazamias, C Möller et Annie Klisnick. *Dynamical description of transient X-ray lasers seeded with high-order harmonic radiation through Maxwell-Bloch numerical simulations*. Physical review letters, vol. 99, no. 12, page 123902, 2007. 49, 125
- [Bonifacio 1984] R. Bonifacio, C. Pellegrini et L.M. Narducci. *Collective instabilities and high-gain regime in a free electron laser*. Optics Communications, vol. 50, no. 6, pages 373–378, 1984. 21
- [Born 2000] Max Born et Emil Wolf. Principles of optics : electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light. CUP Archive, 2000. 36, 38, 44
- [Calisti 1990] A Calisti, F Khelifaoui, R Stamm, B Talin et R W Lee. *Model for the line shapes of complex ions in hot and dense plasmas*. Physical Review A, vol. 42, no. 9, page 5433, 1990. 49, 61
- [Calisti 2013] Annette Calisti, Sandrine Ferri, Caroline Mossé, Bernard Talin, Annie Klisnick, Limin Meng, Djamel Benredjem et Olivier Guilbaud. *Line profiles of Ni-like collisional XUV laser amplifiers : particle correlation effects*. High Energy Density Physics, vol. 9, no. 3, pages 516–522, 2013. 65, 123
- [Casperson 1975] Lee W Casperson. *Output properties of short-pulse gain-switched lasers*. Applied optics, vol. 14, no. 2, pages 299–305, 1975. 30
- [Cassou 2007] Kevin Cassou, Sophie Kazamias, D Ros, Fabien Ple, Gérard Jamelot, Annie Klisnick, Olle Lundh, Filip Lindau, Anders Persson, C-G Wahlströmet *al.* *Optimization toward a high-average-brightness soft-x-ray laser pumped at grazing incidence*. Optics letters, vol. 32, no. 2, pages 139–141, 2007. 27
- [Celliers 1995] P Celliers, F Weber, LB Da Silva, TW Barbee, R Cauble, AS Wan et JC Moreno. *Fringe formation and coherence of a soft-x-ray laser beam illuminating a Mach-Zehnder interferometer*. Optics letters, vol. 20, no. 18, pages 1907–1909, 1995. 65
- [Chilla 1996] Juan LA Chilla, Oscar E Martinez, Mario C Marconi et Jorge J Rocca. *Soft-x-ray interferometer for single-shot laser linewidth measurements*. Optics letters, vol. 21, no. 13, pages 955–957, 1996. 110
- [De Oliveira 2009] Nelson De Oliveira, Denis Joyeux, Daniel Phalippou, Jean-Claude Rodier, François Polack, Michel Vervloet et Laurent Nahon. *A Fourier transform spectrometer without a beam splitter for the vacuum ultraviolet range : From the optical design to the first UV spectrum*. Review of Scientific Instruments, vol. 80, no. 4, page 043101, 2009. 42

- [Depresseux 2015] A Depresseux, E Oliva, J Gautier, F Tissandier, J Nejdil, M Kozlova, G Maynard, JP Goddet, A Tafzi, A Lifschitz *et al.* *Table-top femtosecond soft X-ray laser by collisional ionization gating.* *Nature Photonics*, 2015. **17**, **28**, **67**
- [Duguay 1967] MA Duguay et PM Rentzepis. *SOME APPROACHES TO VACUUM UV AND X-RAY LASERS.* *Applied Physics Letters*, vol. 10, no. 12, pages 350–352, 1967. **23**
- [Filevich 2009] Jorge Filevich, Michael Purvis, Jonathan Grava, Duncan P Ryan, James Dunn, Stephen J Moon, Vyacheslav N Shlyaptsev et Jorge J Rocca. *Bow shocks formed by plasma collisions in laser irradiated semi-cylindrical cavities.* *High Energy Density Physics*, vol. 5, no. 4, pages 276–282, 2009. **26**
- [FLASH] <http://flash.desy.de> FLASH. **21**
- [Griem 1975] Hans R Griem et William L Barr. *Spectral line broadening by plasmas.* *IEEE Transactions on Plasma Science*, vol. 3, no. 4, pages 227–227, 1975. **32**
- [Gudzenko 1965] LI Gudzenko et LA Shelepin. *Radiation enhancement in a recombining plasma.* In *Soviet Physics Doklady*, volume 10, page 147, 1965. **15**, **23**
- [Guilbaud 2004] Olivier Guilbaud. *etude et applications des propriétés de cohérence des lasers X-UV à pompage transitoire.* PhD thesis, Université Paris-Sud, 2004. **48**
- [Guilbaud 2006a] O Guilbaud, A Klisnick, K Cassou, S Kazamias, D Ros, G Jamelot, D Joyeux et Daniel Phalippou. *Origin of microstructures in picosecond X-ray laser beams.* *EPL (Europhysics Letters)*, vol. 74, no. 5, page 823, 2006. **37**, **44**
- [Guilbaud 2006b] O Guilbaud, A Klisnick, D Joyeux, D Benredjem, K Cassou, Sophie Kazamias, D Ros, D Phalippou, G Jamelot et C Möller. *Longitudinal coherence and spectral profile of a nickel-like silver transient soft X-ray laser.* *The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, vol. 40, no. 1, pages 125–132, 2006. **53**, **70**, **71**, **91**, **92**, **94**
- [Guilbaud 2010] O. Guilbaud, F. Tissandier, J-P. Goddet, M. Ribière, S. Sebban, J. Gautier, D. Joyeux, D. Ros, K. Cassou, S. Kazamias, A. Klisnick, J. Habib, P. Zeitoun, D. Benredjem, T. Mocek, J. Nedjl, S. de Rossi, G. Maynard, B. Cros, A. Boudaa et A. Calisti. *Fourier-limited seeded soft x-ray laser pulse.* *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 9, pages 1326–1328, May 2010. **40**, **53**, **71**, **92**, **94**
- [Guilbaud 2015] O. Guilbaud, G. V. Cojocar, L. Li, O. Delmas, R. G. Ungureanu, R. A. Banici, S. Kazamias, K. Cassou, O. Neveu, J. Demailly, E. Baynard, M. Pittman, A. Le Marec, A. Klisnick, Ph. Zeitoun, D. Ursescu et D. Ros. *Gain dynamics in quickly ionized plasma for seeded operated soft x-ray lasers.* *Opt. Lett.*, vol. 40, no. 20, pages 4775–4778, Oct 2015. **113**
- [Holden 1995] PB Holden, M Nantel, B Rus et A Sureau. *The overlapping lasing lines in the collisional yttrium laser.* *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 28, no. 7, page 1369, 1995. **65**
- [Jaegle 1971] P Jaegle, A Carillon, P Dhez, G Jamelot, A Sureau et M Cukier. *Experimental evidence for the possible existence of a stimulated emission in the extreme UV range.* *Physics Letters A*, vol. 36, no. 3, pages 167–168, 1971. **15**
- [Keenan 2005] R Keenan, J Dunn, PK Patel, DF Price, RF Smith et VN Shlyaptsev. *High-repetition-rate grazing-incidence pumped X-ray laser operating at 18.9 nm.* *Physical review letters*, vol. 94, no. 10, page 103901, 2005. **27**
- [Kim 2009] Chul Min Kim, Karol A Janulewicz, Hyung Taek Kim et Jongmin Lee. *Amplification of a high-order harmonic pulse in an active medium of a plasma-based x-ray laser.* *Physical Review A*, vol. 80, no. 5, page 053811, 2009. **115**

- [Klisnick 2000] A Klisnick, Ph Zeitoun, D Ros, A Carillon, P Fourcade, S Hubert, G Jamelot, CLS Lewis, AG Mac Phee, RMN O'Rourke *et al.* *Transient pumping of a Ni-like Ag x-ray laser with a subpicosecond pump pulse in a traveling-wave irradiation geometry.* JOSA B, vol. 17, no. 6, pages 1093–1097, 2000. 27
- [Klisnick 2006] Annie Klisnick, Olivier Guilbaud, David Ros, Kevin Cassou, Sophie Kazamias, Gérard Jamelot, J-C Lagron, Denis Joyeux, Daniel Phalippou, Y Lechantreet *et al.* *Experimental study of the temporal coherence and spectral profile of the 13.9 nm transient X-ray laser.* Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, vol. 99, no. 1, pages 370–380, 2006. 41
- [Klisnick 2016] A Klisnick, A Le Marec, L Meng, O Larroche, O Guilbaud, M Kozlova, J Nejdil *et al.* *Spectral properties of collisional XUV lasers for the amplification of femtosecond pulses.* In X-Ray Lasers 2014, pages 45–52. Springer, 2016. 69
- [Koch 1992] J. A. Koch, B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. L. Matthews, J. H. Underwood, P. J. Batson *et al.* *Observation of gain-narrowing and saturation behavior in Se x-ray laser line profiles.* Phys. Rev. Lett., vol. 68, pages 3291–3294, Jun 1992. 41
- [Koch 1994] Jeffrey A. Koch, Brian J. MacGowan, Luiz B. Da Silva, Dennis L. Matthews, James H. Underwood, Philip J. Batson, Richard W. Lee, Richard A. London *et al.* *Stan Mrowka. Experimental and theoretical investigation of neonlike selenium x-ray laser spectral linewidths and their variation with amplification.* Phys. Rev. A, vol. 50, pages 1877–1898, Aug 1994. 33, 41, 42, 48, 61, 65, 66, 69
- [Kondratenko 1980] A.M. Kondratenko *et al.* *E.L. Saldin. Generation of coherent radiation by a relativistic electron beam in an undulator.* Particle accelerators Print, vol. 10, no. 3-4, pages 207–216, 1980. 21
- [Kuznetsov 2015] Ilya Kuznetsov, Jorge Filevich, Feng Dong, Mark Woolston, Weilun Chao, Erik H Anderson, Elliot R Bernstein, Dean C Crick, Jorge J Rocca *et al.* *Carmen S Menoni. Three-dimensional nanoscale molecular imaging by extreme ultraviolet laser ablation mass spectrometry.* Nature communications, vol. 6, 2015. 26
- [Larroche 2000] O Larroche, D Ros, A Klisnick, A Sureau, C Möller *et al.* *H Guennou. Maxwell-bloch modeling of x-ray-laser-signal buildup in single-and double-pass configurations.* Physical Review A, vol. 62, no. 4, page 043815, 2000. 49
- [Larroche 2013a] O Larroche *et al.* *A Klisnick. Two-dimensional Maxwell-Bloch simulation of quasi- π -pulse amplification in a seeded XUV laser.* Physical Review A, vol. 88, no. 3, page 033815, 2013. 96
- [Larroche 2013b] Olivier Larroche, Limin Meng, Andréa Le Marec *et al.* *Annie Klisnick. Inversion density threshold for Rabi oscillations and modified small-signal gain in extreme-ultraviolet lasers.* Optics letters, vol. 38, no. 14, pages 2505–2508, 2013. 115, 135
- [LCLS] <http://www-ssrl.slac.stanford.edu/lcls> LCLS. 21
- [Le Marec 2015] Andréa Le Marec, Limin Meng, Annie Klisnick, Michaela Kozlova, Jaroslav Nejdil, Fabien Tissandier, Olivier Guilbaud *et al.* *Annette Calisti. Measurement of a subpicosecond coherence time in a quasi-steady-state XUV laser.* Phys. Rev. A, vol. 92, page 033852, Sep 2015. 66, 72, 91, 94, 136
- [Le Marec 2016] Andréa Le Marec, Olivier Guilbaud, Olivier Larroche *et al.* *Annie Klisnick. Evidence of partial temporal coherence effects in the linear autocorrelation of extreme ultraviolet laser pulses.* Optics Letters, vol. 41, no. 14, pages 3387–3390, 2016. 136
- [Lemoff 1995] BE Lemoff, GY Yin, CL Gordon Iii, CPJ Barty *et al.* *SE Harris. Demonstration of a 10-Hz femtosecond-pulse-driven XUV laser at 41.8 nm in Xe IX.* Physical review letters, vol. 74, no. 9, page 1574, 1995. 28

- [Lewenstein 1994] M Lewenstein, Ph Balcou, M Yu Ivanov, Anne L’huillier et Paul B Corkum. *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*. Physical Review A, vol. 49, no. 3, page 2117, 1994. 20
- [Lindau 2007] Filip Lindau, Olle Lundh, Anders Persson, Kevin Cassou, Sophie Kazamias, David Ros, Fabien Ple, Gérard Jamelot, Annie Klisnick, Sébastien De Rossiet *al.* *Quantitative study of 10 Hz operation of a soft x-ray laser—energy stability and target considerations*. Optics express, vol. 15, no. 15, pages 9486–9493, 2007. 27
- [Linford 1974] Gary J Linford, Eugene R Peressini, Walter R Sooy et Mary L Spaeth. *Very long lasers*. Applied optics, vol. 13, no. 2, pages 379–390, 1974. 31, 60
- [Luther 2005] BM Luther, Y Wang, MA Larotonda, D Alessi, M Berrill, MC Marconi, JJ Rocca et VN Shlyaptsev. *Saturated high-repetition-rate 18.9-nm tabletop laser in nickellike molybdenum*. Optics letters, vol. 30, no. 2, pages 165–167, 2005. 123
- [MacGowan 1992] BJ MacGowan, LB Da Silva, DJ Fields, CJ Keane, JA Koch, RA London, Dennis L Matthews, S Maxon, S Mrowka, AL Osterheld *et al.* *Short wavelength x-ray laser research at the Lawrence Livermore National Laboratory*. Physics of Fluids B : Plasma Physics (1989-1993), vol. 4, no. 7, pages 2326–2337, 1992. 26
- [Mandel 1995] Leonard Mandel et Emil Wolf. *Optical coherence and quantum optics*. Cambridge university press, 1995. 34, 36
- [Matthews 1985] D. L. Matthews, P. L. Hagelstein, M. D. Rosen, M. J. Eckart, N. M. Ceglio, A. U. Hazi, H. Medeck, B. J. MacGowan, J. E. Trebes, B. L. Whitten, E. M. Campbell, C. W. Hatcher, A. M. Hawryluk, R. L. Kauffman, L. D. Pleasance, G. Rambach, J. H. Scofield, G. Stone et T. A. Weaver. *Demonstration of a Soft X-Ray Amplifier*. Phys. Rev. Lett., vol. 54, pages 110–113, Jan 1985. 15, 24, 26
- [Meng 2011] L. M. Meng, D. Alessi, O. Guilbaud, Y. Wang, M. Berrill, B.M. Luther, S. R. Domingue, D. H. Martz, D. Joyeux, S. De Rossi, J. J. Rocca et A. Klisnick. *Temporal coherence and spectral linewidth of an injection-seeded transient collisional soft x-ray laser*. Opt. Express, vol. 19, no. 13, pages 12087–12092, Jun 2011. 40, 53, 70, 71, 91, 94
- [Meng 2012a] L Meng, A-C Bourgaux, S Bastiani-Ceccotti, O Guilbaud, M Pittman, S Kazamias, K Cassou, S Daboussi, D Ros et A Klisnick. *Temporal characterization of a picosecond extreme ultraviolet laser pumped in grazing incidence*. Applied Physics Letters, vol. 101, no. 14, page 141125, 2012. 27, 94, 114, 123
- [Meng 2012b] Limin Meng. *Experimental study and numerical simulations of the spectral properties of XUV lasers pumped by collisional excitation*. PhD thesis, Université Paris Sud-Paris XI, 2012. 53, 66, 69, 123
- [Meng 2014] Limin Meng, A Klisnick, M Kozlova, K Bohacek, M Krus, J Prokupek, L Urbanski, MC Marconi, M Berrill, JJ Rocca *et al.* *Temporal coherence and spectral linewidth of neon-like XUV lasers pumped in the quasi-steady state regime*. In X-Ray Lasers 2012, pages 175–180. Springer, 2014. 53
- [Milonni 1988] PW Milonni et JH Eberly. *Lasers*. New York, 1988. 32
- [Mitzner 2008] R. Mitzner, B. Siemer, M. Neeb, T. Noll, F. Siewert, S. Roling, M. Rutkowski, A.A. Sorokin, M. Richter, P. Juranic, K. Tiedtke, J. Feldhaus, W. Eberhardt et H. Zacharias. *Spatio-temporal coherence of free electron laser pulses in the soft x-ray regime*. Opt. Express, vol. 16, no. 24, pages 19909–19919, Nov 2008. 72, 73, 93, 95
- [Nickles 1997] Peter V Nickles, VN Shlyaptsev, M Kalachnikov, M Schnürer, I Will et W Sandner. *Short pulse X-ray laser at 32.6 nm based on transient gain in Ne-like titanium*. Physical review letters, vol. 78, no. 14, page 2748, 1997. 26

- [Oliva 2011] Eduardo Oliva, Philippe Zeitoun, Marta Fajardo, Guillaume Lambert, David Ros, Stephane Sebban et Pedro Velarde. *Comparison of natural and forced amplification regimes in plasma-based soft-x-ray lasers seeded by high-order harmonics*. Physical Review A, vol. 84, no. 1, page 013811, 2011. 115, 122
- [Paul 2001] P. M. Paul, ES Toma, P. Breger, Genevive Mullet, F. Augé, Ph. Balcou, HG Muller et P. Agostini. *Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation*. Science, vol. 292, no. 5522, pages 1689–1692, 2001. 21
- [Pert 1983] GJ Pert. *The hybrid model and its application for studying free expansion*. Journal of Fluid Mechanics, vol. 131, pages 401–426, 1983. 51
- [Pfeifer 2010] Thomas Pfeifer, Yuhai Jiang, Stefan Düsterer, Robert Moshhammer et Joachim Ullrich. *Partial-coherence method to model experimental free-electron laser pulse statistics*. Optics letters, vol. 35, no. 20, pages 3441–3443, 2010. 74, 114
- [Polack 1995] F. Polack, D. Joyeux, J. Svatoš et D. Phalippou. *Applications of wavefront division interferometers in soft x rays*. Review of scientific instruments, vol. 66, no. 2, pages 2180–2183, 1995. 42
- [Reagan 2014] Brendan A. Reagan, Mark Berrill, Keith A. Wernsing, Cory Baumgarten, Mark Woolston et Jorge J. Rocca. *High-average-power, 100-Hz-repetition-rate, tabletop soft-x-ray lasers at sub-15-nm wavelengths*. Physical Review A, vol. 89, no. 5, page 053820, 2014. 28
- [Rocca 1996] JJ Rocca, DP Clark, JLA Chilla et VN Shlyaptsev. *Energy extraction and achievement of the saturation limit in a discharge-pumped table-top soft x-ray amplifier*. Physical review letters, vol. 77, no. 8, page 1476, 1996. 123
- [Rohringer 2012] Nina Rohringer, Duncan Ryan, Richard A. London, Michael Purvis, Felicie Albert, James Dunn, John D. Bozek, Christoph Bostedt, Alexander Graf, Randal Hill et al. *Atomic inner-shell X-ray laser at 1.46 nanometres pumped by an X-ray free-electron laser*. Nature, vol. 481, no. 7382, pages 488–491, 2012. 24
- [Röling 2011] S. Röling, B. Siemer, M. Wöstmann, H. Zacharias, R. Mitzner, A. Singer, K. Tiedtke et I. A. Vartanyants. *Temporal and spatial coherence properties of free-electron-laser pulses in the extreme ultraviolet regime*. Phys. Rev. ST Accel. Beams, vol. 14, page 080701, Aug 2011. 72
- [Rus 1995] Bedrich Rus. *Pompage collisionnel du zinc néonoïde : laser X à 21. 2 NM saturation, polarisation, cohérence des lasers X-UV*. PhD thesis, Université Paris-Sud, 1995. 62
- [Rus 2002] B. Rus, T. Mocek, A. R. Präg, M. Kozlová, G. Jamelot, A. Carillon, D. Ros, D. Joyeux et D. Phalippou. *Multimillijoule, highly coherent x-ray laser at 21 nm operating in deep saturation through double-pass amplification*. Phys. Rev. A, vol. 66, page 063806, Dec 2002. 26, 54, 61, 62, 63, 123
- [SACLA] <http://xfel.riken.jp/eng> SACLA. 21
- [Schlotter 2010] W. F. Schlotter, F. Sorgenfrei, T. Beck, M. Beye, S. Gieschen, H. Meyer, M. Nagasono, A. Föhlich et W. Wurth. *Longitudinal coherence measurements of an extreme-ultraviolet free-electron laser*. Opt. Lett., vol. 35, no. 3, pages 372–374, Feb 2010. 72
- [Sebban 2001] Stéphane Sebban, Romain Haroutunian, Ph. Balcou, G. Grillon, Antoine Rousse, Sophie Kazamias, T. Marin, Jean-Philippe Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman et al. *Saturated amplification of a collisionally pumped optical-field-ionization soft X-ray laser at 41.8 nm*. Physical review letters, vol. 86, no. 14, page 3004, 2001. 28
- [Sebban 2002] Stéphane Sebban, Tomas Mocek, D. Ros, L. Upcraft, Ph. Balcou, R. Haroutunian, G. Grillon, Bedrich Rus, Annie Klisnick, A. Carillon et al. *Demonstration of a Ni-like Kr*

- optical-field-ionization collisional soft X-ray laser at 32.8 nm*. Physical review letters, vol. 89, no. 25, page 253901, 2002. 28
- [Singer 2012] A. Singer, F. Sorgenfrei, A. P. Mancuso, N. Gerasimova, O. M. Yefanov, J. Gulden, T. Gorniak, T. Senkbeil, A. Sakdinawat, Y. Liu, D. Attwood, S. Dziarzhytski, D. D. Mai, R. Treusch, E. Weckert, T. Salditt, A. Rosenhahn, W. Wurth et I. A. Vartanyants. *Spatial and temporal coherence properties of single free-electron laser pulses*. Opt. Express, vol. 20, no. 16, pages 17480–17495, Jul 2012. 72, 73
- [Smith 2003] Raymond F Smith, James Dunn, James R Hunter, Joseph Nilsen, Sebastien Hubert, Sylvie Jacquemot, Christian Remond, Remy Marmoret, Marta Fajardo, Philippe Zeitounet *al*. *Longitudinal coherence measurements of a transient collisional x-ray laser*. Optics letters, vol. 28, no. 22, pages 2261–2263, 2003. 44
- [Strickland 1985] Donna Strickland et Gerard Mourou. *Compression of amplified chirped optical pulses*. Optics communications, vol. 56, no. 3, pages 219–221, 1985. 23
- [Tissandier 2010] Fabien Tissandier, Stéphane Sebban, Maxime Ribière, Julien Gautier, Ph Zeitoun, Guillaume Lambert, A Barszczak Sardinha, J-Ph Goddet, Frédéric Burgy, T Lefrouet *al*. *Observation of spectral gain narrowing in a high-order harmonic seeded soft-x-ray amplifier*. Physical Review A, vol. 81, no. 6, page 063833, 2010. 40, 53, 71, 123
- [Tissandier 2011] Fabien Tissandier. *Caractérisation spatio-temporelle d’une chaîne laser à 32.8 nm par plasma laser et perspectives vers une source ultrabrève et intense*. PhD thesis, Palaiseau, Ecole Polytechnique, 2011. 122
- [Tissandier 2012] F Tissandier, S Sebban, J Gautier, Ph Zeitoun, E Oliva, Antoine Rouse et G Maynard. *Three-dimensional Maxwell-Bloch calculation of the temporal profile of a seeded soft x-ray laser pulse*. Applied Physics Letters, vol. 101, no. 25, page 251112, 2012. 115, 123
- [Tommasini 2000] Riccardo Tommasini et Ernst E Fill. *Generalized linford formula*. JOSA B, vol. 17, no. 10, pages 1665–1670, 2000. 31
- [Urbanski 2012a] L Urbanski, A Isoyan, A Stein, JJ Rocca, CS Menoni et MC Marconi. *Defect-tolerant extreme ultraviolet nanoscale printing*. Optics letters, vol. 37, no. 17, pages 3633–3635, 2012. 26
- [Urbanski 2012b] Lukasz Urbanski, M C Marconi, L M Meng, M Berrill, O Guilbaud, Annie Klisnick et J J Rocca. *Spectral linewidth of a Ne-like Ar capillary discharge soft-x-ray laser and its dependence on amplification beyond gain saturation*. Physical Review A, vol. 85, no. 3, page 033837, 2012. 53, 72, 91, 94, 123
- [Wang 2006] Y Wang, E Granados, MA Larotonda, M Berrill, BM Luther, D Patel, CS Menoni et JJ Rocca. *High-brightness injection-seeded soft-x-ray-laser amplifier using a solid target*. Physical review letters, vol. 97, no. 12, page 123901, 2006. 15, 28, 39
- [Wang 2009] Y. Wang, M. Berrill, F. Pedaci, M. M. Shakya, S. Gilbertson, Zenghu Chang, E. Granados, B. M. Luther, M. A. Larotonda et J. J. Rocca. *Measurement of 1-ps soft-x-ray laser pulses from an injection-seeded plasma amplifier*. Phys. Rev. A, vol. 79, page 023810, Feb 2009. 40
- [Wang 2013] Y Wang, L Yin, S Wang, MC Marconi, J Dunn, E Gullikson et JJ Rocca. *Single-shot soft x-ray laser linewidth measurement using a grating interferometer*. Optics letters, vol. 38, no. 23, pages 5004–5007, 2013. 110, 111, 113
- [Yuan 1995] Gang Yuan, Y Kato, K Murai, H Daido et R Kodama. *Measurement of linewidths of Ne-like germanium soft x-ray laser in slab targets*. Journal of applied physics, vol. 78, no. 6, pages 3610–3616, 1995. 41, 65

- [Yuan 1996] G Yuan, Y Kato, H Daido, R Kodama, K Murai et T Kagawa. *Accurate wavelength determination of the lasing and nonlasing lines in laser-produced germanium plasma*. Physica Scripta, vol. 53, no. 2, page 197, 1996. 41
- [Zeitoun 2004] Ph Zeitoun, Gabriel Faivre, Stéphane Sebban, Tomas Mocek, A Hallou, Marta Fajardo, D Aubert, Ph Balcou, Frédéric Burgy, D Douillet *et al.* *A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam*. Nature, vol. 431, no. 7007, pages 426–429, 2004. 15, 28, 39
- [Zherikhin 1976] Aleksandr Nikolaevich Zherikhin, Konstantin N Koshelev et Vladilen Stepanovich Letokhov. *Gain in the far vacuum ultraviolet region due to transitions in multiply charged ions*. Soviet Journal of Quantum Electronics, vol. 6, no. 1, page 82, 1976. 24