



HAL
open science

CONTRIBUTION À L'ÉTUDE DE LA MATIÈRE SOUS EXCITATION INTENSE

Claude Fourment

► **To cite this version:**

Claude Fourment. CONTRIBUTION À L'ÉTUDE DE LA MATIÈRE SOUS EXCITATION INTENSE. Physique [physics]. UNIVERSITÉ DE BORDEAUX, 2020. tel-02959917

HAL Id: tel-02959917

<https://theses.hal.science/tel-02959917>

Submitted on 7 Oct 2020

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

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

UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

Mémoire de soutenance présenté par

Claude FOURMENT

CEA CESTA

en vue d'obtenir l'

HABILITATION À DIRIGER DES RECHERCHES

CONTRIBUTION À L'ÉTUDE DE LA MATIÈRE SOUS EXCITATION INTENSE

Soutenu le 23/09/2020 devant la commission d'examen composée de :

Lamri ADOUI	<i>Professeur, Université de Caen-Normandie</i>	Examineur
Laurent BERTHE	<i>Directeur de Recherche, PIMM</i>	Rapporteur, Président
Gilles MAYNARD	<i>Directeur de Recherche, LPGP</i>	Rapporteur
Patrick RENAUDIN	<i>Ingénieur-chercheur, CEA-DIF</i>	Rapporteur
Marc SENTIS	<i>Directeur de Recherche, LP3</i>	Examineur

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier les membres du jury pour avoir consacré une partie de leur temps à l'examen de ce travail : Laurent Berthe, Gilles Maynard et Patrick Renaudin qui ont accepté de rapporter ce manuscrit, ainsi que Lamri Adoui et Marc Sentis.

J'ai bénéficié de l'environnement exceptionnel qu'offre le laboratoire CELIA pour mener à bien une grande partie des travaux présentés dans ce document. Je remercie à ce titre les directeurs successifs du laboratoire, Jean-Claude Gauthier, Philippe Balcou et Eric Mevel. Comme bien souvent en recherche, les résultats obtenus sont le fruit de collaborations. J'exprime ma profonde gratitude à tous les collègues avec qui j'ai eu le plaisir de travailler, et tout spécialement Patrick Audebert et Jean-Paul Geindre pour m'avoir si gentiment transmis le flambeau de l'interférométrie dans le domaine des fréquences. Outre l'abnégation, le quotidien du chercheur est émaillé de séances à haute teneur intellectuelle ou calorique (plus rarement, les deux à la fois), et à ce titre je salue et remercie Dominique Descamps, Fabien Dorchies, Jérôme Gaudin, Sébastien Hulin, Stéphane Petit, Olivier Peyrusse et João Santos.

Arrivée au CESTA ; nouvelle thématique, nouveaux labo et environnement. Je remercie messieurs Luc Voisin, Michel Caron, Eric Merle et Marc Mouillet pour leur accueil et support. Je salue toute l'équipe du Laboratoire des Hautes Puissances Pulsées qui sait si bien faire rimer ambiance et compétence. Enfin je tiens à remercier tous ceux qui m'ont apporté leur sympathie, leur aide et/ou leurs lumières au cours de cette "nouvelle vie", et en particulier Baptiste Cadilhon, Bruno Cassany, Laurent Courtois, Alain Galtie, Jacques Gardelle, Pierre Grua, David Hebert, Rémi Maissonny, Patrick Modin, Eric Pasini, Christophe Vermare et Frédéric Zucchini.

Enfin, bien que cet écrit soit avant tout un support d'examen universitaire, il revêt aussi un aspect personnel du fait de sa nature rétrospective. Au moment d'en coucher les derniers mots, j'évoque donc la mémoire de mes chers disparus, mon père Maurice, ma sœur Flore ainsi que Rémi, et j'adresse des pensées aimantes à ma mère Claudine, mon épouse Stéphanie et mes filles Ambre et Isis.

Table des matières

Introduction et parcours	1
Références de l'introduction	10
1 Flux de chaleur électronique dans les plasmas de FCI	13
1.1 Contexte	13
1.1.1 Description de Spitzer-Härm	14
1.1.2 Champ magnétique	15
1.1.3 Flux non-local	15
1.1.4 Stratégies de couplage du champ magnétique et du flux non-local dans un code hydrodynamique	16
1.2 Mesure du flux de chaleur dans un plasma dense	17
1.2.1 Expérience	18
1.2.2 Résultats et discussion	19
1.3 Mesure simultanée du flux de chaleur et du champ magnétique	21
1.3.1 Expérience	22
1.3.2 Résultats et discussion	23

1.4	Conclusion sur le chapitre 1	26
	Références du chapitre 1	27
2	Développement de diagnostics pour l'étude de plasmas créés par laser	29
2.1	CCD X utilisée en spectromètre large bande et haute dynamique	30
2.1.1	Contexte	30
2.1.2	Mise en œuvre et caractérisation d'une CCD utilisée en spectromètre	35
2.1.3	Les suites de ce travail	41
2.2	Interférométrie dans le domaine des fréquences pour l'étude de plasmas denses et tièdes créés par laser femtoseconde	42
2.2.1	Contexte	42
2.2.2	L'expérience FDI pour l'étude des propriétés optiques de la WDM au CELIA	47
2.2.3	Les suites de ce travail	55
	Références du chapitre 2	57
3	Interférométrie dans le domaine des fréquences pour l'étude de la matière dense et tiède	61
3.1	Contexte	61
3.1.1	Warm Dense Matter ?	61
3.1.2	Les descriptions théoriques de la WDM	62
3.1.3	Techniques expérimentales pour produire la WDM	63
3.2	Dynamique haute précision d'une surface chauffée par laser femtoseconde	65
3.2.1	But et résultats de l'expérience	65
3.2.2	Interprétation et comparaison avec le code ESTHER	66
3.3	Détermination de la fréquence de collisions électron-électron dans l'or en régime WDM	69
3.3.1	Contexte et démarche	69

3.3.2	Résultat : dépendance de la fréquence de collisions électron-électron vis à vis de la température électronique dans des conditions WDM.	71
3.4	Évolution ultra-rapide des propriétés optiques de la silice au seuil de dommage et au delà	75
3.4.1	Contexte et expérience	75
3.4.2	Résultats et discussion	78
3.5	FDI et laser X à électrons libres pour l'étude de la WDM	83
3.5.1	WDM créée par rayons X	83
3.5.2	Spectroscopie XANES résolue en temps	86
3.6	Conclusion sur le chapitre 3	88
	Références du chapitre 3	90
4	Interaction entre un faisceau d'électrons relativistes et la matière dans le cadre de la radiographie éclair	95
4.1	Interaction faisceau d'électrons-cible de conversion	96
4.1.1	Émission ionique à la surface du convertisseur	96
4.1.2	Hydrodynamique du convertisseur	100
4.2	Propagation du faisceau d'électrons dans un plasma	106
4.2.1	Contexte et considérations théoriques	107
4.2.2	Expérience	110
4.2.3	Perspectives	119
4.3	Conclusion sur le chapitre 4	120
	Références du chapitre 4	121

Introduction et parcours

Je vais présenter ici une vue d'ensemble de mon parcours de recherche. Je reviendrai dans la suite du manuscrit sur certains travaux, en excluant ceux de mon travail de doctorat et de post-doctorat. De plus, je me limiterai à ceux qui, bien que s'inscrivant le plus souvent dans des collaborations, sont issus pour une part importante d'une démarche et d'un travail personnels. La présente introduction apportera ainsi au lecteur le lien entre les thématiques développées dans les chapitres suivants.

Le chapitre 1 présentera l'étude du flux de chaleur électronique dans des plasmas de fusion par confinement inertiel (FCI). Au delà de l'utilisation de diagnostics inhérente au métier d'expérimentateur, une part conséquente de mon activité a été la mise au point et la caractérisation poussée de deux diagnostics que j'aborderai dans le chapitre 2. Le chapitre 3 sera consacré à l'étude du chauffage des solides par laser femtoseconde. Enfin le chapitre 4 présentera les travaux réalisés ou en cours concernant l'interaction entre un faisceau d'électrons relativistes et la matière dans le cadre de la radiographie éclair.

Interaction ion relativiste / solide (*travail de thèse*)

J'ai effectué ma thèse de doctorat dans l'équipe Interaction Ion-Matière (EIIM) du GPS (Groupe de Physique du Solide) sous la direction de Dominique Vernhet. Le sujet en était l'étude du transport des ions rapides dans les solides ("Transport d'ions hydrogénoïdes rapides dans les solides : mise en évidence de l'écrantage dynamique") [1]. En bref, l'interaction ion-solide peut être vue de deux façons différentes : la première décrit la propagation de l'ion comme une succession de collisions binaires avec les constituants du solide (qui est vu dans cette description comme un gaz très dense). Cette démarche peut sembler réaliste pour traiter les noyaux et les électrons des couches internes du solide, mais risque d'être inadaptée pour décrire les électrons des couches externes du solide, puisque la réponse de ceux-ci est collective. Au contraire, la

deuxième démarche privilégie la description des électrons de valence et de conduction au détriment des électrons de cœur. La réponse des électrons est alors collective et crée une onde de polarisation à laquelle est associé un champ dit *de sillage*, comme l'illustre la figure 1.

S'il était bien admis qu'il existe des effets spécifiques aux collisions ion-solide par rapport aux

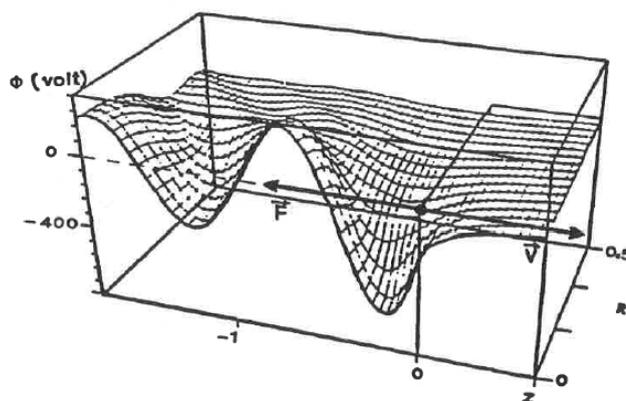


FIGURE 1 – Représentation schématique de l'onde de polarisation et de la force exercée par le champ de sillage associé, lors du déplacement d'un ion positif dans un gaz d'électrons libres. Les distances sont en unité de $2\pi v/\omega_p$, avec ω_p la fréquence plasma du gaz d'électrons et v la vitesse de l'ion.

collisions ion-atome isolé, aucune des deux approches prise séparément ne pouvait expliquer l'ensemble des observations sur l'interaction ion-solide (pouvoir d'arrêt, état de charge et populations des états électroniques de l'ion). Deux expériences avaient déjà été réalisées sur le sujet dans l'équipe EIIM, qui avaient montré la sensibilité des désexcitations radiatives issues des états de cœur d'un ion hydrogénoïde (c'est-à-dire possédant un seul électron) au champ de sillage. Le principe était de mesurer ces désexcitations par spectrométrie X de haute résolution, après que les ions aient traversé des échantillons solides de différents matériaux et différentes épaisseurs. Cependant, les projectiles utilisés pour ces deux expériences (des ions lourds complètement épluchés : Ar^{18+} et Kr^{36+}) impliquaient que le premier processus collisionnel était la capture électronique (nécessaire pour que l'ion devienne hydrogénoïde), ce qui posait quelques difficultés : en effet, les cohérences (i.e. les éléments non diagonaux de la matrice densité) entre les différents états électroniques peuplés par capture étaient incertaines, et c'est justement via l'action du champs de sillage sur les cohérences qu'évolue le spectre des désexcitations radiatives.

L'objet de ma thèse était d'une part de contribuer à établir un modèle d'équation pilote qui couple les deux approches de façon unifiée [2] et de le confronter aux données expérimentales existantes. D'autre part, il fallait produire de nouvelles données expérimentales qui ne faisaient pas intervenir la capture comme processus initial. Le projectile de cette nouvelle expérience était un ion hydrogénoïde Kr^{35+} à haute vitesse (60 MeV/A), dont les états excités étaient donc peuplés par excitation à partir du niveau fondamental plutôt que par capture. Dans ce cas, les populations et les cohérences sont bien connues. L'expérience a été réalisée au GANIL à Caen et la comparaison avec notre nouveau modèle a permis de valider l'ensemble de la description utilisée [3]. Notre modèle d'équation pilote a permis un progrès significatif pour la description fine de l'interaction (voir fig. 2), et les nouvelles données expérimentales ont également permis

un test précis d'un autre modèle original développé à l'université du Tennessee, basé sur une méthode Monte-Carlo dans un espace des phases quantique [4].

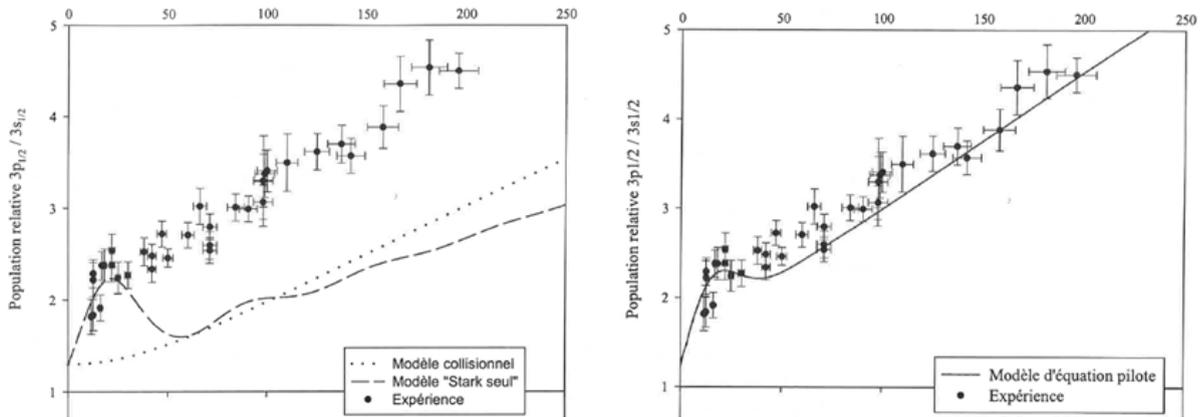


FIGURE 2 – Évolution de rapport de population $3p_{1/2}/3s_{1/2}$ de l'ion K^{35+} à 33.2 MeV/A en fonction de l'épaisseur d'une cible de carbone traversée. L'épaisseur est en unité de masse surfacique ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$). À gauche : expérience, modèle collisionnel seul et modèle de réponse collective ("Stark seul"). À droite : expérience et modèle complet d'équation pilote. Figure tirée de [1].

Instabilités électrostatiques dans les plasmas de Tokamaks (*travail de post-doctorat*)

Au sortir de ma thèse, j'ai choisi ce sujet de post-doctorat car il me permettait d'une part de me familiariser avec la physique des plasmas que j'avais effleuré pendant ma thèse, et d'autre part de découvrir une activité presque uniquement théorique/numérique. Le sujet était l'étude du transport turbulent (dit *anormal*) de la chaleur dans les plasmas de Tokamaks, et mon encadrement était assuré par messieurs G.T. Hoang et X. Garbet du Département de Recherche sur la Fusion Contrôlée (DRFC, devenu IRFM depuis) au CEA/Cadarache. J'étais chargé de faire évoluer et d'utiliser un code cinétique (*KINEZERO*) de calcul des taux de croissance linéaires des micro-turbulences électrostatiques, qui jouent un rôle important dans le transport anormal. Ce code venait d'être écrit par une doctorante, et mon premier travail a été de l'approprier et d'en optimiser le fonctionnement ainsi que d'y apporter des développements supplémentaires dans le but d'étendre le domaine de validité du calcul et d'obtenir des détails sur les causes physiques des instabilités. J'ai ensuite utilisé le code et mis à profit sa relative rapidité d'exécution pour réaliser des études paramétriques en fonction des grandeurs physiques mesurables d'un plasma de Tokamak (profils de températures, de densités, de champ magnétique etc.). J'en ai déduit des expressions empiriques facilement utilisables des seuils de stabilités pour les gradients de température, au-delà desquels une instabilité se développe [5]. D'autre part, j'ai effectué des analyses de stabilités de décharges expérimentales, ce qui a permis d'identifier une configuration spécifique de la carte de champ magnétique (dite à *cisaillement inversé*) comme l'élément déclencheur d'une zone de bon confinement appelée *barrière interne de transport* observée dans des expériences des Tokamaks *JET* et *Tore-Supra* [5; 6]. La figure 3 montre le résultat

d'un tel calcul, qui compare les taux de croissance linéaires des instabilités électrostatiques de deux décharges quasi-identiques : Une des décharges a une configuration à cisaillement inversé et évolue vers une barrière interne de transport. On voit que la configuration magnétique entraîne une diminution notable des taux de croissance.

Ce post-doc a été pour moi extrêmement complémentaire de ma thèse : outre la physique nouvelle et différente que j'ai pu aborder, j'ai pu tester mon appétence pour une activité largement plus théorique et numérique. De plus j'y ai travaillé au sein d'un département de plusieurs dizaines de personnes œuvrant dans la même thématique, et autour d'une grande installation somme toute assez figée (du moins sur une durée de un à deux ans). Ces deux premières expériences de recherche m'ont aidé par la suite à orienter ma carrière de chercheur.

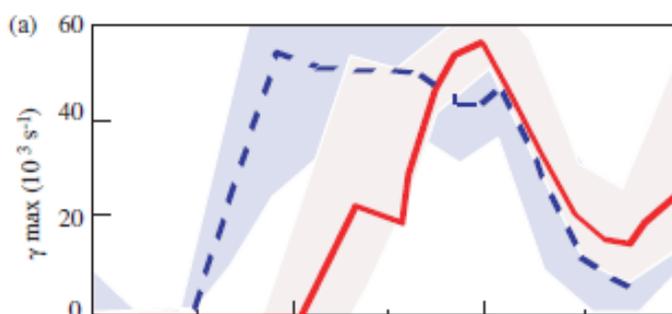


FIGURE 3 – Taux de croissance linéaires des instabilités électrostatiques de deux décharges de Tokamak, dont l'une (correspondant à la courbe rouge) possède une configuration magnétique à cisaillement inversé. L'axe des abscisses est une dimension spatiale normalisée, le long du petit rayon du tore du Tokamak. Les zones ombrées représentent les variations des taux de croissances calculés, correspondant aux incertitudes des paramètres plasma expérimentaux. Figure tirée de [5].

Expériences laser-plasma pour la FCI (Ingénieur-chercheur au laboratoire CELIA)

J'ai rejoint le Centre Laser Intense et Applications (CELIA-UMR5107) en 2004, en tant qu'ingénieur-chercheur mis à disposition par le CEA. Celui-ci avait rejoint la jeune Unité Mixte de Recherche début 2003 en y apportant une nouvelle activité : la physique des plasmas de fusion par confinement inertiel (FCI). L'équipe travaillant sur cette thématique était exclusivement composée de théoriciens/numériciens, et j'étais chargé de lui apporter une composante expérimentale, en parallèle des activités de l'équipe dans laquelle j'ai été intégré (SXPI pour Source X, Plasmas, Ions).

A ce titre, j'ai coordonné ou collaboré à plusieurs études expérimentales sur des lasers de puissance d'intérêt pour la FCI. Je ne détaillerai pas dans ce manuscrit l'ensemble de mon activité dans ce domaine. En effet les expériences concernées se sont faites dans de larges collaborations, dans lesquelles ma contribution, quoique effective, n'était pas toujours prépondérante. J'ai ainsi participé à une quinzaine d'expériences auprès d'installations laser énergétiques et/ou

intenses (*ALISÉ* au CEA-CESTA, *ELFIE*, *LULI2000* et *PICO2000* au LULI à l'École Polytechnique, *UHI100* au CEA-Saclay et *VULCAN* au Central Laser Facility, Rutherford Appleton Laboratory, Royaume-Uni) dans des domaines variés tels que la mise en vitesse d'un ablateur plastique et son frottement contre un métal lourd, le lissage d'un faisceau laser par un plasma et surtout la génération de jet d'électrons relativistes par interaction entre un laser ultra-intense et une cible solide et le transport de tels jets au travers de solides ou de plasmas denses (études d'*allumeur rapide* pour la FCI).

Je me concentrerai dans le chapitre 1 sur une étude des plasmas de FCI dans laquelle je me suis personnellement particulièrement impliqué : l'étude du flux de chaleur électronique dans les cibles. La motivation était de comprendre la physique du flux de chaleur dans des conditions où la description classique de Spitzer-Härm ne s'applique pas. Pour cela, nous avons effectué dans le cadre d'une collaboration entre le CELIA, le LULI, le CEA-DSM, et les CEA-DAM CESTA, Ile-de-France et Valduc, une expérience dédiée à la mesure de la cinétique du flux thermique [7] auprès de la *Ligne d'Intégration Laser (LIL)* du CESTA qui était capable de fournir la grande quantité d'énergie nécessaire (jusqu'à 10 kJ à la longueur d'onde $0.35 \mu\text{m}$ et dans une impulsion de 3 ns). J'ai également coordonné une autre expérience au LULI, où le faisceau nanoseconde *LULI2000* (jusqu'à 500 J à $0.53 \mu\text{m}$ en 2 – 5 ns) était utilisé pour générer le flux de chaleur, et le faisceau *PICO2000* (40 J à $1.06 \mu\text{m}$ en 1 ps) servait à réaliser une radiographie protonique sensible au champ magnétique [8].

Sources X créées par laser (*Ingénieur-chercheur au laboratoire CELIA*)

En parallèle des activités décrites précédemment sur les lasers de puissance, j'ai bien sûr pris part à l'activité expérimentale sur le laser "local". Le laboratoire était alors équipé d'un laser délivrant des impulsions dites *femtosecondes* (≈ 30 fs), relativement intenses (~ 10 mJ, permettant d'atteindre des éclaircissements sur cible $\sim 10^{17} \text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$), à un taux de répétition élevé (1 kHz). A mon arrivée, l'équipe *SXPI (Source X, Plasma et Ions)* utilisait ce laser pour générer du rayonnement X. En effet, la durée brève des sources X créées par laser (ps ou sub-ps), et leur synchronisme naturel avec des impulsions laser femtosecondes, les rend a priori très intéressantes pour suivre des dynamiques ultra-rapides à l'échelle atomique (transitions de phase photo-induites, réactions chimiques *etc.*), via un schéma expérimental de type pompe (laser fs) – sonde (X). Au CELIA, cette recherche était pilotée principalement par mon collègue Fabien Dorchies, et je ne détaillerai pas plus cette activité. Néanmoins, j'ai participé activement à un grand nombre d'études sur la génération de rayonnement X par les interactions laser-agrégat et surtout laser-solide. Cette activité a globalement débouché sur l'optimisation (en gamme spectrale, émissivité et durée d'émission) de sources X créées par laser en vue de réaliser des expériences de spectroscopie d'absorption (*XANES*) résolue en temps, ainsi que sur le développement de techniques et diagnostics expérimentaux.

De façon plus personnelle, j'ai mis au point un spectromètre X original basé sur l'utilisation d'une caméra CCD. L'idée est de reconstruire le spectre en utilisant le fait que l'absorption d'un photon X dans le silicium conduit à un nombre de paires électron-trou (et donc à un signal dans

le pixel où l'absorption a eu lieu) proportionnel à l'énergie du photon incident. Un capteur CCD devient alors équivalent à une matrice de plusieurs milliers de pastilles de semi-conducteur. Le concept était déjà utilisé notamment comme diagnostic embarqué sur satellite, mais pour observer des sources X au débit continu. J'ai pu mettre au point un mode de fonctionnement adapté aux sources X impulsives et récurrentes, qui permet d'obtenir des spectres sur la gamme (2–20 keV) avec une très bonne statistique et en un temps relativement court (quelques minutes). De plus, j'ai pu optimiser la résolution spectrale en appliquant un traitement des données grâce à la modélisation de l'interaction entre le photon X et le capteur, et des expériences de calibration [9]. Ce détecteur sert depuis régulièrement au CELIA, y compris comme spectromètre de référence, et s'est exporté dans d'autres laboratoires, comme l'INRS au Québec [10]. La description de ce travail se trouve dans le chapitre 2.

Un autre aspect de mon activité autour des sources X au sein de l'équipe SXPI concerne la mise à disposition de lignes de lumières X pour la communauté scientifique. Ce projet a fait suite au déménagement du laboratoire vers de nouveaux locaux en 2005. Il s'agissait pour le groupe, non seulement de réinstaller le matériel existant dans la salle *Aurore 2* associée au laser kilohertz *Aurore*, mais aussi de développer une nouvelle salle expérimentale *Eclipse 3* associée au nouveau laser *Eclipse*. Ce laser délivrait des impulsions plus énergétiques (~ 200 mJ), mais à une cadence plus faible (10 Hz). Dans le cadre du projet de plateforme COLA (*Centre Optique et Laser d'Aquitaine*), nous avons développé des stations expérimentales dédiées aux sources X par laser (une par salle). Ces installations sont devenues accessibles aux utilisateurs extérieurs, via deux appels à projets. Le premier est national, commun avec les laboratoires IRAMIS (CEA-DSM, Saclay) et LOA. Le second est européen, dans le cadre des programmes LASERLAB-EUROPE successifs. Nous avons ainsi accueilli et travaillé avec plusieurs équipes, qui utilisaient directement les sources X que nous avons développées ou qui s'intéressaient à la physique des plasmas et à la spectroscopie de leur émission X. En plus de cet accueil, nous avons organisé, de 2011 à 2013, des travaux pratiques en salle *Eclipse 3*, à destination des étudiants du master national *Sciences de la Fusion*, à raison de deux semaines par an.

Excitation forte de solides par laser femtoseconde (*Ingénieur-chercheur au laboratoire CELIA*)

A partir de 2007, j'ai commencé à m'intéresser à la physique du régime dit *tiède et dense* de la matière (WDM pour "Warm Dense Matter"). Il s'agit du domaine où la densité est voisine de celle du solide et la température de l'ordre de 0.1 à 10 eV (soit environ de mille à cent mille Kelvin). Dans ce régime, les noyaux sont partiellement corrélés et les électrons partiellement dégénérés (leur température est voisine de celle de Fermi). Les modèles de la physique de la matière condensée ne s'appliquent plus, ni ceux des plasmas chauds. De telles conditions sont rencontrées dans de très nombreuses occasions, et sont étudiées pour des raisons fondamentales comme notamment leur présence dans certains objets astrophysiques (intérieurs de planète), ou bien dans un but plus applicatif, par exemple parce qu'on les rencontre lors de la phase de compression des cibles pour la FCI et au cours de processus d'ablation laser (endommagement ou usinage). Du fait de la forte densité d'énergie de la WDM, son état est généralement transitoire. De fait, l'étude expérimentale de la WDM a connu un fort essor dans les années 2000, à la

fois grâce à la multiplication des moyens pour porter la matière dans les régimes de densité et température adéquats, et aux progrès effectués en instrumentation ultra-rapide nécessaire pour la caractériser.

Personnellement, je me suis particulièrement attaché à l'étude du chauffage des solides par laser femtoseconde. Lors de l'interaction, les électrons absorbent une partie de l'énergie lumineuse tandis que les ions restent froids. La matière se trouve alors dans un état très fortement hors-équilibre, et sera le siège d'une double relaxation : la répartition de l'énergie entre les électrons et les ions d'une part et la relaxation des pressions cinétiques électroniques et ioniques d'autre part. Ces phénomènes se produisent sur une échelle de temps typique de la picoseconde voire sub-picoseconde, et il a donc fallu développer une méthode expérimentale spécifique pour atteindre une résolution temporelle suffisante, de l'ordre de 100 femtosecondes. Ainsi j'ai installé au CELIA un diagnostic optique pompe-sonde en réflexion sur la surface de l'échantillon étudié, basé sur l'interférométrie optique dans le domaine des Fréquences (FDI). Cette technique était déjà utilisée dans d'autres laboratoires, et mon travail a été de l'optimiser pour l'application visée[11]. Ceci sera décrit dans le chapitre 2, dédié au développement de diagnostics. L'utilisation qui en a été faite pour l'étude de la WDM fera, elle, l'objet du chapitre 3. Les performances atteintes ont permis notamment d'étudier la cinétique de la surface d'un échantillon d'aluminium après une transition de phase solide-liquide induite par une impulsion laser de 30 fs, avec une résolution de 1 nanomètre sur la position de la surface[12]. Grâce au contrôle de la cinétique de la surface et à l'extrême résolution temporelle de notre diagnostic, nous avons pu étudier les propriétés optiques d'échantillons d'or dans des conditions WDM hors équilibre (température électronique très supérieure à ionique), après chauffage isochore. Nous avons pu ainsi confirmer expérimentalement pour la première fois le rôle des électrons de bande d sur le taux de relaxation électron-électron à ce niveau de densité énergétique[13]. Ce système expérimental a aussi été mis à profit pour étudier la dynamique électronique des électrons portés en bande de conduction lors de l'endommagement de la silice en régime femtoseconde. Nous avons pu montrer que l'excitation intense d'un diélectrique, qui se traduit par l'introduction d'une population importante d'électrons dans la bande de conduction normalement vide, mène à des propriétés optiques inattendues, qui suggèrent une modification de la structure des bandes électroniques à une échelle de temps femtoseconde[14].

L'activité décrite précédemment m'a naturellement mené vers le monde des utilisateurs des lasers à électrons libres émettant du rayonnement X. Le LCLS (Linac Coherent Light Source) mis en service par l'université de Stanford (CA, USA) en 2009, fut le premier à délivrer des impulsions X d'environ 1 mJ, de durée 100 fs, jusqu'à une énergie de photon de ~ 10 keV. Il est de plus synchronisé avec des lasers optiques, à mieux que 0.5 ps. D'autres projets ont aboutis ou sont en cours à travers le monde (European X-FEL à Hambourg, Sacla au Japon, SwissFEL en suisse, PAL-XFEL en Corée du Sud et SXFEL en Chine). Ces nouveaux outils ont déjà un impact énorme dans le domaine de la physique à haute densité d'énergie. Des stations expérimentales sont dédiées à cette physique (station MEC pour "Matter in Extreme Conditions" au LCLS). En focalisant le faisceau X, on peut chauffer rapidement un échantillon, de la même façon qu'avec un laser femtoseconde. Cependant, les photons X pénètrent plus profondément dans la matière, et le chauffage s'opère donc dans le volume. De plus, la physique est a priori différente d'un chauffage par laser optique, puisque l'énergie peut être déposée dans les électrons de cœurs des atomes de la cible, il faut donc appréhender toute la physique atomique qui contribue à la thermalisation des électrons. J'ai ainsi participé à une expérience au LCLS en

2011, visant à caractériser le chauffage d'une cible d'argent par un X-FEL au moyen de 2 diagnostics d'interférométrie similaires à celui dont il est question précédemment. Cette expérience ("Exp. L225 : The creation and diagnosis of High-pressure off-Hugoniot states", coordonnée par R. Shepherd du Lawrence Livermore National Laboratory, USA) a démontré pour la première fois la possibilité de réaliser un chauffage isochoire en volume d'un échantillon grâce à un XFEL[15]. Les X-FEL peuvent aussi être utilisés comme une sonde extrêmement brève d'un échantillon préparé par une impulsion laser optique. C'est ce que nous avons réalisé en 2012, toujours au LCLS ("Exp. L532 : Unravelling the nonequilibrium electron – ion ultrafast dynamics in warm dense Mo and Ag with time-resolved XANES", coordonnée par mon collègue F. Dorchies du CELIA). Nous avons démontré la possibilité de réaliser des mesures XANES avec un X-FEL sur un échantillon chauffé par une impulsion laser femtoseconde, et caractérisé par FDI[16].

Interaction entre un faisceau d'électrons relativistes et la matière dans le cadre de la radiographie éclair (*Ingénieur-chercheur au CEA CESTA*)

J'ai intégré le Laboratoire des Hautes Puissances Pulsées au CEA CESTA en 2015, pour y travailler sur l'interaction entre un faisceau d'électrons relativistes et la matière dans le contexte de la radiographie dite *éclair* d'objets denses en mouvement. Le rayonnement nécessaire à la radiographie est produit par le ralentissement d'un faisceau d'électrons (rayonnement Bremsstrahlung) dans une cible solide de numéro atomique élevé, dite *de conversion*. De par l'application visée, le faisceau d'électron doit être relativement énergétique (~ 20 MeV), intense (~ 2 kA) et bref (< 100 ns). Il est généré dans des accélérateurs à induction qui fonctionnent en *monocoup*, comme les lasers de puissance pour la FCI. L'énergie portée par le faisceau est considérable (~ 4 kJ), et son interaction avec le convertisseur amène celui-ci dans le domaine WDM par un chauffage en volume. Ce contexte de recherche montre donc une certaine continuité avec les activités que j'ai menées précédemment, mais apporte aussi des différences certaines, notamment en ce qui concerne le vecteur d'énergie (électrons plutôt que photons) et les échelles de temps et d'espace beaucoup plus grandes. J'ai élaboré un programme d'études expérimentales et numériques spécifiques qui profite de la présence pour quelques années, au CESTA, d'une machine délivrant un faisceau d'électrons représentatif bien que d'énergie un peu plus basse (4 MeV). Ce programme d'étude, qui fera l'objet du chapitre 4, peut être séparé en deux grandes thématiques :

- *Interaction du faisceau avec la cible de conversion.* Celle-ci a des conséquences à plusieurs échelles de temps : (i) pendant le chauffage du convertisseur soumis au faisceau d'électrons, des particules ioniques sont libérées, qui compensent partiellement la répulsion de charge d'espace "naturelle" du faisceau. La conséquence est une sur-focalisation du faisceau d'électrons en amont de la cible, qui se traduit en pratique par un élargissement de la tache électronique au niveau de celle-ci. Il est nécessaire de mener des expériences dans le but de minimiser ou corriger cet effet pénalisant. (ii) Après le passage du faisceau d'électrons dans la cible, celle-ci va se détendre dans le vide qui l'entoure. Dans le cadre d'études prospectives sur la génération de plusieurs impulsions X succes-

sives dans un intervalle de temps de quelques microsecondes (*radiographie multitemps*), il est important de maîtriser l'état du convertisseur à l'arrivée d'un faisceau d'électrons ultérieur. C'est un problème assez ardu car il fait intervenir des échelles de temps différentes, et surtout des variations de densité énormes (plus de 10 ordres de grandeur sur la densité électronique entre celle du solide initial et celle d'un plasma de détente qui pourrait perturber le faisceau d'électrons). Il convient donc de tester et valider les outils numériques existant, en réalisant des expériences de caractérisation de la matière en détente.

- *Propagation du faisceau d'électrons dans un plasma.* La présence des porteurs de charge libres du plasma modifie l'équilibre entre les électrons du faisceau et les champs électromagnétiques qu'ils génèrent, par des phénomènes d'écrantage de la charge d'espace du faisceau et/ou du courant qu'il transporte. Dans le cas d'un faisceau intense, ces champs sont très forts et une modification même faible de cet équilibre peut avoir une répercussion importante sur la propagation du faisceau. Cette situation peut se rencontrer dans le cadre de la radiographie multitemps, ou peut éventuellement être mise à profit pour propager et focaliser le faisceau, par un effet de *lentille plasma*. J'ai établi un modèle simple qui vise à décrire les phénomènes d'écrantage du plasma et leur action sur l'enveloppe du faisceau [17]. D'autre part, j'ai démarré, dans le cadre d'une thèse soutenue en 2019, une activité expérimentale visant à étudier la propagation dans un plasma d'un faisceau d'électrons relativistes intense, de diamètre centimétrique et de plusieurs dizaines de nanosecondes de durée[18].

Références de l'introduction

- [1] C. FOURMENT : *Transport d'ions hydrogénoïdes rapides dans les solides : mise en évidence de l'écrantage dynamique*. Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), 2000.
- [2] J.-P. ROZET, D. VERNHET, I. BAILLY-DESPINEY, C. FOURMENT et L. J. DUBÉ : Dynamical substate mixing of fast ions in solids : a density matrix approach. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 32(19):4677–4696, Sep 1999.
- [3] D. VERNHET, C. FOURMENT, E. LAMOUR, J.-P. ROZET, B. GERVAIS, L. J. DUBÉ, F. MARTIN, T. MINAMI, C. O. REINHOLD, M. SELIGER et J. BURGDÖRFER : Transport of Kr^{35+} inner-shells through solid carbon foils. *Physica Scripta*, T92(1):233–236, 2001.
- [4] T. MINAMI, C. O. REINHOLD, M. SELIGER, J. BURGDÖRFER, C. FOURMENT, E. LAMOUR, J.-P. ROZET, D. VERNHET et B. GERVAIS : Quantum transport of the internal state of Kr^{35+} ions through amorphous carbon foils. *Phys. Rev. A*, 65:032901, Feb 2002.
- [5] C. FOURMENT, G. T. HOANG, L.-G. ERIKSSON, X. GARBET, X. LITAUDON et G. TRESSET : Role of the current density profile on drift wave stability in internal transport barrier reversed magnetic shear experiments at JET and Tore Supra. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 45(3):233–250, Feb 2003.
- [6] L.-G. ERIKSSON, C. FOURMENT, V. FUCHS, X. LITAUDON, C. D. CHALLIS, F. CRISANTI, B. ESPOSITO, X. GARBET, C. GIROUD, N. HAWKES, P. MAGET, D. MAZON et G. TRESSET : Discharges in the JET tokamak where the safety factor profile is identified as the critical factor for triggering internal transport barriers. *Phys. Rev. Lett.*, 88:145001, Mar 2002.
- [7] G. SCHURTZ, S. GARY, S. HULIN, C. CHENAIS-POPOVICS, J.-C. GAUTHIER, F. THAIS, J. BREIL, F. DURUT, J.-L. FEUGEAS, P.-H. MAIRE, P. NICOLAÏ, O. PEYRUSSE, C. REVERDIN, G. SOULLIÉ, V. TIKHONCHUK, B. VILLETTE et C. FOURMENT : Revisiting nonlocal electron-energy transport in Inertial-Fusion conditions. *Phys. Rev. Lett.*, 98:095002, Feb 2007.
- [8] L. LANCIA, C. FOURMENT, J. FUCHS, J.-L. FEUGEAS, Ph. NICOLAI, S. BASTIANI-CECCOTTI, M. GAUTHIER, S. HULIN, M. NAKATSUTSUMI, M. RABEC-LE-GLOAHEC, J. J. SANTOS et G. SCHURTZ : Simultaneous measurement of self-generated magnetic fields and electron heat transport in dense plasma. *Laser and Particle Beams*, 31(4):653–661, 2013.
- [9] C. FOURMENT, N. ARAZAM, C. BONTE, T. CAILLAUD, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, M. HARMAND, S. HULIN, S. PETIT et J. J. SANTOS : Broadband, high dynamics and high resolution charge coupled device-based spectrometer in dynamic mode for multi-KeV repetitive X-ray sources. *Review of Scientific Instruments*, 80(8):083505, 2009.
- [10] S. FOURMAUX, S. CORDE, K. TÀ. PHUOC, P.-M. LEGUAY, S. PAYEUR, P. LASSONDE, S. GNEDYUK, G. LEBRUN, C. FOURMENT, V. MALKÀ, S. SEBBAN, A. ROUSSE et J.-C. KIEFFER : Demonstration of the synchrotron-type spectrum of laser-produced betatron radiation. *New Journal of Physics*, 13(3):033017, Mar 2011.
- [11] C. FOURMENT, F. DENEUVILLE, B. CHIMIER, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, S. HULIN, S. PETIT, O. PEYRUSSE et J. J. SANTOS : An interferometric diagnostic for the experimental study of dynamics of solids exposed to intense and ultrashort radiation. *In Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, volume 8777, mai 2013.
- [12] F. DENEUVILLE, B. CHIMIER, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, S. HULIN, S. PETIT, O. PEYRUSSE, J. J. SANTOS et C. FOURMENT : Sub-picosecond and nanometer scale dynamics of aluminum target surface heated by ultrashort laser pulse. *Appl. Phys. Lett.*, 102(19):194104, 2013.
- [13] C. FOURMENT, F. DENEUVILLE, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, S. PETIT, O. PEYRUSSE, B. HOLST et V. RECOULES : Experimental determination of temperature-dependent electron-electron collision frequency in isochorically heated warm dense gold. *Phys. Rev. B*, 89:161110(R), Apr 2014.

- [14] C. FOURMENT, B. CHIMIER, F. DENEUVILLE, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, G. DUCHATEAU, M.-C. NADEAU et S. PETIT : Ultrafast changes in optical properties of SiO_2 excited by femtosecond laser at the damage threshold and above. *Phys. Rev. B*, 98:155110, Oct 2018.
- [15] A. LÉVY, P. AUDEBERT, R. SHEPHERD, J. DUNN, M. CAMMARATA, O. CIRICOSTA, F. DENEUVILLE, F. DORCHIES, M. FAJARDO, C. FOURMENT, D. FRITZ, J. FUCHS, J. GAUDIN, M. GAUTHIER, A. GRAF, H. J. LEE, H. LEMKE, B. NAGLER, J. PARK, O. PEYRUSSE, A. B. STEEL, S. M. VINKO, J. S. WARK, G. O. WILLIAMS, D. ZHU et R. W. LEE : The creation of large-volume, gradient-free warm dense matter with an X-ray Free-Electron Laser. *Physics of Plasmas*, 22(3):030703, 2015.
- [16] F. DORCHIES, V. RECOULES, J. BOUCHET, C. FOURMENT, P. M. LEGUAY, B. I. CHO, K. ENGELHORN, M. NAKATSUTSUMI, C. OZKAN, T. TSCHENTSCHER, M. HARMAND, S. TOLEIKIS, M. STÖRMER, E. GALTIER, H. J. LEE, B. NAGLER, P. A. HEIMANN et J. GAUDIN : Time evolution of electron structure in femtosecond heated warm dense molybdenum. *Phys. Rev. B*, 92:144201, Oct 2015.
- [17] C. FOURMENT et T. LAHENS : Intense relativistic electron beam propagation through plasma. *In 28th Symposium on Plasma Physics and Technology, Prague, Czech Republic*, 2018.
- [18] T. LAHENS : *Propagation d'un faisceau d'électrons relativistes intense de radiographie éclair dans un plasma froid*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, 2019.

Flux de chaleur électronique dans les plasmas de FCI

1.1 Contexte

Le principe de la Fusion à Confinement Inertiel (FCI) est de comprimer un combustible fusible pour le porter dans un état suffisamment dense et chaud pour permettre un taux important de réactions de fusion thermonucléaire, et de maintenir cet état pendant un temps suffisamment long pour consommer le combustible. La FCI se distingue de sa sœur à confinement magnétique par la densité atteinte (supérieure d'environ 10 ordres de grandeur) alors que la température est à peu près du même ordre (autour du keV soit 10 millions de degrés), ce qui la place dans le domaine des plasmas à haute densité d'énergie. Dans la décennie qui suivit l'invention du laser en 1960, plusieurs laboratoires américains, français et russes entreprirent de développer des lasers de grande puissance et d'étudier leur interaction avec la matière. Aujourd'hui de nombreux laboratoires continuent l'étude des plasmas chauds et denses créés par laser, notamment grâce au *National Ignition Facility* (NIF) aux États-Unis et au *Laser Mégajoule* (LMJ) en France.

Le meilleur moyen d'obtenir une compression élevée par laser est d'effectuer une implosion sphérique, par exemple en illuminant de façon homogène une coquille sphérique de combustible. L'illumination peut être faite directement par des faisceaux laser distribués de façon sphérique (schéma d'*attaque directe*) ou bien en convertissant l'énergie du laser en rayonnement X dans une cavité appelée *hohlraum* d'un matériau de numéro atomique Z élevé, qui joue le rôle de "four radiatif" dans lequel est placée la coquille (*hohlraum*). La poussée nécessaire à l'implosion est obtenue par effet fusée : sous l'effet du dépôt intense d'énergie, la surface extérieure de la coquille est éjectée et la réaction s'applique à la face interne de la coquille. L'efficacité du mécanisme pour fournir le travail qui sera finalement converti en énergie interne, ainsi que la stabilité hydrodynamique de la capsule en cours de compression (notamment par rapport à l'in-

stabilité de Rayleigh-Taylor ablative), dépend grandement de la façon dont l'énergie déposée à la surface de la coquille et du hohlraum est transférée vers l'intérieur de celle-ci, autrement dit des flux de chaleur. A cause de la différence de masse entre les électrons et les ions, l'énergie radiative est déposée sur les électrons et ceux-ci sont beaucoup plus mobiles que les ions. La contribution ionique au flux de chaleur est alors négligeable.

Une description très réaliste des électrons d'un plasma classique (non corrélé, non dégénéré, non relativiste) peut être donnée par leur fonction de distribution en vitesse dont l'évolution est régie par l'équation de Fokker-Planck [1]. Cependant, de par la taille des objets, la durée de l'expérience et le grand nombre de phénomènes à simuler, la description numérique globale d'une expérience de FCI passe aujourd'hui encore par une approche fluide et l'utilisation de codes hydrodynamiques. Ceci consiste à décrire non plus une fonction de distribution mais plus simplement l'évolution de ses moments sur l'espace des vitesses. Des modèles plus ou moins complexes du flux de chaleur électronique sont alors obtenus selon les hypothèses faites sur la fonction de distribution et les termes retenus dans l'équation de Fokker-Planck pour établir les équations d'évolution fluides.

Les flux étant les moments impairs de la fonction de distribution, celle-ci doit nécessairement être anisotrope pour pouvoir décrire des flux non nuls. La description la plus simple est celle qui suppose que la fonction de distribution électronique est la somme d'une composante isotrope et d'un petit terme anisotrope qui donne une forme oblongue à celle-ci dans l'espace des vitesses autour d'une direction privilégiée et qui s'exprime comme $f = f^0 + f^1 \cdot \cos\theta$, où f^0 et f^1 ne dépendent pas de la direction du vecteur vitesse, et θ est l'angle entre la direction d'anisotropie et le vecteur vitesse. Les simulations globales d'expériences de FCI utilisent généralement cette approximation ainsi que la description fluide.

1.1.1 Description de Spitzer-Härm

Spitzer et Härm (SH) ont calculé le flux de chaleur électronique linéaire pour un système en Équilibre Thermodynamique Local (ETL) et en l'absence de champ magnétique[2]. A l'ETL, la partie isotrope f^0 est la fonction de distribution de Maxwell-Boltzmann locale, et le champ électrique qui intervient dans l'équation de Fokker-Planck (et qui détermine f^1 notamment) s'exprime en fonction des grandeurs du plasma en supposant un courant électrique nul dans celui-ci (ce qui est cohérent avec l'absence de champ magnétique). Le flux de chaleur SH est colinéaire au gradient de température, et s'exprime uniquement à partir des valeurs locales de la température et de son gradient. Ce modèle est le plus simple et le plus aisé à implanter dans un code d'hydrodynamique, mais échoue malheureusement à décrire un grand nombre d'observations[3]. En effet, à cause des gradients très forts qui peuvent exister lors de l'interaction laser-plasma, le flux SH peut devenir beaucoup trop grand, supérieur même au flux limite dit *free streaming* $n_e m_e v_{th}^3$, où n_e , m_e et v_{th} sont respectivement la densité, la masse et la vitesse thermique des électrons. Le flux de chaleur doit être limité artificiellement à une fraction du flux *free streaming* en faisant intervenir un *limiteur de flux*. Celui-ci est un paramètre dont la valeur varie typiquement de 3% à 20%, et est ajustée *a posteriori* pour reproduire une expérience donnée. Le manque de prédictibilité du flux SH montre bien sa trop grande simplicité, et a justifié la prise en compte de plus de physique pour éviter le recours au limiteur de flux.

1.1.2 Champ magnétique

Champ magnétique auto-généré Un premier ingrédient important qui manque dans la description de Spitzer-Härm est la présence de champ magnétique dans la plupart des expériences laser-plasma. Le plasma est alors décrit par les équations de la magnéto-hydrodynamique (MHD), obtenues en couplant les équations de Maxwell à celles de l'hydrodynamique. Sans rentrer en détail dans ces équations, on retiendra que celle concernant l'évolution du champ magnétique contient un terme source proportionnel au produit vectoriel des gradients de densité et de température électroniques[1]. En conséquence, un champ magnétique est généré à chaque fois que ces deux gradients ne sont pas colinéaires, ce qui a toutes les chances de se produire lors de l'interaction laser-plasma. En effet, le gradient de densité est principalement dirigé vers l'intérieur de la cible, mais la température varie aussi parallèlement à la surface de celle-ci en fonction de l'inhomogénéité d'éclairement.

Flux de chaleur de Braginskii et effet Righi-Leduc Braginskii[4] a calculé le flux de chaleur linéaire à l'ETL en conservant le terme magnétique dans l'équation de Fokker-Planck. Dans ce cas, le flux de chaleur dépend à la fois de la conductivité thermique et de la conductivité thermo-électrique, qui sont toutes les deux des tenseurs qui s'expriment en fonction du paramètre de Hall. Ce paramètre, définit comme le rapport de la pulsation gyro-magnétique électronique sur la fréquence de collisions électron-ion, quantifie le degré de magnétisation du plasma. Un fort paramètre de hall inhibe le flux de chaleur (c'est le principe du confinement magnétique), car les électrons ne peuvent pas s'éloigner à plus d'un rayon gyro-magnétique d'une ligne de champ, ce qui limite ainsi leur libre-parcours-moyen (l.p.m). Ainsi, le champ magnétique auto-généré peut apporter une justification physique à l'inhibition du flux par rapport à SH. A l'inverse, le flux de Braginskii rejoint celui de SH quand le paramètre de hall tend vers 0 (champ magnétique nul). Une autre conséquence importante est que dans le cas général, le flux de chaleur n'est plus forcément colinéaire au gradient de température ; il subit une rotation qui l'approche de la direction perpendiculaire au champ magnétique et au gradient de température. Dans le cas faiblement magnétisé (paramètre de Hall ≈ 0.1), le flux de chaleur n'est pas sensiblement modifié en amplitude, mais peut être tourné jusqu'à 45° . On appelle ce phénomène *l'effet Righi-Leduc*.

Effet Nernst L'équation de transport du champs magnétique contient un terme dit *de Nernst* dont l'effet pour un plasma très faiblement magnétisé, a la forme d'une advection par une certaine vitesse. Cette vitesse de Nernst est proportionnelle à des éléments du tenseur thermo-électrique et au gradient de température, et colinéaire à ce dernier. L'effet Nernst peut alors se traiter facilement numériquement en ajoutant la vitesse de Nernst à la vitesse fluide dans le terme d'advection du champ.

1.1.3 Flux non-local

Jusqu'ici, les modèles de flux de chaleur présentés reposaient sur des hypothèses d'Équilibre Thermodynamique Local : la partie isotrope de la fonction de distribution électronique était une

fonction de Maxwell-Boltzmann. Néanmoins, les plasmas de FCI présentent des gradients très prononcés du fait de la puissance extrême qui est déposée en des temps brefs. On peut donc se retrouver dans des cas où le l.p.m des électrons n'est plus petit devant les longueurs de gradient. Les flux ne peuvent plus s'exprimer simplement par des relations linéaires des différents gradients pris localement[5; 6; 3]. Ceci est d'autant plus vrai pour le flux de chaleur, que celui-ci est principalement porté par les électrons ayant 3 – 4 fois la vitesse thermique[3], pour lesquels le l.p.m est long¹. Pour prendre en compte un tel phénomène dans un code hydrodynamique, on peut partir de l'idée intuitive selon laquelle en tout point d'un gradient prononcé (c'est à dire présentant une variation de température importante sur quelques l.p.m), le nombre d'électrons portant le flux de chaleur dépend des condition thermodynamiques de l'endroit d'où ces électrons sont susceptibles de provenir. On parle alors d'un flux de chaleur non-local, qui dépend du profil de température sur une extension de quelques dizaines de l.p.m autour du point considéré. Luciani et collaborateurs ont les premiers proposé d'écrire ce flux non-local comme la convolution du flux local par un motif qui joue le rôle de pondérateur. A une dimension, le flux local retenu est celui de SH, q_{SH} , et le flux non-local q s'écrit donc[5] :

$$q(x) = \int dx' q_{SH}(x') w(x, x').$$

Le premier motif $w(x, x')$ proposé dans cette référence prenait la forme d'une atténuation exponentielle. D'autres motifs ont ensuite été proposés, mais il faut noter qu'aucun ne peut être directement dérivé de bases théoriques. Ils sont en général validés *a posteriori* s'ils arrivent à bien reproduire les résultats de codes Fokker-Planck dans des situations idéalisées, jugées représentatives de conditions FCI, et qu'ils rejoignent le flux local SH à la limite de gradients faibles. Classiquement, le flux non-local est inhibé par rapport à celui de SH dans des proportions cohérentes avec les limiteurs de flux généralement nécessaires, et il génère un préchauffage dans le pied de l'onde de chaleur[5].

Schurtz et collaborateurs ont par la suite étendu ce modèle à 3 dimensions (mais sans champs magnétique)[3], et écrit le flux non-local comme celui de SH corrigé par une fonction solution d'une équation de diffusion linéaire. Cette reformulation le rend attractif pour un code hydrodynamique, qui se doit de toute façon de contenir un solveur d'équation de diffusion. Les auteurs ont également retrouvé cette formulation en partant de l'équation de Fokker-Planck linéarisée, et en supposant qu'en présence de gradient fort, la partie isotrope f^0 de la fonction de distribution s'écarte peu d'une fonction de Maxwell-Boltzmann.

1.1.4 Stratégies de couplage du champ magnétique et du flux non-local dans un code hydrodynamique

Comme évoqué plus haut, l'ensemble d'une expérience de FCI ne peut pas être décrit au meilleur niveau d'exactitude. Un bon code d'hydrodynamique doit présenter le meilleur compromis possible sur la description de tous les effets. Concernant le flux de chaleur, on a vu auparavant des méthodes pour prendre en compte des champs magnétiques ou des gradients forts, moyennant un certain nombre d'approximations. Cependant une nouvelle difficulté apparaît

1. La fréquence de collisions électron-ion décroît quand la vitesse des électrons augmente.

lorsque l'on veut prendre en compte ces deux éléments simultanément. En effet, on arrive à des résultats différents selon l'ordre dans lequel on applique les approximations et les troncatures. Une possibilité serait par exemple d'appliquer une correction non-locale au flux de Braginskii, en utilisant celui-ci à la place du flux SH dans la formulation finale de Schurtz *et al.*[7]. On peut aussi mêler plus intimement la non-localité et le champ magnétique en incluant celui-ci dès le départ dans l'équation de Fokker-Planck, avant d'appliquer les linéarisations successives décrites par Schurtz *et al.*[8]. La démarche semble *a priori* plus rigoureuse, mais pour que l'expression obtenue soit raisonnablement utilisable dans un code hydrodynamique, il faut encore procéder à des approximations conséquentes. Les exemples donnés ne sont pas exhaustifs, et montrent plusieurs possibilités de traiter l'effet Righi-Leduc dans un contexte non-local.

L'effet Nernst aussi peut être traité de plusieurs façons : soit on utilise l'expression rigoureuse de la vitesse de Nernst[8], mais il faut se rappeler qu'elle a été établie dans le cas d'un plasma très faiblement magnétisé, et la représentation de l'effet Nernst par un terme d'advection peut s'avérer fautive si le champ magnétique auto-généré est intense. Plus loin on appellera cette expression de la vitesse de Nernst, l'expression de Braginskii. Soit on remarque que dans la limite des faibles magnétisations, le gradient de température est proportionnel au flux de chaleur (qui rejoint celui de SH), et on peut exprimer la vitesse de Nernst en fonction de celui-ci. Il est alors possible de généraliser cette expression à n'importe quel flux de chaleur, y compris dans un cas magnétisé où il n'est plus colinéaire au gradient de température. C'est par exemple la démarche que suggèrent les résultats d'un code Fokker-Planck[9]. On appellera *thermique* la vitesse de Nernst obtenue. Mais en définitive, aucune des deux méthodes n'est rigoureuse et l'emploi de l'une plutôt que l'autre repose sur un choix.

1.2 Mesure du flux de chaleur dans un plasma dense

Le contexte que je viens d'exposer s'étend historiquement sur plusieurs décennies ; après les travaux pionniers de Spitzer et Härm puis Braginskii, la notion de flux non-local est popularisée dans les années 1980 (en géométrie 1D) puis 1990 (3D). Les tentatives de couplage du flux de chaleur non-local avec le champ magnétique dans un code de FCI datent de la fin des années 1990. Cette évolution s'est bien sûr accompagnée d'études expérimentales de plus en plus précises au fur et à mesure de l'amélioration des techniques et appareillages. On peut citer une des études les plus abouties et dédiées spécialement au flux de chaleur : Gregori et collaborateurs[10] ont obtenu un plasma en chauffant par un laser d'environ 100 J (intensité $1.5 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, durée 1.4 ns FWHM) un jet gazeux d'azote sous pression, et mesuré en fonction du temps les profils de température et densité électroniques par sonde Thomson. Les profils expérimentaux ont ensuite été comparés à ceux calculés par le code hydrodynamique américain LASNEX[11] avec limiteur de flux d'une part, et par le code Fokker-Planck 2D SPARK[12] d'autre part. Précisons que ce dernier ne peut pas simuler tous les aspects de l'expérience, aussi il utilisait en entrée certaines quantités calculées par LASNEX, et supposait un plasma entièrement ionisé. Au début de l'interaction (0.3 ns), la simulation LANEX avec un limiteur de flux de 5% reproduit assez bien les profils expérimentaux. Ce n'est par contre plus du tout le cas un peu plus tard (1.5 ns), et la description non-locale de SPARK est alors meilleure. Cette expérience a montré que l'on pouvait discriminer plusieurs modèles de transport sur des observations directes.

Par contre, la densité électronique du plasma était limitée ($\approx 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) par la technique utilisée à la fois pour générer le plasma (à partir d'un jet de gaz), que pour le diagnostiquer (par sonde Thomson).

1.2.1 Expérience

En 2005, au sein d'une large collaboration menée par des chercheurs du CELIA (Université de Bordeaux-CNRS-CEA), et réunissant des chercheurs du LULI (École Polytechnique) et de plusieurs centres CEA (CESTA, Valduc, Saclay, DIF), j'ai participé à une expérience conçue pour mesurer précisément la dynamique de l'onde de chaleur dans un plasma dense de FCI[13]. Nous avons pour cela utilisé la Ligne d'Intégration Laser[14], constituée d'un quadruplet de faisceaux prototypes du LMJ, qui délivrait jusqu'à 10 kJ de lumière à la longueur d'onde $0.35 \mu\text{m}$ pendant un plateau de 3 ns. Un système qui combinait une modulation spectrale du faisceau, une focalisation par réseau et une lame de phase permettait d'obtenir une tache focale gaussienne de $380 \mu\text{m}$ FWHM dépourvue de points chauds. Grâce à l'énergie disponible, nous avons pu maintenir le flux de chaleur pendant plusieurs nanosecondes, et observer la vélocité de l'onde de chaleur avec une bonne résolution relative. Le prix à payer sur ce type d'installation très énergétique, est le nombre d'essais nécessairement limité : nous avons effectué 7 essais, à 3 énergies différentes étagées entre 4 et 10 kJ, correspondant à une intensité sur cible entre 8×10^{14} et $2 \times 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$. Pour mesurer la vitesse de l'onde de chaleur, nous avons observé l'émission X résolue en temps de deux marqueurs placés à des profondeurs différentes dans une cible de plastique (voir figure 1.1). La cible était suffisamment épaisse ($300 \mu\text{m}$) pour ne pas être accélérée pendant la durée de la mesure, ce qui nous préservait de l'instabilité de Rayleigh-Taylor. Les marqueurs étaient des couches fines (0.05 ou $0.2 \mu\text{m}$) de vanadium et de titane enterrées respectivement à 5 et $15 \mu\text{m}$ ou bien 10 et $30 \mu\text{m}$. La température atteinte était suffisante pour que les traceurs émettent dans leur raies héliumoides. En utilisant un spectromètre résolu en temps, on peut alors distinguer spectralement l'émission de chaque traceur, et donc repérer l'instant auquel il est atteint par l'onde de chaleur. Un spectromètre à cristal de Ge a aussi été utilisé pour observer les raies d'émission de la couche de vanadium. Bien que dépourvu de résolution temporelle, ce spectromètre présente l'avantage d'être calibré en intensité. La comparaison des spectres d'émission avec le code de physique atomique détaillée TRANSPEC[15] donne une température et une densité moyenne dans le plasma de vanadium. A l'intensité maximale, celles-ci atteignent respectivement 2 keV et $2.5 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$, soit des valeurs bien plus élevées que celles de l'expérience de Gregori et collaborateurs.

Le diagnostic principal de cette expérience est un spectromètre à cristal cylindrique de graphite pyrolytique, couplé à une caméra X à balayage de fente. La gamme spectrale observée s'étend sur $\approx 1 \text{ keV}$ autour de 5 keV avec une résolution suffisante pour séparer les raies X d'intérêt, et la gamme temporelle est de 7 ns avec une résolution de 0.1 ns. Le spectre résolu en temps obtenu pour un tir laser de 7.2 kJ est montré sur la figure 1.2 à gauche. On y distingue les raies d'émission des traceurs correspondant à des transitions et des états de charges différents. La raie Ti-Ly α est visible entre les raies numérotées 1 et 2. On voit que la raie Ti-He β est légèrement retardée par rapport à la raie Ti-He α à cause du temps nécessaire à l'excitation collisionnelle de son niveau de départ. V et Ti étant des éléments voisins, la dynamique menant à l'émission d'une même raie (même transition, même état de charge) est supposée identique, et le délai

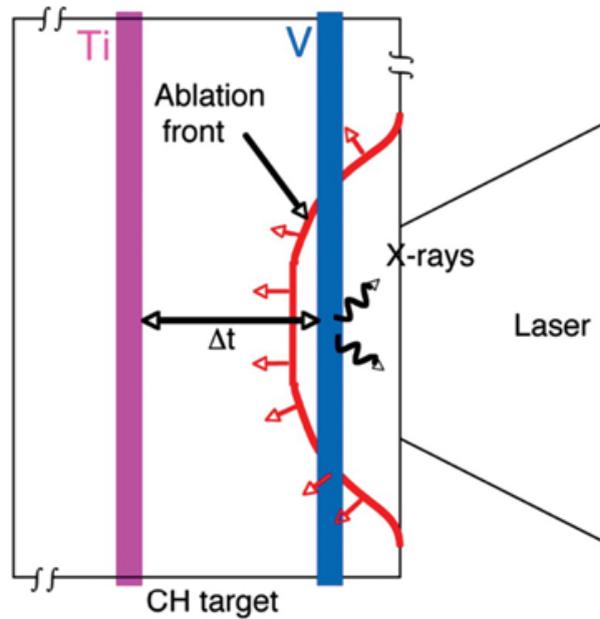


FIGURE 1.1 – Principe de l'expérience de mesure de la vitesse de l'onde thermique par spectroscopie résolue en temps.

d'émission entre les raies $V\text{-He}\alpha$ et $Ti\text{-He}\alpha$ est directement comparable au temps de transit de l'onde de chaleur entre les 2 traceurs. Ce délai est défini comme le temps entre l'apparition de chaque raie au dessus du fond continu de rayonnement bremsstrahlung.

1.2.2 Résultats et discussion

Des simulations ont été réalisées par les numériciens du CELIA en utilisant le code hydrodynamique 2D CHIC[16]. Plusieurs modèles de flux de chaleur ont été utilisés et le spectre d'émission X au cours du temps a été calculé pour chaque cas (figure 1.2 à droite). Ces spectres numériques permettent d'extraire un délai d'émission entre les deux traceurs de la même façon que pour les délais expérimentaux. Les résultats sont rassemblés dans le tableau 1.1. Comme attendu, le flux SH est trop élevé et donne des délais beaucoup trop courts. Un flux SH limité ne permet pas de restituer les délais mesurés pour différentes énergies laser avec la même valeur du limiteur f . Le modèle non-local seul (c'est à dire sans tenir compte de l'action du champ magnétique sur le flux de chaleur) n'a été utilisé pour une simulation qu'à une seule énergie, pour laquelle on voit immédiatement qu'il ne convient pas. Cela indique clairement l'importance de la prise en compte du champ magnétique pour le transport de chaleur. De plus, on voit que le flux non local est même plus intense que le flux SH non limité. Ce résultat contre-intuitif montre en fait que l'écoulement est intrinsèquement 2D. En effet l'énergie est déposée par le laser jusqu'à la densité critique ($\approx 10^{21} \text{ cm}^{-3}$), et est transportée vers l'intérieur de la cible par le flux longitudinal, mais une partie est également évacuée vers la plume de plasma par le flux latéral (c'est à dire parallèlement à la surface de la cible). La simulation montre que le flux latéral est fortement inhibé par l'effet non-local par rapport au modèle SH, ce qui a pour effet d'augmenter considérablement la température au centre du plasma, et au final d'augmenter le

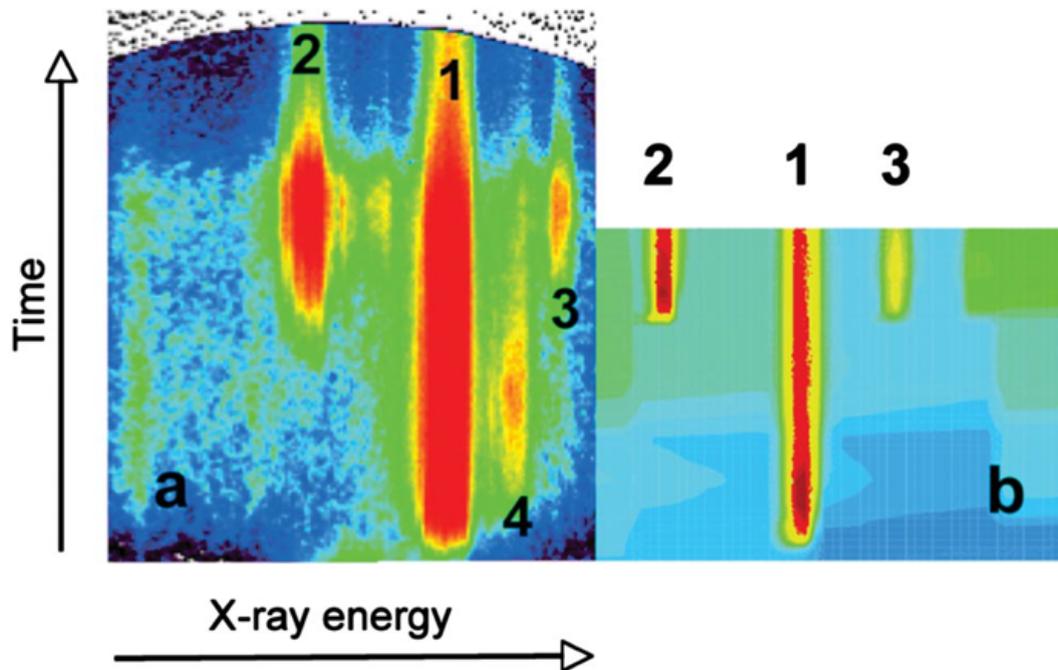


FIGURE 1.2 – Spectre résolu en temps mesuré (a) et simulé avec un flux de chaleur SH limité avec un limiteur à 7% (b). L'énergie laser est 7.2 kJ. 1 :V-He α 5204 eV, 2 :Ti-He α 4749 eV, 3 :Ti-He β 5581 eV, 4 :V-Ly α 5443 eV.

flux longitudinal, donc raccourcir la durée entre l'allumage des traceurs.

Le champ magnétique au contraire, a tendance à augmenter le flux de chaleur latéral par l'effet Righi-Leduc, ce qui diminue le flux longitudinal et allonge le délai entre l'allumage des traceurs. D'après la simulation, le paramètre de Hall est autour de 0.2 sur le bord de la tache focale du laser, ce qui limite le flux de 25% mais entraîne aussi une rotation de 40°. En présence de champ magnétique, la portée effective d'un électron entre deux collision est son rayon gyro-magnétique, qui est proportionnel à la vitesse de l'électron. En comparaison, le libre parcours moyen qui intervient dans le transport non-local varie avec la vitesse à la puissance 4. Comme le transport non-local est justement dû au grand l.p.m des électrons les plus rapides, on voit que le champ magnétique atténue l'effet non-local. C'est ce qui explique les valeurs somme toute assez proches entre la simulation "Braginskii" (champ magnétique seul), et "non-local + champ B" (champ magnétique et traitement non-local). Précisons ici que la stratégie retenue pour le couplage "non-local + champ B" a été d'appliquer les linéarisations successives à l'équation de Fokker-Planck avec champs magnétique, et la vitesse de Nernst utilisée est celle de Braginskii établie à la limite de faible magnétisation. Le tout est décrit dans la référence [8].

En conclusion, l'expérience que nous avons menée était suffisamment discriminante pour tester directement des modèles de flux de chaleur. Elle montrait que le problème est intrinsèquement 2D, et que le flux de chaleur longitudinal est en grande partie gouvernée par le flux radial, qui évacue plus ou moins d'énergie vers le bord du plasma et ainsi détermine sa température centrale. Ainsi l'effet dominant à prendre en compte pour restituer les mesures de notre expérience est l'effet Righi-Leduc alors que la description non-locale est une amélioration au second ordre.

TABLE 1.1 – Comparaison expérience-simulation des délais d'émission (en ns) entre des traceurs de V et Ti (épaisseur 0.2 μm) séparés de 10 μm .

Énergie Laser	4.2 kJ	7.2 kJ	10 kJ
Expérience	2.1 \pm 0.1	1.75 \pm 0.1	1.5 \pm 0.1
SH non limité	1.9	1.45	1.0
SH limité ($f = 0.07$)	2.45	1.75	1.5
SH limité ($f = 0.1$)	2.05	1.65	1.35
non-local	—	1.30	—
Braginskii	—	1.85	1.55
nonlocal + champ B	2.15	1.75	1.5

1.3 Mesure simultanée du flux de chaleur et du champ magnétique

L'élément principal à prendre en compte dans l'expérience décrite dans la section précédente est l'effet Righi-Leduc, engendré par le champ magnétique auto-généré par les gradients croisés de température et de pression. Hélas mesurer le champ magnétique qui s'étend sur quelques centaines de microns dans un plasma dense et à une échelle de temps nanoseconde n'est pas chose aisée, et nous ne pouvions pas le faire lors de cette expérience. Une telle mesure avait néanmoins été démontrée en utilisant une technique de radiographie protonique [17]. Cette technique repose sur la déflexion que subissent des protons lorsqu'ils traversent des zones de champ électrique ou magnétique. En produisant un faisceau de protons suffisamment énergétiques, on peut ainsi leur faire traverser le plasma à sonder avant de les récupérer sur un détecteur. Il est possible de produire un faisceau de proton de plus de 10 MeV en focalisant un laser sur une feuille mince à une intensité extrême, typiquement $\gtrsim 10^{19} \text{ W.cm}^{-2}$ [18]. De telles valeurs d'éclairement ne sont pas atteignables avec un laser nanoseconde, mais possibles avec un laser énergétique plus court (typiquement 100 J, 1 ps). De plus, la bouffée de protons produite est courte, ce qui donne une résolution temporelle à la mesure même avec un détecteur "simple" de type film radio-chromique (RCF). En revanche, appliquer cette technique à notre problématique nécessite l'utilisation synchronisée de deux lasers (le laser nanoseconde pour générer le plasma et maintenir le flux de chaleur le temps de la mesure, et le laser picoseconde pour générer les protons), ce qui n'était pas possible sur la LIL. C'est pourquoi en 2008 j'ai participé, en tant que *Principal Investigator* d'une collaboration de chercheurs des laboratoires CELIA et LULI, à la première mesure simultanée du flux de chaleur et du champ magnétique dans un plasma de FCI. Cette expérience constitue aussi un des volets de la thèse de L.Lancia, alors doctorante au LULI.

1.3.1 Expérience

L'expérience s'est déroulée sur l'installation LULI2000 du LULI, qui permettait l'utilisation de deux chaînes laser de puissance pour la même expérience. En revanche l'énergie disponible n'était pas aussi élevée que sur la LIL. Le lecteur pourra trouver une description détaillée de l'expérience dans la référence [19]. Le plasma étudié était obtenu en focalisant le faisceau nanoseconde *LULI2000* doublé en fréquence (longueur d'onde 526 nm) sur une cible solide. Nous avons fait varier l'énergie entre 200 et 400 J pendant un créneau temporel variant de 2 à 5 ns, obtenant ainsi un éclairement sur cible entre 1 et $3 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$. En plus des variations en intensité, nous avons utilisé deux lames de phase différentes (une *Phase Zone Plate* PZP, et une *Random Phase Plate* RPP) pour étudier l'influence de la forme de la tache focale du laser sur l'interaction. La PZP formait une tache focale super-gaussienne d'ordre 5 avec un plateau de diamètre 200 μm , tandis que la RPP donnait une tache gaussienne de 95 μm FWHM. Contrairement à la LIL, le LULI ne disposait pas de système de lissage des points chauds produits par la lame de phase utilisée.

La mesure du flux de chaleur reprenait le principe de l'expérience LIL. La cible avait été modifiée pour tenir compte de la moins grande énergie (et intensité) disponible au LULI : il fallait diminuer l'épaisseur de la zone de transport, et pour conserver une bonne maîtrise de l'incertitude relative sur cette épaisseur, nous avons utilisé un substrat de silicium qui permettait d'avoir une valeur très faible de rugosité. Nous avons mesuré les épaisseurs des différentes couches des cibles à 5% près par spectroscopie de rétro-diffusion Rutherford (RBS) au Centre d'Études de Bordeaux-Gradignan (CENBG) : Une première couche de silicium (0.3 μm) précède le premier traceur d'aluminium (0.09 μm), puis l'onde de chaleur doit parcourir la couche de transport en silicium de 1.6 μm avant d'atteindre le second traceur en bromure de potassium (0.2 μm). Le choix des traceurs était dicté par la gamme spectrale de fonctionnement de spectromètre utilisé, constitué d'un cristal tronç-conique de KAP et d'une caméra X à balayage de fente. Les délais étaient mesurés à partir de la raie heliomoïde α de l'aluminium, et de raies néonnoïdes du brome. Une couche de 25 μm de plastique était collée en face arrière pour assurer la stabilité Rayleigh-Taylor de la cible pendant la mesure (figure 1.3-a).

La radiographie protonique destinée à mesurer le champ magnétique était réalisée grâce au faisceau *PICO2000* que nous avons focalisé sur une feuille d'or d'épaisseur 25 μm . Nous avons utilisé ≈ 40 J de lumière à la longueur d'onde 1054 nm en une durée de 0.9 ± 0.1 ps, et obtenu une intensité $\approx 10^{19} \text{ W.cm}^{-2}$. Un faisceau de protons d'énergie maximale ≈ 13 MeV était alors produit et traversait la cible à sonder de part en part, avant d'être détectés par un empilement de RCF (figure 1.3-b).

La figure 1.3-c montre le schéma général de l'expérience au niveau de la cible d'interaction. Les deux principaux diagnostics que je viens d'évoquer étaient complétés par deux autres, destinés à caractériser le dépôt d'énergie. En effet le flux de chaleur est piloté par l'énergie laser déposée dans le plasma. La quantité déposée était mesurée par une imagerie calibrée qui quantifiait la proportion non-absorbée du laser, par l'intermédiaire d'un écran diffusant (noté Spectralon sur la figure 1.3-c). Enfin la zone d'interaction était imagée dans le domaine des X par une chambre à sténopé filtrée par 6 μm d'aluminium, et utilisant des écrans radio-luminescents à mémoire (ERLM, ou IP pour *Image Plate*). Pour raison d'encombrement, ce dernier diagnostic était situé

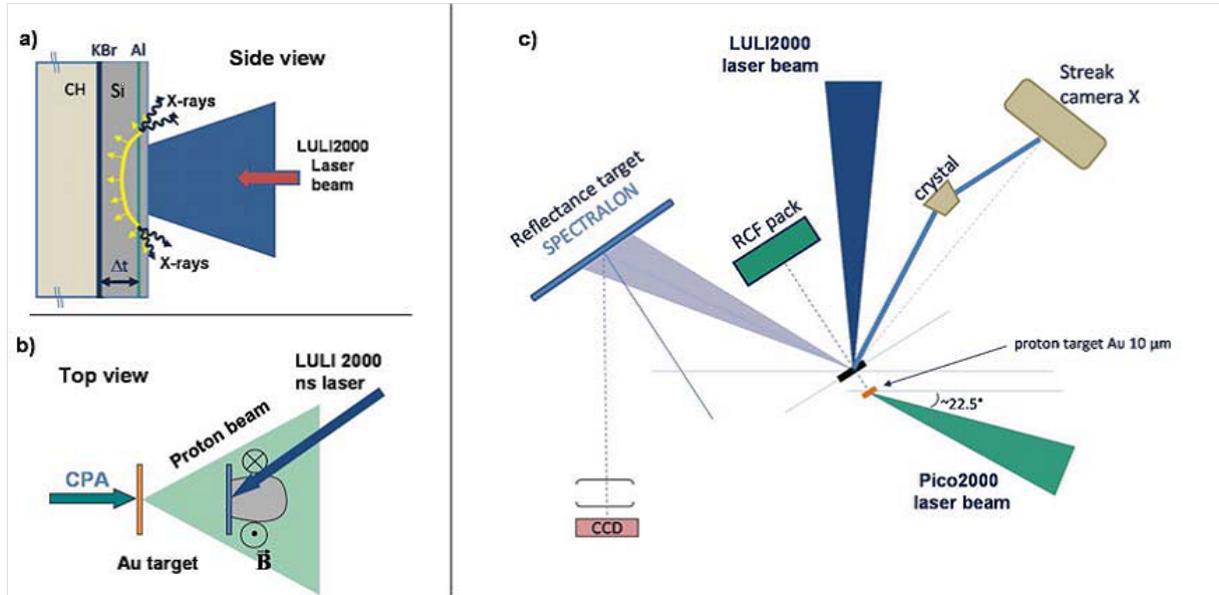


FIGURE 1.3 – a) Cible composite éclairée par le faisceau ns. b) Principe de la mesure du champ magnétique par radiographie protonique. c) Schéma de l'expérience autour de la cible d'interaction (vue de dessus). L'imageur X à sténopé n'est pas représenté. L'ensemble des éléments étaient contenus dans l'enceinte sous vide, à l'exception de la CCD 'regardant' le Spectralon.

au dessus du faisceau *PICO2000* et n'est pas représenté sur la figure 1.3-c.

1.3.2 Résultats et discussion

Comme pour l'expérience précédente, nous avons comparé nos mesures avec les résultats de simulations hydrodynamiques 2D réalisées avec CHIC. L'analyse de la lumière réfléchie indique qu'environ 90% de la lumière du faisceau nanoseconde était absorbée par la cible, en très bon accord avec la simulation. Pour des questions d'encombrement liées à l'utilisation de deux faisceaux, le faisceau nanoseconde *LULI2000* avait un angle d'incidence de 32.5° sur la cible, ce qui générerait une tache focale projetée elliptique. Néanmoins, l'imagerie par sténopé X indiquait que la zone chaude et dense émissive dans le domaine X était presque parfaitement circulaire. Ceci suggère que l'expansion du plasma étant plus rapide suivant la direction du petit axe de l'ellipse, le problème peut être traité en géométrie axi-symétrique. Lorsque la lame de phase PZP était utilisée, la zone émissive dans le domaine X avait un diamètre de l'ordre de $270 \mu\text{m}$, et celui-ci était d'environ $180 \mu\text{m}$ lorsque la tache focale obtenue avec la RPP était utilisée. Ces tailles, plus larges que celles de la tache focale laser, intègrent le transport de chaleur radial et l'expansion du plasma. L'élargissement relatif observé était plus important pour la petite tache focale gaussienne (RPP) que la grosse tache super-gaussienne (PZP).

Les délais correspondant au temps de transit de l'onde de chaleur entre les deux traceurs inclus dans la cible sont montrés dans la figure 1.4, pour les deux taches focales utilisées et plusieurs intensités sur cible. Aux plus basses intensités testées, ce délai ne dépend pas de la tache focale utilisée. Quand l'intensité du laser nanoseconde augmente, le délai diminue comme attendu,

mais la décroissance est moins prononcée pour la tache obtenue avec la RPP que l'autre. Cette mesure suggère une limitation du flux de chaleur longitudinal plus importante avec la tache RPP, qui présente un profil radial variant plus que la tache PZP (à cause de sa forme gaussienne et de sa taille plus petite). Ce résultat confirme ce que l'expérience précédente nous avait appris, à savoir l'influence capitale du flux radial sur le flux longitudinal. Les simulations reproduisent grossièrement ce comportement, mais on note cependant que pour les intensités supérieures à $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ les délais calculés sont systématiquement trop courts d'environ 15 à 20%.

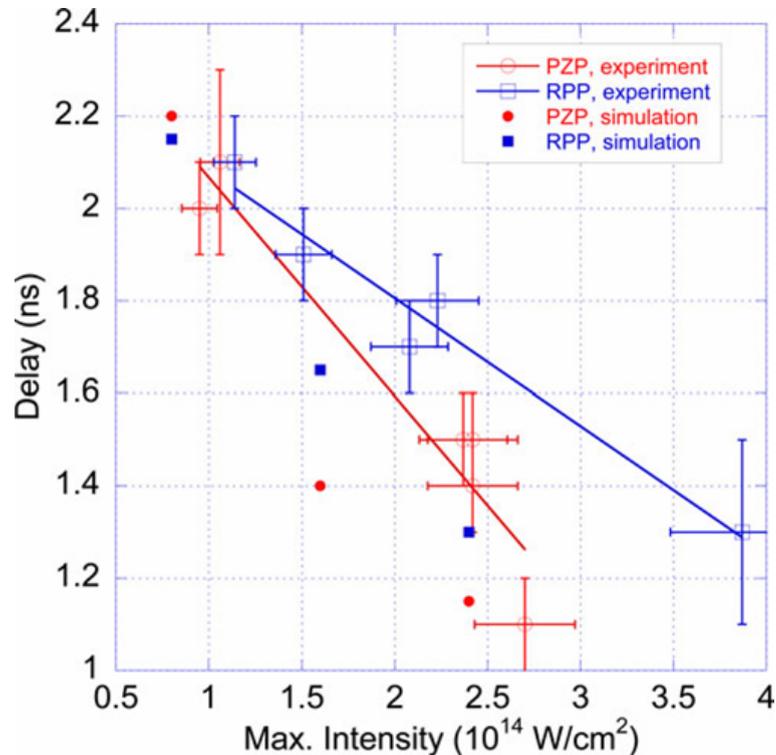


FIGURE 1.4 – Délais mesurés et simulés entre l'émission des deux traceurs, pour les taches focales données par les deux lames de phase utilisées et en fonction de l'intensité laser. Les lignes sont des guides visuels.

La figure 1.5 montre des images typiques de la radiographie protonique. Sur ces images, une micro-grille était insérée entre la source de protons et le plasma sondé, afin de fournir une échelle spatiale sur le détecteur RCF. La synchronisation entre les deux lasers était réglée de telle sorte que les protons sondent le plasma 0.6 ns après le début de l'interaction. Les protons sont défléchis lorsqu'ils traversent une zone de fort champ magnétique, dont on voit bien la forme torique (ici aussi, comme sur les images de sténopé X, on retrouve la forme circulaire plutôt qu'elliptique).

La radiographie protonique ne donne pas directement une mesure (ni même une image) du champ magnétique. Nous avons donc comparé ses résultats à des simulations obtenues à partir des cartes de champ magnétique calculés par CHIC, en intégrant les équations du mouvement des protons depuis la source jusqu'au détecteur. Le résultat de ce post-traitement est la modulation de densité de protons vue par le récepteur. La figure 1.6 montre cette comparaison pour

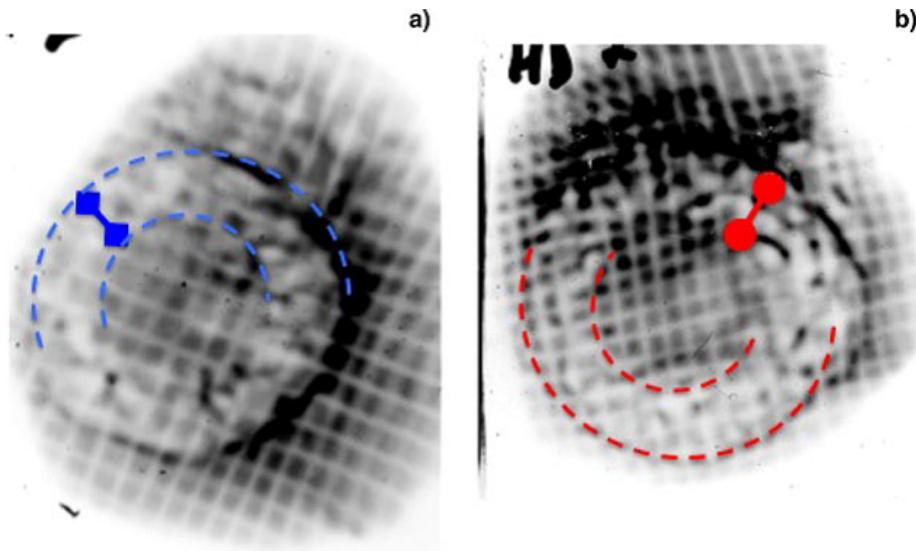


FIGURE 1.5 – Images typiques obtenues par radiographie protonique, pour les taches focales du laser nanoseconde obtenues par les lames de phase RPP (a) et PZP (b). Les arcs de cercle en pointillés indiquent la région toroïdale où le faisceau de proton est perturbé par le champ magnétique du plasma sondé.

deux cas : un cas "bas flux" ($\approx 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$) pour lequel les gradients et les flux sont faibles (nous n'avons pas pu mesurer le temps de transit entre les traceurs pour ce cas), et un cas à plus haute intensité ($\approx 2 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$). À bas flux, la mesure est correctement reproduite, ce qui indique que le terme source du champ magnétique est bien décrit. En revanche à haut flux, nos mesures montrent que l'extension radiale du champ magnétique est largement sous-estimée (d'environ un facteur 2), et l'erreur est plus flagrante avec la tache RPP que PZP. Ceci suggère que l'effet Nernst est sous-estimé dans nos simulations.

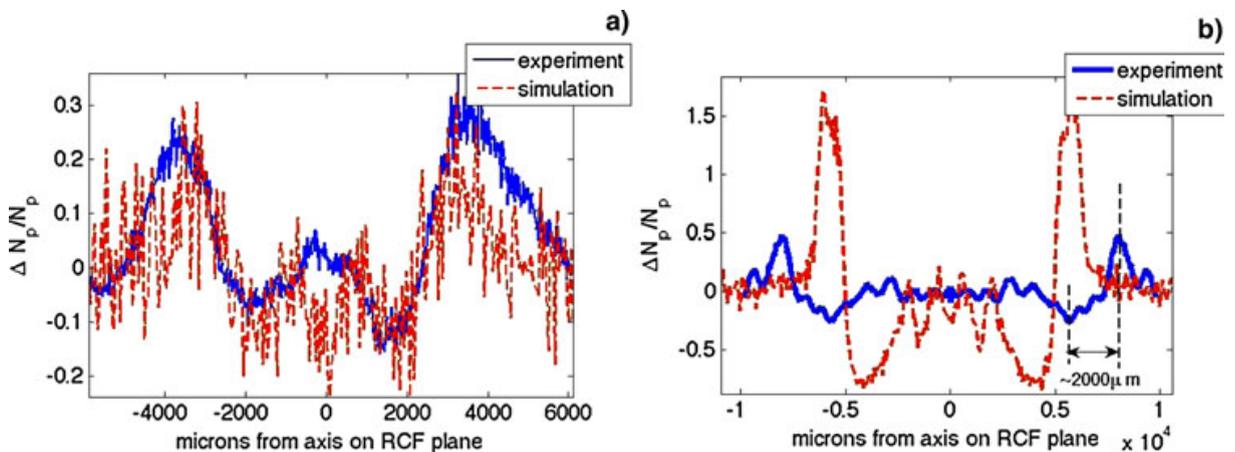


FIGURE 1.6 – Profils de la modulation de densité de protons vue par le récepteur mesurés et reconstruits à partir des simulations, pour (a) un cas "bas flux" ($\approx 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$), et (b) un cas à plus haute intensité ($\approx 2 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$) avec la lame de phase PZP.

Même si la simulation hydrodynamique ne reproduit pas toutes les observations, les écarts entre la simulation et l'expérience sont cohérents avec la compréhension que nous avons du lien entre le champ magnétique auto-généré dans le plasma, le flux de chaleur radial (via l'effet Righi-Leduc), et l'inhibition du flux longitudinal. Le temps de transit est sous-estimé (i.e. le flux de chaleur longitudinal sur-estimé) alors que l'extension du champ magnétique (et donc du flux radial) l'est aussi. Cette observation se retrouve pour les deux taches focales utilisées, et montre que l'effet est plus important, en proportion, pour une petite tache focale qu'une grande. Bien que nous ne l'ayons pas démontré, il est fort probable que le désaccord entre l'expérience et la simulation provienne de la vitesse de Nernst utilisée dans celle-ci (rappelons que c'est l'expression de Braginskii qui avait été choisie), puisque cette vitesse influe directement sur l'advection du champ magnétique. Enfin, rappelons que nous avons un très bon accord expérience-simulation sur le temps de transit de l'onde de chaleur lors de l'expérience LIL, bien que les intensités atteintes lors de celle-ci aient été bien supérieures. Ceci n'est pas contradictoire avec ce que l'on vient de voir car la tache focale du laser était alors bien plus large, et l'influence de l'advection du champ magnétique est moindre.

1.4 Conclusion sur le chapitre 1

Ce chapitre présentait donc une partie de ma contribution à l'étude des plasmas chauds et denses dans le contexte de la fusion à confinement inertiel. Il concerne plus précisément le flux de chaleur électronique dans les expériences d'interaction laser-plasma, et l'effet du champ magnétique auto-généré d'une part, et de la présence de gradients forts d'autre part. La complexité de l'interaction impose l'utilisation de codes hydrodynamiques pour la décrire, qui sont forcément approchés. A l'époque de ces travaux, le flux de chaleur était un des éléments limitant la prédictibilité des simulations, ce qui a motivé les études décrites.

Le travail réalisé repose essentiellement sur la réalisation de deux campagnes expérimentales à la LIL et au LULI, et à leur comparaison avec des simulations hydrodynamiques CHIC. La première expérience a montré le caractère intrinsèquement 2D du phénomène et le rôle fondamental du flux radial comme régulateur du flux longitudinal. Ce flux radial est augmenté par le champ magnétique auto-généré *via* l'effet Righi-Leduc. Lors de la deuxième expérience, nous avons caractérisé pour la première fois simultanément le flux de chaleur longitudinal et le champ magnétique auto-généré. Cette expérience a confirmé le lien intime existant entre les deux, et a montré que l'effet Nernst conduisant à l'extension radiale du champ magnétique était sous-estimé dans nos simulations.

Depuis, d'autres expériences ont confirmé ces conclusions[20; 21]. Les résultats des expériences que je viens de décrire ont également servi à valider des simulations hydrodynamiques de collègues du CEA/DIF, qui ont réussi avec le code FCI2 à reproduire nos mesures de temps de transit et de carte de champs magnétique. Les simulations étaient bien sûr effectuées sans limiteur de flux ; la façon de prendre en compte le champ magnétique dans le flux de chaleur était très similaire à celle suivie dans CHIC, en revanche la vitesse de Nernst était celle de l'expression thermique.

Références du chapitre 1

- [1] R. DAUTRAY et J.-P. WATTEAU : *La fusion thermonucléaire inertielle par laser*. Eyrolles, 1993.
- [2] L. SPITZER et R. HÄRM : Transport phenomena in a completely ionized gas. *Phys. Rev.*, 89:977–981, Mar 1953.
- [3] G. P. SCHURTZ, Ph. D. NICOLAÏ et M. BUSQUET : A nonlocal electron conduction model for multidimensional radiation hydrodynamics codes. *Physics of Plasmas*, 7(10):4238–4249, 2000.
- [4] S. I. BRAGINSKII : Transport properties in a plasma. *Review of Plasma Physics*, 1:205–311, 1965.
- [5] J. F. LUCIANI, P. MORA et J. VIRMONT : Nonlocal heat transport due to steep temperature gradients. *Phys. Rev. Lett.*, 51:1664–1667, Oct 1983.
- [6] E. M. EPPERLEIN et R. W. SHORT : A practical nonlocal model for electron heat transport in laser plasmas. *Physics of Fluids B : Plasma Physics*, 3(11):3092–3098, 1991.
- [7] Ph. NICOLAÏ, M. VANDENBOOMGAERDE, B. CANAUD et F. CHAIGNEAU : Effects of self-generated magnetic fields and nonlocal electron transport in laser produced plasmas. *Physics of Plasmas*, 7(10):4250–4258, 2000.
- [8] Ph. D. NICOLAÏ, J.-L. A. FEUGEAS et G. P. SCHURTZ : A practical nonlocal model for heat transport in magnetized laser plasmas. *Physics of Plasmas*, 13(3):032701, 2006.
- [9] T. H. KHO et M. G. HAINES : Nonlinear kinetic transport of electrons and magnetic field in laser-produced plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, 55:825–828, Aug 1985.
- [10] G. GREGORI, S. H. GLENZER, J. KNIGHT, C. NIEMANN, D. PRICE, D. H. FROULA, M. J. EDWARDS, R. P. J. TOWN, A. BRANTOV, W. ROZMUS et V. Yu. BYCHENKOV : Effect of nonlocal transport on heat-wave propagation. *Phys. Rev. Lett.*, 92:205006, May 2004.
- [11] J.A. HARTE, W.E. ALLEY, D.S. BAILEY, J. L. EDDLEMAN et G. B. ZIMMERMAN : LASNEX : A 2-D physics code for modeling ICF. In *Lawrence Livermore National Laboratory ICF Annual Report*, pages 150 – 164, 1996.
- [12] E. M. EPPERLEIN, G. J. RICKARD et A. R. BELL : Two-dimensional nonlocal electron transport in laser-produced plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, 61:2453–2456, Nov 1988.
- [13] G. SCHURTZ, S. GARY, S. HULIN, C. CHENAIS-POPOVICS, J.-C. GAUTHIER, F. THAIS, J. BREIL, F. DURUT, J.-L. FEUGEAS, P.-H. MAIRE, P. NICOLAÏ, O. PEYRUSSE, C. REVERDIN, G. SOULLIÉ, V. TIKHONCHUK, B. VILLETTE et C. FOURMENT : Revisiting nonlocal electron-energy transport in Inertial-Fusion conditions. *Phys. Rev. Lett.*, 98:095002, Feb 2007.
- [14] J.M. DI-NICOLA, N. FLEUROT, T. LONJARET, X. JULIEN, E. BORDENAVE, B. LE GARREC, M. MANGEANT, G. BEHAR, T. CHIES, C. FÉRAL, H. GRAILLOT, M. LUTTMANN, F. JEQUIER, E. JOURNOT, O. LUTZ et G. THIELL : The LIL facility quadruplet commissioning. *J. Phys. IV France*, 133:595–600, 2006.
- [15] O. PEYRUSSE : Atomic configuration averages and non-local thermodynamical equilibrium plasma spectroscopy calculations. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 32(3):683–700, 1999.
- [16] P.-H. MAIRE, R. ABGRALL, J. BREIL et J. OVADIA : A cell-centered lagrangian scheme for two-dimensional compressible flow problems. *SIAM Journal on Scientific Computing*, 29(4):1781–1824, 2007.
- [17] P. M. NILSON, L. WILLINGALE, M. C. KALUZA, C. KAMPERIDIS, S. MINARDI, M. S. WEI, P. FERNANDES, M. NOTLEY, S. BANDYOPADHYAY, M. SHERLOCK, R. J. KINGHAM, M. TATARAKIS, Z. NAJMUDIN, W. ROZMUS, R. G. EVANS, M. G. HAINES, A. E. DANGOR et K. KRUSHELNICK : Magnetic reconnection and plasma dynamics in two-beam laser-solid interactions. *Phys. Rev. Lett.*, 97:255001, Dec 2006.

- [18] R. A. SNAVELY, M. H. KEY, S. P. HATCHETT, T. E. COWAN, M. ROTH, T. W. PHILLIPS, M. A. STOYER, E. A. HENRY, T. C. SANGSTER, M. S. SINGH, S. C. WILKS, A. MACKINNON, A. OFFENBERGER, D. M. PENNINGTON, K. YASUIKE, A. B. LANGDON, B. F. LASINSKI, J. JOHNSON, M. D. PERRY et E. M. CAMPBELL : Intense high-energy proton beams from Petawatt-laser irradiation of solids. *Phys. Rev. Lett.*, 85:2945–2948, Oct 2000.
- [19] L. LANCIA, C. FOURMENT, J. FUCHS, J.-L. FEUGEAS, Ph. NICOLAI, S. BASTIANI-CECCOTTI, M. GAUTHIER, S. HULIN, M. NAKATSUTSUMI, M. RABEC-LE-GLOAHEC, J. J. SANTOS et G. SCHURTZ : Simultaneous measurement of self-generated magnetic fields and electron heat transport in dense plasma. *Laser and Particle Beams*, 31(4):653–661, 2013.
- [20] L. WILLINGALE, A. G. R. THOMAS, P. M. NILSON, M. C. KALUZA, S. BANDYOPADHYAY, A. E. DANGOR, R. G. EVANS, P. FERNANDES, M. G. HAINES, C. KAMPERIDIS, R. J. KINGHAM, S. MINARDI, M. NOTLEY, C. P. RIDGERS, W. ROZMUS, M. SHERLOCK, M. TATARAKIS, M. S. WEI, Z. NAJMUDIN et K. KRUSHELNICK : Fast advection of magnetic fields by hot electrons. *Phys. Rev. Lett.*, 105:095001, Aug 2010.
- [21] L. LANCIA, B. ALBERTAZZI, C. BONIFACE, A. GRISOLLET, R. RIQUIER, F. CHALAND, K.-C. LE THANH, Ph. MELLOR, P. ANTICI, S. BUFFECHOUX, S. N. CHEN, D. DORIA, M. NAKATSUTSUMI, C. PETH, M. SWANTUSCH, M. STARDUBTSEV, L. PALUMBO, M. BORGHESI, O. WILLI, H. PÉPIN et J. FUCHS : Topology of Megagauss magnetic fields and of heat-carrying electrons produced in a high-power laser-solid interaction. *Phys. Rev. Lett.*, 113:235001, Dec 2014.

CHAPITRE 2

Développement de diagnostics pour l'étude de plasmas créés par laser

La qualité d'une expérience repose entre autre sur la connaissance précise et la bonne utilisation d'appareils de mesure. Cela demande parfois un investissement important, comme je le présente dans ce chapitre sur deux exemples qui correspondent aux plasmas créés par laser dont j'ai abordé l'étude au CELIA. Le premier exemple concerne l'utilisation d'une CCD comme spectromètre X sans élément dispersif, dans une gamme d'énergie allant typiquement de un à quelques dizaines de kilo-électronvolts [1]. Comme on l'a vu au chapitre 1, la spectroscopie X est un diagnostic classique des plasmas chauds et denses. En effet, ceux-ci sont naturellement le siège de rayonnement électromagnétique du fait de la présence en leur sein de particules chargées en mouvement. Lorsque la température électronique est de l'ordre de quelques centaines d'électronvolts ou plus (en équivalent de température, $1 \text{ eV} \approx 11600 \text{ K}$), le domaine spectral de ce rayonnement s'étend jusqu'aux rayons X [2]. Du fait du pouvoir pénétrant des X, ceux-ci peuvent "sortir" du plasma et apporter des informations sur le cœur de celui-ci.

La seconde section de ce chapitre concerne une expérience d'interférométrie dans le domaine des fréquences spécialement optimisée pour l'étude de plasmas denses et tièdes [3; 4], ce qui fera l'objet du chapitre 3. Ces plasmas WDM (pour *Warm Dense Matter*) ne sont pas assez chauds pour émettre du rayonnement X. Ils peuvent être caractérisés par spectroscopie X non pas d'émission, mais d'absorption. Il est alors nécessaire de disposer d'une source X annexe pour sonder le plasma. Les plasmas tièdes et denses créés par laser évoluant très rapidement (avec un temps caractéristique de l'ordre de la picoseconde voire moins), la résolution temporelle doit être du même ordre. Les capteurs n'étant pas assez rapides pour atteindre une durée d'intégration aussi faible, c'est la durée de la source X annexe qui fixe la résolution. La méthode a été démontrée avec succès en utilisant un plasma chaud et dense lui-même créé par laser comme source annexe[5], ce qui permettait une résolution d'environ 3 ps. Une résolution

inférieure à 100 fs a ensuite été obtenue en utilisant le rayonnement issu d'un laser à électron libre (FEL pour *Free Electron Laser*) émettant dans le domaine X[6], ou le rayonnement béta-tron issu de l'interaction entre un laser très intense et un plasma sous-dense, dans le régime relativiste[7].

Le diagnostic d'interférométrie dont je discuterai ici est complémentaire à la spectroscopie X, et repose sur l'utilisation d'une sonde optique. Cela permet d'obtenir une excellente résolution (< 100 fs) avec une installation "de table". Le rayonnement optique ne pénètre pas profondément dans un plasma dense car la densité électronique y est bien supérieure à la densité critique pour la propagation de la lumière (de l'ordre de 10^{21} cm^{-3}). Il peut néanmoins sonder de façon très précise la surface et les quelques dizaines de nanomètres plus en profondeur. Une sonde optique est sensible à la dynamique électronique des électrons libres ou faiblement liés, dont l'influence est primordiale sur les propriétés de la WDM[8]. De plus, la surface apporte des informations en particulier sur l'évolution hydrodynamique[9]. Un diagnostic optique apporte donc des informations sur deux aspects fondamentaux rencontrés dans les expériences sur la WDM.

2.1 CCD X utilisée en spectromètre large bande et haute dynamique

2.1.1 Contexte

2.1.1.1 Rayonnement X des plasmas

Comme dit précédemment, un plasma chaud est le siège de rayonnement X qui peut s'en échapper, et être utilisé en tant que tel (source X) ou bien à des fins de diagnostic du plasma. Les mécanismes de génération du rayonnement sont multiples, comme le schématise la figure 2.1 dans le cas très classique de la production d'un plasma chaud par l'interaction d'un laser intense avec une cible solide : Une partie de l'énergie laser est déposée à la surface de la cible, qui passe à l'état de plasma chaud. Ce plasma produit une émission X dite *thermique* parce qu'elle provient des processus de physique atomique collisionnels et radiatifs entre les constituants du plasma animés par l'agitation thermique. Une autre partie de l'énergie laser peut être transférée par plusieurs mécanismes (notamment le chauffage pondéromoteur $\vec{j} \times \vec{B}$, l'absorption résonnante et l'effet Brunel) vers une population *suprathermique* d'électrons qui acquièrent une vitesse bien supérieure à la vitesse moyenne des électrons du plasma. Ils peuvent se propager dans la profondeur de la cible froide et générer un rayonnement de façon similaire à un tube X. La génération proprement dite du rayonnement X s'explique au niveau atomique. Elle est occasionnée par des transitions entre différents états électroniques [2]. Certaines de ces transitions impliquent au moins un état libre (i.e. un électron libre du plasma) : Transitions libre-libre (diffusion d'un électron libre par un ion) qui génèrent le rayonnement "de freinage" ou *bremsstrahlung*, et transitions libre-lié (capture d'un électron libre par un ion) qui génèrent le rayonnement de recombinaison radiative. Ces deux rayonnements ont un spectre continu, sans structure particulière hormis les seuils correspondant aux énergies de liaison visibles dans le cas

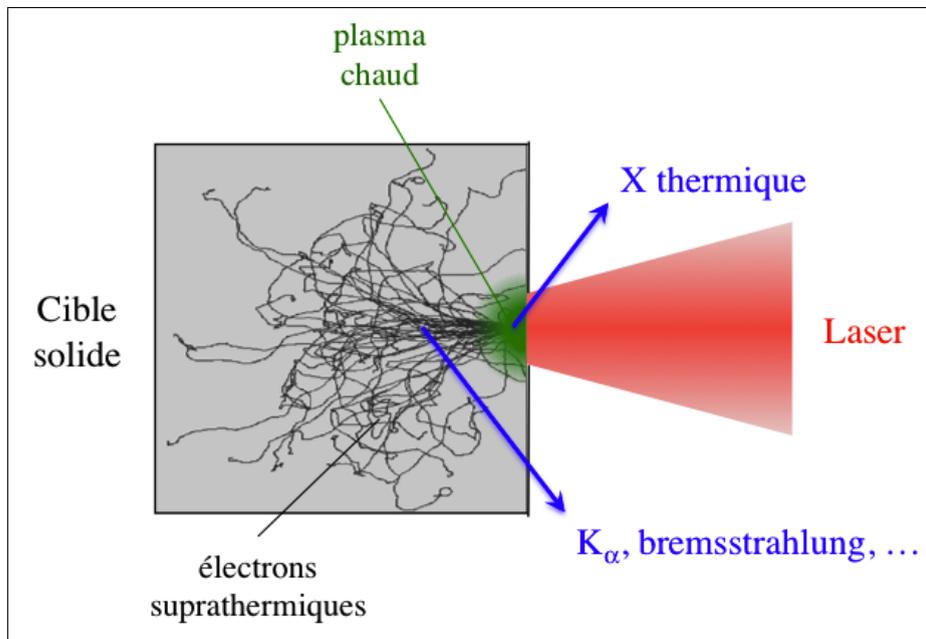


FIGURE 2.1 – Schéma de l'interaction entre une impulsion laser intense et brève avec une cible solide. On y distingue une zone de plasma chaud et dense où est généré le rayonnement "thermique", d'une zone froide dans laquelle des électrons très énergétiques génèrent le rayonnement "suprathermique". Figure tirée de [10]

du rayonnement de recombinaison radiative, mais dont la forme globale dépend de la distribution des électrons libres. Au contraire, les transitions entre deux états liés correspondent à un spectre de raies. Ces transitions sont en nombre assez limité en ce qui concerne l'émission issue d'un électron suprathermique dans la zone froide de la cible (voir figure 2.2 en haut à gauche). Dans ce cas, l'électron énergétique crée une lacune en couche interne d'un atome (couche K par exemple). Elle est rapidement comblée lors d'une transition radiative depuis un niveau d'énergie supérieur (couche L dans l'exemple), et un photon (appelé K_{α} dans ce même exemple) emporte la différence d'énergie entre les niveaux. Dans le plasma chaud le nombre de mécanisme est beaucoup plus grand du fait que plusieurs états d'ionisation coexistent avec un nombre potentiellement gigantesque de configurations électroniques entre lesquelles on peut observer des transitions radiatives (la figure 2.2 en haut à droite montre seulement quelques voies radiatives possibles, et ce pour un seul état d'ionisation). La mesure des rayonnements bremsstrahlung et K_{α} donne des informations sur la population suprathermique. Le rayonnement thermique étant beaucoup plus complexe, sa description fait appel à des hypothèses simplificatrices. On peut néanmoins tirer des informations sur les conditions du plasma par comparaison entre un spectre X mesuré et un code de physique atomique détaillé, comme évoqué au paragraphe 1.2.

2.1.1.2 Spectromètres X

En optique et dans le domaine des X, les spectres hautement résolus sont en général mesurés en utilisant un système dispersif en sortie duquel des photons d'énergies différentes sont dirigés dans des directions différentes. Par convention, ce type de spectromètre est parfois appelé dans

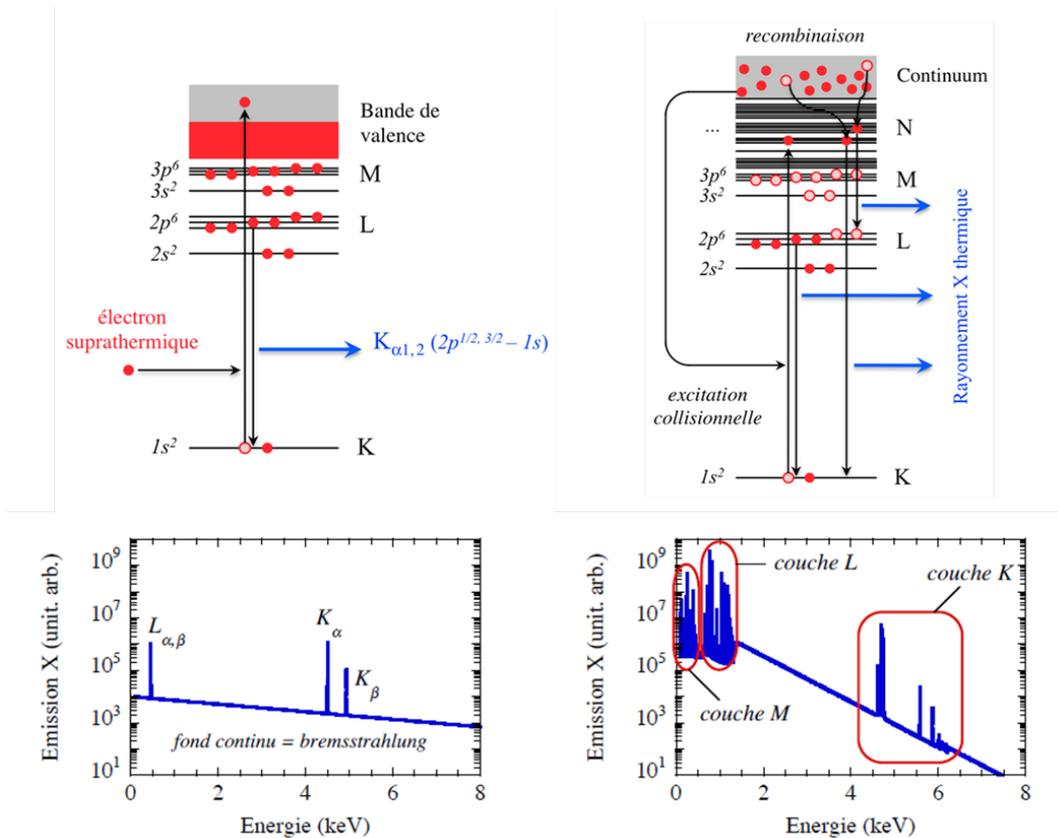


FIGURE 2.2 – Haut : vue schématique des processus de physique atomique menant à des spectres de raie pour les deux types d'émission X considérés lors de l'interaction laser – cible solide (ici du titane). Gauche : rayonnement dit "suprathermique". Les électrons rapides créent des lacunes dans les couches internes, qui peuvent être comblées lors d'une transition radiative depuis un niveau d'énergie supérieure. Droite : rayonnement dit "thermique". La physique atomique est plus riche du fait du plus grand nombre de lacunes, et chaque configuration électronique différente donne un schéma du même genre. En bas : spectres typiques correspondant au rayonnement "suprathermique" (gauche) et "thermique" (droite). Figures tirées de [10]

la littérature "dispersif en longueur d'onde". Dans le domaine X, l'élément dispersif est constitué d'un cristal : seuls les photons qui vérifient la loi de Bragg, reliant leur longueur d'onde et leur angle d'incidence par rapport à un plan cristallin, seront réfléchis par celui-ci. Les spectromètres à cristal peuvent être extrêmement résolants. Leur pouvoir de résolution, défini comme le rapport de la longueur d'onde (ou énergie) détectée sur la résolution à cette longueur d'onde (ou énergie), $\lambda/\delta\lambda = E/\delta E$, est de l'ordre de mille ou plus. Ils sont donc très employés pour résoudre le grand nombre de raies dans les spectres des plasmas chauds et denses, comme illustré sur la figure 2.3. Ils sont relativement versatiles grâce aux diverses formes qui sont données aux cristaux utilisés (plan, sphérique, cylindrique, tronc-conique) et aux différents matériaux disponibles [11]. Enfin en utilisant une caméra à balayage de fente comme détecteur, on peut obtenir des spectres balayés en temps, comme par exemple dans les expériences du chapitre 1. Cependant, un spectromètre à cristal présente quelques inconvénients. Premièrement, l'efficacité est faible (il faut une source très brillante), surtout si l'on ajoute une caméra à balayage de fente ; pour cette raison, il faut souvent placer le cristal assez proche du plasma, ce qui génère

un fort encombrement, et peut également être source de bruit important à cause de rayons X de fluorescence provenant du cristal lui-même. Deuxièmement, la gamme spectrale que l'on peut raisonnablement espérer reste souvent limitée (typiquement de l'ordre du keV ou moins); pour enregistrer un spectre sur une gamme de plusieurs dizaines de keV, il faut alors multiplier le nombre de spectromètres installés, ce qui devient rédhibitoire pour des raisons d'encombrement et de coût. Il faut toutefois citer ici un spectromètre à cristal en transmission développé spécifiquement pour observer les rayons X sur une très large gamme $\approx 12 - 60$ keV [12]. Ce type de spectromètre a depuis été utilisé aux laboratoires LULI, CELIA, et un exemplaire devrait équiper l'installation LMJ-PETAL [13]. Néanmoins, il est limité aux X relativement durs ($\gtrsim 10$ keV), a un pouvoir de résolution de l'ordre de 50 à 250 sur cette gamme spectrale, et est assez encombrant car il doit être monté proche (50 cm) du plasma. Enfin, il est délicat de calibrer en absolu un spectromètre à cristal, et cette calibration n'est valable que pour une configuration donnée et doit en toute rigueur être réalisée périodiquement car la réponse spectrale d'un certain nombre d'éléments peut varier dans le temps à cause d'usure ou de pollution [14].

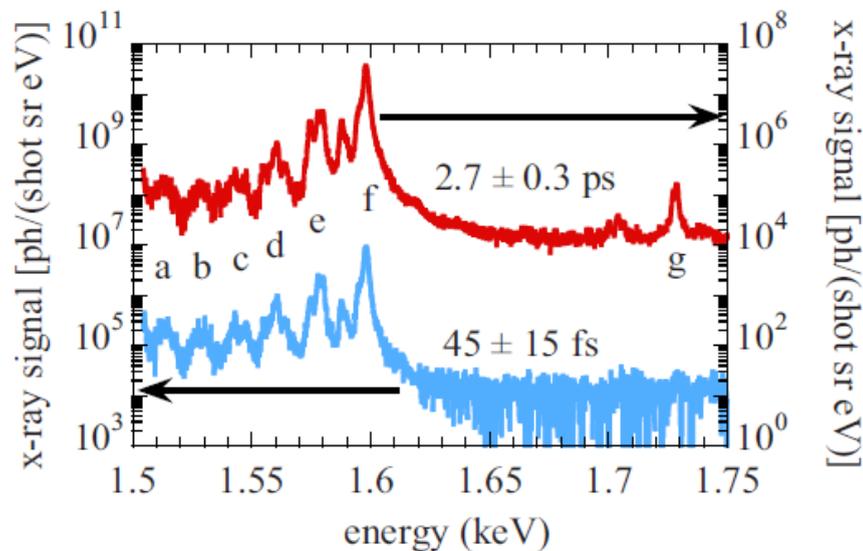


FIGURE 2.3 – Spectres obtenus à partir d'une cible d'aluminium impactée par laser intense, pour deux durées d'impulsion différentes, 45 fs (axe de gauche) et 2.7 ps (axe de droite). Les raies notées f et g sont les raies He_{α} et Ly_{α} . Les raies à plus basse énergie (a, b, c, d et e) sont des transitions $2p - 1s$ dans des ions d'état d'ionisation plus bas. Figure tirée de [15]

Pour les raisons citées précédemment, un autre type de spectromètre est également utilisé, avec lequel on sacrifie de la résolution spectrale pour gagner en gamme spectrale et si possible en simplicité. Ils reposent sur la variation spectrale de la réflexion ou transmission des matériaux. Pour cela, on place des détecteurs proportionnels après des feuilles (transmission) et/ou des miroirs (réflexion) de matériaux choisis, qui vont jouer le rôle de filtre passe bande ou passe haut et ainsi découper le domaine spectral en canaux. On peut ainsi obtenir un spectromètre très simple, compact, et assez souple en terme de positionnement autour du plasma étudié, à partir d'un empilement d'écrans radio-luminescents à mémoire (ERLM, ou IP pour *Image Plate* en anglais) et de feuille de différents matériaux [16]. Une version plus complexe a été déployée

sur le laser LIL, et possédait une résolution temporelle de l'ordre de 100 ps sur une gamme spectrale allant de 50 eV à 20 keV [17], grâce à l'utilisation de détecteurs de type photodiodes. Une limitation de ce type de spectromètre résulte intrinsèquement de sa conception : on ne mesure pas à proprement parler des photons que l'on place sur une échelle de longueur d'onde, mais on mesure plutôt la quantité de rayonnement dans un nombre relativement faible de canaux (18 pour le cas cité précédemment), ce qui limite énormément la résolution spectrale. De plus, les canaux peuvent se chevaucher, et la procédure d'interprétation consiste à présupposer un spectre, puis à l'ajuster en simulant le signal correspondant dans chaque canal que l'on compare aux mesures. Au final, il peut arriver que la solution ne soit pas unique.

Des spectromètres dits à *dispersion en énergie* sont aussi couramment utilisés. Leur principe repose sur l'emploi d'un détecteur dont la réponse est proportionnelle à l'énergie portée par un photon unique [18]. Pour des X de 1 à quelques keV, les premiers détecteurs de ce type qui ont été mis au point reposent sur l'ionisation d'un gaz par le photon incident, ce sont les compteurs proportionnels à gaz. A plus haute énergie, on utilise plutôt un scintillateur couplé à un photomultiplicateur car les compteurs à gaz deviennent transparents pour les photons. Le pouvoir de résolution de ces détecteurs est assez médiocre, ≈ 5 pour le compteur proportionnel à gaz et ≈ 2 pour un scintillateur NaI(Tl) à 5.9 keV [11]. Pour cette raison on peut leur préférer un détecteur à jonction constitué par une diode semi-conductrice (typiquement Ge ou Si) polarisée en inverse. Ces détecteurs ont une bande de détection large (1 – 100 keV typiquement), un pouvoir de résolution de l'ordre de 50 à 5.9 keV, et répondent typiquement au MHz, ce qui les rend bien adaptés à une utilisation sur les accélérateurs de particules à haut taux de répétition. Avec ces détecteurs, le spectre se construit événement après événement au cours du temps. En revanche, ils ne peuvent détecter par construction qu'un seul photon par événement, ce qui exclue leur utilisation sur une installation mono-coup ou basse fréquence. En pratique, pour éviter le phénomène *d'empilement*¹, on limite même volontairement l'efficacité de collection à typiquement 1 – 10%.

On peut étendre l'utilisation de ce type de spectromètre à des sources de cadence modérée, voire mono-coup : plutôt que de construire le spectre X au cours du temps, au fil des événements reçus à partir d'une source répétitive, on peut disposer un très grand nombre de détecteurs à dispersion en énergie, de telle sorte que chacun capte un photon unique. Le spectre est donc donné par l'histogramme des signaux donnés par la population de détecteur. Ceci est rendu possible par l'utilisation de détecteurs CCD (Charge-Coupled Device) sensibles aux rayons X, dont chaque pixel se comporte comme un détecteur à jonction [19]. On dispose donc de plusieurs centaines de milliers de détecteurs intégrés en un seul appareil, ce qui apporte un avantage inestimable en termes de compacité, simplicité et coût. Ces avantages ont motivé l'utilisation de tels détecteurs en astronomie dès la fin des années 1980 [20], puis en tant que diagnostic de plasma créé par laser [21]. C'est ce type de spectromètre que j'ai mis au point et caractérisé au CELIA.

1. C'est à dire le cas où le détecteur intègre plusieurs photons qui arrivent "simultanément" et interprète ces photons comme un seul qui porte l'énergie totale.

2.1.2 Mise en œuvre et caractérisation d'une CCD utilisée en spectromètre

2.1.2.1 Principe

Le principe de fonctionnement d'un détecteur à jonction est le suivant : un photon X a une probabilité d'être capté dans le semi-conducteur par effet photo-électrique. Le photo-électron va être freiné dans la jonction en créant un nombre de paires électron-trou proportionnel à son énergie. La lacune qu'il laisse en bande de valence va elle aussi être comblée principalement par effet Auger, et un nombre équivalent de paire électron-trou sera finalement créé. Au final, le nombre total de paires électron-trou est proportionnel à l'énergie du photon incident (le coefficient de proportionnalité est donné par l'énergie moyenne nécessaire pour créer une paire : $3.65eV$ par exemple dans le silicium). Les paires électron-trou sont ensuite dissociées par le champ électrique régnant au niveau de la jonction, et un nuage de charge d'amplitude proportionnelle à l'énergie du photon X sera finalement collecté. Dans le capteur CCD, les charges seront stockées dans des puits de potentiel qui correspondent aux pixels. Idéalement donc, à la lecture de "l'image", le pixel dans lequel le photon X d'énergie $h\nu$ a été capté contiendra un signal proportionnel à cette énergie. Ce signal est exprimé en unité ADU (*Analolg to Digital converter Unit*) qui est en général du même ordre que le nombre de paire électron-trou. Au final, le pixel se comporte donc comme un détecteur en énergie multi-canal (et chaque canal a une largeur $\delta h\nu$ équivalente à 1 ADU).

L'utilisation d'une CCD X comme spectromètre est très simple dans son principe : on expose pendant un temps τ_{exp} la matrice de pixel (ou *chip CCD*) au rayonnement X à caractériser, en prenant soin de limiter suffisamment le flux pour que le nombre de photons X détectés soit petit devant le nombre de pixel du chip, afin de pouvoir négliger le phénomène d'empilement (qui correspond au cas où plusieurs photons sont captés dans un même pixel). Ceci peut par exemple être réalisé par l'intermédiaire de l'angle solide de collection Ω , et/ou en positionnant un ou plusieurs filtres de transmission globale $T(\nu)$ entre la source et le détecteur. L'image obtenue sur la CCD doit ressembler à la figure 2.4 : des pixels isolés les uns des autres ont capté un photon et contiennent le signal correspondant, alors que les autres (la plupart en fait) sont vides. On réalise alors l'histogramme $I(\nu)$ de l'image et pour une énergie $h\nu$ donnée (à $\delta h\nu$ près), le nombre $N_X(\nu)$ de photons X émis par la source en direction du détecteur, par stéradian et par seconde est relié à $I(\nu)$ par :

$$N_X(\nu) = \frac{I(\nu)}{QE(\nu) T(\nu) \Omega \tau_{exp}} \quad (2.1)$$

où $QE(\nu)$ est l'efficacité quantique (*i.e.* la probabilité de détecter un photon par effet photoélectrique, qui dépend de son énergie). Pour chaque énergie $h\nu$, le rapport entre $N_X(\nu)$ et le contenu $I(\nu)$ de l'histogramme à cette énergie ne dépend que de $h\nu$ (à travers $QE(\nu)$ et $T(\nu)$) et pas du contenu des autres canaux : En d'autres termes, le spectre et l'histogramme sont équivalents.

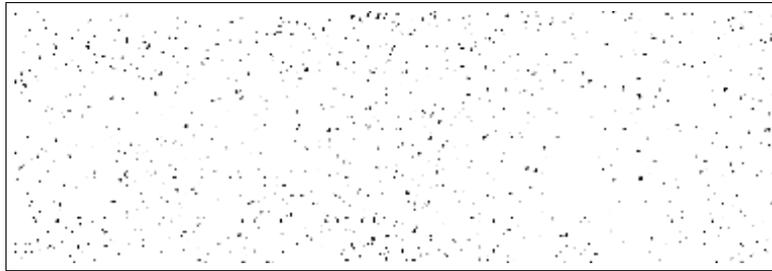


FIGURE 2.4 – Exemple d'image obtenue sur la CCD utilisée en spectromètre. Les points noirs correspondent à la détection d'un photon X.

2.1.2.2 Diffusion des charges

En réalité, la mesure n'est pas aussi simple car d'une part le nuage de porteurs de charge généré par le photon X incident est susceptible de diffuser avant d'être collecté, et d'autre part on peut obtenir une collection seulement partielle de la charge si l'effet photo-électrique se produit en dehors de la zone de champ électrique du détecteur [22] : la figure 2.5 schématise ces différents processus, dans le cas d'un chip *back-illuminated*, c'est à dire monté de telle sorte que les photons pénètrent par la face opposée aux électrodes. Un photon X incident génère un nuage électronique à une profondeur qui varie aléatoirement (en suivant la loi de probabilité d'absorption par effet photoélectrique), et les charges voyagent jusqu'à l'interface semi-conducteur/oxyde, vers le minimum du puits de potentiel où ils sont stockés jusqu'à la lecture de l'image. Pendant ce trajet, les charges diffusent et le nuage grossi. Ainsi la taille du nuage au niveau des électrodes qui fixent la "frontière" entre les pixels, est d'autant plus grosse que le photon X a été capté loin de celles-ci. Au final, les charges provenant d'un même photon peuvent être stockées dans plusieurs pixels adjacents, donnant lieu à des *événements partagés*, avec d'autant plus de probabilité que le nuage est gros.

De plus, si le nuage initial de charge est créé dans la zone déplétée, le champ électrique qui y règne le guide de force et toutes les charges sont collectées. Mais en dehors de cette zone ("zone sans champ"), une partie des charges est perdue car elle diffuse vers la couche passive et/ou se recombine. On obtient alors des *événements partiels*.

2.1.2.3 Ré-attribution des charges

En conséquence la charge collectée dans un pixel peut être bien inférieure à celle correspondante à l'énergie du photon détecté, et on ne peut donc plus faire l'équivalence entre histogramme de l'image et spectre. Ceci est illustré sur la figure 2.6, qui montre des résultats de mesure effectués en utilisant une caméra CCD X équipée d'un chip de 1340×400 pixels carrés d'arête $20 \mu\text{m}$, et illuminée par une source radioactive de ^{55}Fe . On s'attend à voir uniquement les raies K_α (5.89 keV) et K_β (6.49 keV) du manganèse. L'histogramme brut de l'image (en noir sur la figure) montre les deux raies attendues, mais aussi un grand nombre d'événement à plus basse énergie, essentiellement dus à des événements partagés. On peut assez bien corriger ce phénomène en ré-attribuant à un pixel contenant du signal, l'ensemble du signal vu par les pixels adjacents, avant de faire l'histogramme de cette nouvelle image retraitée, constituée de

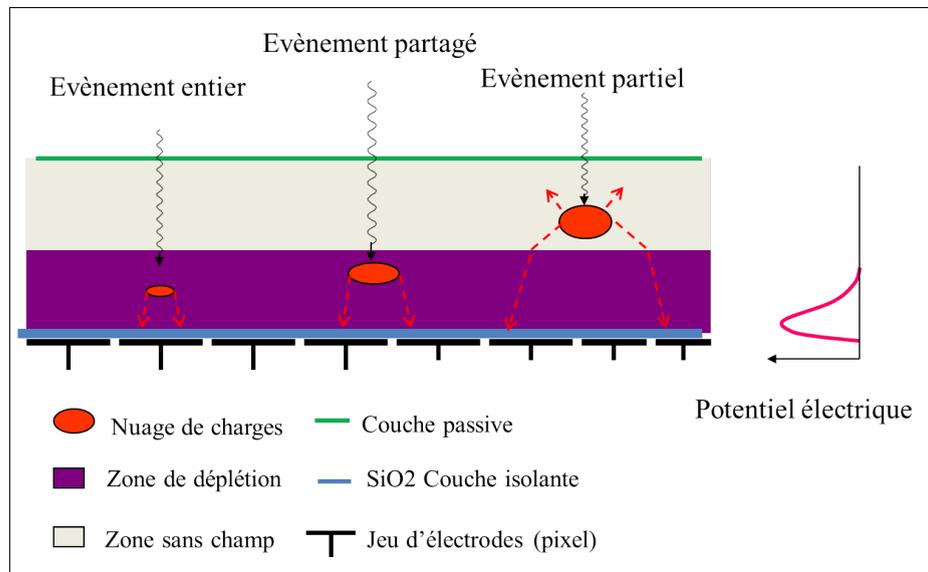


FIGURE 2.5 – Vue schématique des mécanismes donnant lieu aux évènements partagés et partiels.

"macro-pixels". C'est ce qui est fait sur la même figure, en rouge, pour des macros-pixels de 3×3 pixels. On voit que les faux évènements, entre 1 et 5 keV, ont presque disparu mais la résolution spectrale s'est dégradée au point que les deux raies K_α et K_β ne sont plus discernables. La largeur apparente de la raie K_α est de ≈ 150 eV FWHM sur l'histogramme brut, alors qu'elle est de ≈ 800 eV FWHM sur celui reconstruit. De plus, on voit apparaître un pic d'empilement ("piling up") puisque celui-ci est favorisé par la taille plus importante des macro-pixels. On peut imaginer des façons bien plus élaborées de réaliser cette ré-attribution [1] qui améliorent la résolution spectrale, mais sans retrouver tout à fait la résolution initiale de ≈ 150 eV. Pour certaines applications comme par exemple la mesure d'un spectre bremsstrahlung, dépourvu de variation spectrale brutale, la résolution atteinte est tout à fait suffisante. Néanmoins il est parfois nécessaire de conserver la résolution optimale, ce qui est possible comme on va le voir, le prix à payer étant une diminution importante du nombre de photons détectés réellement utilisés, et donc une diminution de la statistique de la mesure.

2.1.2.4 Optimisation de la résolution

On a vu que les évènements partagés ou partiels brisent la relation entre spectre et histogramme. Mais la ré-attribution des charges collectées dans des pixels adjacents dégrade la résolution. Afin de préserver celle-ci, on peut donc filtrer *a posteriori* les évènements, c'est à dire ne conserver que les évènements entiers (*i.e.* collectés sur un seul pixel). En pratique, on analyse l'image brute de la CCD, et on sélectionne les évènements qui sont entourés de pixels vides². La figure 2.7 montre l'histogramme de cette population de pixels choisis, pour les mêmes données que celles de la figure 2.6. On voit qu'il présente un quadruple avantage : (i) par définition, il ne contient pas d'évènement partagé ; (ii) il contient très peu d'évènement partiel (car

2. Par "vide", il faut entendre "dont le niveau de signal est inférieur à un seuil, lui-même ajusté sur le bruit de lecture et thermique de la CCD".

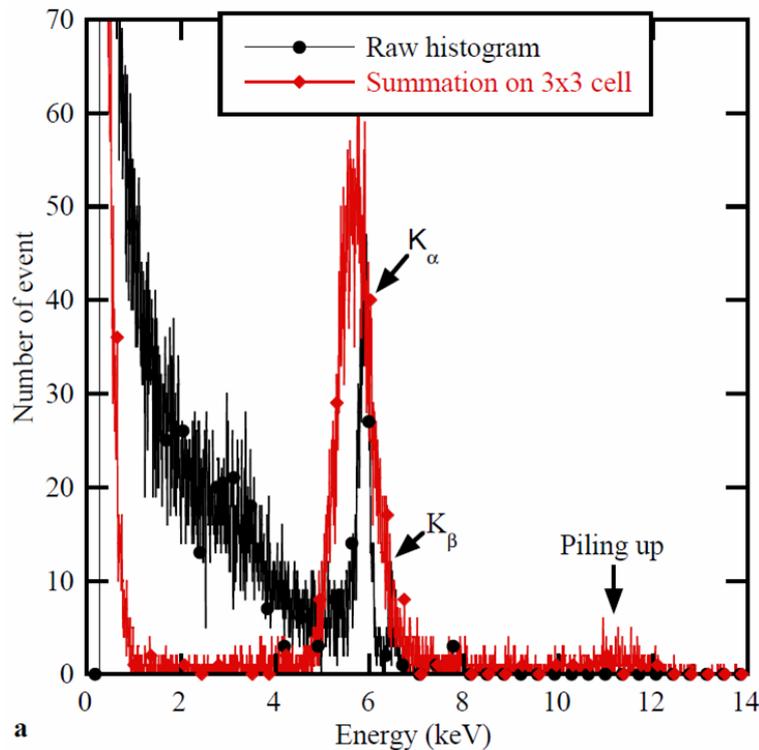


FIGURE 2.6 – Histogrammes des événements détectés en observant une source de ^{55}Fe . On s’attend à voir uniquement les raies K_α (5.89 keV) et K_β (6.49 keV) du manganèse. Histogramme brut de l’image CCD (en noir), et histogramme de l’image reconstituée en considérant des macro-pixels de 3×3 pixels (en rouge).

dans ces cas, le nuage de charge est généralement gros et s’étale donc sur plusieurs pixels); (iii) il ne contient pratiquement pas d’empilement (la probabilité de détecter deux photons dans le même pixel sans que la charge déborde sur un pixel voisin est très faible); (iv) il conserve la résolution optimale que l’on peut attendre d’un détecteur à semi-conducteur (80 eV FWHM à 1.5 keV, 150 eV à 8 keV).

On retrouve donc l’équivalence entre l’histogramme et le spectre de photons, mais maintenant la relation entre les deux est beaucoup plus complexe que l’équation 2.1, car elle fait intervenir la probabilité de détection d’un événement dans un seul pixel isolé. Le lecteur pourra trouver l’étude détaillée de cette probabilité dans l’article [1]. Brièvement, elle dépend de l’énergie d’un photon X incident considéré, mais aussi de la probabilité de détecter des photons dans un voisinage de quelques pixels aux alentours, et de l’énergie de ces photons. Son analyse fait intervenir de nouveaux paramètres, dont certains sont mesurables mais pas tous. Afin de déterminer ceux qui ne sont pas mesurables, j’ai effectué une série de simulations Monte-Carlo à partir de modèles existants [23], des mécanismes intervenant dans le capteur depuis la détection du photon incident jusqu’au stockage des charges dans les puits de potentiel des pixels. Comme le montre la figure 2.8, ces simulations sont en excellent accord avec l’expérience en ce qui concerne les paramètres mesurables, ce qui donne toute confiance sur le calcul des autres.

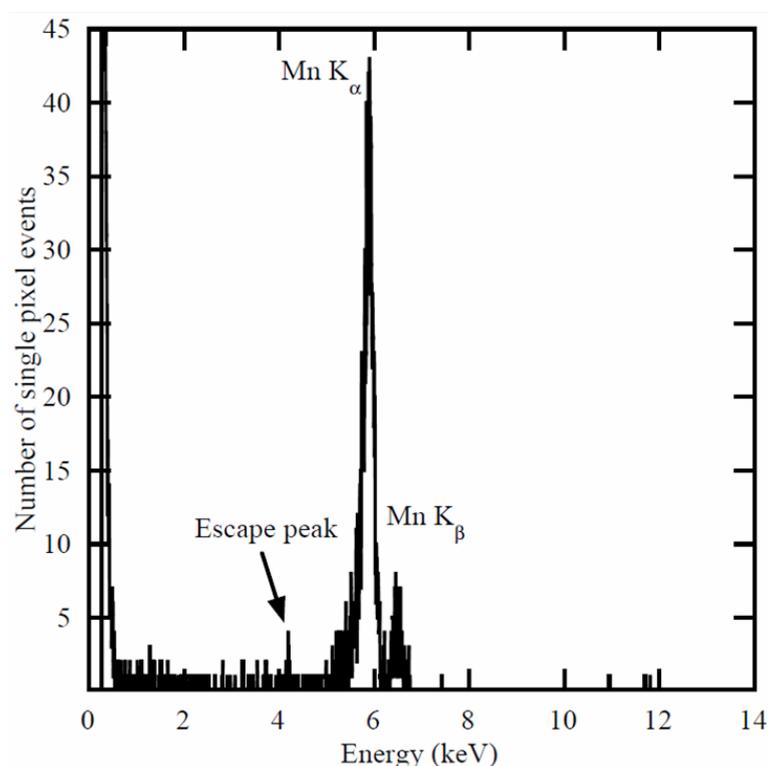


FIGURE 2.7 – Histogramme des événements entiers pour les mêmes données qu'à la figure 2.6.

2.1.2.5 Optimisation de la statistique

Même si l'utilisation d'une CCD permet virtuellement de disposer simultanément de centaines de milliers de détecteurs à dispersion en énergie, il est nécessaire en pratique d'avoir un taux de remplissage du chip CCD en photon très faible, de l'ordre de quelques pourcents. Ceci pour limiter l'empilement quand on choisit la reconstruction d'événements, ou pour maximiser la probabilité d'obtenir des événements entiers quand on choisit d'optimiser la résolution. Afin de conserver une bonne statistique sur les spectres, il est alors souvent nécessaire de sommer plusieurs acquisitions prises dans les mêmes conditions. L'étude présentée ici était menée pour réaliser un spectromètre au laboratoire CELIA, qui disposait de lasers intenses récurrents (à 10 Hz et 1 kHz). Il était alors possible de réaliser des centaines "d'images" pour réaliser un spectre de qualité. Afin de réaliser la prise de grand nombre d'images de façon rapide et pratique, j'ai proposé et testé un mode opératoire inédit de la CCD, qui consiste à lire en permanence le chip. Cela revient à réaliser un film dont chaque image a un temps d'exposition nul. Le temps d'exposition effectif est en fait donné par le temps mis par la CCD pour lire ses pixels. Au final, on peut en une seule opération accumuler un grand nombre d'image et ainsi obtenir une bonne statistique.

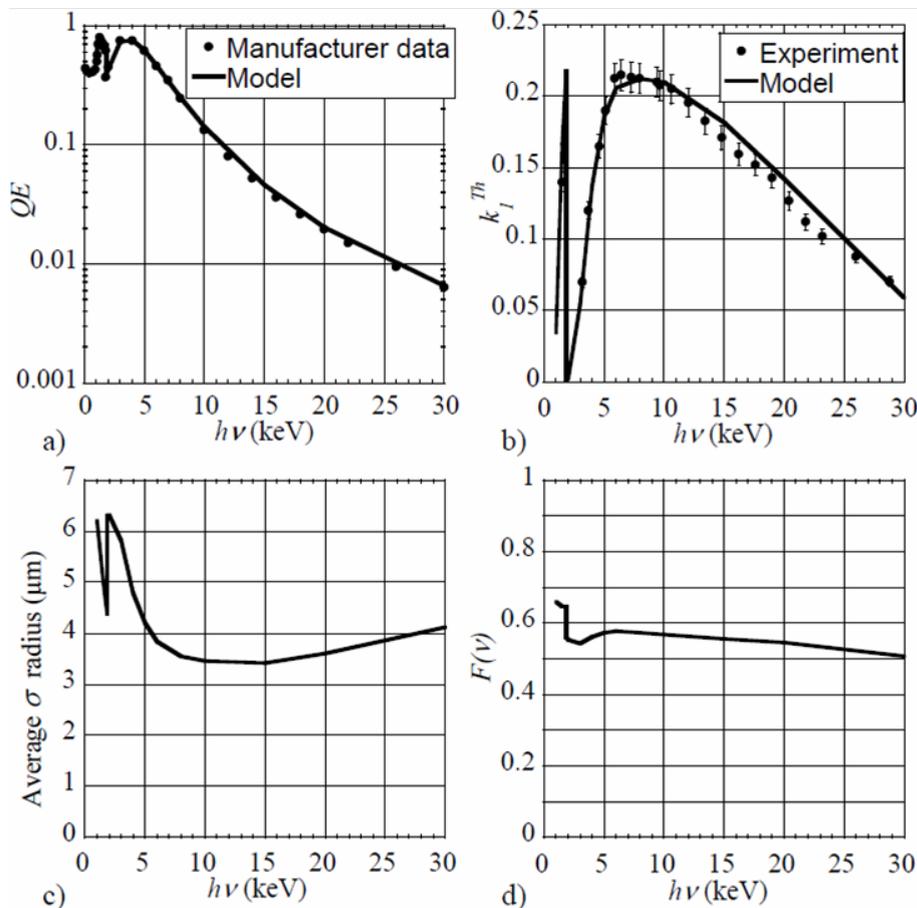


FIGURE 2.8 – Variation avec l'énergie de photon $h\nu$, des paramètres calculés par le code Monte-Carlo et intervenant dans la relation entre l'histogramme des événements entiers et le spectre des photons détectés. Efficacité quantique de la caméra (a), probabilité pour un photon unique de donner un événement entier (b), rayon moyen à $1/e$ du nuage de charge (supposé gaussien), à l'interface semi-conducteur/oxyde (c), et probabilité pour un événement détecté à 2 pixels d'un événement isolé, de ne pas le toucher (d). La comparaison avec l'expérience quand elle est possible (a et b) donne toute confiance sur les paramètres non mesurables (c et d).

2.1.2.6 Résumé des performances

La figure 2.9 montre des spectres obtenus en optimisant la résolution et la statistique, du rayonnement X issu de l'interaction d'un laser (5 mJ, 45 fs) focalisé sur des cibles solides de différents éléments. Chaque spectre est construit à partir de 80 images, et intègre 3900 tirs laser. Les lignes pointillées montrent les facteurs de normalisation utilisés pour passer des histogrammes des événements entiers aux spectres. La dépendance en énergie de ces facteurs est due aux filtres placés devant la CCD pendant les expériences, ainsi qu'à la probabilité de détection dans un seul pixel. A cause de la coupure des filtres utilisés, les spectres ne sont pas utilisables en dessous de ≈ 5 keV. Pour la CCD utilisée, chaque canal en énergie avait 5.04 eV de large, si bien qu'ils ont été regroupés par paquet de 20 pour construire le spectre afin d'augmenter la statistique dans la région au delà de 20 keV, sans nuire à la résolution qui est de toute façon supérieure à 100 eV dans cette région. La statistique accumulée permet d'obtenir un spectre de

bonne qualité sur une large bande spectrale (≈ 20 keV), une dynamique importante (plus de deux ordres de grandeurs, avec une fluctuation inférieure à 13% rms) et une bonne résolution (≈ 150 eV en moyenne). Cette résolution permet non seulement de séparer les composantes α , β et γ des raies L de l'erbium, mais aussi de distinguer des sous-structures dans les raies L_β et L_γ . Il est important de préciser que ces spectres sont calibrés en absolu, et l'analyse des incertitudes a permis de l'évaluer comme étant inférieure à $\pm 35\%$.

La durée totale d'acquisition par spectre était de 7 minutes, et le nombre d'événements entiers de l'ordre de 10^6 en moyenne. Si on avait utilisé un détecteur à jonction classique, il aurait fallu utiliser environ 10^7 tirs lasers (le facteur 10 étant habituellement utilisé pour minimiser la probabilité d'empilement). Avec un laser cadencé au kilohertz, cela aurait nécessité près de 3 heures et utilisé une surface de cible 2500 fois plus grande.

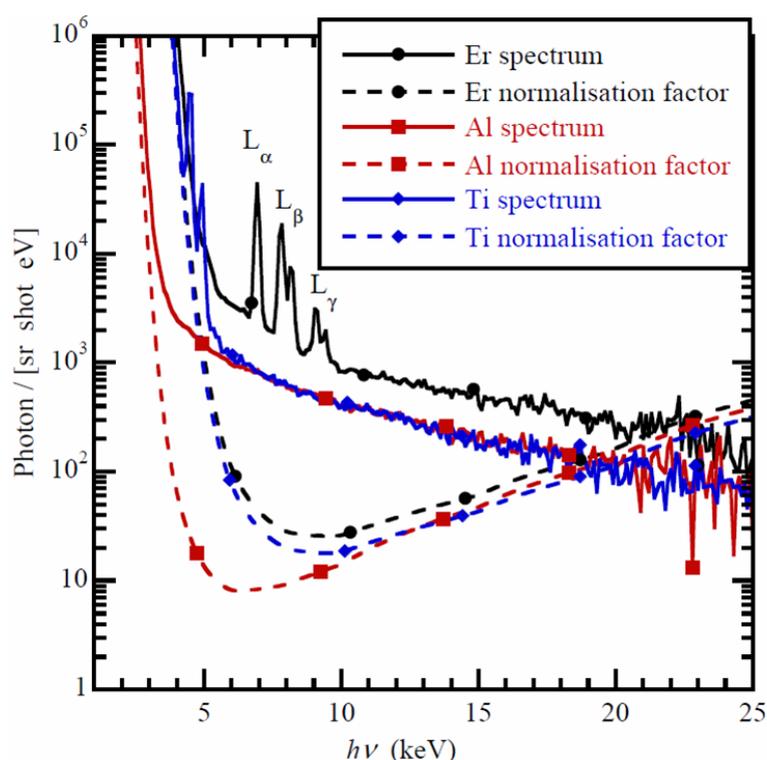


FIGURE 2.9 – Spectres absolus et facteurs de normalisation associés, obtenus en focalisant un laser intense (5 mJ, 45 fs, 8.8×10^{16} W.cm $^{-2}$) sur des cibles solides de Al, Ti et Er.

2.1.3 Les suites de ce travail

2.1.3.1 Utilisation au CELIA

L'intérêt du spectromètre à base de CCD X que nous avons développé au CELIA réside d'abord dans ses caractéristiques (large bande spectrale, grande dynamique), son faible encombrement et le fait qu'il soit bien caractérisé et calibré en absolu. Il a donc servi de spectromètre de référence pendant des années, lors des études de caractérisation et mise au point de sources,

d'optiques et détecteurs dans le domaine X et utilisant les lasers intenses du CELIA. J'en listerai quelques une ici, en donnant les références uniquement pour les papiers publiés avant 2009 et qui ne peuvent pas être trouvées sur le site internet de l'éditeur de l'article [1], à la page qui liste les papiers citant celui-ci :

- Développement de sources X ultra-brèves (~ 100 fs) à partir de gros agrégats de gaz rare[24], et de sources impulsionsnelles pour la spectroscopie d'absorption résolue en temps[25]. Caractérisation de l'excitation d'états nucléaires du ^{181}Ta dans un environnement plasma[26]. Caractérisation de population électronique supra-thermique accélérée dans une cible solide par laser intense.
- Caractérisation d'optiques X : réflectivité intégrée de cristaux de Bragg ; transmission d'optiques X à faisceau de poly-capillaires.
- Caractérisation et calibration de détecteurs : écrans radio-luminescents à mémoire (Image Plate) dans le domaine des X ; détecteur X hybride (gaz et semi-conducteur).

2.1.3.2 Utilisation par d'autres équipes

D'après la liste des articles citant l'étude que j'ai présenté dans ce chapitre, on peut voir que celle-ci a inspiré d'autres équipe dans le monde (Russie, Japon, Canada, États-Unis, Allemagne, Italie, Royaume-Uni, Israël, Inde, Chine, France). L'utilisation qui en est faite est bien sûr essentiellement centrée sur la caractérisation du rayonnement X dans un contexte d'interaction laser intense-plasma : développement de diagnostics, sources X par plasma, caractérisation de faisceaux d'électrons rapides (accélération par champ de sillage, propagation dans divers milieux), source de rayonnement bêta-tron...

2.2 Interférométrie dans le domaine des fréquences pour l'étude de plasmas denses et tièdes créés par laser femtoseconde

Comme précisé en introduction du chapitre, cette section concerne une expérience d'interférométrie dans le domaine des fréquences spécialement optimisée pour l'étude de plasmas denses et tièdes qui sera rapportée au chapitre 3. Je ne développerai donc pas ici le contexte concernant ces études, mais je me concentrerai exclusivement sur le développement du montage expérimental. Ce développement concernait le diagnostic proprement dit mais plus largement aussi la mise en œuvre du laser de pompe et des échantillons étudiés.

2.2.1 Contexte

2.2.1.1 Interférométrie optique dans le domaine des fréquences (FDI)

On peut caractériser une onde lumineuse par rapport à une autre onde (dite *de référence*) par interférométrie optique. Plus exactement, les grandeurs mesurées sont en premier lieu la phase

et si possible l'amplitude. Dans le cadre de l'étude d'un milieu, l'interférométrie permet de comparer une onde ayant réagi avec ce milieu à celle de référence, que l'on connaît par ailleurs. Le terme de phase d'une onde plane s'exprime de façon générale de la manière suivante :

$$\Phi(\omega, t, \vec{k}, \vec{r}) = \omega t - \vec{k} \cdot \vec{r} + \phi_0, \quad (2.2)$$

où ϕ_0 est une constante parfois appelée *phase absolue*. $\Phi(\omega, t, \vec{k}, \vec{r})$ fait donc intervenir deux produits, chacun opérant sur un couple : temps et fréquence, espace et fréquence spatiale. Ainsi on a 4 types d'interférences possibles : l'interférence spatiale par exemple fait intervenir des ondes de \vec{k} différents, et la figure d'interférence est obtenue sur écran en faisant varier \vec{r} . Le couple temps fréquence permet des interférences temporelles quand des ondes de ω différentes interfèrent, ce qui produit des battements temporels comme utilisé dans la vélocimétrie hétérodyne (VH) par exemple[27]. Le même couple permet également des interférences fréquentielles quand deux impulsions de t différent (*i.e.* décalées en temps) interfèrent, la variable sur laquelle s'exprime la modulation de l'interférence étant alors ω (*i.e.* le spectre lumineux). Ce type d'interférence n'est pas vraiment intuitif, car pour interférer les deux ondes doivent se recouvrir dans l'espace mais aussi le temps. Ceci peut être fait dans un spectromètre dont le réseau étire temporellement les impulsions, et permet leur recouvrement.

Il semblerait que l'utilisation de l'interférométrie dans le domaine des fréquences est apparue au début des années 1980 à la fois dans les mondes du radar[28] et du laser[29], dans ce dernier cas pour l'étude des propriétés dispersives de fibres optiques. Son utilisation dans une configuration à deux lasers pompe-sonde est apparue une décennie plus tard[30].

2.2.1.2 FDI pour l'étude de la dynamique d'excitation/relaxation

Les trois papiers cités juste précédemment s'intéressaient directement aux propriétés spectrales des objets étudiés, au point d'utiliser le terme de "spectroscopie de phase"[30]. Mais d'autres équipes ont utilisé la technique FDI pour d'autres raisons. En premier lieu, cette technique est particulièrement bien adaptée à des expériences pompe-sonde avec un laser femtoseconde. Ce type d'expérience consiste à modifier la matière par une impulsion *pompe*, puis la sonder au moment choisi par une impulsion *sonde*. Pompe et sonde sont généralement issues du même laser, ce qui rend négligeable la gigue temporelle. La résolution temporelle obtenue est alors directement liée à la durée de l'impulsion sonde, et peut donc largement être inférieure à 100 fs. On peut bien sûr réaliser des expériences d'interférométrie spatiale avec un laser femtoseconde, mais il faut alors équilibrer le chemin optique entre les deux voies de l'interféromètre avec une précision bien meilleure que la longueur de cohérence des impulsions, qui est au maximum de $10 \mu\text{m}$ pour une impulsion typique de durée 33 fs. Cela nécessite des ajustements délicats et une grande stabilité, d'autant plus que la longueur de chaque bras dans les interféromètres "spatiaux" les plus classiques doit être en général suffisamment grande pour placer dans l'un d'entre eux l'objet à étudier. Le problème de stabilité peut par exemple imposer de maintenir les bras du spectromètre sous vide pour éviter les turbulences de l'air dans le laboratoire. Enfin les interférences spatiales font intervenir des ondes qui se propagent dans des directions séparées par un angle, ce qui restreint le champ visuel utilisable. En effet, le recouvrement temporel entre les deux ondes n'est possible que sur une étendue limitée (voir figure 2.10), et leur visibilité n'est maximale qu'au centre de la figure.

Dans un FDI au contraire, les deux ondes peuvent suivre exactement le même chemin. La première sert de référence, et la seconde sonde le matériau qui a été modifié entre temps par la pompe (voir figure 2.11). Le seul endroit où les ondes suivent des chemins différents est celui où on les décale temporellement. Ceci peut être fait dans un appareil (par exemple un montage de Michelson) très compact, donc très stable. De plus la longueur des bras est naturellement déséquilibrée pour introduire le décalage temporel. Si la différence de marche entre les deux varie dans des limites raisonnables, l'interférence sera toujours observable (seul l'inter-frange de l'interférogramme varie). Enfin (mais non moins important), comme les deux ondes suivent le même chemin, elles "voient" les mêmes éléments optiques au même endroit, les mêmes milieux traversés etc... Dans le monde réel des expérimentateurs, chaque élément comporte des imperfections. Celles-ci se trouvent "imprimées" exactement de la même manière dans la sonde et la référence, et la plupart est par conséquent naturellement corrigée.

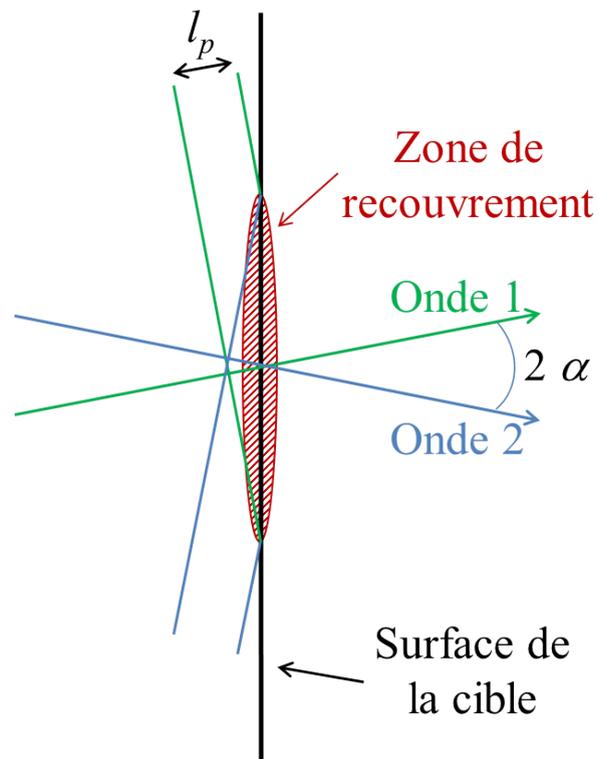


FIGURE 2.10 – Avec des impulsions courtes de longueur l_p ($\approx 10 \mu\text{m}$), l'interférence spatiale n'a lieu que sur la zone d'extension $l_p/\sin \alpha$.

Le FDI est donc particulièrement bien adapté pour effectuer des mesures d'interférométrie fines avec une très haute résolution temporelle, au prix toutefois de la nécessité d'utiliser un spectromètre. En utilisant un spectromètre imageur, on peut tout de même conserver une dimension d'espace (on image une ligne). Ses possibilités uniques ont permis à une collaboration de chercheurs menée par des collègues du LULI, d'étudier dans des silices la dynamique de polarisation, excitation et relaxation électroniques induites par laser femtoseconde avec une résolution temporelle de 120 fs et une résolution spatiale (1D) de $5 \mu\text{m}$ [31]. Ceci a été fait en mesurant la phase accumulée par l'onde sonde lors de la traversée du diélectrique (montage en transmission). Dans une autre collaboration, les mêmes collègues ont mesuré la phase de l'onde sonde en réflexion sur un plasma d'aluminium créé par laser intense en expansion[32].

2.2.1.3 Les évolutions et dérivés du FDI en réflexion pour l'étude des plasmas chauds et denses

Après ces papiers fondateurs pour la communauté des plasmas créés par laser, le FDI a été utilisé par plusieurs équipes à travers le monde pour observer la détente hydrodynamique de plasmas chauds et denses chauffés par laser intense. Ce faisant, il a subi des améliorations et des modifications jusqu'à devenir la version qui est aujourd'hui la plus utilisée pour cette

application, et qui paradoxalement ne repose plus du tout sur des interférences dans le domaine des fréquences³.

La première des évolutions a été de réaliser la mesure FDI simultanément dans les deux directions de polarisations linéaires définies naturellement pour la lumière en réflexion, et nommées P (direction du champ électrique de l'onde contenue dans le plan d'incidence), et S (champ électrique perpendiculaire au plan d'incidence). Lors de la réflexion, des mécanismes physiques différents interviennent pour ces polarisations, et la comparaison des deux mesures apporte des renseignements sur ces mécanismes. Par exemple à partir de la différence des phases mesurées dans chaque direction de polarisation et grâce aux propriétés de l'absorption résonnante autour de la densité critique dans un plasma, on peut mesurer la longueur de gradient de densité électronique d'un plasma de surface tel que ceux créés par l'irradiation d'un solide par laser intense[33]. Les longueurs de gradient mesurables de cette manière sont de l'ordre de 10 à 100 nm, ce qui n'est pas accessible autrement.

La seconde évolution majeure a été d'utiliser pour la sonde des impulsions lasers à dérive de fréquence, en pratique en ne recomprimant pas entièrement les impulsions issues de la chaîne d'amplification CPA (*Chirped Pulse Amplification*[34]) du laser intense. Les impulsions sondes peuvent durer plusieurs dizaines de picosecondes, avec une correspondance entre le temps et la fréquence instantanée. On peut ainsi avoir une histoire temporelle en une seule mesure, alors qu'il en aurait fallu des dizaines avec une technique de pompe-sonde classique. Le gain est inappréciable lorsqu'on utilise des installations monocoup, ou des cibles qu'on ne peut pas remplacer rapidement, mais se fait en pratique au détriment de la sensibilité en phase et amplitude. Au premier ordre, on peut simplement faire correspondre un temps à chaque fréquence, transformant ainsi le spectromètre du FDI en une sorte de caméra à balayage de fente[35]. Néanmoins, dans cette approximation on ne peut que traiter l'information portée par un intervalle limité de fréquence, ce qui limite la résolution temporelle (qui est tout de même de l'ordre de 1 ps, proche des caméras à balayage de fente les plus rapides). On peut tout de même atteindre la résolution temporelle optimale associée au spectre complet en effectuant un traitement tenant compte de l'ensemble de l'information spectrale[36]. Cependant, cette méthode impose de mesurer non seulement la phase mais aussi l'amplitude de l'onde sonde, ce qui s'avère bien plus complexe à réaliser avec précision en pratique. De plus, elle implique une connaissance et une maîtrise bien plus poussées de l'ensemble de l'expérience (laser, chaîne d'optique et appareillage). Pour ces raisons, c'est l'approximation de correspondance directe temps-fréquence qui est généralement utilisée. De plus, comme les impulsions sondes sont étirées temporellement, elles peuvent atteindre des durées supérieures à l'écart temporel que l'on peut raisonnablement imposer entre elles pour réaliser l'interférence fréquentielle. On utilise alors une méthode d'interférence spa-

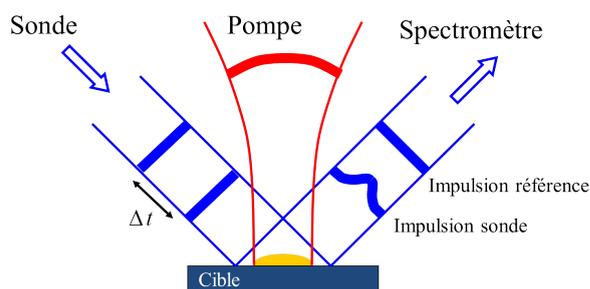


FIGURE 2.11 – Schéma de principe FDI pompe-sonde (ici en réflexion).

3. C'est pourquoi il est parfois appelé sous le terme générique de TASRI pour Time And Space Resolved Interferometry

tiale, que l'on complète avec un spectromètre dont l'axe des longueurs d'onde devient un axe temporel[37].

En résumé, les interféromètres basés sur le FDI permettent d'observer la surface d'un plasma dense et chaud avec une résolution temporelle et spatiale (dans la direction normale à la surface) inégalée. La phase mesurée de l'onde qui se réfléchit sur le plasma en détente dépend principalement de trois termes : ((i)) la position du point de rebroussement de l'onde (phase Doppler); ((ii)) la phase acquise au rebroussement proprement dit, qui dépend entre autres des propriétés locales du plasma et de la polarisation de l'onde; ((iii)) la phase acquise pendant la propagation aller et retour à travers le plasma sous-dense, jusqu'au point de rebroussement, qui dépend de la longueur traversée et des propriétés de ce plasma. Lorsque la détente hydrodynamique est rapide et bien établie (typiquement pour un éclairage du laser de pompe de $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ et plus, et après 1 ps), la phase Doppler domine les autres. La phase FDI peut alors être comparée à une simulation hydrodynamique, et sert essentiellement à valider celle-ci.

2.2.1.4 FDI pour l'étude des propriétés optiques des plasmas denses et tièdes

La fonction diélectrique d'un milieu dépend de la dynamique électronique des électrons libres ou faiblement liés, dont l'influence est par ailleurs primordiale sur les propriétés de la WDM[8]. De plus, une des façons classique de "préparer" un échantillon WDM est de chauffer rapidement un solide avec un laser, dont l'absorption dépend des propriétés optiques.

À une interface entre deux matériaux homogènes (*i.e.* le vide et un matériau sondé), les coefficients complexes (amplitude et phase) de réflexion et transmission sont liés à la fonction diélectrique ϵ par les relations de Fresnel, qui dépendent aussi de la direction de polarisation et de l'angle d'incidence[38]. ϵ étant complexe, on peut la déterminer à une longueur d'onde donnée en mesurant deux grandeurs indépendantes, comme l'amplitude et la phase en réflexion pour une direction de polarisation par exemple. C'est en mesurant les amplitudes de réflectivité et transmission d'une sonde femtoseconde que K. Widmann et collaborateurs ont annoncé la mesure de la conductivité électrique d'échantillons d'or placés dans un état WDM[39]. Celui-ci était obtenu à partir de feuilles ultra-fine ($\approx 30 \text{ nm}$) par chauffage laser femtoseconde, à une intensité maximale d'environ $10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$. Indépendamment du questionnement sur la validité ou non du modèle de Drude utilisé pour extrapoler depuis la fonction diélectrique à fréquence optique jusqu'à la conductivité électrique en régime continu, on peut très légitimement mettre en doute l'hypothèse de matériau homogène dans ces conditions d'irradiation, qui est faite pour déduire ϵ des mesures.

Compte-tenu de ses apports à haute intensité, la même équipe a utilisé le FDI pour confirmer cette hypothèse[40]. Cependant la mesure de phase dans une seule direction de polarisation ne suffit pas à statuer sur la détente hydrodynamique, sauf quand on suppose justement que celle-ci domine tous les autres effets. Et la méthode évoquée précédemment basée sur la différence de phase $\phi_P - \phi_S$ pour mesurer la longueur de gradient, n'est sensible que quand celle-ci est supérieure à $\approx 10 \text{ nm}$, ce qui est déjà trop pour considérer que les réflectivité et transmission sont celles d'un matériau homogène.

Malgré tout, les travaux cités précédemment ont montré la richesse de la physique impliquée dans l'interaction et que l'on pourrait tirer de la mesure de ϵ dans le régime WDM. De plus, elles ont montré l'importance de quantifier expérimentalement la détente hydrodynamique au moment de la mesure, et de mesurer les propriétés optiques avec une très bonne résolution tem-

porelle (typiquement < 100 fs). Enfin, elles indiquent le niveau de sensibilité et de précision qu'il faut tirer d'une mesure FDI dans ce contexte. Par exemple les phases en réflexion sur les échantillons WDM sont environ un ordre de grandeur plus petites que celles rapportées dans les mesures en transmission[31] ou à plus haute intensité d'excitation[32]. Ces trois constats ont guidé le développement du système que j'ai effectué au CELIA et que je vais présenter dans le paragraphe suivant.

2.2.2 L'expérience FDI pour l'étude des propriétés optiques de la WDM au CELIA

Le dispositif expérimental dont je vais parler maintenant est décrit dans la référence[3], et en détail dans le mémoire de thèse de doctorat de François Deneuille[4]. Sa mise en œuvre a débuté sous les bons conseils de Patrick Audebert et Jean-Paul Geindre du LULI avant le départ en retraite de ce dernier, et son financement assuré en partie par l'Agence Nationale de la Recherche (projet OEDYP : ANR-09-BLAN-0206-01, porteur du projet F. Dorchies) et le Conseil Régional d'Aquitaine (projets POLUX : 2010-13-04-002, porteur F. Dorchies et COLA2 : 2.1.3 09010502, porteur Ph. Balcou).

Nous avons utilisé la chaîne laser Aurore du CELIA, basée sur une technologie Ti :Sapphire (longueur d'onde 800 nm) cadencée à 1 kHz et délivrant des impulsions de 30 fs et une énergie maximale de ≈ 5 mJ. Cette énergie est principalement utilisée par l'impulsion pompe, pour éclairer à l'intensité nécessaire ($\approx 10^{13}$ W.cm $^{-2}$) une zone de quelques dizaines de microns. La sonde servant au diagnostic FDI est volontairement limitée à quelques microjoules pour que son influence sur l'échantillon reste négligeable par rapport à la pompe. Afin de collecter un signal suffisant à la sortie du spectromètre FDI, il faut alors accumuler plusieurs tirs (de l'ordre de cent à mille en fonction des conditions), et seule l'utilisation d'une chaîne haute cadence peut garantir la répétabilité tir à tir du laser au niveau nécessaire. Le but étant de sonder des plasmas sur-denses, on ne peut utiliser qu'un montage en réflexion ou bien utiliser un échantillon dont l'épaisseur est de l'ordre de son épaisseur de peau à la fréquence du laser (≈ 10 nm pour un métal), afin qu'une partie conséquente de l'énergie de la sonde puisse le traverser. Ceci est exclu compte-tenu de la nécessité de renouveler très rapidement l'échantillon entre deux tirs laser (1 ms). Nous avons donc choisi de travailler en réflexion sur des échantillons plus épais.

2.2.2.1 Principe : mesure du déphasage et de la réflectivité

Avant toute chose, je précise le vocabulaire que j'emploierai dans tout le chapitre : le *faisceau sonde* utilisé pour faire la mesure FDI est lui même composé de deux impulsions qui sont l'*impulsion sonde* et l'*impulsion référence* (cf figure 2.11).

On verra plus loin que pour optimiser la qualité des résultats, il est nécessaire avant chaque *tir de mesure*, de procéder à un *tir de référence* que l'on effectue sans le faisceau pompe.

Le principe est de mesurer le déphasage et la modification de réflectivité vue par l'impulsion sonde par rapport à l'impulsion référence, c'est à dire la réflectivité complexe de l'échantillon

excité normalisée à sa valeur avant excitation. Dans le contexte du FDI, qui est une mesure sensible au champ laser plutôt qu'à son intensité, la réflectivité est à comprendre en champ. C'est donc la racine carrée de celle en intensité telle qu'on l'entend habituellement. Chaque impulsion de faisceau sonde étant très courte (≈ 30 fs), on suppose dans un premier temps cette réflectivité relative constante pendant le passage de l'impulsion sonde, et on la note $R = r e^{i\phi}$ (on ne fait pas de distinction de polarisation pour l'instant). Après réflexion sur la cible, le faisceau sonde est collecté par une lentille qui image la zone d'interaction de la cible sur la fente d'entrée d'un spectromètre. Le champ électrique du faisceau sonde au niveau de celle-ci peut s'écrire (avec le choix convenable d'origine de temps et d'espace) :

$$E_i(t) = E_0(t)e^{i\omega_0 t + \phi_0} + r e^{i\phi} E_0(t - \Delta t)e^{i\omega_0(t - \Delta t) + \phi_0}, \quad (2.3)$$

où $E_0 \in \mathbb{R}$ est l'enveloppe temporelle du champ, ω_0 la pulsation de l'onde, ϕ_0 la phase absolue de chaque impulsion (identique pour les deux impulsions car l'une est la réplique exacte de l'autre), et Δt le délai entre les deux impulsions. Le signal recueilli sur la caméra du spectromètre est l'intensité spectrale $I(\omega)$ du signal électrique à l'entrée, $I(\omega) = |\mathcal{F}[E_i(t)]|^2$, où l'opérateur \mathcal{F} désigne la transformée de Fourier. On obtient :

$$I(\omega) = I_0(\omega) (1 + r^2 + 2r \cos(-\omega\Delta t + \phi)) \quad (2.4)$$

avec $I_0(\omega) = |\mathcal{F}[E_0(t) e^{i\omega_0 t}]|^2 = |\tilde{E}_0(\omega - \omega_0)|^2$ le spectre gaussien centré sur ω_0 . Le spectre donné par l'équation 2.4 est cannelé, il est formé d'une gaussienne modulée par un cosinus. L'interfrange dépend du délai entre les 2 impulsions et vaut $2\pi/\Delta t$, la visibilité des franges dépend de r , et la position des franges dans le spectre dépend de ϕ .

Pour mesurer r et ϕ par rapport à l'échantillon non excité, il faut donc être capable de repérer la visibilité et la position des franges par rapport à ce qu'elles seraient sans excitation. Le moyen le plus précis est de comparer les mesures à un tir de référence (*i.e.* sans faisceau pompe), pendant lequel on a par définition $R = 1$. Le signal enregistré par le spectromètre s'écrit pour le tir de référence :

$$I_{ref}(\omega) = 2I_0(\omega) (1 + \cos(-\omega\Delta t)). \quad (2.5)$$

La figure 2.12 montre un exemple d'images obtenues par le spectromètre, pour un tir de référence et de mesure. Le spectromètre utilisé était imageur et on a donc une résolution spatiale suivant une direction, à la surface de la cible (axe vertical sur la figure). La ligne imagée est ensuite "étirée" à 2 dimensions suivant la direction spectrale (axe horizontal). Les images obtenues par le spectromètre sont traitées par la méthode classique des transformées de Fourier[29]. Pour une ligne horizontale de l'image, l'équation 2.4 s'écrit :

$$I(\omega) = I_0(\omega) (1 + r^2 + r[e^{i(-\omega\Delta t + \phi)} + e^{i(\omega\Delta t - \phi)}]). \quad (2.6)$$

On passe dans le domaine temporel par transformée de Fourier inverse :

$$\mathcal{F}^{-1}[I(\omega)] = \mathcal{F}^{-1}[I_0(\omega)] \otimes \left\{ \begin{array}{l} (1 + r^2) \mathcal{F}^{-1}[1] + \\ r e^{i\phi} \mathcal{F}^{-1}[e^{i(-\omega\Delta t)}] + \\ r e^{-i\phi} \mathcal{F}^{-1}[e^{i(\omega\Delta t)}] \end{array} \right\} \quad (2.7)$$

où \otimes représente le produit de convolution. Le terme à droite de ce produit est constitué de trois pics de Dirac, centrés sur 0 et $\pm\Delta t$. Chaque pic est convolué par la fonction $\mathcal{F}^{-1}[I_0(\omega)]$, qui a une largeur inversement proportionnelle à la largeur du spectre enregistré. Si le nombre de

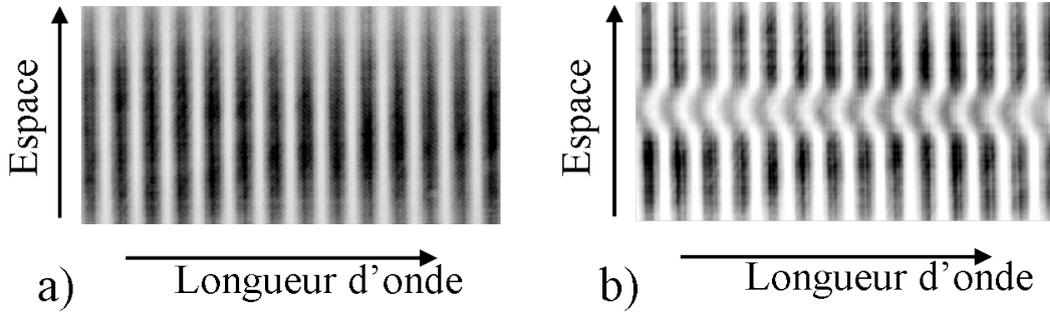


FIGURE 2.12 – Images expérimentales issues d'un tir de référence (a) et de mesure (b). Les franges d'interférence sont visibles dans la direction spectrale. La zone excitée de la cible est visible au centre suivant la direction verticale. Chaque ligne d'ordonnée fixée correspond à un point de la cible, et la visibilité et la position des franges le long de la ligne dépend de la réflectivité complexe en ce point. Ce tir est un cas école démonstratif. Dans la majeure partie des expériences que nous avons effectué, les modifications de phase et réflectivité ne sont pas visibles à l'œil nu.

franges spectrales dans le spectre est suffisant, les trois pics sont bien séparés et on peut isoler celui centré sur Δt : $\mathcal{F}^{-1}[I_0(\omega)] \otimes r e^{i\phi} \mathcal{F}^{-1}[e^{i(-\omega\Delta t)}]$. On effectue de nouveau une transformée de Fourier, pour obtenir une fonction sur ω que l'on nomme $[I(\omega)]_n$:

$$[I(\omega)]_n = I_0(\omega) e^{i(-\omega\Delta t)} r e^{i\phi}. \quad (2.8)$$

On effectue cette opération pour chaque ligne de l'image, et on obtient donc une "image" de nombre complexes. Le même traitement est appliqué au tir de référence pour donner $[I_{ref}(\omega)]_n = I_0(\omega) e^{i(-\omega\Delta t)}$, avant de faire la division point par point des deux images et obtenir la grandeur recherchée :

$$P(\omega) \equiv \frac{[I(\omega)]_n}{[I_{ref}(\omega)]_n} = r e^{i\phi}. \quad (2.9)$$

$P(\omega)$ est une image complexe dont chaque ligne horizontale doit contenir la même valeur $r e^{i\phi}$, de la réflectivité au point correspondant de l'échantillon. L'information est donc redondante sur tout le spectre observé, et on diminue notablement le bruit de la mesure en prenant la valeur moyenne sur toute la ligne. r et ϕ sont le module et l'argument de cette valeur moyenne.

Finalement, les phases et réflectivités absolues sont obtenues en multipliant $r e^{i\phi}$ par la réflectivité complexe de l'échantillon non excité, que l'on mesure par ailleurs (par ellipsométrie par exemple).

2.2.2.2 Montage expérimental

Schéma général L'expérience est schématisée figure 2.13. En entrée, le faisceau arrive de la salle laser encore étiré, comme nécessaire pour l'amplification CPA. Il est divisé en deux voies par une lame séparatrice. Chaque voie possède un système de réglage d'énergie et un compresseur. En effet, les éléments optiques traversés par les deux voies avant d'atteindre la cible étant différents, les réglages des compresseurs nécessaires pour pré-compenser la dispersion spectrales de ceux-ci sont différents sur les deux voies. Cette précaution permet d'obtenir effectivement la durée optimale du laser au niveau de la cible ($\lesssim 30$ fs). La cible est maintenue sous

vide, afin d'éviter les distorsions du front d'onde des impulsions courtes lorsqu'elles sont focalisées dans l'air. Une ligne à retard motorisée permet de régler le délais entre les voies pompe et sonde, afin d'échantillonner temporellement la réponse de la cible. Un ensemble de diagnostics (non représentés) sont utilisables pour mesurer la durée des impulsions, le contraste temporel et l'énergie laser.

Voie sonde Après être comprimé, le faisceau passe au travers d'un interféromètre de Michelson qui duplique l'impulsion en deux copies et retarde l'une par rapport à l'autre. Celui-ci est le plus compact possible (longueur de bras ≈ 10 cm) pour optimiser sa stabilité. Le faisceau est ensuite envoyé dans l'enceinte sous vide et est diaphragmé. Il passe éventuellement au travers d'un cristal doubleur avant d'être focalisé par un miroir sphérique (focale 500 mm) utilisé en incidence quasi-normale sur la cible sur une surface supérieure à la zone chauffée par la pompe et avec un angle d'incidence de 45° . Le diaphragme ("Pinhole" sur la figure 2.13), de diamètre typique 1 à 2 mm, limite l'ouverture du faisceau avant sa focalisation. Cela permet d'élargir et d'uniformiser la tache focale de la sonde sur la cible, afin d'avoir un champs de vision suffisamment large (typiquement $250 \mu\text{m}$) et homogène. Après réflexion sur la cible, il passe par un doublet achromatique de reprise qui image le plan de la cible (résolution $5 \mu\text{m}$) sur la fente d'entrée d'un spectromètre imageur réalisé au laboratoire. En sortie, juste devant le détecteur (caméra CCD 16 bit refroidie), le spectre passe au travers d'un prisme de Wollaston qui sépare spatialement les 2 polarisations S et P, afin d'effectuer la mesure simultanément dans les deux directions. Nous avons effectué un travail conséquent de mise au point et de réglage afin d'assurer des performances optimales en termes de précision sur la réflectivité et le déphasage, ainsi que sur la résolution spatiale et temporelle de la mesure et enfin de taux de réjection des polarisations. Ce travail a porté sur tous les éléments de la voie sonde : le réglage du Michelson, le choix du système de focalisation, le choix du système de reprise d'image, le passage des hublots de l'enceinte à vide, le réglage du spectromètre, et enfin le réglage et la vérification de la bonne séparation des directions de polarisation, qui nous a permis d'obtenir un taux de réjection de l'ordre de 10^{-3} . Le lecteur demandeur de plus de détails pourra consulter la thèse de François Deneuille[4]. Précisons que c'est grâce à l'accumulation d'un grand nombre d'interactions identiques sur la CCD qu'on peut se permettre d'utiliser certaines caractéristiques du set-up qui améliorent la qualité au dépend de la quantité de signal comme ((i)) une fente de spectromètre très fine ($25 \mu\text{m}$) pour l'amélioration de la résolution spectrale, ((ii)) la mesure d'une faible portion du spectre pour réduire les défauts d'achromatismes de la lentille d'imagerie et ((iii)) limiter le flux de la sonde sur cible et dans la lentille d'imagerie, ce dernier point afin de limiter l'intégrale B dans celle-ci.

Voie pompe Après compression et passage par la ligne à retard, une partie de l'énergie est prélevée pour être mesurée sur une photo-diode calibrée. Le faisceau entre ensuite dans l'enceinte sous vide, est diaphragmé, éventuellement doublé en fréquence puis focalisé sur la cible avec un angle d'incidence de 5° par rapport à la normale. La réflexion après cible est transportée en dehors de l'enceinte pour être mesurée sur une deuxième photo-diode. Cette mesure permet de connaître la quantité d'énergie déposée dans la cible. Le diaphragme de diamètre typique 4 mm couplé à la lentille de focalisation 200 mm définit une tache d'Airy de diamètre $50 \mu\text{m}$ (voir figure 2.14), ce qui est inférieur au champ vu par la sonde mais bien supérieur à la résolution

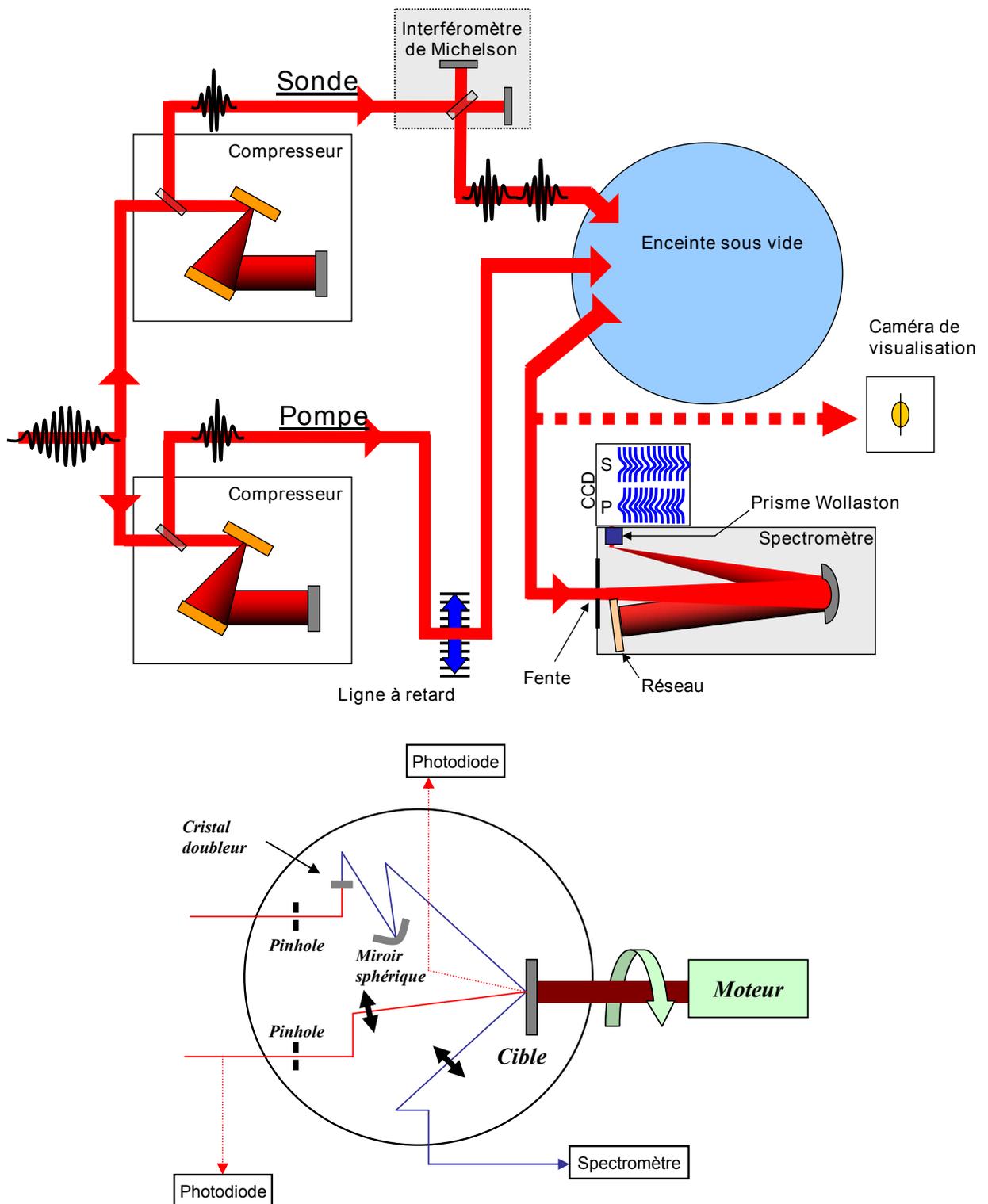


FIGURE 2.13 – Schéma du set-up expérimental représenté ici dans le cas d'une pompe à 800 nm et d'une sonde à 400 nm. Les miroirs plan n'ont pas été représentés. Le schéma du bas détaille le contenu de l'enceinte sous vide. Diamètre des optiques du faisceau 50 mm, angles d'incidences sur cible : Pompe 5° - Sonde 45°. Longueur des bras de l'interféromètre de Michelson \approx 10 cm, diamètre de l'enceinte sous vide \approx 1 m, focale du spectromètre 1 m.

spatiale de son imagerie. A partir de la mesure de la tache focale et de l'énergie incidente, on peut facilement remonter à la fluence d'excitation en tout point de la cible. Ceci peut être mis à profit pour avoir simultanément des mesures pour plusieurs valeurs de fluence, comme ce sera fait dans le chapitre 3.

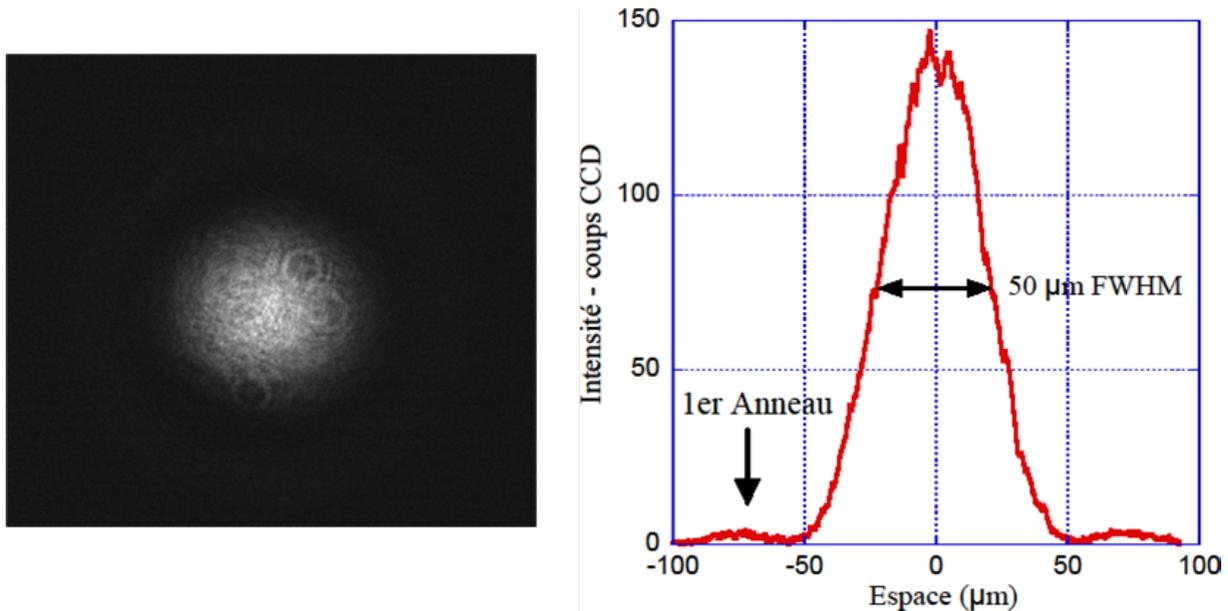


FIGURE 2.14 – Tache focale de la pompe. Gauche : image 2D; Droite : coupe au centre. Les formes circulaires de petites tailles sur l'image 2D sont dûs à des défauts sur les densités optiques présentes devant la caméra.

Cible Il est nécessaire que les échantillons étudiés aient une qualité de surface "optique" (en termes de planéité et rugosité) pour faire les mesures d'interférométrie. Au besoin, nous avons utilisé des dépôts de quelques centaines de nanomètres en surface de hublots de verre. Un autre impératif est de renouveler l'échantillon de façon suffisamment rapide pour le laser cadencé au kilohertz et précise en terme de positionnement pour être compatible avec la taille des foyers et les résolutions spatiales et temporelles attendues (comme les faisceaux pompe et sonde qui se croisent sur la cible ne sont pas co-propagatifs, une variation en position de la cible se traduit en variation de l'instant observé). Nous avons réalisé un porte-cible rotatif (voir figure 2.15) inspiré de celui existant dans la *Salle Noire* du Laboratoire d'Optique Appliquée à Palaiseau. La cible se présente sous la forme d'un disque de diamètre 10 cm. Une platine de translation permet de déplacer la cible horizontalement entre deux tirs, et un moteur la met en rotation pendant le tir. Les impacts laser décrivent donc des cercles concentriques à la surface. Le déplacement entre deux impact est supérieur à 200 μm. Trois pico-moteurs (moteurs de précision pour régler les montures optiques) permettent de régler l'assiette de la surface de la cible pour qu'elle reste dans le même plan au cours de tous ses déplacements. En pratique les erreurs de positionnement de la surface ont été mesurés $< 5 \mu\text{m}$.

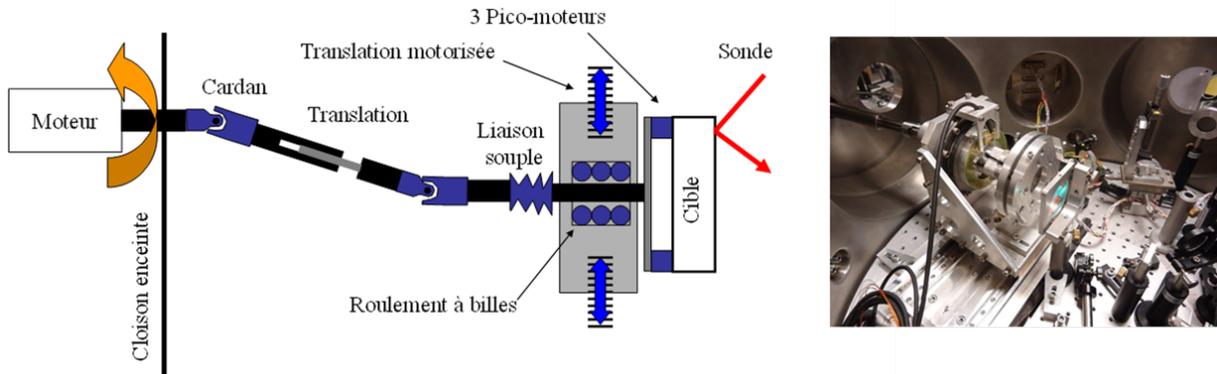


FIGURE 2.15 – Schéma vu de dessus (gauche) et photographie du porte cible stabilisé (droite).

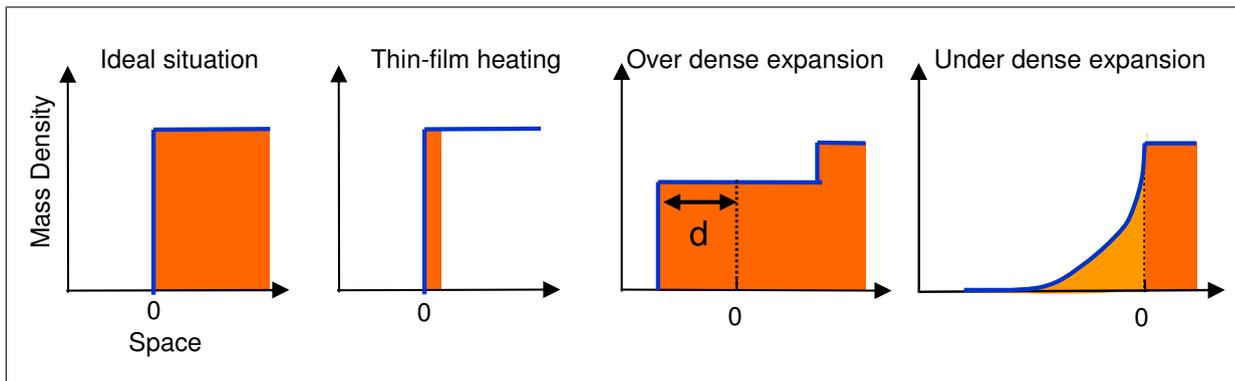


FIGURE 2.16 – Représentation schématique des différentes situations sondées. La surface initiale est à la position 0, les lasers arrivent de gauche.

Performances En résumé, notre système permet d'exciter la cible jusqu'à 3.5 J.cm^{-2} par impulsion de 30 fs ($\approx 1.2 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$), dans une tache de $50 \mu\text{m}$ FWHM. La précision de la mesure est de $\pm 5 \text{ mrad}$ en phase, $\pm 1\%$ en réflectivité et les résolutions sont $5 \mu\text{m}$ (spatiale) et 50 fs (temporelle).

2.2.2.3 Interprétation des mesures

La réflectivité complexe mesurée dépend du profil de l'interface vide-matériau. La figure 2.16 schématise les différentes situations : (i) cas idéal d'un chauffage homogène et isochore ; (ii) cas où le chauffage se produit sur une profondeur comparable ou inférieure à la profondeur sondée ; (iii) cas d'expansion sur-dense, où la cohésion de l'échantillon est préservée, mais la pression interne propulse la surface vers le vide, et enfin (iv) le cas d'expansion sous-dense, où la cohésion de l'échantillon est rompue et un plasma se développe dans le vide. Nous avons établi un critère fiable pour distinguer expérimentalement ces situations, et savoir avec confiance dans quel cas on mesure réellement la fonction diélectrique du matériau excité.

Ce critère est basé sur le cas idéal, car il est alors évident que la mesure FDI est effective-

ment sensible à la fonction diélectrique recherchée. Les coefficients complexes de réflexion de la sonde sont donnés par les équations de Fresnel :

$$R_s^* = \frac{\cos \theta - \sqrt{N^2 - \sin^2 \theta}}{\cos \theta + \sqrt{N^2 - \sin^2 \theta}} \quad (2.10)$$

$$R_p^* = \frac{N^2 \cos \theta - \sqrt{N^2 - \sin^2 \theta}}{N^2 \cos \theta + \sqrt{N^2 - \sin^2 \theta}},$$

où l'on distingue maintenant la direction de polarisation par les indices p ou s , $N = n - i\kappa$ est l'indice optique complexe (*i.e.* la racine carrée de la fonction diélectrique), et θ l'angle d'incidence de la sonde. En toute rigueur, la mesure dans une direction de polarisation est alors suffisante pour inverser les relations de Fresnel⁴ et déterminer N . Néanmoins, en mesurant simultanément les deux directions, on a une information redondante qui nous sert à tester l'hypothèse du cas idéal. En effet, il vient facilement à partir des équations précédentes :

$$\tan^2 \theta = \frac{1 - R_s^* R_s^* + R_p^*}{1 + R_s^* R_s^* - R_p^*}, \quad (2.11)$$

ce qui se donne pour $\theta = 45^\circ$

$$R_p^* = (R_s^*)^2. \quad (2.12)$$

Cette égalité est complètement indépendante de la valeur de N , et doit impérativement être vérifiée dans le cas d'un chauffage isochore et homogène. Nous avons défini deux quantités pour traduire l'égalité en termes de r et ϕ :

$$\begin{aligned} \beta_r &= r_p / r_s^2, \\ \beta_\phi &= 2\phi_s - \phi_p. \end{aligned} \quad (2.13)$$

Dans le cas idéal, on a donc obligatoirement $\beta_r = 1$ et $\beta_\phi = 0$. En plaçant la sonde à 45° de la cible, on a un critère expérimental qui s'applique directement sur les quantités mesurées. Sans aucune interprétation intermédiaire, il informe si la matière sondée a bien été chauffée de façon isochore. Si c'est bien le cas, on peut déduire la fonction diélectrique ϵ en toute confiance en inversant une des relations 2.10. D'un point de vue expérimental, de meilleurs résultats (*i.e.* la moins grande propagation d'incertitude) sont obtenus en utilisant simultanément les deux directions de polarisations, par la relation :

$$\epsilon = \frac{\Omega_s}{\Omega_p}, \quad (2.14)$$

avec $\Omega_{s,p} = (1 - R_{s,p}^*) / (1 + R_{s,p}^*)$.

Il existe une seconde situation simple à repérer et riche en enseignements : celle de l'expansion sur-dense sur une distance d (troisième schéma de la figure 2.16). Dans ce cas, comme l'interface à la surface est raide, on a toujours $\beta_r = 1$. En revanche, comme la surface réfléchissante s'est déplacée d'une distance d , l'impulsion sonde de longueur d'onde λ reçoit un

4. Les relations 2.10 font intervenir la réflectivité complexe absolue. Les mesures FDI doivent donc être multipliées par la réflectivité complexe de l'échantillon froid, calculée par les mêmes relations à partir de la valeur connue de l'indice optique N_{froid} .

déphasage Doppler $\phi^{(D)} = 4\pi \cos(\theta)d/\lambda$, indépendamment de sa polarisation. En séparant la contribution Doppler $\phi^{(D)}$ de celle dite *Fresnel*, $\phi^{(Fr)}$ due uniquement aux propriétés optiques du matériau, on a $\phi_{s,p} = \phi_{s,p}^{(Fr)} + \phi^{(D)}$. Comme on a toujours $2\phi_s^{(Fr)} - \phi_p^{(Fr)} = 0$, on obtient $\beta_\phi = 2\phi_s - \phi_p = \phi^{(D)}$. En d'autres termes, β_ϕ est égal à la phase Doppler. On peut alors corriger la phase mesurée et en extraire la fonction diélectrique comme précédemment. De plus, on a accès au déplacement d de la surface réfléchissante avec une précision de l'ordre du nanomètre.

Les deux autres cas sont plus délicats à étudier. Il faut faire appel à la théorie des réflexions sur les couches minces[38] pour le cas ((ii)), et à un solveur d'Helmoltz pour le cas ((iv)). Les détails sont donnés dans les références déjà citées[3; 4]. Le résultat à retenir est que dans ces situations, $\beta_r \neq 1$, et qu'il n'y a pas de façon directe (*i.e.* sans recours à un modèle) de déterminer la fonction diélectrique du matériau. Précisons qu'avec notre système et le critère sur β_r , une longueur de gradient de 1 nm est déjà détectable. En conclusion, on voit que la mesure très précise de la réflectivité dans les deux directions de polarisation permet de garantir ou au contraire d'exclure, la validité de la mesure de la fonction diélectrique.

2.2.3 Les suites de ce travail

J'ai principalement utilisé le dispositif décrit ici pour mener les études qui seront décrites dans le chapitre 3, et sur lesquelles je ne m'étendrai donc pas ici. Notons néanmoins qu'à la suite du développement de ce système, j'ai mis en place un interféromètre monocoup dans une autre salle d'expérience du CELIA, auprès du laser *ECLIPSE* (≈ 100 mJ, 10 Hz). Cet interféromètre a d'abord été utilisé en mode TASRI notamment pour observer la détente d'échantillons très minces chauffés par laser. J'ai ensuite mis en place les outils expérimentaux et de dépouillement pour utiliser toute l'information spectrale[36] et disposer ainsi d'une résolution de ≈ 45 fs en fonctionnement monocoup. L'image 2.17 montre l'intérêt de cette technique : à partir de la même acquisition expérimentale, le traitement rigoureux tenant compte de toute l'information spectrale permet de gagner un facteur 10 sur la résolution temporelle et de corriger des comportements non physiques (oscillations au temps négatif), par rapport au traitement de type TASRI. On voit également sur cette figure qu'en cas d'utilisation monocoup, la précision sur la valeur de la phase est dégradée par rapport aux performances obtenues précédemment. Le laser *ECLIPSE* est maintenant en jouvence, dans l'objectif d'augmenter son énergie jusqu'au joule par impulsion. Le système interférométrique existant pourrait être mis à profit en particulier pour quantifier le pré-plasma issu du piédestal de l'impulsion.

Pour l'instant, c'est le système du laser Aurore, que j'ai longuement présenté précédemment, qui a connu une seconde jeunesse. Après mon départ du CELIA, l'activité autour du FDI a repris sous l'impulsion de mon collègue Jérôme Gaudin de l'Université de Bordeaux. La sonde est maintenant dotée d'un système NOPA (Non-Linear Parametric Amplification), ce qui permet une flexibilité accrue pour le choix de longueur d'onde. Ceci permet de sonder les variations des propriétés optiques après excitation du matériau à plusieurs longueurs d'onde. L'information est précieuse notamment lorsque l'on compare les mesures à des résultats de codes *ab initio* de dynamique moléculaire quantique, qui manquent parfois de précision sur le calcul de la largeur des bandes interdites dans les diélectriques et semi-conducteurs. Cette largeur de bande normalise en quelque sorte l'échelle en longueur d'onde, et il est donc bien plus convainquant

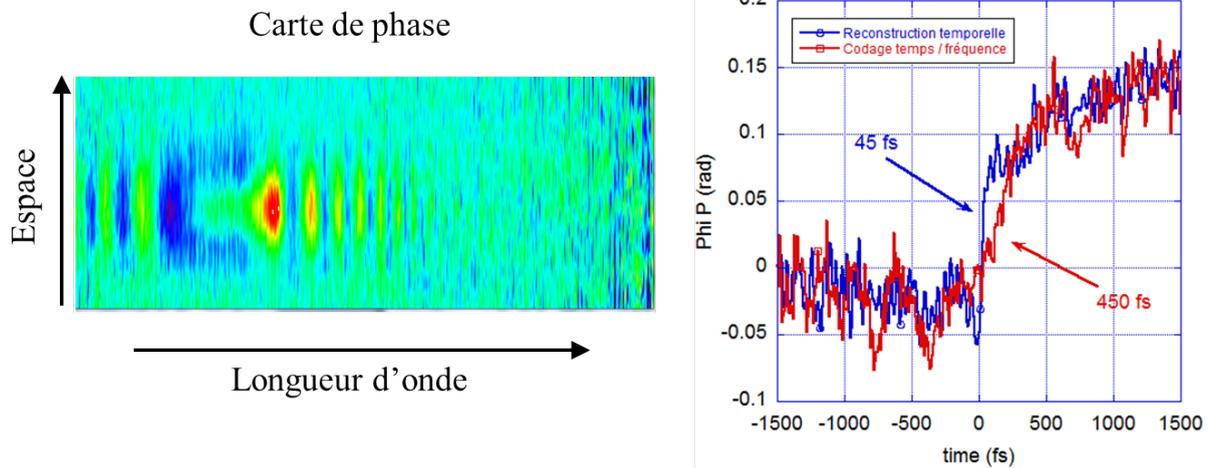


FIGURE 2.17 – Phase mesurée en monocouche en face arrière d'un échantillon d'or d'épaisseur 50 nm éclairé par une impulsion pompe de durée 33 fs à 5.8 J.cm^{-2} . La sonde était étirée à 5 ps. A gauche : La variation de phase en face arrière est tellement brutale que l'information est codée dans tout le spectre, ce qui se traduit par des oscillations dans la carte de phase. A droite : Le profil temporel obtenu en mode TASRI utilisant une correspondance linéaire temps-fréquence (rouge), et en reconstruisant le signal temporel à partir de toute l'information spectrale (bleu). Dans ce cas, un gain d'un facteur 10 est obtenu sur la résolution temporelle, et les oscillations non physiques ont disparu.

de comparer l'expérience à la théorie sur une large bande spectrale. Au cours des dernières années le système expérimental a évolué dans ce sens, et sert maintenant "au long cours" une étude impliquant des chercheurs de Liège et Grenoble sur la transition de phase ultra-rapide de matériaux à base de GeTe, pour leur utilisation comme mémoire non volatile ultra-rapide[41]. Une thèse au CELIA est en cours sur le sujet.

Références du chapitre 2

- [1] C. FOURMENT, N. ARAZAM, C. BONTE, T. CAILLAUD, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, M. HARMAND, S. HULIN, S. PETIT et J. J. SANTOS : Broadband, high dynamics and high resolution charge coupled device-based spectrometer in dynamic mode for multi-KeV repetitive X-ray sources. *Review of Scientific Instruments*, 80(8):083505, 2009.
- [2] R. DAUTRAY et J.-P. WATTEAU : *La fusion thermonucléaire inertielle par laser*. Eyrolles, 1993.
- [3] C. FOURMENT, F. DENEUVILLE, B. CHIMIER, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, S. HULIN, S. PETIT, O. PEYRUSSE et J. J. SANTOS : An interferometric diagnostic for the experimental study of dynamics of solids exposed to intense and ultrashort radiation. *In Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, volume 8777, mai 2013.
- [4] F. DENEUVILLE : *Étude de la dynamique électronique des plasmas denses et tièdes par interférométrie optique*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, 2013.
- [5] F. DORCHIES, A. LÉVY, C. GOYON, P. COMBIS, D. DESCAMPS, C. FOURMENT, M. HARMAND, S. HULIN, P. M. LEGUAY, S. PETIT, O. PEYRUSSE et J. J. SANTOS : Unraveling the solid-liquid-vapor phase transition dynamics at the atomic level with ultrafast X-ray Absorption Near-Edge Spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 107:245006, Dec 2011.
- [6] J. GAUDIN, C. FOURMENT, B. I. CHO, K. ENGELHORN, E. GALTIER, M. HARMAND, P. M. LEGUAY, H. J. LEE, B. NAGLER, M. NAKATSUTSUMI, C. OZKAN, M. STÖRMER, S. TOLEIKIS, Th TSCHENTSCHER, P. A. HEIMANN et F. DORCHIES : Towards simultaneous measurements of electronic and structural properties in ultra-fast X-ray free electron laser absorption spectroscopy experiments. *Scientific Reports*, 4(1):4724, 2014.
- [7] B. MAHIEU, N. JOURDAIN, K. TA PHUOC, F. DORCHIES, J.-P. GODDET, A. LIFSCHITZ, P. RENAUDIN et L. LECHERBOURG : Probing warm dense matter using femtosecond x-ray absorption spectroscopy with a laser-produced betatron source. *Nature Communications*, 9(1):3276, 2018.
- [8] Z. LIN, L. V. ZHIGILEI et V. CELLI : Electron-phonon coupling and electron heat capacity of metals under conditions of strong electron-phonon nonequilibrium. *Phys. Rev. B*, 77:075133, Feb 2008.
- [9] F. DENEUVILLE, B. CHIMIER, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, S. HULIN, S. PETIT, O. PEYRUSSE, J. J. SANTOS et C. FOURMENT : Sub-picosecond and nanometer scale dynamics of aluminum target surface heated by ultrashort laser pulse. *Appl. Phys. Lett.*, 102(19):194104, 2013.
- [10] F. DORCHIES : *Développement de sources X ultra-brèves : Application à la spectroscopie d'absorption X résolue en temps*. Habilitation à diriger des recherches, Université de Bordeaux, 2013.
- [11] The Center for X-RAY OPTICS et Advanced Light SOURCE : *X-ray data booklet*. LBNL, University of California, 2009.
- [12] L. T. HUDSON, A. HENINS, R. D. DESLATTES, J. F. SEELY, G. E. HOLLAND, R. ATKIN, L. MARLIN, D. D. MEYERHOFER et C. STOECKL : A high-energy X-ray spectrometer diagnostic for the OMEGA laser. *Review of Scientific Instruments*, 73(6):2270–2275, 2002.
- [13] I. THFOIN, C. REVERDIN, S. HULIN, C. I. SZABO, S. BASTIANI-CECCOTTI, D. BATANI, E. BRAMBRINK, M. KOENIG, A. DUVAL, X. LEBOEUF, L. LECHERBOURG, B. ROSSÉ, A. MORACE, J. J. SANTOS, X. VAISSEAU, C. FOURMENT, L. GIUFFRIDA et M. NAKATSUTSUMI : Monte-carlo simulation of noise in hard X-ray transmission crystal spectrometers : Identification of contributors to the background noise and shielding optimization. *Review of Scientific Instruments*, 85(11):11D615, 2014.
- [14] C. REVERDIN, A. S. MORLENS, B. ANGELIER, J. L. BOURGADE, J. Y. BOUTIN, M. BRIAT, G. CHARLES, A. DUVAL, A. ESTADIEU, C. CHOLET, D. GONTIER, D. HUSSON, H. P. JACQUET, J. P. LEBRETON, G. LIDOVE, B. MARCHET, R. MARMORET, R. MARONI, P. MILLIER, J. RAIMBOURG, C. REMOND, R. ROSCH,

- G. SOULLIÉ, P. STEMMLER, P. TROUSSEL, J. L. ULMER, B. VILLETTE et R. WROBEL : X-ray calibration of the time resolved crystal spectrometer SXDHR-1t of the Ligne d'Intégration Laser. *Review of Scientific Instruments*, 75(10):3730–3733, 2004.
- [15] M. HARMAND, F. DORCHIES, O. PEYRUSSE, D. DESCAMPS, C. FOURMENT, S. HULIN, S. PETIT et J. J. SANTOS : Broad M-band multi-keV X-ray emission from plasmas created by short laser pulses. *Physics of Plasmas*, 16(6):063301, 2009.
- [16] C. D. CHEN, J. A. KING, M. H. KEY, K. U. AKLI, F. N. BEG, H. CHEN, R. R. FREEMAN, A. LINK, A. J. MACKINNON, A. G. MACPHEE, P. K. PATEL, M. PORKOLAB, R. B. STEPHENS et L. D. VAN WOERKOM : A bremsstrahlung spectrometer using K-edge and differential filters with image plate dosimeters. *Review of Scientific Instruments*, 79(10):10E305, 2008.
- [17] J. L. BOURGADE, B. VILLETTE, J. L. BOCHER, J. Y. BOUTIN, S. CHICHE, N. DAGUE, D. GONTIER, J. P. JADAUD, B. SAVALE, R. WROBEL et R. E. TURNER : DMX : An absolutely calibrated time-resolved broadband soft X-ray spectrometer designed for MJ class laser-produced plasmas (invited). *Review of Scientific Instruments*, 72(1):1173–1182, 2001.
- [18] G. GAUGLITZ et T. VO-DINH : *Handbook of Spectroscopy*. WILEY-VCH, Weinheim, 2003.
- [19] S. M. GRUNER, M. W. TATE et E. F. EIKENBERRY : Charge-coupled device area X-ray detectors. *Review of Scientific Instruments*, 73(8):2815–2842, 2002.
- [20] A. WELLS, D. H. LUMB, K. A. POUNDS, G. C. STEWART, B. ASCHENBACH, H. BRAUNINGER, G. HASINGER, J. TRUMPER, O. CITTERIO, L. SCARSI, A. PEACOCK et B. TAYLOR : JET-X : A joint european X-ray telescope for SPECTRUM-X. In *Proceedings of International Astronomical Union Colloquium*, volume 115, page 318, 1990.
- [21] A. ROUSSE, A. ANTONETTI, P. AUDEBERT, A. DOS SANTOS, F. FALLIES, J.-P. GEINDRE, G. GRILLON, A. MYSYROWICZ et J.-C. GAUTHIER : Observation of X-ray fluorescence resulting from photoionization by a femtosecond laser-produced plasma X-ray source. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 27(21):L697–L701, nov 1994.
- [22] D. H. LUMB, E. G. CHOWANIETZ et A. WALLS : X-ray measurements of charge diffusion effects in EEV Ltd. Charge-Coupled Devices. *Optical Engineering*, 26(8):773 – 778, 1987.
- [23] G. R. HOPKINSON : Analytic modeling of charge diffusion in Charge-Coupled-Device imagers. *Optical Engineering*, 26(8):766 – 772, 1987.
- [24] F. DORCHIES, F. BLASCO, C. BONTÉ, T. CAILLAUD, C. FOURMENT et O. PEYRUSSE : Observation of subpicosecond X-ray emission from laser-cluster interaction. *Phys. Rev. Lett.*, 100:205002, May 2008.
- [25] F. DORCHIES, M. HARMAND, D. DESCAMPS, C. FOURMENT, S. HULIN, S. PETIT, O. PEYRUSSE et J. J. SANTOS : High-power 1 kHz laser-plasma X-ray source for ultrafast X-ray Absorption Near-Edge Spectroscopy in the keV range. *Applied Physics Letters*, 93(12):121113, 2008.
- [26] F. GOBET, F. HANNACHI, M.-M. ALÉONARD, M. GERBAUX, G. MALKA, J.-N. SCHEURER, M. TARISIEN, G. CLAVERIE, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, R. FEDOSEJEVS, C. FOURMENT, S. PETIT, V. MÉOT et P. MOREL : Particle characterization for the evaluation of the ^{181m}Ta excitation yield in millijoule laser induced plasmas. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 41(14):145701, jul 2008.
- [27] O. T. STRAND, L. V. BERZINS, D. R. GOOSMAN, W. W. KUHLOW, P. D. SARGIS et T. L. WHITWORTH : Velocimetry using heterodyne techniques. In Dennis L. PAISLEY, Stuart KLEINFELDER, Donald R. SNYDER et Brian J. THOMPSON, éditeurs : *26th International Congress on High-Speed Photography and Photonics*, volume 5580, pages 593 – 599. International Society for Optics and Photonics, SPIE, 2005.
- [28] D. T. FARLEY, H. M. IERKIC et B. G. FEJER : Radar interferometry : A new technique for studying plasma turbulence in the ionosphere. *J.Geophys.Res.*, 86(A3):1467–1472, 1981.

- [29] J. PIASECKI, B. COLOMBEAU, M. VAMPOUILLE, C. FROEHLI et J. A. ARNAUD : Nouvelle méthode de mesure de la réponse impulsionnelle des fibres optiques. *Appl. Opt.*, 19(22):3749–3755, Nov 1980.
- [30] E. TOKUNAGA, A. TERASAKI et T. KOBAYASHI : Frequency-domain interferometer for femtosecond time-resolved phase spectroscopy. *Opt. Lett.*, 17(16):1131–1133, Aug 1992.
- [31] P. AUDEBERT, Ph. DAGUZAN, A. DOS SANTOS, J. C. GAUTHIER, J. P. GEINDRE, S. GUIZARD, G. HAMONIAUX, K. KRASSTEV, P. MARTIN, G. PETITE et A. ANTONETTI : Space-time observation of an electron gas in SiO_2 . *Phys. Rev. Lett.*, 73:1990–1993, Oct 1994.
- [32] J.-P. GEINDRE, P. AUDEBERT, A. ROUSSE, F. FALLIÈS, J. C. GAUTHIER, A. MYSYROWICZ, A. DOS SANTOS, G. HAMONIAUX et A. ANTONETTI : Frequency-domain interferometer for measuring the phase and amplitude of a femtosecond pulse probing a laser-produced plasma. *Opt. Lett.*, 19(23):1997–1999, Dec 1994.
- [33] P. BLANC, P. AUDEBERT, F. FALLIÈS, J. P. GEINDRE, J. C. GAUTHIER, A. DOS SANTOS, A. MYSYROWICZ et A. ANTONETTI : Phase dynamics of reflected probe pulses from sub-100-fs laser-produced plasmas. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13(1):118–124, Jan 1996.
- [34] D. STRICKLAND et G. MOUROU : Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 56(3):219 – 221, 1985.
- [35] A. BENUZZI-MOUNAIX, M. KOENIG, J. M. BOUDENNE, T. A. HALL, D. BATANI, F. SCIANITTI, A. MASINI et D. DI SANTO : Chirped pulse reflectivity and frequency domain interferometry in laser driven shock experiments. *Phys. Rev. E*, 60:R2488–R2491, Sep 1999.
- [36] J.-P. GEINDRE, P. AUDEBERT, S. REBIBO et J.-C. GAUTHIER : Single-shot spectral interferometry with chirped pulses. *Opt. Lett.*, 26(20):1612–1614, Oct 2001.
- [37] L. LECHERBOURG, P. RENAUDIN, S. BASTIANI-CECCOTTI, J.-P. GEINDRE, C. BLANCARD, P. COSSÉ, G. FAUSSURIER, R. SHEPHERD et P. AUDEBERT : X-ray absorption of a warm dense aluminum plasma created by an ultra-short laser pulse. *High Energy Density Physics*, 3(1):175 – 180, 2007. Radiative Properties of Hot Dense Matter.
- [38] M. BORN et E. WOLF : *Principles of Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 1999.
- [39] K. WIDMANN, T. AO, M. E. FOORD, D. F. PRICE, A. D. ELLIS, P. T. SPRINGER et A. NG : Single-state measurement of electrical conductivity of warm dense gold. *Phys. Rev. Lett.*, 92:125002, Mar 2004.
- [40] T. AO, Y. PING, K. WIDMANN, D. F. PRICE, E. LEE, H. TAM, P. T. SPRINGER et A. NG : Optical properties in nonequilibrium phase transitions. *Phys. Rev. Lett.*, 96:055001, Feb 2006.
- [41] P. NOÉ, C. VALLÉE, F. HIPPERT, F. FILLOT et J.-Y. RATY : Phase-change materials for non-volatile memory devices : from technological challenges to materials science issues. *Semiconductor Science and Technology*, 33(1):013002, dec 2017.

Interférométrie dans le domaine des fréquences pour l'étude de la matière dense et tiède

3.1 Contexte

3.1.1 Warm Dense Matter ?

La compréhension et la description théorique des solides jusqu'à une température de quelques milliers de Kelvin sont l'objet d'études depuis presque un siècle. La connaissance des plasmas à faible densité et haute température (typiquement plus de 10 eV, soit 10^5 K) est également très avancée. En revanche, dans le domaine intermédiaire la matière ne peut pas être décrite par les théories habituelles des plasmas ou de la matière condensée[1]. Ces conditions que l'on appelle *denses et tièdes* (WDM pour *Warm Dense Matter*) s'étendent typiquement de 10% à quelques fois la densité normale du solide, et une température entre 0.5 et 50 eV. Les ions ou atomes sont trop désordonnés pour être traités par la physique de la matière condensée, mais trop corrélés¹ pour être vus comme ceux d'un plasma cinétique. La théorie de champs moyen et d'écrantage de Debye par exemple n'est plus valide. Dans la gamme de température considérée, l'énergie cinétique moyenne des électrons est voisine de l'énergie de Fermi ; ils sont donc partiellement dégénérés², ce qui impose leur traitement par la physique quantique, mais interdit les simplifications possibles à plus basse température. Enfin et contrairement à un plasma chaud, la matière n'est que partiellement ionisée. Les processus d'ionisation et de recombinaison jouent un rôle important sur l'état de la matière dans des conditions thermodynamiques (température, pression)

1. Le paramètre de corrélation Γ , défini comme le rapport de l'énergie potentielle sur l'énergie thermique, est proche de 1 dans la WDM.

2. Pour un gaz d'électrons libres, le paramètre de dégénérescence Λ peut s'écrire $\Lambda^2 = T_F/T_e$.

données. La figure 3.1 montre quelques-uns des modèles théoriques qui peuvent être appliqués dans le diagramme ρ - T de l'aluminium pour calculer son équation d'état. Dans la région hachurée, les théories sont interpolées pour construire les équations d'état tabulées SESAME [2]. Dans la nature, de telles conditions sont attendues dans la plupart des intérieurs planétaires [3]. Mais c'est surtout lors d'activités humaines qu'on les retrouve, notamment en laboratoire : Fils fusibles pour les sources de rayonnement, détonateurs, interrupteurs fort courant, explosifs solides et toutes les expériences d'interaction laser-matière à haut flux, ce qui englobe les premiers instants d'une expérience FCI, l'endommagement et l'usinage laser.

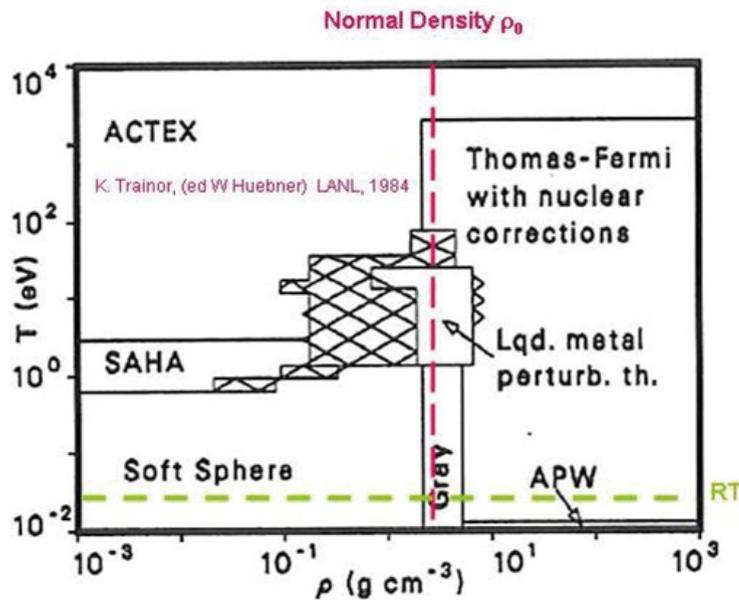


FIGURE 3.1 – Modèles théoriques applicables dans différentes régions du diagramme ρ - T de l'aluminium pour calculer son équation d'état. Dans la région WDM, les tables d'équation d'état SESAME sont construites par interpolation entre ces différents modèles. Figure tirée de [2]

3.1.2 Les descriptions théoriques de la WDM

La WDM peut schématiquement être vue à l'interface entre les solides et les plasmas, et en l'absence de théorie "unifiée", on trouve naturellement des façons de la décrire qui sont issues des théories correspondantes avec des efforts pour aller "vers le chaud" (depuis la physique des solides), ou "vers le froid et dense" (depuis celle des plasmas cinétiques). Cette séparation coïncide généralement avec une description respectivement microscopique ou fluide (mais considérant dans ce cas une fonction de distribution électronique non Maxwellienne). L'utilisation par un théoricien de l'une ou l'autre des façons de faire dépend bien sûr de la physique qu'il a l'habitude de traiter, mais à l'exception de cas très particuliers il doit toujours faire appel à l'autre "vision" pour combler les manques. Il existe tout de même des raisons profondes de préférer l'une ou l'autre : Si la priorité va à l'hydrodynamique dans le phénomène que l'on veut décrire, les variations temporelles, les dimensions spatiales et la durée, il sera plus commode d'adopter une description fluide propre aux codes plasmas. A l'inverse, la description "solide"

sera plus adaptée pour les transitions de phase ou les effets de corrélation, les effets quantiques et la description microscopique.

La WDM étant partiellement ionisée, on distingue les ions ou atomes (que dans la suite et sauf précision spécifique, j'engloberai sous la dénomination d'ions), des électrons libres. Dans la description fluide chaque population est suivie temporellement sur la grille spatiale et contribue à une équation d'état parfois appelée *hors équilibre* (au sens électron-ion), dont le nombre de paramètres d'entrée est doublé. On utilise généralement des équations d'état *multiphases* où les transitions entre les phases sont plus ou moins précises[4; 5]. Le domaine WDM est traité par interpolation entre les différentes théories applicables de part et d'autre, ainsi que des points de mesure quand ils existent. Il en est de même pour les coefficients de transport[6].

L'approche microscopique utilise la dynamique moléculaire classique pour décrire les ions : On suit dans le temps la dynamique de chaque ion individuellement. Les forces qui s'appliquent à chaque instant sur chaque ion dépend de la configuration spatiale de son entourage ainsi que des propriétés électroniques via l'écrantage des forces coulombiennes, la formation de liaisons etc... Les électrons peuvent être traités comme un fluide, ce qui simplifie le problème et permet de simuler des "gros volumes" et des temps "longs", quelques millions d'atomes et centaines de picosecondes par exemple[7]. Une autre approche dite *ab initio* traite la structure électronique quantiquement[8], et la calcule pour chaque configuration spatiale des ions. Les quantités macroscopiques telles que coefficients de transport et équation d'état sont ensuite déduites de la description microscopique. Ce type de calcul peut par exemple fournir des points de référence sur lesquels caler les interpolations faites dans le régime WDM, mais sont trop lourds pour envisager actuellement leur utilisation régulière afin de décrire des situations inhomogènes ou dynamiques. Ces simulations sont certainement l'approche la plus exacte actuellement pour décrire la WDM. Cependant, si l'appellation *ab initio* se justifie dans la mesure où on calcule directement la structure microscopique électronique et ionique, il n'en reste pas moins que des approximations importantes sont faites, notamment au niveau des pseudo-potentiels et des fonctionnelles d'échanges.

3.1.3 Techniques expérimentales pour produire la WDM

Les propriétés mêmes de la WDM la placent dans le domaine des très hautes pressions (\approx Mbar), qui se détend donc très vite ou est difficile à confiner. Ainsi, la WDM est difficile à obtenir de façon contrôlée, et encore plus difficile à diagnostiquer. Les techniques expérimentales reposent toutes sur la délivrance brutale d'une copieuse quantité d'énergie à la matière étudiée, qui est alors portée dans le domaine ρ -T recherché (voir figure 3.2). On peut citer ainsi des expériences utilisant une installation HPP³, telles celles dites de *fil explosé*, où un fil de diamètre sub-millimétrique est traversé par un courant très intense (typiquement plusieurs centaines de kilo-ampères sur une échelle de temps de la dizaine de micro-secondes). Le conducteur peut être plongé dans un gaz inerte haute pression pour limiter sa détente (chauffage isobare) ou même maintenu dans une enceinte close pour assurer un chauffage isochoire[9]. On peut également citer l'utilisation de Z-Pinch pour comprimer un plasma jusqu'au domaine souhaité[10]. Une autre façon de procéder est de délivrer l'énergie dans le volume d'un échantillon solide

3. pour *Haute Puissance Pulsée*, installation dans laquelle l'énergie est portée par un courant électrique intense dans un circuit de faible impédance.

par l'intermédiaire d'un faisceau énergétique (de particules ou laser). Ceci offre l'avantage de dégager de l'espace autour de l'échantillon chauffé et de disposer potentiellement de faisceaux annexes, le tout à des fins de diagnostic. L'utilisation de faisceaux d'ions lourds [11], de protons [12] et d'électrons [13] pour préparer des échantillons WDM en vue de les étudier, a été rapportée. Des lasers de puissance peuvent aussi être utilisés pour atteindre le domaine WDM par des chocs forts [14] et/ou des compressions isentropiques[15].

Enfin, le chauffage direct par faisceau laser femtoseconde est tellement bref qu'il est de fait isochores. Mais contrairement aux techniques précédentes, il est limité à de faibles volumes chauffés. Ceci oblige d'une part les diagnostics à être très résolvant, et d'autre part laisse un temps court, typiquement de l'ordre de la picoseconde, pour sonder le matériau. Le contrôle très précis et rapide que permet le FDI sur la position de la surface est alors un atout indéniable (voir section 3.2). Une autre particularité du chauffage par laser femtoseconde est qu'il produit une situation violemment hors équilibre électron-ion : En effet l'énergie électromagnétique est déposée sur les électrons à l'échelle femtoseconde, alors que le transfert d'énergie vers les ions se fait plutôt à l'échelle picoseconde. Ceci conduit à des conditions particulières qui peuvent être mises à profit pour étudier des comportements purement électroniques (voir section 3.3), ou qu'il est nécessaire d'étudier pour connaître la physique de l'interaction laser femtoseconde-matière à haut flux par exemple dans le cadre de l'endommagement de diélectrique (section 3.4). Avant de clore ce paragraphe, il faut mentionner le cas particulier des lasers à électrons-libres qui émettent maintenant dans les X-durs de façon intense et sur des durées femtosecondes. Cela permet le chauffage femtoseconde sur des volumes bien plus grands que par laser optique [16], mais pose de nouveaux challenges dus à la nature particulière du dépôt d'énergie lui-même. Je reviendrai sur cet aspect dans la section 3.5

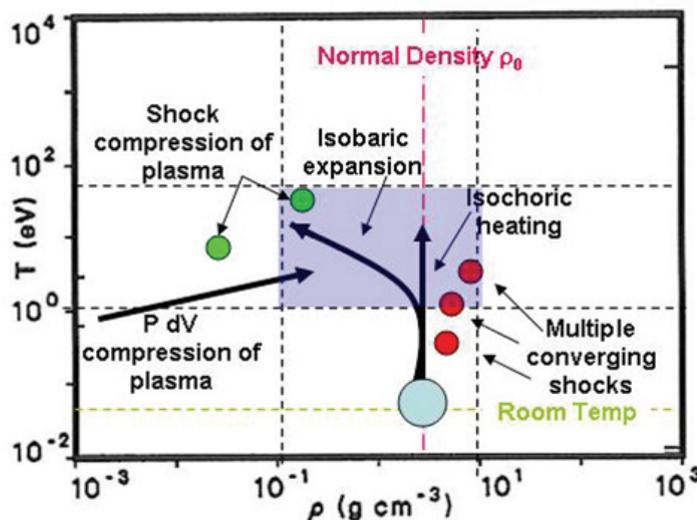


FIGURE 3.2 – Différentes façon d'atteindre le régime WDM : Par compression d'un plasma pré-formé ou par chauffage à partir d'un solide. Selon la technique utilisée, ce chauffage peut être isochores, accompagné d'une détente ou d'une compression. Figure tirée de [2]

3.2 Dynamique haute précision d'une surface chauffée par laser femtoseconde

Cette section se rapporte à des travaux décrits à des niveaux de détail différents dans les références [17; 18; 19].

3.2.1 But et résultats de l'expérience

Le but de cette étude était de démontrer la capacité du système expérimental exposé dans la section 2.2 à observer la surface d'un échantillon chauffé par laser femtoseconde, avec des précisions spatiale et temporelle inégalées. Comme expliqué dans la même section, cette mesure est essentielle pour valider la détermination directe de la fonction diélectrique en utilisant les relations de Fresnel. D'autre part, elle peut permettre de mesurer ou estimer la densité de l'échantillon au moment même où on le sonde. Enfin, elle présente un intérêt en soi, par exemple pour étudier avec une résolution inégalée les changements de phase ultra-rapides (dits *non-thermiques*) qui s'accompagnent d'un changement de volume spécifique et donc d'un mouvement de la surface de l'échantillon[20].

Nous avons choisi d'étudier un échantillon d'aluminium, qui présente l'avantage d'être un des matériaux les mieux connus. La cible était constituée d'une couche d'épaisseur 300 nm déposée par évaporation sur une fenêtre de verre qui lui donnait les conditions de planéité et rugosité requises. Il est bien connu que l'aluminium s'oxyde très rapidement à l'air, formant une couche d'alumine Al_2O_3 en surface. Nous avons estimé à 10 nm l'épaisseur de la couche d'alumine à la surface de nos cibles, en comparant l'indice optique apparent mesuré par ellipsométrie à un calcul classique de couche mince[21]. L'alumine est un diélectrique à grand gap (≈ 8.8 eV), et l'absorption dans cette épaisseur est négligeable, même à l'intensité maximale que nous avons utilisé pour la pompe (3×10^{13} W.cm⁻²). Ceci est conforté par nos mesures, qui montrent que la densité d'excitation dans le diélectrique est toujours inférieure au seuil de détection. En revanche, comme on va le voir cette couche diélectrique a bien un effet sur la dynamique de la surface d'aluminium qui est dessous.

La figure 3.3 montre la dynamique des réflectivités dans les deux directions de polarisation et pour deux fluences de pompe différentes. Chaque fluence est celle observée au centre de la tache focale de la pompe au cours de deux séries de tirs différentes (et non pas par exemple au centre et à mi-hauteur de la tache focale d'une même série de tirs). L'analyse post-mortem des échantillon montre que les fluences utilisées sont respectivement entre le seuil de dommage et d'ablation, et au dessus du seuil d'ablation de l'échantillon. La longueur d'onde de la pompe et de la sonde est 800 nm, leur durée 30 fs FWHM et la pompe est centrée sur l'origine temporelle.

Dans la première picoseconde qui suit l'irradiation, la réflectivité augmente. Ceci est dû à la présence d'une absorption interbande présente à 800 nm dans l'aluminium froid, absorption qui est réduite lorsque le désordre structural augmente dans le matériaux[22]. Plus tard, le matériaux se relaxe sous l'effet de la pression : La densité baisse, la résistivité optique augment et la réflectivité décroît. Cet effet est bien plus rapide et plus marqué à 1 J.cm⁻² qu'à 0.5 J.cm⁻².

Malgré les variations dans le temps des réflectivités, le rapport $\beta_r = r_p/r_s^2$ reste égal à 1 dans l sur toute la durée de l'observation. Cela montre que la surface est en *expansion sur-dense*, au

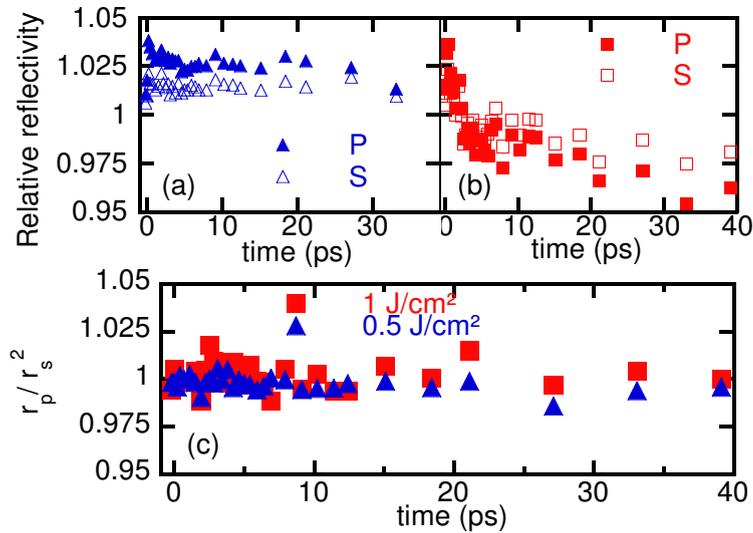


FIGURE 3.3 – Évolution au cours du temps de la réflectivité relative en amplitude, mesurée à 800 nm, de la surface d'un échantillon d'aluminium soumis à une impulsion pompe à 0.5 J.cm^{-2} (a) et 1 J.cm^{-2} (b). Les mesures dans les deux directions de polarisation (P et S) sont montrées, et l'incertitude est estimée à 1%. Malgré l'évolution des réflectivités, le rapport $\beta_r = r_p/r_s^2$ reste égal à 1 (l'incertitude sur β_r est estimée à 3%).

sens défini au paragraphe 2.2.2.3. Le déplacement de la surface est alors directement déduit de la grandeur expérimentale $\beta_\phi = 2\phi_s - \phi_p$. Le résultat pour les deux fluences étudiées est montré dans la figure 3.4. On distingue trois phases dans le mouvement de la surface :

- La première dure environ 5 à 8 ps, pendant laquelle la surface bouge vers le vide à vitesse constante (0.6 et 1 nm/ps pour les deux fluences considérées).
- Une phase de ralentissement, plus longue pour le cas 0.5 J.cm^{-2} que 1 J.cm^{-2} .
- A l'issue de la phase précédente, la vitesse redevient constante, quasi nulle pour le cas 0.5 J.cm^{-2} et 0.4 nm/ps pour l'autre). On note que la vitesse d'expansion qui tend à devenir nulle pour le premier cas correspond très bien à l'observation *post-mortem* d'un dommage (liquéfaction) sans éjection de matière, alors que l'autre cas correspond bien à une ablation.

En résumé, nos mesures montrent que (i) la surface d'aluminium reste raide (pas de gradient détectable), (ii) l'excitation d'électrons par la pompe dans l'oxyde reste négligeable (sinon on détecterait un saut de β_ϕ pouvant aller jusqu'à l'épaisseur de l'oxyde, pendant le temps du chauffage), (iii) l'expansion de la surface montre une dynamique bien plus riche qu'une simple éjection balistique de matière dans le vide. Afin d'expliquer l'ensemble de ces observations, nous les avons confrontées avec des simulations hydrodynamiques prenant en compte l'effet mécanique de la couche d'oxyde.

3.2.2 Interprétation et comparaison avec le code ESTHER

La tache focale du laser de pompe est environ trois ordre de grandeurs plus large que la profondeur du dépôt et l'expansion observée de la surface. En conséquence, on considère a priori le

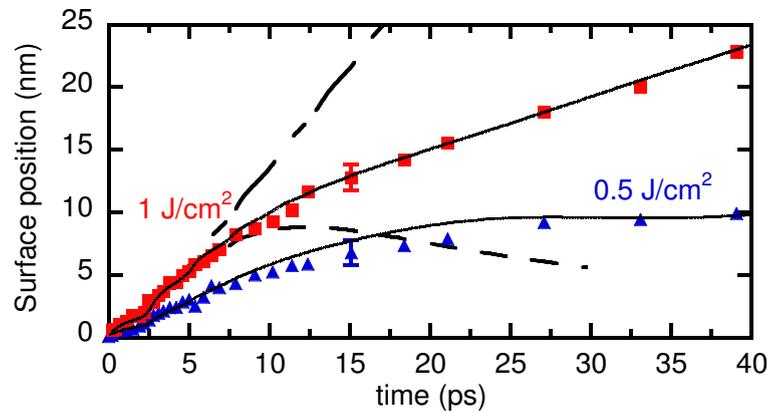


FIGURE 3.4 – Évolution au cours du temps de la position de la surface d'aluminium de l'échantillon sondé, pour les deux fluences étudiées. Les points expérimentaux sont les valeurs directement déduites de la mesure de la phase Doppler, c'est à dire de β_ϕ . Pour ne pas surcharger le graphe, les barres d'erreur (± 1 nm) sont représentées en un point seulement. Les lignes continues sont les résultats de la simulation hydrodynamique avec la couche d'oxyde en surface de l'échantillon. Pour le cas 1 J.cm^{-2} sont aussi représentés (pointillés longs et courts) : les simulations sans force de rappel de la couche, et (tirets) : avec une force constante (voir explications dans le texte).

problème comme étant à une dimension, et nous avons utilisé pour le simuler le code hydrodynamique 1D ESTHER [23]. L'aluminium est décrit par une équation d'état à deux températures (ionique et électronique) basée sur l'équation d'état BLF[5], alors que l'oxyde est décrit par une equation d'état SESAME. Les champs lasers (pompe et sonde) sont calculés en résolvant l'équation d'Helmoltz dans un formalisme de multi-couches, adapté aux gradients très raides, et le dépôt d'énergie est déduit de la loi de Joule-Lenz. Le dépôt d'énergie dans l'aluminium est tel que celui-ci quitte la phase solide et a tendance à se détendre vers le vide. Mais la couche d'oxyde possède une certaine raideur qui va s'opposer à sa déformation comme une membrane tendue, et exercer une force contraire à l'expansion de la surface (voir figure 3.5). Ce comportement est typiquement 2D, il peut néanmoins être pris en compte dans un cadre 1D par un modèle de surface élastique[24; 17], qui lie la pression exercée sous la membrane au rayon de la déformation et à son amplitude (la position d au centre de la surface). Ce modèle fait apparaître un paramètre ajustable ayant la dimension d'une raideur élastique, dépendant de la membrane proprement dite (matériau, épaisseur...) mais pas de la fluence laser.

Le premier effet de la couche d'oxyde est de délimiter une frontière nette pour l'aluminium, et de maintenir simplement par son inertie, une interface très raide. La figure 3.6 compare les profils de densité électronique calculés pour une fluence du faisceau pompe de 1 J.cm^{-2} , sans et avec la couche d'oxyde en surface de l'aluminium, ainsi que les valeurs de β_r au cours du temps dans les deux conditions. Sans l'oxyde, un gradient peut se développer, ce qui donne un β_r qui serait très largement mesurable par notre diagnostic.

La deuxième action de la couche d'oxyde est la force de rappel qu'elle exerce sur l'aluminium; sans cette force, la matière éjectée conserverait sa vitesse initiale, comme le montre la figure 3.4 (pointillés longs et courts). Au contraire, la force de rappel ralentit l'interface Al – Al₂O₃, jusqu'à inverser le mouvement (courbe en tirets). Cette dernière tendance n'est

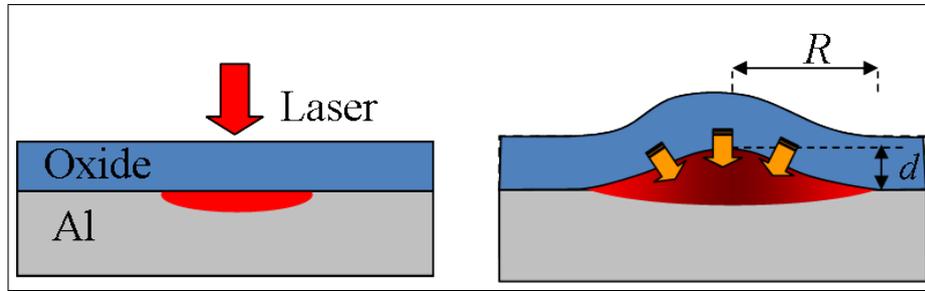


FIGURE 3.5 – La couche d'oxyde est transparente au laser de pompe, qui dépose son énergie à la surface de l'aluminium (gauche). Ensuite, elle agit comme une membrane élastique, emprisonnant la surface d'aluminium et s'opposant à sa détente (droite).

en fait pas observée, car la couche d'oxyde se brise au cours de sa déformation et sa raideur élastique devient nulle. Ce dernier effet est modélisé par une décroissance exponentielle de la raideur au cours du temps, avec un temps caractéristique qui dépend de l'excitation initiale (donc de la vitesse de déformation) : 18 ps pour l'irradiation à 0.5 J.cm^{-2} et 13 ps pour 1 J.cm^{-2} . Ainsi après un certain temps, la force de rappel exercée devient négligeable, et la vitesse de l'interface constante (lignes continues).

Nous avons donc dû introduire deux paramètres ajustables, et nous ne prétendons pas être prédictifs *a priori*. En revanche, la simulation prenant en compte l'oxyde de façon complète reproduit parfaitement les mesures, y compris dans des détails très fins comme la première oscillation visible sur les points expérimentaux de la figure 3.4 vers 2.5 ps pour la fluence 1 J.cm^{-2} . Ces oscillations correspondent d'après la simulation aux aller-retour des ondes de compression et détente dans la couche d'oxyde.

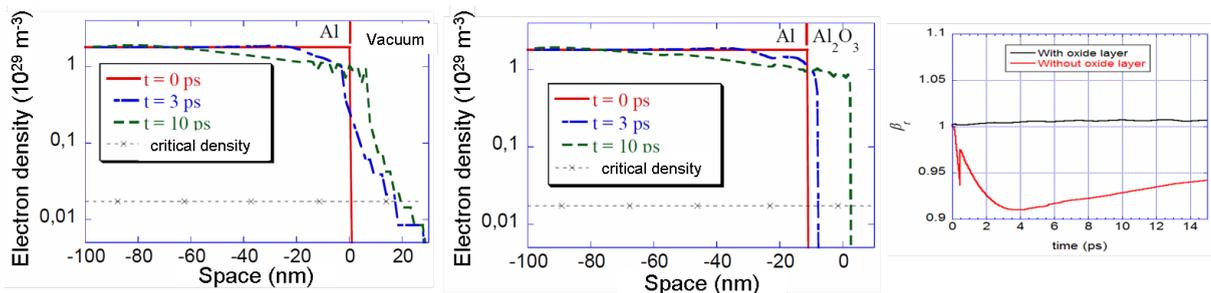


FIGURE 3.6 – Calcul du profil de densité électronique aux trois temps indiqués et pour une fluence d'excitation de 1 J.cm^{-2} , sans la couche d'oxyde (gauche) et avec (centre). A droite, les valeurs de β_r qui seraient mesurées par une sonde à 45° .

En conclusion, cette étude nous a permis de démontrer la capacité de notre système expérimental à vérifier l'absence de gradient associé à une détente de type plasma ou gaz, et à effectuer des mesures très fines, avec une résolution temporelle de 45 fs et spatiale de $\pm 1 \text{ nm}$ sur le déplacement de la surface. Elle nous a également permis de valider un modèle de description de l'effet mécanique d'une couche fine en réponse à une déformation à l'échelle picoseconde.

3.3 Détermination de la fréquence de collisions électron-électron dans l'or en régime WDM

Cette section se rapporte aux travaux décrits dans les références [18; 25].

3.3.1 Contexte et démarche

Pendant l'interaction d'un laser femtoseconde avec la matière, l'énergie du laser est déposée sur les électrons, avant d'être partagée avec les ions (le réseau du solide), sur une échelle de temps de l'ordre de 1 – 10 ps. Les mécanismes d'absorption de l'énergie dépendent eux-mêmes de la densité d'énergie déposée et plus généralement de l'historique de l'interaction. C'est donc une grandeur dynamique, qu'il faut en toute rigueur décrire au cours du temps (et éventuellement de l'espace). Ce genre de description fait le plus souvent appel à une approche simplifiée qui fait intervenir une fréquence de collisions électronique effective ν_e , par exemple dans un modèle de Drude où elle prend alors le nom de fréquence de collisions de transfert d'impulsion. Les électrons subissent des collisions entre eux et avec les ions. Pendant et immédiatement après le dépôt femtoseconde, ces derniers sont dans une répartition identique à celle du solide initial, par exemple sous forme de réseau cristallin. On parle alors de collisions électron-phonon plutôt qu'électron-ion et la fréquence de collisions correspondante ν_{ph} ne dépend quasiment pas de la température électronique. Comme le réseau cristallin est encore froid, ν_{ph} est correctement décrite par une théorie valable à température modérée[26]. Au contraire, la fréquence de collisions ν_{ee} des électrons entre eux dépend *a priori* fortement de la température électronique T_e . Historiquement et faute de mieux, les modélisateurs utilisent fréquemment une dépendance en T_e^2 , issue de la théorie des liquides de Fermi de Landau pour un gaz d'électrons libres dans la limite des basses températures ($T_e \ll T_F$, T_F étant la température de Fermi). Néanmoins, il est légitime d'interroger la validité de cette dépendance lorsque T_e approche T_F , et en particulier lorsque la densité d'états électroniques (DOS pour *Density Of State*) s'écarte significativement de celle d'un gaz d'électrons libres sur un intervalle d'énergie correspondant à T_e autour de T_F . C'est par exemple le cas des métaux nobles, dont les bandes *s* et *p* sont raisonnablement similaires à des bandes d'électrons libres[27], mais qui possèdent une bande électronique *d* quelques électron-volts sous la température de Fermi. A peu près au moment où j'ai réalisé les expériences décrites plus loin, deux papiers numériques indépendants[28; 29] ont prédit une copieuse (plus d'un ordre de grandeur) augmentation de ν_{ee} et un écart notable à la dépendance en T_e^2 dans les métaux nobles lorsque $T_e \approx 1$ eV. Ces papiers rapportent la résolution numérique de l'intégrale de collision électron-électron dans une structure électronique construite pour mimer celle issue de la théorie de la fonctionnelle de densité (DFT), et décrivant les électrons de la bande *d*. Néanmoins, avant les travaux que je présente dans la suite, aucune mesure expérimentale n'était disponible pour corroborer ou infirmer ces calculs.

La fréquence de collisions électronique influe grandement sur l'interaction laser femtoseconde-matière. Réciproquement, ce type d'interaction est donc un bon moyen de mesurer ν_e , par l'observation des propriétés optiques. Nous avons effectué une expérience pompe-sonde utilisant le système expérimental mis en place au CELIA. Les cibles étaient constituées d'un dépôt de 300 nm d'or, sur un substrat de verre. L'or a été choisi en tant que métal noble inoxydable, afin

de lever tout questionnement sur l'influence possible d'une couche d'oxyde sur les propriétés optiques proprement dites. De plus, Nous avons effectué les mesures de réflectivité complexe à 800 nm et 45° d'incidence dans les deux polarisations, jusqu'à une fluence d'excitation de 3 J.cm^{-2} (pompe à 800 nm aussi).

La figure 3.7 montre le rapport β_r en fonction du temps après l'irradiation par la pompe, aux fluences 0.6 et 3 J.cm^{-2} . On voit que l'interface entre l'or et le vide reste raide à 0.6 J.cm^{-2} , mais à 3 J.cm^{-2} la pression électronique est suffisante pour provoquer la dé-cohésion de la surface. L'effet du gradient qui en résulte se manifeste sur les signaux optiques dès 200 fs. Cela montre bien le risque de déduire la fonction diélectrique de mesures optiques sans contrôle hydrodynamique de l'interface. Dans notre expérience, le seuil en fluence pour observer cette expansion rapide était de $1.3 \pm 0.2 \text{ J.cm}^{-2}$.

Nous avons concentré notre étude sur les mesures prises à 100 fs. D'une part l'absence d'expansion à cet instant permet de déduire directement la fonction diélectrique. D'autre part le temps après l'excitation de la pompe est suffisamment bref pour que la température du réseau cristallin ne soit pas significativement modifiée. En revanche ce délais est suffisamment long pour que la population électronique ait le temps d'être thermalisée (*i.e.* la notion de température électronique a un sens) et homogène dans la profondeur sondée.

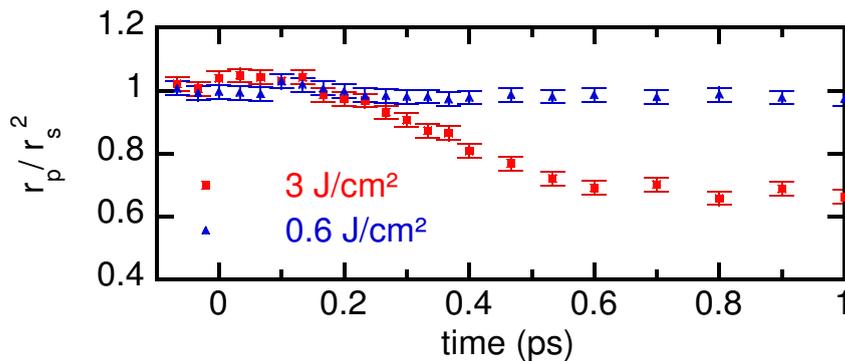


FIGURE 3.7 – Évolution du rapport β_r au cours du temps mesuré sur les échantillons d'or. Un gradient de densité se développe après ≈ 200 fs pour une fluence de pompe supérieure à $1.3 \pm 0.2 \text{ J.cm}^{-2}$.

Les valeurs mesurées de déphasage et réflectivité en fonction de la fluence d'excitation sont représentées dans la figure 3.8 à gauche (seules les mesures en polarisation S sont représentées). Les variations sont assez modestes mais très clairement significatives compte-tenu des faibles barres d'erreur. La phase Doppler (mesurée par β_ϕ) est négligeable, ce qui prouve sans ambiguïté que nous avons réalisé un chauffage isochore, et que la situation est toujours isochore au moment où on sonde la matière. Pour chaque polarisation, la réflectivité absolue de la surface est simplement donnée par la valeur mesurée, multipliée par la valeur à froid. Cette dernière se détermine à partir des relations de Fresnel 2.10 en utilisant la valeur de ϵ pour la longueur d'onde considérée, extraite de la littérature et que nous avons mesuré par ailleurs par ellipsométrie⁴. Par exemple dans notre cas $\epsilon = -26.15 - 1.85i$ et la réflectivité froide complexe en

4. $\epsilon = N^2$ dans les relations 2.10

amplitude pour la polarisation S vaut $0.99e^{2.87i}$.

La valeur de l'indice optique après excitation se déduit finalement des mesures en utilisant l'expression 2.14. Ses parties réelles et imaginaires sont représentées dans la figure 3.8 à droite.

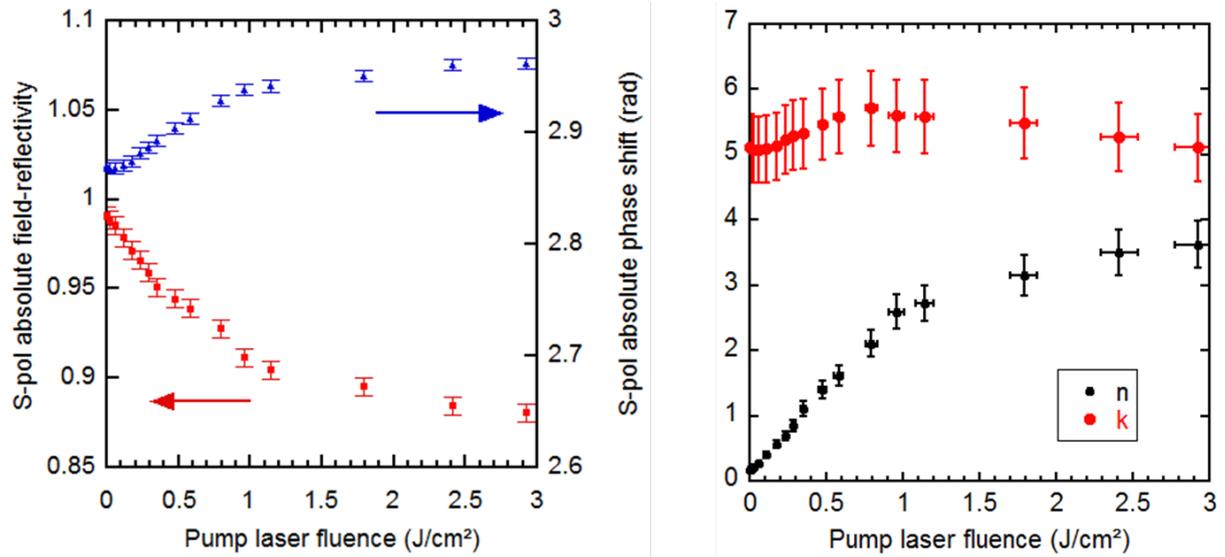


FIGURE 3.8 – Gauche : réflectivité et déphasage relatifs aux valeurs froides en fonction de la fluence du laser de pompe, en polarisation S et mesurés 100 fs après le chauffage. Droite : valeurs absolues des parties réelles et imaginaires de l'indice optique ($N = n - ik$) correspondant.

3.3.2 Résultat : dépendance de la fréquence de collisions électron-électron vis à vis de la température électronique dans des conditions WDM.

Comme l'illustre la figure 3.9, la structure électronique des métaux nobles peut en bonne approximation être vue comme celle d'un gaz d'électron libre à laquelle "s'ajoute" la bande d [27]. En haut de la figure sont représentées les bandes du gaz d'électrons libres dans une structure cristallographique CFC. En dessous, celles d'un métal noble (cuivre) sont tout fait similaires en dehors d'une zone localisée en énergie contenant des bandes dont la courbure est faible (et donc la masse effective élevée) : c'est la bande d . La DOS est en quelques sorte la projection sur l'axe de l'énergie de la structure de bande ; Par comparaison, on peut séparer la bande d de celle contenant les électrons de conduction (dont la masse effective est celle d'un électron libre) qui s'étend en dessous de E_{min} et au dessus de E_{max} . Dans le cas de l'or à température nulle, la bande d est pleine (10 électrons par atome), et la bande de conduction contient un électron par atome. Les 68 autres électrons par atome sont dans des états d'énergie bien plus profonds, et restent spectateurs dans le domaine WDM.

Afin de relier la description des électrons du matériau à ses propriétés optiques, pour l'or dans le proche infrarouge il est généralement admis que ϵ suit un comportement de type modèle de

Drude à la fois à froid et dans des conditions WDM :

$$\epsilon = \epsilon_{\infty} - \frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_e \omega^2 - i \nu_e \omega}. \quad (3.1)$$

Le second terme à droite est le terme de Drude proprement dit. Il décrit la réponse des électrons de conduction (bandes s et p). Les électrons en bande d ne contribuent pas explicitement à ce terme car ils sont beaucoup moins mobiles du fait de leur grande masse effective. Outre les autres paramètres utilisant les notations habituelles, on retrouve n_e la densité des électrons de conduction, et ν_e la fréquence de collisions de transfert d'impulsion pour les électrons de conduction. ϵ_{∞} est le terme de polarisation atomique. A froid, tous les paramètres sont connus. En supposant ϵ_{∞} constant, on peut déduire des mesures les valeurs de n_e et ν_e dans les conditions WDM, qui sont représentées dans la figure 3.10. Comme le chauffage est isochore, la densité atomique est constante, et la densité d'électrons de conduction n_e (en électrons par centimètre cube) peut s'exprimer de façon équivalente en nombre d'électrons de conduction par atome. On constate que ce nombre augmente avec la fluence d'excitation. En effet, quand l'excitation est suffisante, des électrons initialement en bande d sont promus dans des états plus énergétiques en bande s, p et participent à la conductivité.

Nous avons mis à profit cette dernière constatation pour établir une équivalence univoque entre n_e et la température électronique T_e . En effet, à température finie, la fonction d'occupation des électrons qui suit une distribution de Fermi-Dirac s'élargit. Au dessus d'une certaine température la probabilité d'occupation en bande d diminue au profit de celle pour l'occupation en bande de conduction. On peut ainsi calculer n_e , à T_e donné, en intégrant la probabilité d'occupation correspondant à T_e sur la DOS, calculée elle aussi à T_e en utilisant le code *ab initio* ABINIT[8]. Ceci est illustré figure 3.11. Le résultat montre que n_e

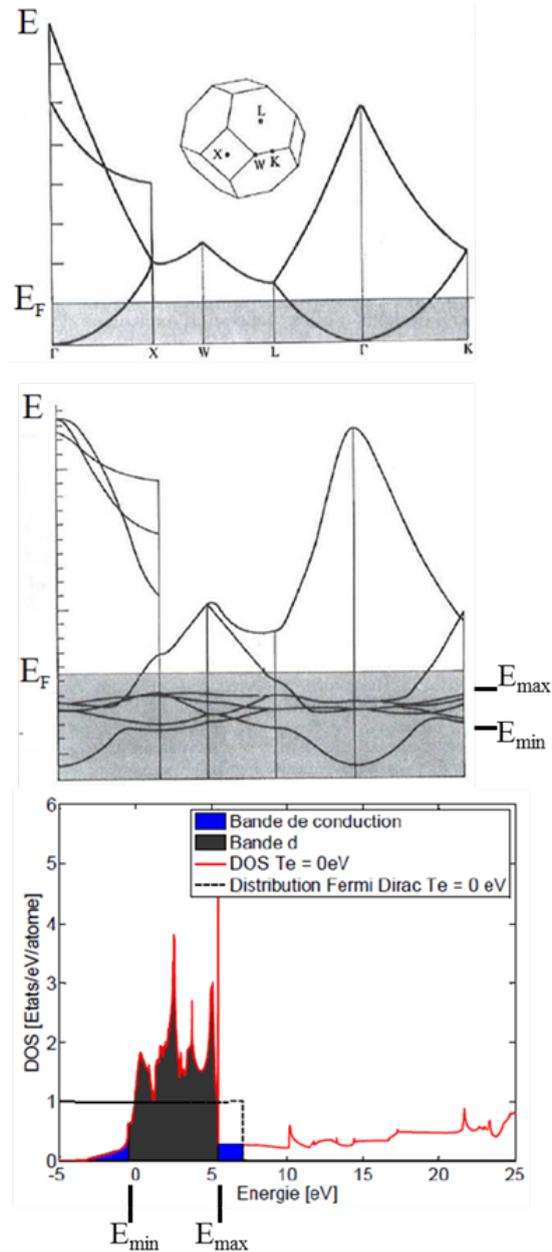


FIGURE 3.9 – Bandes du gaz d'électrons libres en structure CFC (haut) et du cuivre (milieu). En bas la DOS de l'or calculée par DFT à température nulle, et la répartition en énergie que l'on peut faire entre les électrons en bande d et ceux en bande de conduction.

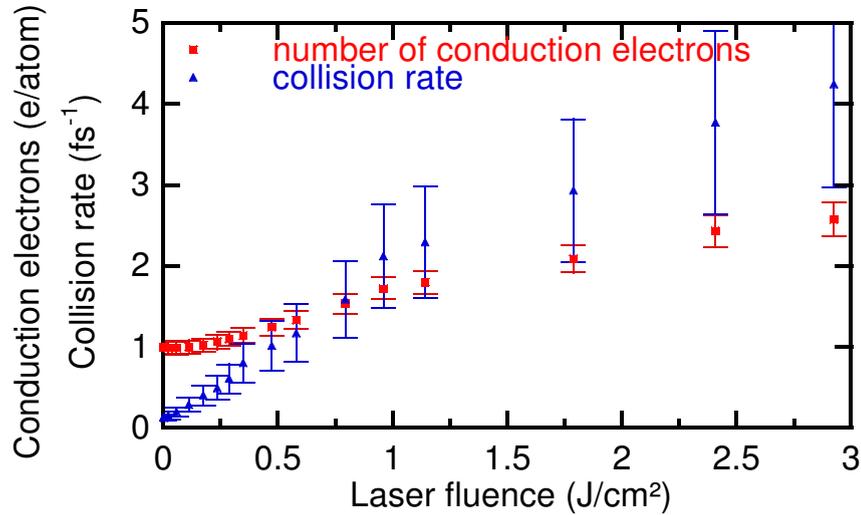


FIGURE 3.10 – Nombre moyen d'électron de conduction par atome et fréquence de collisions issus des mesures de la figure 3.8

commence à croître quand T_e dépasse 0.5 eV, qui est donc la température minimale que l'on peut espérer déduire par cette technique. En appliquant la méthode aux valeurs de n_e mesurées, on peut ainsi déduire la température électronique pour les fluences de pompe supérieures à $\approx 0.25 \text{ J.cm}^{-2}$, et au final avoir une mesure simultanée de ν_e et T_e .

La variation de la fréquence de collisions électronique ν_e en fonction de T_e est tracée dans la figure 3.12 (points expérimentaux). La variation est globalement proportionnelle à T_e , ce qui s'écarte notablement de la loi d'échelle du liquide de Fermi. Sur la même figure apparaissent également les résultats de divers modèles ; la fréquence de collisions des électrons est la somme de celle concernant les collisions électron-phonon et celle pour les collisions entre les électrons : $\nu_e = \nu_{ph} + \nu_{ee}$. La fréquence ν_{ph} , calculée selon le modèle valable à température modérée⁵, est bien inférieure à ν_e . En ce qui concerne les collisions électron-électron, j'ai d'abord calculé celles intervenant entre électrons de conduction seulement, ν_{ee}^c . En effet pour ceux-ci on peut approcher la DOS par celle d'un gaz d'électrons libre, ce qui permet une simplification de l'intégrale de collision et finalement un calcul semi-analytique[25]. Les valeurs obtenues sont encore plus faibles que ν_{ph} , si bien que la somme des deux est presque un ordre de grandeur trop faible par rapport aux valeurs mesurées. En revanche le calcul détaillé de Petrov *et al.*[29], qui prend en compte de façon très détaillée les collisions des électrons de conduction entre eux mais aussi avec ceux de bande d , est en excellent accord avec nos mesures (ligne pointillée noire).

J'ai établi un modèle simple[25] qui prend en compte les collisions entre les électrons de conduction et ceux de la bande d , plus simplement que le calcul de Petrov *et al.*. Celui-ci est basé sur l'image physique suivante : à cause du principe d'exclusion de Pauli, une collision entre un électron de conduction e_1 et un autre électron e_2 : $e_1 + e_2 \rightarrow e_1^* + e_2^*$, n'est permise que s'il y a un volume libre dans l'espace des phases qui respecte les lois de conservation pour e_1^* et e_2^* . Si l'on suppose constant l'élément de matrice pour le potentiel électrostatique entre deux électrons,

5. L'estimation de la température du réseau ionique nécessaire pour calculer ν_{ph} , est donnée par un modèle à deux températures et reste inférieure à 900 K même pour la plus haute fluence considérée.

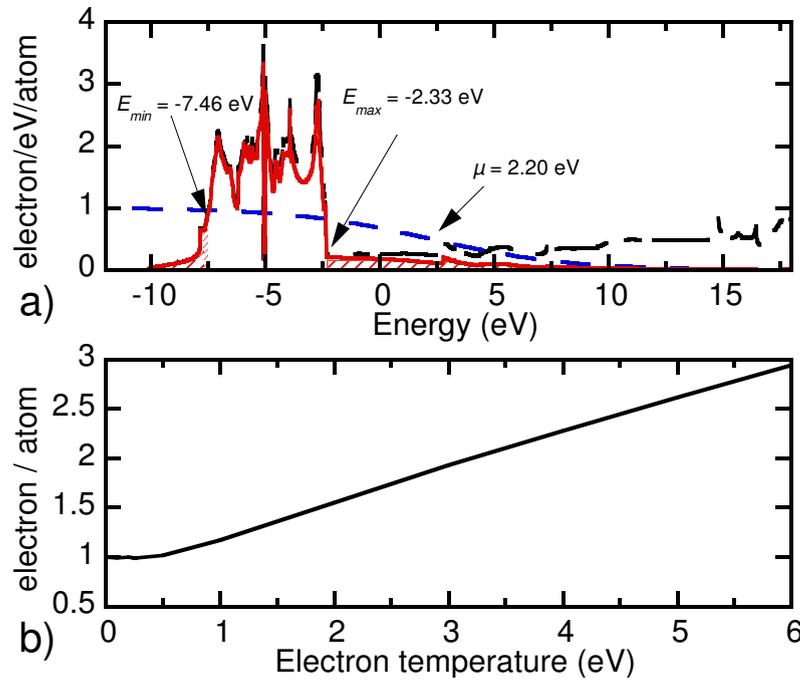


FIGURE 3.11 – (a) Pour une température électronique T_e donnée, le produit de la DOS (pointillés noirs) par la distribution de Fermi-Dirac (pointillés bleus) donne la densité d'états occupés (en rouge). Le nombre d'électrons de conduction par atome est calculé en intégrant celle-ci sur les énergies correspondant à la bande de conduction (zone hachurée noire et rouge). (b) Dépendance obtenue : La mesure de n_e permet de déduire T_e au dessus de 0.5 eV

la probabilité de diffusion de l'électron e_1 est alors proportionnelle au nombre d'états occupés (*i.e.* le nombre d'électrons diffuseurs e_2) multiplié par le nombre d'états vides (*i.e.* le nombre de places pour e_2^*). Le coefficient de proportionnalité \mathcal{A} peut être trouvé en comparant numériquement la fréquence de collisions entre électrons de conduction que l'on obtient en appliquant ce modèle à un gaz d'électrons libres, aux fréquences plus exactes ν_{ee}^c calculées précédemment. Pour estimer maintenant la fréquence des collisions entre un électron de conduction et un électron de bande d , il suffit de "compter" le nombre d'électrons ($n_d = 11 - n_e$) et de trous ($10 - n_d$) dans la bande d . Finalement la fréquence recherchée vaut $\nu_{ee}^d = \mathcal{A}n_d(10 - n_d)$. Ce modèle est en accord assez remarquable, compte-tenu de sa grande simplicité, avec les mesures effectuées, comme on peut voir sur la figure 3.12 (ligne continue rouge). Bien que plus sommaire, il présente l'avantage par rapport au calcul de Petrov *et al.*, d'être facilement transposable à d'autres métaux nobles et éventuellement aux métaux de transition.

Cette étude montre l'intérêt des techniques optiques fines pour l'étude de la WDM, grâce à la résolution temporelle qu'elles permettent. On a vu aussi la nécessité de surveiller la cohésion de l'échantillon étudié, car une détente de type plasma (ou vapeur) significative peut apparaître à cause de la pression électronique, sur des temps bien plus courts que ne le laisserait supposer l'augmentation de température ionique. Nous avons également proposé une méthode originale pour déterminer la température électronique à partir de la densité électronique mesurée. Ainsi, nous avons mesuré pour la première fois la fréquence de collisions électronique, largement utilisée en particulier dans le modèle de Drude, en fonction de la température des électrons

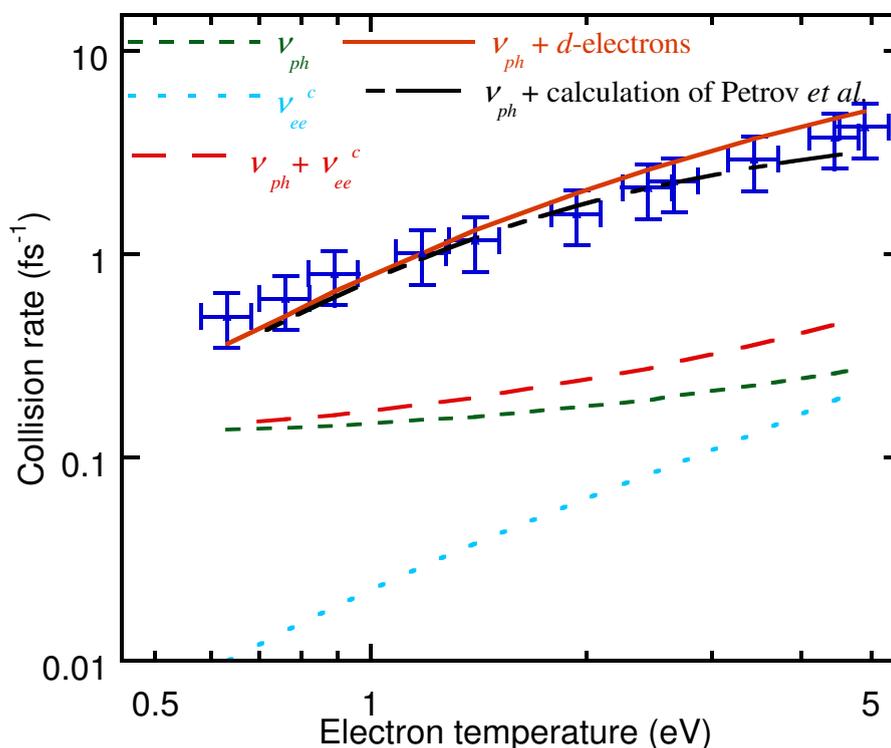


FIGURE 3.12 – Fréquence de collisions électronique mesurée ν_e en fonction de T_e (points bleus), et comparaison avec les différents modèles évoqués dans le texte.

et dans les conditions WDM. Concernant les collisions électron-électron, nous avons vu que les collisions entre électrons de conduction restent assez faibles devant les collisions électron-phonon (même dans des conditions de déséquilibre $T_e - T_i$). En revanche le rôle des électrons d présents dans les métaux nobles ou de transition est prédominant, ce qui exclue l'utilisation du modèle du liquide de Fermi dans les conditions WDM.

3.4 Évolution ultra-rapide des propriétés optiques de la silice au seuil de dommage et au delà

Cette section se rapporte aux travaux décrits dans la référence [30].

3.4.1 Contexte et expérience

L'interaction entre un laser court et intense et un diélectrique est l'objet d'études depuis des décennies, en particulier pour des applications de gravure et d'usinage laser, ou pour comprendre et maîtriser l'endommagement des optiques. Pour l'usinage, l'intérêt de déposer l'éner-

gie en un temps très court⁶ réside dans la précision et la netteté des contours de la zone d'ablation. En effet la densité du matériau reste élevée pendant le dépôt, la pression devient très élevée et une détente très rapide intervient, dont le travail opère une "trempe", éliminant virtuellement les contours irréguliers que l'on observe en utilisant un laser nanoseconde. Pour ce qui est de comprendre la physique de l'endommagement, celui-ci est relativement déterministe avec un laser femtoseconde alors qu'il intervient de façon plutôt probabiliste avec un laser nanoseconde. Même s'il existe des mécanismes propres à l'endommagement dans chaque régime, ce déterminisme permet des études systématiques difficilement faisables en régime nanoseconde. De plus, du fait de leur gap important entre les bandes de valence (BV) et de conduction (BC), les diélectriques constituent un sujet d'étude particulièrement stimulant dans le domaine WDM hors équilibre accessible par laser femtoseconde.

Premièrement, ils constituent une sorte de cas d'école de la démarche intuitivement suivie pour décrire la WDM, c'est à dire "panacher" la physique du solide et celle des plasmas en prenant dans chacune ce qui est *a priori* le plus adapté pour décrire tel ou tel aspect. En fait pour les diélectriques, cette démarche est déjà appliquée à bas niveau d'excitation, et il est intéressant de savoir si l'on peut la prolonger continument dans le domaine WDM. On peut décrire l'interaction par deux phases : (i) l'excitation par le champs laser intense d'un certain nombre d'électrons depuis la BV vers une population non-thermalisée dans la BC, et (ii) l'évolution de cette population soumise à des processus collisionnels entre électrons ou avec d'autres particules (phonons, photons), entraînant la thermalisation et le chauffage des électrons et de la structure atomique (appelée *réseau* y compris dans des structures amorphes). A bas niveau d'excitation, les structures atomique et électronique ne sont que faiblement perturbées. A cause du gap entre les bandes, les populations dans celles-ci sont bien différenciables et la relaxation électronique est plus lente que dans un métal. Le matériau peut alors être vu comme le solide initial auquel s'ajoute un plasma d'électrons quasi-libres en BC, qui est relié au "réservoir" d'électrons en BV par les processus d'excitation et relaxation habituels[31]. La confrontation avec l'expérience montre la validité de cette vision, sous le seuil de dommage[32; 33]. Contrairement au cas de l'or étudié dans la section précédente (le "réservoir" d'électron était alors constitué par la bande *d*), la largeur du gap est telle qu'on peut imaginer que cette situation perdure jusqu'au domaine WDM, et c'est effectivement l'hypothèse sous-jacente d'innombrables articles décrivant l'endommagement voire l'ablation de diélectrique par laser femtoseconde (voir par exemple les références [34; 35; 36]). Cependant, la validité de cette hypothèse n'a jamais été démontrée.

La seconde motivation pour étudier expérimentalement les diélectriques (et c'est aussi partiellement la raison pour laquelle l'hypothèse présentée juste avant est fréquemment adoptée) est qu'ils sont notoirement difficiles à décrire par des méthodes *ab initio*, comme le montre par exemple la sous-estimation importante du gap (même à froid) dans l'approximation LDA de la DFT. Lorsque la température électronique augmente jusqu'au domaine WDM, les approches *ab initio* prévoient que le gap peut varier de plusieurs électron-volt, et cette variation dépend des approximations faites[37]. Les résultats expérimentaux à ce sujet concernent uniquement les semi-conducteurs : Plusieurs papiers expliquent des observations expérimentales par la diminution, à l'échelle sub-picoseconde, du gap dans *GaAs* fortement excité par laser femtoseconde

6. On distingue les lasers "courts" (schématiquement de durée picoseconde ou moins), des "longs" (durée nanoseconde ou plus), par comparaison de leur durée par rapport au temps de réponse hydrodynamique.

(voir *e.g.* la référence [38]). Une transition de phase ordre-désordre non-thermique, intervenant à l'échelle de la centaine de femtosecondes, a été observée par diffraction électronique dans le silicium[39]. Des simulations détaillées de dynamique moléculaire indiquent que ce genre de transition peut être provoquée par un remaniement de la structure électronique associé à une forte densité d'excitation[20]. Cependant il n'y a pas d'évidence expérimentale que de telles modifications se produisent dans le régime atteint lors de l'endommagement ou l'ablation laser de diélectriques.

En l'absence de théorie unifiée et de données expérimentales, la description simplifiée selon laquelle d'une part l'excitation redistribue les électrons dans une structure fixe de niveaux d'énergie, et d'autre part les propriétés optiques (donc notamment l'absorption) des électrons en BC suivent un comportement de type modèle de Drude, est toujours largement utilisée. Dans la suite j'appellerai cette description "FSD" (Fixed Structure and Drude-like behavior). Dans ce contexte, j'ai effectué une expérience pour tester la validité de la description FSD dans un régime de forte excitation, c'est à dire au delà du seuil de dommage. Une expérience pompe-sonde avec laser femtoseconde permet d'obtenir la grande résolution temporelle nécessaire. Des expériences faites dans le passé ont montré l'intérêt du FDI pour étudier la dynamique électronique en BC dans des diélectriques[32; 33]. Elles ont montré des évolutions à l'échelle de la centaine de femtosecondes. Ces expériences avaient été effectuées sous le seuil de dommage, et réalisées en transmission (la sonde FDI traversait l'échantillon excité sur une longueur de plusieurs dizaine de micromètres). Dans ces conditions et en admettant la description FSD, l'information sur la densité électronique est principalement contenue dans la phase, qui est grande (plusieurs radians) ce qui simplifie sa détection. En revanche quand on s'approche du seuil de dommage, la transmission de la sonde devient de plus en plus faible et l'excitation par la pompe n'est plus homogène sur l'épaisseur sondée. Le montage en transmission n'est donc plus adapté[40], d'où l'intérêt du FDI en réflexion.

Dans notre expérience, pompe et sonde étaient toutes les deux utilisées à 800 nm. Les échantillons étaient des hublots de silice fondue, et nous avons réalisé des excitations jusqu'à l'intensité maximale de $160 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$. Des analyses *post-mortem* des échantillons réalisées avec un microscope de Nomarsky ont montré que le seuil de dommage (modification permanente de la surface sans ablation) et d'ablation dans nos conditions étaient de 45×10^{12} et $75 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$, respectivement⁷. La comparaison des signaux FDI dans les deux polarisations (quantités β_r et β_ϕ introduites précédemment) confirment ces valeurs : une expansion ultra-rapide est détectée pour une intensité d'excitation supérieure au seuil d'ablation, ce qui interdit la détermination expérimentale directe de la fonction diélectrique. Nous nous sommes donc limité aux intensités d'excitation inférieures au seuil d'ablation.

7. L'intensité de la sonde était deux ordres de grandeur inférieure au seuil de dommage, on peut donc considérer son effet comme négligeable.

3.4.2 Résultats et discussion

Un premier résultat dérive de l'observation brute des signaux : Un exemple de mesure est donné dans la figure 3.13⁸. Les conditions propres à une réflexion de Fresnel à 45° ($\beta_r = 1$ et $\beta_\phi = 0$) sont très bien respectées en dehors des délais correspondant à un recouvrement temporel des impulsions pompe et sonde (≈ 60 fs autour du délai nul). Une étude paramétrique de ce comportement en fonction de (i) l'intensité d'excitation, (ii) la longueur d'onde de la sonde et (iii) la direction de polarisation de la pompe, montre que ce phénomène est un artefact issu de la cohérence des deux faisceaux. L'observation de ce genre d'artefact est rapportée dans la littérature, dans différentes configurations d'étude des diélectriques ou semi-conducteurs[41; 42], et attribuée à un transfert d'énergie entre pompe et sonde dû à la réponse non linéaire du matériau. Dans notre cas précis, l'observation *post-mortem* des échantillons et la dépendance observée de l'artefact vis à vis de l'intensité d'excitation, montrent que ce transfert peut s'exprimer comme la diffraction d'une partie de la pompe vers la sonde par un réseau d'excitation, lui même provoqué par l'arrivée à la surface des impulsions pompe et sonde selon des angles différents[30]. La diffraction est efficace (c'est à dire que le réseau d'excitation est bien marqué) malgré la différence d'intensité entre les impulsions pompe et sonde en raison de l'ordre photonique élevé de l'excitation⁹, ce qui explique en particulier qu'elle n'était pas observée dans les expériences sur des échantillons métalliques. L'explication trouvée à l'observation de l'artefact est intéressante en soi, mais elle permet surtout de se convaincre que les mesures aux autres délais ne sont absolument pas perturbées par le comportement inattendu observé autour du délai nul.

Mis à part l'artefact cohérent dont je viens de discuter, les données expérimentales montrent que les propriétés optiques de la silice évoluent très rapidement pendant ≈ 400 fs après l'excitation, avant d'atteindre une valeur assez stable. La figure 3.13 montre les résultats pour une intensité juste supérieure au seuil de de dommage. La figure 3.14 montre ceux obtenus pour une intensité juste inférieure au seuil ($40 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$), et franchement supérieure ($57 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$). Dans tous les cas, on retrouve l'évolution rapide qui correspond à la promotion d'électrons de la BV vers la BC, puis la relaxation vers un état stable. Les propriétés optiques de ce dernier sont similaires (*i.e.* non différenciables par notre diagnostic) à celle de la silice froide en dessous du seuil de dommage, mais ce n'est pas le cas au dessus. Ainsi on voit qu'un mécanisme physique d'endommagement se déroule à l'échelle de temps sub-picoseconde.

Afin de tester l'hypothèse FSD, j'ai reporté sur la figure 3.14 les signaux FDI prédits dans le cadre de cette description (lignes continues et pointillées). Ces signaux théoriques sont calculés à partir de l'évolution temporelle de la fonction diélectrique de l'échantillon dans cette hypothèse. L'évolution temporelle des populations électroniques dans les différentes bandes et niveaux d'énergie est régie par un système d'équations de taux[30], inspiré par le modèle valable à bas niveau d'excitation décrit dans la référence[33]. Le modèle contient bien les échelles de temps rapide et lente, mais échoue très clairement à décrire les observations au niveau d'excitation de notre expérience. Le désaccord est déjà visible en dessous du seuil, et augmente avec l'intensité d'excitation. Un accord modèle-expérience ne peut pas être obtenu même en faisant varier les paramètres physiques du modèle (absorption de l'énergie d'excitation, fréquence de collisions, masse effective, etc...). En fait l'augmentation de la réflectivité par rapport à celle de l'échantillon non excité, visible pendant ≈ 200 fs après l'excitation, montre que la physique

8. La dispersion des mesures aux délais négatifs donne une idée de la barre d'erreur.

9. Il faut l'absorption simultanée de 6 photons pour franchir le gap de ≈ 9 eV.

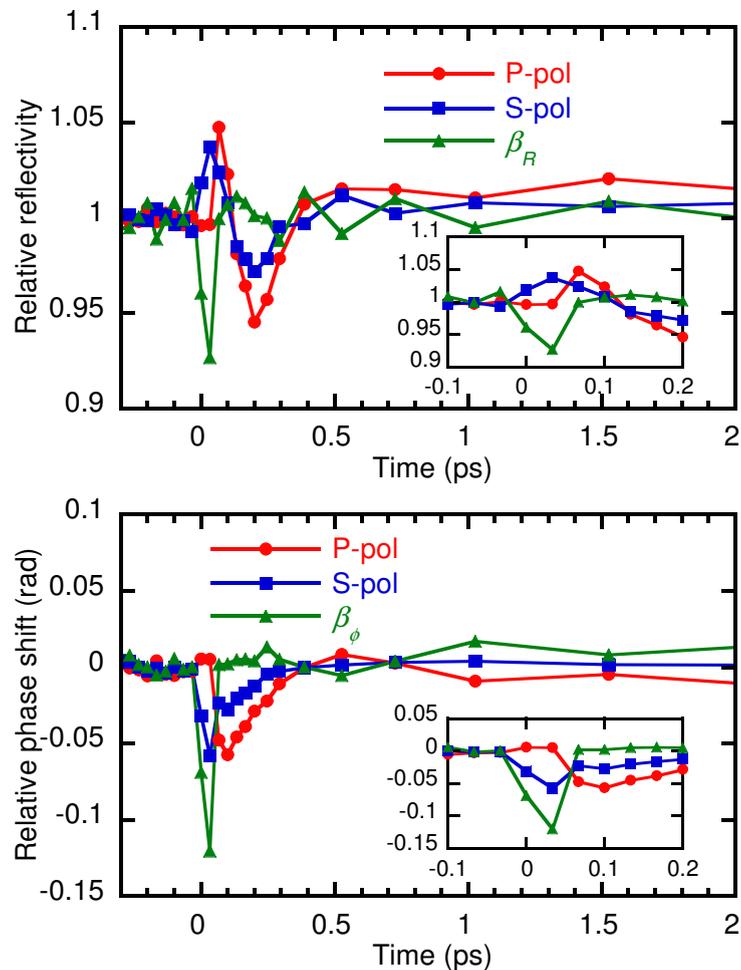


FIGURE 3.13 – Evolution au cours du temps de la réflectivité (haut) et déphasage (bas) relatifs par rapport à ceux de l'échantillon non excité. L'intensité d'excitation est $50 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$. Les encarts montrent des agrandissements aux délais très courts.

même qui est incluse dans le modèle est insuffisante.

Pour aller plus loin que ce simple constat, il est plus commode de considérer la fonction diélectrique plutôt que la réflectivité complexe qui n'est pas forcément très "parlante". La figure 3.15 montre la partie réelle et imaginaire de la fonction diélectrique au cours du temps, pour deux intensités d'excitation au dessus du seuil de dommage, obtenue à partir des lois de Fresnel (relation 2.14). Les encarts montrent les indices optiques correspondant ($\sqrt{\epsilon_r}$). Les zones hachurées correspondent aux délais où l'artefact cohérent empêche la mesure.

La partie imaginaire de la fonction diélectrique est associée à l'absorbance du matériau. Elle évolue selon une dynamique rapide avant d'atteindre une phase stable. Cette phase stable est atteinte plus rapidement quand l'excitation initiale est plus forte. ϵ_r y est différente de la valeur initiale seulement quand l'excitation est supérieure au seuil de dommage, et on peut donc l'associer à la formation de défaut. Une simulation de dynamique moléculaire *ab initio* dans la silice fondue suggère que ces défauts sont des centres colorés, qui introduisent un grand nombre de niveaux discrets dans le gap[43]. L'impulsion sonde n'est pas assez intense pour être sen-

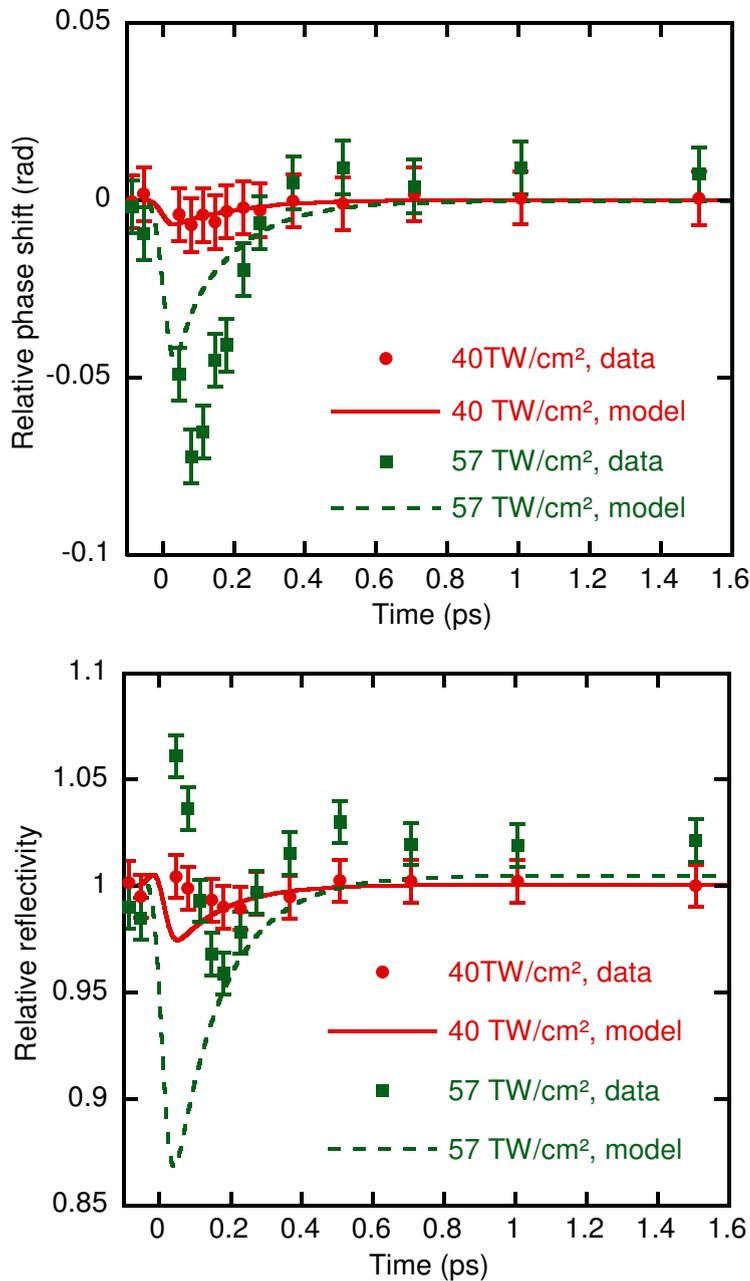


FIGURE 3.14 – Évolution au cours du temps de la réflectivité (bas) et déphasage (haut) relatifs après excitation à $40 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ et $57 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$. Le modèle FSD est comparé à l'expérience. Seuls les résultats en polarisation S sont montrés.

sible à l'absorption non-linéaire, donc l'absorbance est due à des électrons qui disposent d'états libres à l'énergie d'un photon (1.55 eV) au dessus de leur propre énergie. Ceci correspond aux électrons en BC pendant la phase d'évolution rapide, et/ou dans les niveaux discrets du gap et proches de la BC pendant la phase quasi stable.

L'évolution de la partie réelle $\mathcal{R}(\epsilon_r)$ est plus complexe, en particulier durant les ≈ 500 fs qui suivent l'excitation : Augmentation au-dessus de la valeur froide, plus décroissance et finale-

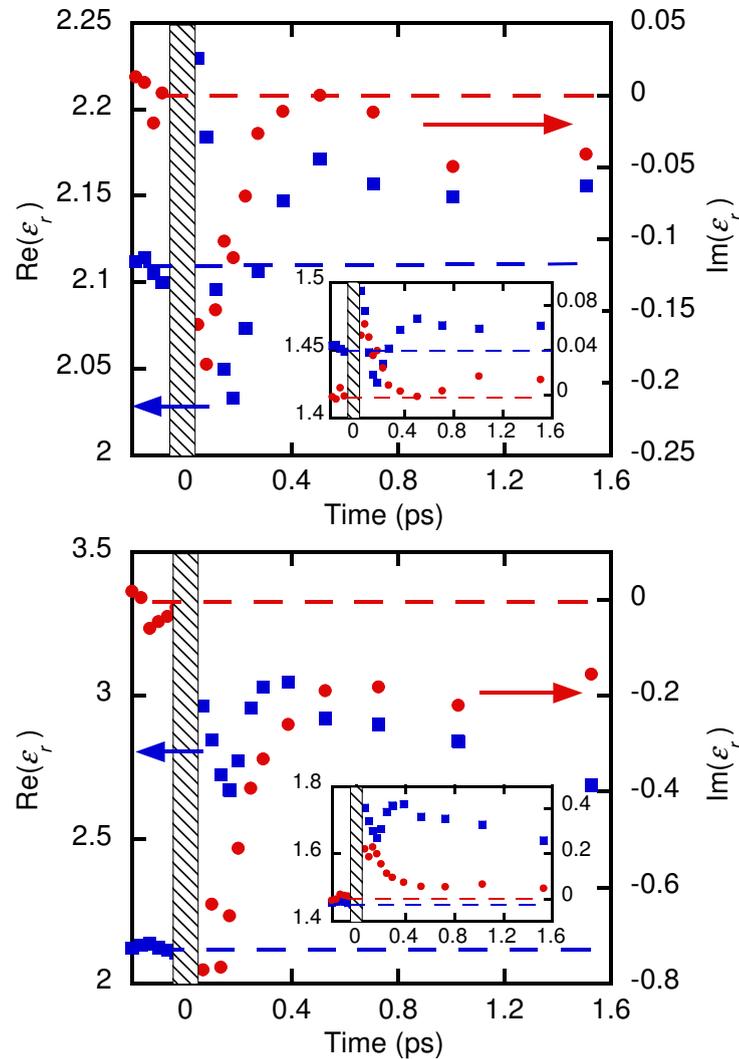


FIGURE 3.15 – Évolution au cours du temps de la fonction diélectrique au cours du temps, pour deux intensités d'excitation au dessus du seuil de dommage : $57 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ (haut) et $67 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ (bas). Les encarts montrent les indices optiques correspondant ($\sqrt{\epsilon_r}$). Dans chaque graphe, la partie réelle est représentée par les carrés bleus et se rapporte à l'axe de gauche, tandis que la partie imaginaire est représentée par les ronds rouge et se rapporte à l'axe de droite. Les zones hachurées correspondent aux délais où l'artefact cohérent empêche la mesure.

ment ré-augmentation. Ces variations ne peuvent pas être décrites par le modèle FSD. Plusieurs raisons sont identifiées pour expliquer les manquements du modèle FSD : D'une part, l'interaction entre l'onde électromagnétique de l'impulsion sonde et les électrons de la BC peut être bien plus complexe que celle décrite par le modèle de Drude. En particulier, ce modèle suppose une masse effective constante pour les électrons. La masse effective d'un électron est liée à la courbure locale (dans l'espace moment-énergie) de la bande électronique qu'il occupe. L'approximation de bande parabolique (*i.e.* courbure constante) est raisonnable pour des états proches du minimum de bande, mais n'est pas vérifiée dans toute la bande d'énergie. De plus la masse effective est négative si la bande est localement concave, ce qui inverse le signe de la contribution de cet état à ϵ_r . Or, une excitation intense peut promouvoir un nombre important

d'électron dans des états éloignés du minimum de la BC. Contrairement au cas habituel d'un plasma d'électrons libres, la partie réelle de ϵ_r peut augmenter si sa contribution principale est donnée par des quasi-particules à masse effective négative, comme ce qui est observé temporairement juste après l'excitation. L'évolution rapide qui suit est compatible avec la relaxation des électrons vers des états situés plus bas dans la BC (où la masse effective redevient positive) lors de leur thermalisation, et/ou avec leur décroissance vers des états piégés dans le gap (cette décroissance est celle observée dans la silice froide).

D'autre part l'hypothèse d'une structure électronique figée peut elle aussi être sérieusement questionnée. Comme dit en introduction de cette section, des calculs *ab initio* prédisent une variation du gap lorsque la température électronique augmente, à cause de modification de l'énergie d'échange et de l'écrantage quand une part importante des électrons sont présents en BC. Une diminution du gap produirait une augmentation de $\mathcal{R}(\epsilon_r)$, et pourrait *a priori* expliquer le comportement observé dans notre expérience. Afin de tester la compatibilité de cette hypothèse avec nos mesures, nous avons considéré la largeur du gap ω_{gap} comme un paramètre ajustable pour reproduire nos mesures de ϵ_r pendant la phase d'évolution rapide (0 – 500 fs), le second paramètre étant la densité électronique n_e en BC (la masse effective est prise constante et égale à 0.5, comme dans la silice froide). Les valeurs de ω_{gap} et n_e ainsi déterminées pour les données de la figure 3.15 en haut sont montrées dans la figure 3.16. On voit que les valeurs ajustées sont assez plausibles : Il n'y a pas de dépendance aberrante, et le gap diminue de quelques eV quand la densité électronique augmente, en accord avec les calculs *ab initio* faits dans l'approximation la meilleure *a priori* pour calculer le gap[37]. Bien sûr ce constat ne constitue pas une preuve en soi, mais il reste que nos mesures sont cohérentes avec l'hypothèse de réduction du gap. Cette hypothèse me semble d'autant plus intéressante qu'elle permet d'expliquer le caractère "catastrophique" d'absorption de l'énergie, qui donne lieu à un seuil d'ablation bien défini pour les impulsions femtosecondes¹⁰. En effet, ce seuil est souvent associé au fait que la densité électronique en BC devient égale à la densité critique d'un plasma pour la longueur d'onde du laser utilisé. Mais dans ce cas le matériau adopte un comportement métallique et la lumière est de plus en plus réfléchi à la surface. On s'attend donc à une régulation de l'absorption d'énergie plutôt qu'à un emballement. Au contraire, la diminution du gap a deux effets qui favorisent clairement la croissance exponentielle de n_e : (i) il devient plus facile de promouvoir des électrons de BV vers BC, et (ii) la réflectivité augmente, mais dans des proportions bien moindres que lors de la métallisation du matériau.

En conclusion cette étude montre que la description de la silice fondue (qui peut être vue comme un modèle de diélectrique à grand gap) dans un domaine WDM hors équilibre de forte excitation électronique, ne peut pas se faire en considérant la structure électronique du solide à laquelle on ajoute une contribution "plasma" satisfaisant au modèle de Drude pour les électrons promus en bande de conduction. La réponse du matériau à l'échelle femtoseconde peut s'expliquer par le peuplement d'états très excités en bande de conduction (masse effective négative), et/ou une réduction de la largeur de bande interdite. A l'échelle picoseconde, nos mesures suggèrent la formation d'états discrets dans le gap, proches du minimum de la bande de conduction.

10. Pour les impulsions très courtes et intenses, les deux processus très non-linéaires que sont l'avalanche électronique et l'ionisation multiphotonique (MPI) sont inopérants. L'avalanche électronique n'a pas le temps de se développer, et la MPI est remplacée par l'ionisation tunnel[44]

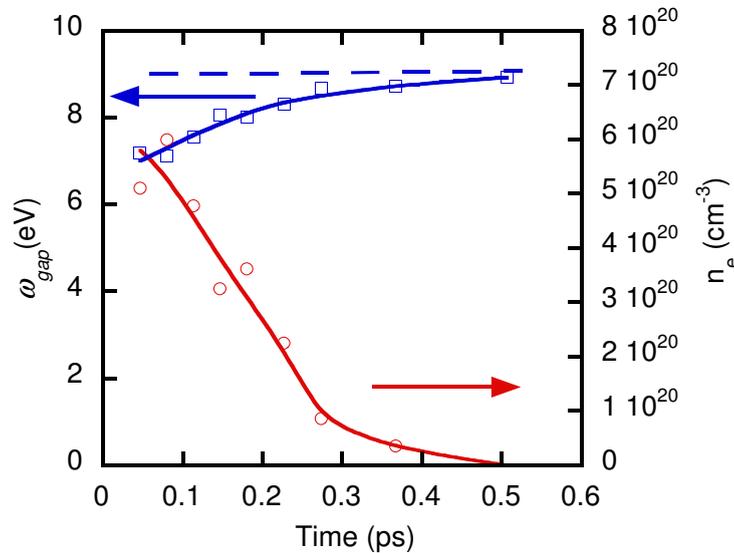


FIGURE 3.16 – Évolution au cours du temps de la densité électronique en bande de conduction (points rouges) et du gap entre BV et BC (carés bleus), pour l'intensité d'excitation $57 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$, tirés de l'expérience dans l'hypothèse où la description de Drude serait correcte et le gap autorisé à varier. Les lignes continues sont des guides pour l'œil, et la ligne pointillée repère la valeur du gap dans la silice non excitée.

3.5 FDI et laser X à électrons libres pour l'étude de la WDM

En parallèle des activités précédentes, j'ai participé à quelques expériences sur l'étude de la WDM et utilisant un FDI ou son dérivé, le TASRI (voir chapitre 2.2). J'évoquerai brièvement dans la suite deux de ces expériences, qui se sont déroulées au sein de larges coopérations auprès du premier laser à électrons libre produisant des photons de grande énergie (X-FEL), le LCLS (Linac Coherent Light Source), mis en service par l'université de Stanford (CA, USA) en 2009. Les impulsions X délivrées par LCLS portaient une énergie d'environ 1 mJ ($\approx 10^{12}$ photons par impulsion), de durée 100 fs, et une énergie de photon jusqu'à ~ 10 keV.

3.5.1 WDM créée par rayons X

La première de ces expériences consistait à utiliser le faisceau X intense de LCLS comme faisceau pompe pour porter un échantillon solide d'argent dans un état WDM[16]. Outre la nouveauté de l'approche, il y a deux intérêts à utiliser un faisceau XFEL énergétique comme moyen de chauffage. Le premier est d'ordre pratique : Comme les photons énergétiques pénètrent profondément dans la matière, l'énergie est déposée en volume, et on peut chauffer de façon homogène un échantillon bien plus épais que par laser (optique) femtoseconde, tout en conservant les avantages du dépôt d'énergie très bref (possibilité de chauffage isochore), qui n'est pas permis par un chauffage par faisceau d'ions, de durée ≥ 10 ps. Les lasers de puissance (plusieurs centaines de joules en impulsion nanoseconde) sont aussi utilisés pour chauffer des échantillons en profondeur, par l'intermédiaire de chocs forts. Mais dans ce cas l'exploration

du domaine densité-température est limitée à la courbe d'Hugoniot, ou bien nécessite des techniques (compression isentropique, réflexion de chocs etc...) pour lesquelles la détermination des conditions thermodynamiques obtenues dépendent fortement de modèles.

Le second est d'ordre plus fondamental : La physique du chauffage par X-FEL est très différente de celle d'un laser optique. D'une part les électrons excités sont propulsés dans le continuum libre (et non dans la bande de conduction), du fait de la très grande énergie qu'ils absorbent par effet photo-électrique. Ils peuvent éventuellement quitter la cible qui acquiert alors une charge non négligeable. D'autre part, les photons X interagissent principalement avec les électrons de cœur de la cible (plutôt que les électrons de valence dans le domaine optique). La redistribution de cette énergie absorbée dans des niveaux profonds vers les bandes d'énergies du matériau fait intervenir une physique atomique complexe (ionisation secondaire, Auger, recombinaison etc...) dont l'étude dans ce cadre est nouvelle.

C'est dans ce contexte que notre collaboration a effectué une expérience dans le but de caractériser le chauffage induit par X-FEL. La température atteinte dans l'échantillon a été ensuite déterminée par comparaison avec un code d'hydrodynamique contenant une physique atomique détaillée, spécialement développé pour l'interaction matière X-FEL intense. Le faisceau LCLS utilisé à 8.9 keV était focalisé dans une tache de dimension $\approx 15 \mu\text{m}$ sur un échantillon d'argent d'épaisseur $0.5 \mu\text{m}$. L'intensité incidente maximale atteinte était $6.5 \times 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$. Même si une proportion assez faible d'énergie était déposée (à titre d'exemple, la transmission de l'échantillon non excité au rayonnement X de 8.9 keV atteint 90%), on s'attendait à ce que cette irradiation très intense provoque une détente hydrodynamique à l'échelle picoseconde. L'idée était d'observer cette détente et de tester nos capacités à la reproduire. Contrairement aux études exposées plus tôt dans ce chapitre, l'expérience ne détermine pas ici directement l'observable d'intérêt (déplacement de surface, fonction diélectrique), mais donne un résultat intégré qui sert à contraindre une simulation dont on tirera une information indirecte¹¹. Le diagnostic principal était constitué de deux interféromètres TASRI, qui observaient en réflexion simultanément les faces avant et arrière de l'échantillon (voir figure 3.17). Pour mémoire ces interféromètres sont basés sur l'observation par un spectromètre, de la figure d'interférence spatiale entre deux faisceaux à dérive de fréquence (codage temps-fréquence). Ils permettent de réaliser une mesure d'interférométrie résolue en temps en un seul tir, ce qui était rendu nécessaire par les échantillons minces que nous utilisons.

La principale limitation expérimentale était imposée par des contraintes d'encombrement et d'éloignement des TASRI par rapport à l'échantillon¹². Cela s'est traduit *in fine* par une résolution spatiale de l'ordre de $20 \mu\text{m}$ et une incertitude de pointé des diagnostics de $\pm 3 \mu\text{m}$. La résolution ne permettait donc pas d'imager correctement la zone chauffée, et nous avons dû post-traiter les images obtenues pour retrouver le déphasage réel. À cause de ces limitations les mesures de phase obtenues étaient au final entachées d'une incertitude de $\pm 20\%$. Dans la limite de ces barres d'erreur, nous n'avons pas mesuré de différence entre les faces avant et arrière de l'échantillon, ce qui démontre la capacité du X-FEL à chauffer en volume par rapport à un laser optique.

Nous avons comparé les mesures avec les simulations de deux codes dont les ingrédients sont :

11. C'est du reste la démarche majoritairement suivie dans l'étude des plasmas denses.

12. Cette expérience a été réalisée en février 2011, avant la mise en service de la MEC (Matter in Extreme Condition), l'ère expérimentale dédiée à ce genre d'étude.

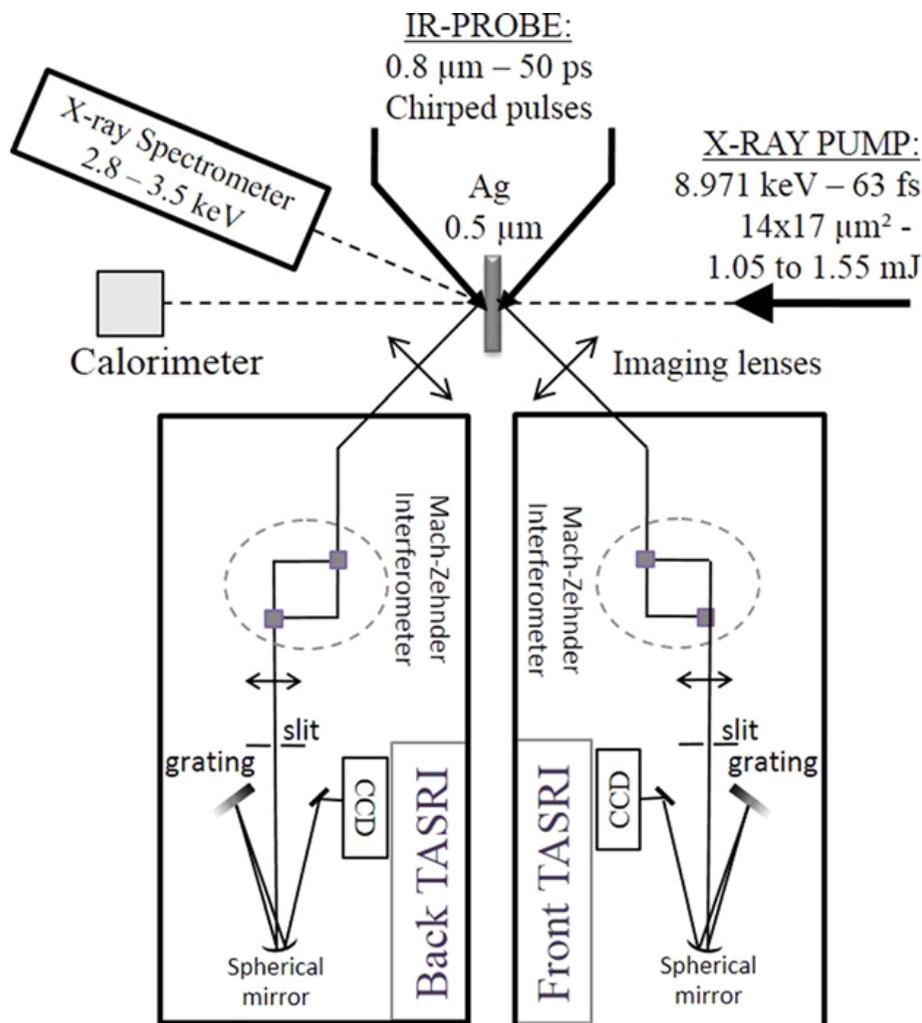


FIGURE 3.17 – Schéma de l'expérience sur le chauffage isochoire par faisceau X-FEL (pompe X-FEL, sonde optique).

- Le dépôt d'énergie par X-FEL dans la cible et sa redistribution au sein de la population électronique et vers les ions,
- l'évolution hydrodynamique de l'échantillon,
- la propagation et la réflexion de la sonde optique sur chacune des faces, par résolution de l'équation d'Helmoltz.

Les particularités de chaque code concernent principalement le premier point, et également le second à travers les équations d'état utilisées[16]. Le premier (ESTHER[23]) calcule le dépôt d'énergie à partir des opacités froides, et ce dépôt est directement converti en température électronique. Le degré d'ionisation est évalué dans des conditions d'équilibre thermodynamique local. Le second (X-RIM[45]) décrit la physique atomique de façon beaucoup plus détaillée, à travers un système d'équations de taux dans un modèle collisionnel-radiatif. X-RIM reproduit bien les vitesses de croissance des phases mesurées alors qu'ESTHER les sur-évalue légèrement. Ceci est lié à une sur-évaluation du degré d'ionisation, et montre l'intérêt d'une description détaillée du dépôt et de la redistribution de l'énergie. En revanche, nous n'avons pas vu de différence entre les deux équations d'état testées (BLF et QEOS) dans nos conditions.

Cette étude a montré pour la première fois que les X-FEL peuvent opérer un chauffage efficace d'un échantillon (jusqu'à une température de l'ordre de 10 eV dans nos conditions), isochore et homogène : pendant quelques picosecondes après le chauffage, plus de 80% de la matière est à la densité du solide, et la variation spatiale de température est inférieure à 10%.

3.5.2 Spectroscopie XANES résolue en temps

La seconde expérience présentée ici utilisait le faisceau X-FEL comme sonde, pour réaliser une expérience de spectroscopie d'absorption X près des seuils (XANES) résolue en temps. Cette expérience visait à étudier le transfert d'énergie entre électrons et réseau dans une cible de molybdène chauffée par une impulsion laser (optique) femtoseconde[46; 47]. Il s'agissait donc d'une expérience pompe (optique) sonde (X) dont la haute résolution temporelle était en fait limitée par la gigue temporelle entre les deux faisceaux, de l'ordre de 500 fs.

La spectroscopie XANES (voir *e.g.* le papier [48] et les références à l'intérieur) est un outil bien connu en physique de la matière condensée et en phase liquide, utilisé en routine sur synchrotron le plus souvent sur des échantillons statiques. Son principe (voir figure 3.18) repose sur l'analyse de l'absorption de photons X par effet photoélectrique, en fonction de l'énergie des photons. L'absorption est due à une transition liée-libre d'un électron qui absorbe un photon d'énergie E_X , et sonde par conséquent une sorte de fonction de corrélation entre des états occupés (par des électrons susceptibles d'absorber un photon) et des états libres (susceptibles d'accueillir l'électron ayant absorbé le photon) séparés par l'énergie E_X . Ainsi, si l'état de départ est un état discret en couche interne, d'énergie bien définie (l'équivalent d'une distribution de Dirac), le XANES permet de sonder la densité d'état inoccupée dans les bandes d'énergie supérieure (BV, BC). Le seuil d'absorption correspond à la transition entre une probabilité d'occupation totale et nulle de la densité d'état (absorption X respectivement nulle et maximale). La plage en énergie sur laquelle s'opère la transition est représentative de la température électronique, qui est donc une information que l'on peut extraire d'un spectre XANES. De plus, pour des énergies E_X légèrement supérieures au seuil, on observe des modulations de l'absorption qui trouvent leur origine au niveau microscopique. Elles sont dues à l'influence des atomes voisins de celui d'où provient un photoélectron sur la fonction d'onde de celui-ci. Le XANES contient donc une information sur l'ordre local, au niveau microscopique, dans le matériau.

Le XANES contient donc la double information sur la température électronique et sur l'ordre local, et la mesure des deux avec une résolution temporelle permet d'étudier le transfert d'énergie électrons-réseau au niveau microscopique. En revanche, l'information n'est pas directement accessible en tant que telle. Elle est déduite par comparaison avec des simulations de structure atomique et électronique d'où on calcule l'absorption X. Ce genre de simulation *ab initio* ne permet pas de suivre l'intégralité de l'expérience. Il faut donc déterminer les conditions thermodynamiques indépendamment (la densité principalement mais aussi les températures pour restreindre l'espace des paramètres sur lesquels effectuer des calculs *ab initio*). C'est ce que nous avons fait, encore une fois par comparaison mesure-simulation de la phase acquise par une sonde optique en réflexion sur l'échantillon, et ce grâce à un montage FDI.

En pratique, l'expérience proprement dite s'est déroulée en deux phases. La première consistait à réaliser le chauffage des échantillons et mesurer les mesures XANES. Celle-ci s'est déroulée à la zone expérimentale de LCLS spécialement dédiée à l'étude de la matière en conditions ex-

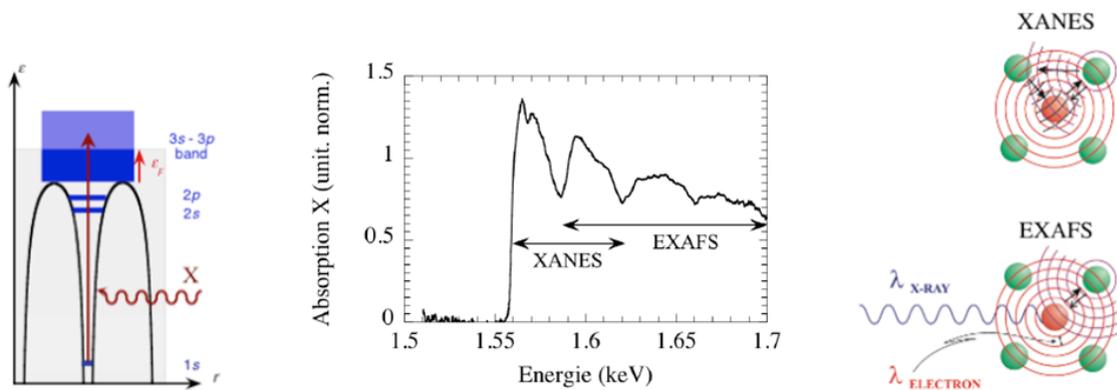


FIGURE 3.18 – Schéma de principe de la spectroscopie XANES. L'absorption d'un photon X par un électron de cœur sonde les états inoccupés du continuum. L'ordre local autour de l'atome absorbant est révélé par les modulations du spectre d'absorption qui sont liées à des interférences entre les fonctions d'onde du photoélectron sortante et réfléchies par les atomes voisins. Figure tirée de [49].

trêmes (MEC), qui permet de disposer simultanément du faisceau de chauffage optique et du faisceau X-FEL. Un schéma de l'arrangement expérimental est représenté figure 3.19. L'échantillon était constitué de 100 nm de molybdène déposé sur un substrat de $100 \mu\text{m}$ de polypropylène, et recouvert de 8 nm de carbone amorphe, qui protégeait le molybdène de l'oxydation avant l'expérience, et jouait également le rôle de couche inertielle pour retarder son expansion hydrodynamique. Le faisceau optique de chauffage était focalisé sur la cible dans une tache homogène et au bord bien défini (en imageant un diaphragme situé en amont dans la chaîne laser) et la fluence pouvait atteindre $8 \text{ J}\cdot\text{cm}^{-2}$. Le faisceau X-FEL, utilisé autour de 2.52 keV, avait la forme nécessaire pour couvrir à la fois la zone chauffée et une zone froide, de référence, avant d'être dispersé spectralement par un cristal convexe de quartz et enregistré par une caméra X. L'évolution des spectres XANES au cours du temps était finalement obtenue en variant le délai entre les deux faisceaux.

Compte-tenu de la complexité de l'expérience et du temps très limité que nous avons pour la réaliser, nous avons procédé à la caractérisation hydrodynamique dans une seconde phase, au CELIA. Nous avons reproduit "dans nos murs" les conditions de chauffage (longueur d'onde laser, taille de tache, durée d'impulsion, fluence, angle d'incidence...) que nous avons soigneusement mesurées au LCLS, et mesuré la phase en réflexion sur une durée de $\approx 40 \text{ ps}$ après le chauffage. A la fluence utilisée, celle-ci est essentiellement due à la composante Doppler et nous l'avons comparée à une simulation hydrodynamique 1D du code ESTHER muni d'une équation d'état multiphase et à deux températures[5], et un facteur de couplage pour le transfert d'énergie électron-ion calculé pour des conditions de WDM hors d'équilibre[50]. Un accord correct ($\approx 20\%$ près) a été obtenu sur la vitesse de détente après excitation, ce qui valide la simulation hydrodynamique d'où l'on tire les densités et températures de l'échantillon aux délais correspondant aux différents spectres XANES recueillis : après le chauffage, les températures ioniques et électroniques s'équilibrent au bout de 2 ps pour atteindre environ 2 eV, et la densité est restée proche de celle du solide. Aux délais plus longs (jusqu'à 2 ns), la température reste relativement élevée $\approx 1 \text{ eV}$, mais la densité a diminué d'un facteur 5 environ pour atteindre quelques g/cm^3 .

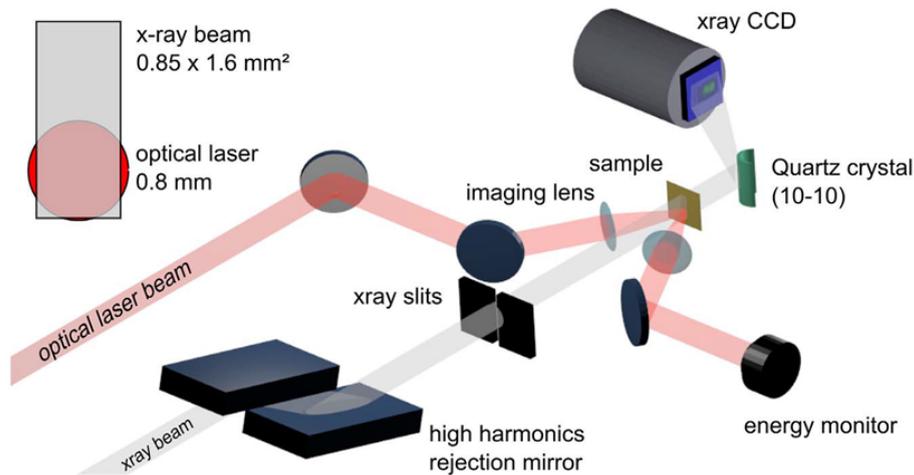


FIGURE 3.19 – Schéma de l'expérience sur la spectroscopie XANES résolue en temps (pompe optique, sonde X-FEL).

Les calculs *ab initio* arrivent à reproduire les spectres simulés, et indiquent un élargissement des structures de la densité d'état électronique quand la température augmente au delà de celle de la transition solide-liquide. De plus, ils suggèrent qu'un état hors d'équilibre électron-ion subsiste encore 5 ps après le chauffage, contrairement à ce qui était prévu à partir de la simulation hydrodynamique utilisant le facteur de couplage de Lin *et al.*.

Mon propre rôle dans cette expérience a surtout été de caractériser le dépôt d'énergie au LCLS puis au CELIA. Je ne m'étendrai pas plus sur l'analyse de cette expérience, dont l'évocation sert ici surtout à illustrer une utilisation fréquente du FDI (ou de son dérivé le TASRI) pour la caractérisation hydrodynamique d'un échantillon WDM.

3.6 Conclusion sur le chapitre 3

A l'issue de ce chapitre j'espère avoir convaincu le lecteur de l'utilité (sinon la nécessité) du diagnostic de type FDI pour l'étude de la WDM. Dans ce régime, la matière est généralement sujette à une évolution hydrodynamique extrêmement rapide. Les résolutions (temporelle, spatiale, en phase et amplitude) que l'on peut atteindre grâce à l'interférométrie optique femtoseconde apportent des renseignements uniques sur les propriétés optiques et/ou l'hydrodynamique d'un échantillon WDM.

On peut déduire les propriétés optiques en surface d'un échantillon WDM sans recourir à aucune modélisation, à condition toutefois d'effectuer le contrôle absolument nécessaire de l'intégrité de cette surface, qui est rendu possible par l'utilisation des deux polarisations *P* et *S*. Ceci nous a permis de montrer le rôle des électrons de bande *d* sur la fréquence de collisions électron-électron dans un métal noble. Nous avons également démontré la nécessité, pour décrire un diélectrique soumis à une excitation intense, d'aller au delà de l'approximation d'une structure de bande fixe dont la bande de conduction est peuplée par un plasma d'électrons obéissant au modèle de Drude.

Enfin, le FDI permet de contraindre les simulations de détente hydrodynamique sur une échelle

temporelle allant de la centaine de femtoseconde à la centaine de picoseconde, et par là, d'évaluer l'historique des conditions de densité et température.

Références du chapitre 3

- [1] R. W. LEE, S. J. MOON, H.-K. CHUNG, W. ROZMUS, H. A. BALDIS, G. GREGORI, R. C. CAUBLE, O. L. LANDEN, J. S. WARK, A. NG, S. J. ROSE, C. L. LEWIS, D. RILEY, J.-C. GAUTHIER et P. AUDEBERT : Finite temperature dense matter studies on next-generation light sources. *J. Opt. Soc. Am. B*, 20(4):770–778, Apr 2003.
- [2] R. E. REINOVSKY : Warm dense matter : Another application for pulsed power hydrodynamics. In *2009 IEEE Pulsed Power Conference*, pages 203–208, June 2009.
- [3] T. GUILLOT : Interiors of giant planets inside and outside the solar system. *Science*, 286(5437):72–77, 1999.
- [4] R. M. MORE, K. H. WARREN, D. A. YOUNG et G. B. ZIMMERMAN : A new quotidian equation of state (QEOS) for hot dense matter. *The Physics of Fluids*, 31(10):3059–3078, 1988.
- [5] A. V. BUSHMAN, I. V. LOMONOSOV et V. E. FORTOV : Models of wide-range equations of state for matter under conditions of high energy density. *Sov. Tech. Rev. B : Therm. Phys.*, 5:1, 1993.
- [6] K. EIDMANN, J. Meyer-ter VEHN, T. SCHLEGEL et S. HÜLLER : Hydrodynamic simulation of subpicosecond laser interaction with solid-density matter. *Phys. Rev. E*, 62:1202–1214, Jul 2000.
- [7] M. GILL-COMEAU et L. J. LEWIS : Ultrashort-pulse laser ablation of nanocrystalline aluminum. *Phys. Rev. B*, 84:224110, Dec 2011.
- [8] X. GONZE, J.-M. BEUKEN, R. CARACAS, F. DETRAUX, M. FUCHS, G.-M. RIGNANESE, L. SINDIC, M. VERSTRAETE, G. ZERAH, F. JOLLET, M. TORRENT, A. ROY, M. MIKAMI, Ph. GHOSEZ, J.-Y. RATY et D.C. ALLAN : First-principles computation of material properties : the {ABINIT} software project. *Computational Materials Science*, 25(3):478 – 492, 2002.
- [9] P. RENAUDIN, C. BLANCARD, G. FAUSSURIER et P. NOIRET : Combined pressure and electrical-resistivity measurements of warm dense aluminum and titanium plasmas. *Phys. Rev. Lett.*, 88:215001, May 2002.
- [10] D. D. RYUTOV, M. S. DERZON et M. K. MATZEN : The physics of fast Z pinches. *Rev. Mod. Phys.*, 72:167–223, Jan 2000.
- [11] D. VARENTSOV, V. Ya. TERNOVOI, M. KULISH, D. FERNENGEL, A. FERTMAN, A. HUG, J. MENZEL, P. NI, D.N. NIKOLAEV, N. SHILKIN, V. TURTIKOV, S. UDREA, V.E. FORTOV, A.A. GOLUBEV, V.K. GRYAZNOV, D.H.H. HOFFMANN, V. KIM, I.V. LOMONOSOV, V. MINTSEV, B.Yu. SHARKOV, A. SHUTOV, P. SPILLER, N.A. TAHIR et H. WAHL : High-energy-density physics experiments with intense heavy ion beams. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 577(1):262 – 266, 2007. Proceedings of the 16th International Symposium on Heavy Ion Inertial Fusion.
- [12] A. Mančić, A. LÉVY, M. HARMAND, M. NAKATSUTSUMI, P. ANTICI, P. AUDEBERT, P. COMBIS, S. FOURMAUX, S. MAZEVET, O. PEYRUSSE, V. RECOULES, P. RENAUDIN, J. ROBICHE, F. DORCHIES et J. FUCHS : Picosecond short-range disordering in isochorically heated aluminum at solid density. *Phys. Rev. Lett.*, 104:035002, Jan 2010.
- [13] J. E. COLEMAN et J. COLGAN : Collisional heating and adiabatic expansion of warm dense matter with intense relativistic electrons. *Phys. Rev. E*, 96:013208, Jul 2017.
- [14] L. B. DA SILVA, P. CELLIERS, G. W. COLLINS, K. S. BUDIL, N. C. HOLMES, T. W. BARBEE JR., B. A. HAMMEL, J. D. KILKENNY, R. J. WALLACE, M. ROSS, R. CAUBLE, A. NG et G. CHIU : Absolute equation of state measurements on shocked liquid deuterium up to 200 GPa (2 Mbar). *Phys. Rev. Lett.*, 78:483–486, Jan 1997.
- [15] D. C. SWIFT et R. P. JOHNSON : Quasi-isentropic compression by ablative laser loading : Response of materials to dynamic loading on nanosecond time scales. *Phys. Rev. E*, 71:066401, Jun 2005.

- [16] A. LÉVY, P. AUDEBERT, R. SHEPHERD, J. DUNN, M. CAMMARATA, O. CIRICOSTA, F. DENEUVILLE, F. DORCHIES, M. FAJARDO, C. FOURMENT, D. FRITZ, J. FUCHS, J. GAUDIN, M. GAUTHIER, A. GRAF, H. J. LEE, H. LEMKE, B. NAGLER, J. PARK, O. PEYRUSSE, A. B. STEEL, S. M. VINKO, J. S. WARK, G. O. WILLIAMS, D. ZHU et R. W. LEE : The creation of large-volume, gradient-free warm dense matter with an X-ray Free-Electron Laser. *Physics of Plasmas*, 22(3):030703, 2015.
- [17] F. DENEUVILLE, B. CHIMIER, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, S. HULIN, S. PETIT, O. PEYRUSSE, J. J. SANTOS et C. FOURMENT : Sub-picosecond and nanometer scale dynamics of aluminum target surface heated by ultrashort laser pulse. *Appl. Phys. Lett.*, 102(19):194104, 2013.
- [18] F. DENEUVILLE : *Étude de la dynamique électronique des plasmas denses et tièdes par interférométrie optique*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, 2013.
- [19] C. FOURMENT, F. DENEUVILLE, B. CHIMIER, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, S. HULIN, S. PETIT, O. PEYRUSSE et J. J. SANTOS : An interferometric diagnostic for the experimental study of dynamics of solids exposed to intense and ultrashort radiation. In *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series*, volume 8777, mai 2013.
- [20] N. MEDVEDEV, H. O. JESCHKE et B. ZIAJA : Nonthermal phase transitions in semiconductors induced by a femtosecond extreme ultraviolet laser pulse. *New Journal of Physics*, 15(1):015016, jan 2013.
- [21] M. BORN et E. WOLF : *Principles of Optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 1999.
- [22] D. FISHER, M. FRAENKEL, Z. HENIS, E. MOSHE et S. ELIEZER : Interband and intraband (Drude) contributions to femtosecond laser absorption in aluminum. *Phys. Rev. E*, 65:016409, Dec 2001.
- [23] J. P. COLOMBIER, P. COMBIS, F. BONNEAU, R. LE HARZIC et E. AUDOUARD : Hydrodynamic simulations of metal ablation by femtosecond laser irradiation. *Phys. Rev. B*, 71:165406, Apr 2005.
- [24] L.D. LANDAU et E.M. LIFSHITZ : *A Course of Theoretical Physics vol. 7 : Theory of Elasticity*. Pergamon Press, 1970.
- [25] C. FOURMENT, F. DENEUVILLE, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, S. PETIT, O. PEYRUSSE, B. HOLST et V. RECOULES : Experimental determination of temperature-dependent electron-electron collision frequency in isochorically heated warm dense gold. *Phys. Rev. B*, 89:161110(R), Apr 2014.
- [26] D. G. YAKOVLEV et V. A. URPIN : Thermal and electrical conductivity in white dwarfs and neutron stars. *Soviet Astronomy*, 24:303, juin 1980.
- [27] N.W. ASHCROFT et N. D. MERMIN : *Solid state physics*. Holt, Rinehart and Winston, New York, 1976.
- [28] B. Y. MUELLER et B. RETHFELD : Relaxation dynamics in laser-excited metals under nonequilibrium conditions. *Phys. Rev. B*, 87:035139, Jan 2013.
- [29] Yu.V. PETROV, N.A. INOGAMOV et K.P. MIGDAL : Thermal conductivity and the electron-ion heat transfer coefficient in condensed media with a strongly excited electron subsystem. *JETP Letters*, 97(1):20–27, 2013.
- [30] C. FOURMENT, B. CHIMIER, F. DENEUVILLE, D. DESCAMPS, F. DORCHIES, G. DUCHATEAU, M.-C. NADEAU et S. PETIT : Ultrafast changes in optical properties of SiO_2 excited by femtosecond laser at the damage threshold and above. *Phys. Rev. B*, 98:155110, Oct 2018.
- [31] A. KAISER, B. RETHFELD, M. VICANEK et G. SIMON : Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses. *Phys. Rev. B*, 61:11437–11450, May 2000.
- [32] P. AUDEBERT, Ph. DAGUZAN, A. DOS SANTOS, J. C. GAUTHIER, J. P. GEINDRE, S. GUIZARD, G. HAMONIAUX, K. KRASDEV, P. MARTIN, G. PETITE et A. ANTONETTI : Space-time observation of an electron gas in SiO_2 . *Phys. Rev. Lett.*, 73:1990–1993, Oct 1994.

- [33] P. MARTIN, S. GUIZARD, Ph. DAGUZAN, G. PETITE, P. D'OLIVEIRA, P. MEYNADIER et M. PERDRIX : Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals. *Phys. Rev. B*, 55:5799–5810, Mar 1997.
- [34] R. STOIAN, A. ROSENFELD, D. ASHKENASI, I. V. HERTEL, N. M. BULGAKOVA et E. E. B. CAMPBELL : Surface charging and impulsive ion ejection during ultrashort pulsed laser ablation. *Phys. Rev. Lett.*, 88:097603, Feb 2002.
- [35] A. BOURGEADE et G. DUCHATEAU : Time-dependent ionization models designed for intense and short laser pulse propagation in dielectric materials. *Phys. Rev. E*, 85:056403, May 2012.
- [36] B. RETHFELD, A. RÄMER, N. BROUWER, N. MEDVEDEV et O. OSMANI : Electron dynamics and energy dissipation in highly excited dielectrics. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 327:78 – 88, 2014.
- [37] S. V. FALEEV, M. van SCHILFGAARDE, T. KOTANI, F. LÉONARD et M. P. DESJARLAIS : Finite-temperature quasiparticle self-consistent *GW* approximation. *Phys. Rev. B*, 74:033101, Jul 2006.
- [38] E. N. GLEZER, Y. SIEGAL, L. HUANG et E. MAZUR : Laser-induced band-gap collapse in GaAs. *Phys. Rev. B*, 51:6959–6970, Mar 1995.
- [39] M. HARB, R. ERNSTORFER, C. T. HEBEISEN, G. SCIAINI, W. PENG, T. DARTIGALONGUE, M. A. ERIKSSON, M. G. LAGALLY, S. G. KRUGLIK et R. J. D. MILLER : Electronically driven structure changes of Si captured by femtosecond electron diffraction. *Phys. Rev. Lett.*, 100:155504, Apr 2008.
- [40] M. GARCIA-LECHUGA, L. HAAHR-LILLEVANG, J. SIEGEL, P. BALLING, S. GUIZARD et J. SOLIS : Simultaneous time-space resolved reflectivity and interferometric measurements of dielectrics excited with femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. B*, 95:214114, Jun 2017.
- [41] Z. VARDENY et J. TAUC : Picosecond coherence coupling in the pump and probe technique. *Optics Comm.*, 39(6):396 – 400, 1981.
- [42] S. V. GOVORKOV, I. L. SHUMAI, W. RUDOLPH et T. SCHRODER : Initial stages of the melting of a GaAs surface by femtosecond laser pulses : Study by second-harmonic-generation method. *JETP Letters*, 52(2): 117–121, 1990.
- [43] S. SEN et J. E. DICKINSON : Ab initio molecular dynamics simulation of femtosecond laser-induced structural modification in vitreous silica. *Phys. Rev. B*, 68:214204, Dec 2003.
- [44] L. V. KELDYSH : Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP*, 20:1307–1314, May 1965.
- [45] O. PEYRUSSE : Coupling of detailed configuration kinetics and hydrodynamics in materials submitted to X-ray Free-Electron-Laser irradiation. *Phys. Rev. E*, 86:036403, Sep 2012.
- [46] J. GAUDIN, C. FOURMENT, B. I. CHO, K. ENGELHORN, E. GALTIER, M. HARMAND, P. M. LEGUAY, H. J. LEE, B. NAGLER, M. NAKATSUTSUMI, C. OZKAN, M. STÖRMER, S. TOLEIKIS, Th TSCHENTSCHER, P. A. HEIMANN et F. DORCHIES : Towards simultaneous measurements of electronic and structural properties in ultra-fast X-ray free electron laser absorption spectroscopy experiments. *Scientific Reports*, 4(1):4724, 2014.
- [47] F. DORCHIES, V. RECOULES, J. BOUCHET, C. FOURMENT, P. M. LEGUAY, B. I. CHO, K. ENGELHORN, M. NAKATSUTSUMI, C. OZKAN, T. TSCHENTSCHER, M. HARMAND, S. TOLEIKIS, M. STÖRMER, E. GALTIER, H. J. LEE, B. NAGLER, P. A. HEIMANN et J. GAUDIN : Time evolution of electron structure in femtosecond heated warm dense molybdenum. *Phys. Rev. B*, 92:144201, Oct 2015.
- [48] J. YANO et V. K. YACHANDRA : X-ray absorption spectroscopy. *Photosynthesis Research*, 102(2):241, Aug 2009.

- [49] F. DORCHIES : *Développement de sources X ultra-brèves : Application à la spectroscopie d'absorption X résolue en temps*. Habilitation à diriger des recherches, Université de Bordeaux, 2013.
- [50] Z. LIN, L. V. ZHIGILEI et V. CELLI : Electron-phonon coupling and electron heat capacity of metals under conditions of strong electron-phonon nonequilibrium. *Phys. Rev. B*, 77:075133, Feb 2008.

Interaction entre un faisceau d'électrons relativistes et la matière dans le cadre de la radiographie éclair

Une des missions du Laboratoire des Hautes Puissances Pulsées du CEA CESTA est le support en R&D des accélérateurs d'électrons qu'utilisent le CEA-DAM pour réaliser des radiographies dites *éclair*. Ces radiographies sont utilisées pour étudier la réponse structurale de matériaux soumis à des fortes accélérations dans des expériences d'hydrodynamique. Ces expériences sont réalisées auprès de l'installation EPURE au CEA Valduc, qui sera dotée à terme de 3 axes radiographiques (un seul axe est en service pour l'instant, depuis 2014). Les objets dont il faut réaliser l'image sont denses et de grande dimension (comparée aux cibles des expériences laser), et en mouvement rapides (de l'ordre du kilomètre par seconde).

Le rayonnement nécessaire à la radiographie est produit par le ralentissement d'un faisceau d'électrons (rayonnement Bremsstrahlung) dans une cible solide de numéro atomique élevé (tantale typiquement), aussi appelée *convertisseur*. De par l'application visée, le faisceau d'électron doit être relativement énergétique (≈ 20 MeV), intense (≈ 2 kA) et bref (< 100 ns). Ce type de faisceau est donc caractérisé par un fort courant et une très forte charge ($\approx 10^{-4}$ C). On utilise pour les générer des accélérateurs à induction[1] qui fonctionnent en monocoup, et qui sont très spécifiques de la radiographie éclair[2]. Ceci explique qu'il y a relativement peu d'articles scientifiques autour de ces machines par rapport aux autres types d'accélérateurs.

L'énergie portée par le faisceau est considérable (≈ 3 kJ), et son interaction avec le convertisseur amène celui-ci dans le domaine WDM par un chauffage en volume[3]. Ceci a des conséquences sur le faisceau d'électrons lui-même, qui est suffisamment long pour que l'élévation de température due à l'énergie déposée par le début du faisceau ait des conséquences sur les électrons arrivant ensuite, et ce par l'intermédiaire de la désorption de particules depuis la surface de la cible. D'autre part, il serait intéressant pour les expériences d'hydrodynamique, de disposer de plusieurs temps de prise de vue au cours du même tir. Ceci serait par exemple rendu pos-

sible par la génération, l'accélération et finalement l'interaction avec le convertisseur de deux ou plus faisceaux d'électrons successifs, séparés d'un délai choisi (configuration dite *multi-pulse*). Il faut alors savoir prévoir avec précision l'effet du dépôt d'énergie de chaque impulsion dans le convertisseur sur les performances globales du rayonnement généré par les impulsions suivantes, en particulier en termes de taille de source et d'émissivité. C'est dans ce contexte que j'ai établi un projet d'études, et commencé à le réaliser. Les problématiques que je viens d'exposer sont fortement liées, néanmoins j'ai choisi de les présenter en deux sections séparées dans la suite. La première est plutôt pratique et dédiée aux études appliquées à l'interaction faisceau-convertisseur proprement dite, tandis que la seconde est un peu plus fondamentale et consacrée à l'interaction faisceau-plasma froid et dilué.

4.1 Interaction faisceau d'électrons-cible de conversion

4.1.1 Émission ionique à la surface du convertisseur

Pendant le chauffage du convertisseur soumis au faisceau d'électrons, des particules (atomes, molécules, ions) sont libérées. Ces espèces peuvent être des polluants (eau, hydrocarbures, hydrogène) adsorbés en surface ou contenus dans le volume de la cible, ou du matériau vaporisé de la cible elle-même quand la température devient suffisante. Un certain nombre d'ions positifs sont créés à partir des particules relâchées par la cible, qui compensent partiellement la répulsion de charge d'espace du faisceau (voir figure 4.1). La conséquence est une sur-focalisation du faisceau d'électrons en amont de la cible, qui se traduit en pratique par un élargissement de la tache électronique (d'un facteur deux environ) au niveau de celle-ci. Quelques études ont été publiées dans les années 2000 (e.g. [4; 5; 6]) qui ont permis d'arriver à la description qui vient d'être faite du phénomène. Elles ont en outre permis de montrer que les ions les plus gênants sont les plus légers (hydrogène, carbone...) car ils sont accélérés plus efficacement par le champ électrique que les lourds. De plus, l'élévation typique de température nécessaire pour déclencher une désorption importante de particules est de l'ordre de 400 Kelvin. Enfin, comme le processus évolue au cours de l'impulsion électronique au fur et à mesure que les ions s'éloignent de la cible, on ne peut pas le pré-compenser de façon statique, en adaptant le courant circulant dans le solénoïde de focalisation par exemple.

Plusieurs remèdes ont été envisagés, comme par exemple supprimer la source de particules résorbées en nettoyant la surface de la cible par irradiation laser à basse fluence avant le flash. On trouve néanmoins peu d'information sur ce sujet, et il semblerait que la technique ait été essayée puis abandonnée aux États-Unis. Une autre possibilité serait de compenser dynamiquement l'effet des ions, à condition bien sûr que celui-ci soit reproductible tir à tir. Pour cela, deux techniques ont été examinées théoriquement[7] : la première consiste à augmenter au cours de l'impulsion l'énergie des électrons du faisceau avant le solénoïde de focalisation, pour utiliser le chromatisme de celui-ci. La deuxième méthode serait d'ajouter une bobine de faible inductance au solénoïde de focalisation. Le rôle de cette bobine additionnelle serait de faire varier le champ de focalisation autour du point nominal de fonctionnement, pendant l'impulsion électronique (c'est cet aspect temporel rapide qui implique de travailler avec une bobine de faible inductance plutôt que directement sur le solénoïde "principal"). Néanmoins, aucune des deux techniques ne

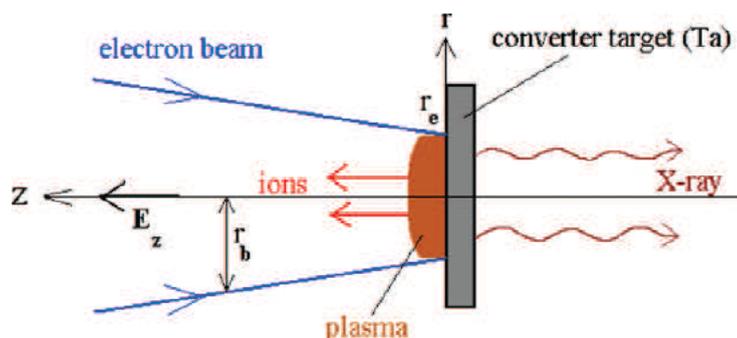


FIGURE 4.1 – Schéma de principe de l'émission ionique lors de l'interaction faisceau d'électrons intense-cible de conversion. Figure tirée de [6]

semble facilement réalisable, et la piste la plus prometteuse actuellement serait de positionner une feuille mince (quelques micromètres) d'un élément léger quelques centimètres devant le convertisseur ; l'idée est que la feuille limite à une faible distance la propagation des particules émises par la cible de conversion, tout en apportant une diffusion angulaire acceptable sur le faisceau d'électrons et en émettant elle-même une quantité négligeable de particules. L'essentiel de mon travail dans cette thématique est de tester l'efficacité d'une telle *barrière ionique* sur un faisceau représentatif de celui d'un accélérateur de radiographie éclair.

Le CESTA dispose pour un temps limité d'un faisceau d'électrons adéquat : celui issu de la machine FEVAIR, constituée de l'injecteur (*i.e.* la source d'électron) du futur troisième axe d'EPURE, et à terme d'un bloc de cellules accélératrices à induction. Les caractéristiques maximales du faisceau en sortie d'injecteur sont 3 kA et 4 MeV pour le courant et l'énergie. Ces deux valeurs sont stables à quelques pourcents près sur un plateau de durée 60 ns, et le temps de montée et de descente du courant autour de ce plateau est de l'ordre de 10 ns. Le bloc de cellules accélératrice doit permettre de gagner 1 MeV en énergie, sans modifier les autres paramètres. Le travail prioritaire sur la machine est sa mise en route et sa qualification avant envoi pour installation définitive à EPURE. Cela occupe la grosse majorité du temps machine, mais permet néanmoins l'accès au faisceau quelques semaines par an. Lors d'une première session[8], j'ai pu observer l'effet ionique provoqué par le faisceau focalisé sur une cible. Des tests de barrière ionique proprement dits seront réalisés lors d'une prochaine session.

Un des moyens de caractériser l'effet des ions éventuellement émis par la cible sur le faisceau d'électrons est d'observer le faisceau lui-même, à travers l'émission lumineuse qu'il génère lors de son interaction avec une cible solide, appelée pour cette raison *radiateur*. Cette émission lumineuse a plusieurs sources possibles en fonction de la nature du matériaux : rayonnement Cherenkov, de Transition Optique (RTO), scintillation, rayonnement d'émission thermique le cas échéant. Les émissions Cherenkov et RTO sont *a priori* proportionnelles à la densité de courant dans le faisceau, et instantanées par rapport aux temps caractéristiques d'évolution du faisceau. Quand les autres mécanismes d'émissions sont négligeables, l'observation optique du radiateur permet donc d'imager le faisceau à chaque instant. Dans le passé, une telle expérience avait été réalisée sur la machine américaine DARHT (LANL). Le faisceau était focalisé sur une première feuille fine (jouant le rôle de la cible de conversion), puis observé au niveau d'un radiateur situé quelques dizaines de centimètres en aval[5]. Ceci permettait un gain en sensibilité

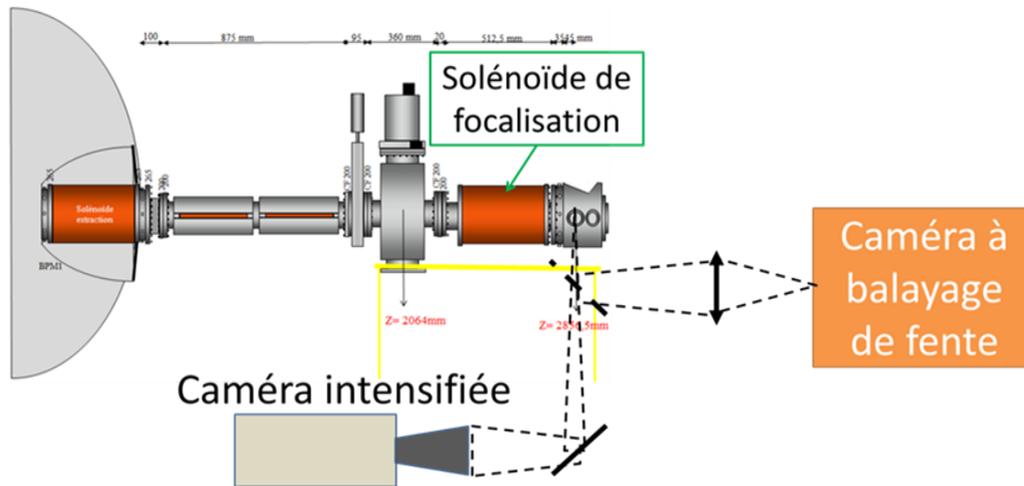


FIGURE 4.2 – Schéma de l'expérience d'imagerie résolue en temps lors de l'interaction entre le faisceau d'électrons et une feuille mince.

sur l'effet des ions ainsi que la non détérioration du radiateur, qui est séparé de la cible. Dans l'expérience réalisée sur FEVAIR, je n'ai utilisé qu'une seule feuille qui jouait à la fois le rôle d'émetteur ionique et de radiateur, et ceci pour deux raisons : d'une part cette expérience était la première réalisée sur la machine dont les caractéristiques du faisceau au foyer étaient inconnues. Il fallait donc également caractériser le faisceau, ce qui était possible avec le même montage expérimental. D'autre part, ce montage est plus commode que le montage à deux feuilles séparées pour tester une barrière ionique, comme prévu dans un second temps.

Le montage expérimental est schématisé figure 4.2 : le faisceau d'électrons issu de l'injecteur de FEVAIR est focalisé sur une feuille mince par un solénoïde de focalisation. Pendant toute l'expérience, le courant faisceau au plateau était de 1.8 kA, et son énergie 3.4 MeV. La lumière émise lors de l'interaction entre les électrons du faisceau et la surface de la cible est imagée et enregistrée en parallèle par une caméra à balayage de fente (CBF) et une caméra intensifiée (ICCD). Le temps d'exposition de la ICCD était de $3ns$, et la CBF observait une plage temporelle de 100 ns avec une résolution de l'ordre de 1 ns. La figure 4.3 montre les images enregistrées par la CBF et la ICCD pendant chaque flash, ainsi qu'une image *post-mortem* prise par la ICCD. Le trou le plus gros est observé sur la cible de mylar, et pour des matériaux plus réfractaires (titane et graphite), le trou est plus gros sur la cible de titane que de graphite. Ceci s'explique par l'énergie déposée en plus grande quantité dans le premier, de numéro atomique plus élevé.

Les images de la CBF montrent une dynamique assez riche. Au début du plateau du faisceau, l'émission lumineuse du faisceau focalisé correspond à un diamètre inférieur à 1 mm, puis on voit apparaître des "branches" qui s'écartent au cours du temps. A la position du foyer, l'émission lumineuse disparaît dans le cas de la cible de mylar, et perdure dans le cas des deux autres cibles. Elle décroît nettement après la fin du faisceau dans le cas du graphite, et reste bien visible dans le cas du titane, ce qui indique une contribution de rayonnement thermique. Ces observations montrent bien que les cibles ne se sont pas encore largement détendues radialement même à la fin de l'impulsion électronique. La cible de mylar aluminisé émet fortement autour du foyer électronique, ce qui donne une image en anneau sur la ICCD. Toutes ces observations montrent

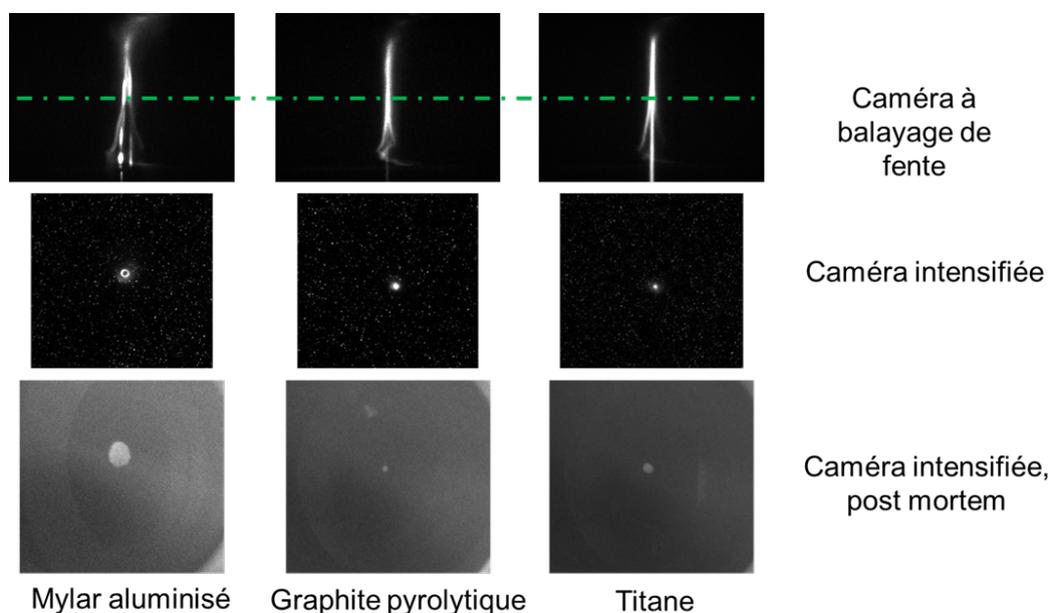


FIGURE 4.3 – Images obtenues lors de l'interaction au foyer du faisceau d'électrons avec des feuilles minces de différents matériaux. Sur les images de la CBF, le temps s'écoule de haut en bas. La ligne d'axe verte correspond à l'instant auquel est enregistrée l'image sur la caméra ICCD qui est représentée en dessous. Le diamètre apparent du faisceau est inférieur à 1 mm au début du faisceau, puis s'élargit au bout d'un temps qui dépend de la nature du matériau.

que l'émission lumineuse n'est pas forcément le reflet direct du faisceau mais dépend fortement de la nature et de l'état du matériau. Nous attribuons à l'effet des ions proprement dit les « branches » lumineuses qui s'écartent au cours du temps. En effet, on voit à la façon dont ces branches se terminent à la fin du plateau de courant, qu'elles sont dues aux électrons du faisceau et non pas à la matière de la cible (par opposition à l'émission thermique). De plus elles apparaissent plus tôt pour la cible de mylar aluminisé (matériau qui émet facilement des protons) que pour la cible de titane, et plus tard encore pour la cible de graphite pyrolytique (connu pour désorber peu de protons). Cette expérience montre donc :

- Que l'on peut voir l'effet des ions sur la focalisation du faisceau d'électrons avec le type de montage utilisé.
- L'intérêt d'utiliser une feuille de graphite pyrolytique de quelques microns comme barrière ionique placée quelques centimètres avant le foyer. En effet ces feuilles sont très résistantes au faisceau d'électrons et libèrent très peu d'ions pendant le temps de l'impulsion électronique. De plus, la diffusion angulaire qu'elles provoquent sur le faisceau reste limitée.

Une prochaine expérience sera dédiée au test de feuilles de graphite pyrolytique de différentes épaisseurs (typiquement 5 et 10 μm) et placées à une distance variable (quelques centimètres) devant la cible, que l'on observera de la même façon.

4.1.2 Hydrodynamique du convertisseur

Du fait de l'énergie déposée par l'impulsion électronique intense, la cible se trouve dans le régime WDM : la température atteinte est de quelques dizaines de milliers de Kelvin, la densité proche de celle du solide initial, et la pression atteint le méga-bar. En conséquence, la matière est vaporisée et se détend rapidement (quelques km/s) dans le vide environnant. Contrairement à l'effet ionique dont il est question dans la section précédente, la problématique traitée ici concerne essentiellement une configuration multi-pulse. L'échelle de temps à considérer est alors de plusieurs microsecondes après l'arrivée de la première impulsion. Dans ce cas, une certaine quantité de matière est éjectée en dehors de la trajectoire du faisceau, avec pour conséquence la diminution de la dose X générée par les impulsions suivantes. D'autre part, la matière diluée dans laquelle se propage le faisceau d'électrons peut potentiellement modifier la taille voire la forme de la tache focale. Bien que tous deux reliés à l'hydrodynamique de la cible, ces deux volets concernent respectivement la partie haute et basse densité de la matière, qu'il est particulièrement difficile de décrire de façon unifiée du fait de la disparité de densité rencontrée (une dizaine d'ordre de grandeur). Le deuxième aspect a en partie motivé les études présentées dans la section 4.2. Je me focalise donc ici sur le premier aspect, l'enjeu étant de dimensionner une cible optimisée pour le fonctionnement multi-pulse.

Ce dimensionnement utilise deux codes de calculs développés au CEA-DAM. Le premier calcule le dépôt d'énergie du faisceau d'électrons dans la cible, par une méthode Monte-Carlo. Le dépôt d'énergie est alors utilisé en donnée d'entrée pour le second (*Hesione*), qui peut calculer l'évolution hydrodynamique de la cible et prévoir la répartition de la matière au moment de l'arrivée d'une autre impulsion. A noter que ce dernier n'est pas un code plasma : il ne distingue pas les populations électroniques et ioniques, et n'inclue pas de module de transport de chaleur. Ces deux éléments ne sont pas *a priori* critiques car les temps caractéristiques sont très longs devant le temps d'équilibration électron-ion dans les métaux WDM à la densité du solide (de l'ordre de 10 ps), et d'autre part les gradients de température ne sont pas élevés. En revanche, *Hesione* est un code multiphase qui permet l'utilisation d'équations d'états réalistes de type BLF[9] et des lois d'endommagement qui en font un outil plutôt adapté à la transition de phase solide-WDM. Enfin, il est couplé numériquement avec le code de dépôt d'énergie, ce qui facilite l'utilisation des deux en série.

La figure 4.4 montre la forme de la cible $2 \mu\text{s}$ après l'arrivée du faisceau, pour une cible plane de tantale épaisse de 1 mm irradiée par un faisceau typique (20 MeV, 2 kA, 60 ns). Le faisceau arrive de la gauche au centre de la cible. On voit qu'une plume de matière se propage de part et d'autre de la cible. Au centre de celle-ci, la température est de l'ordre de l'électronvolt et la densité de l'ordre du pour-cent de la densité du solide. On peut estimer la quantité de matière que verrait une seconde impulsion électronique en intégrant la masse de la cible dans le trajet de cette seconde impulsion, que l'on suppose identique à la première. Si le faisceau d'électron n'est pas homogène (par exemple son profil spatial est gaussien), cette intégrale se fait en pondérant la masse de cible par la densité de courant dans le faisceau.

J'ai utilisé cette méthode pour évaluer l'apport des cibles dites *distribuées* ou encore *multi-feuilles*, pour la génération de deux impulsions X. Le concept de ces cibles est de réduire la détente de la matière en répartissant sa masse sur un volume plus grand que celui d'une simple feuille[10]. Par exemple, plutôt que d'utiliser une feuille d'épaisseur 1 mm, on peut utiliser un assemblage de 20 feuilles de $50 \mu\text{m}$ réparties sur une distance de 1 cm. Ce faisant, la densité

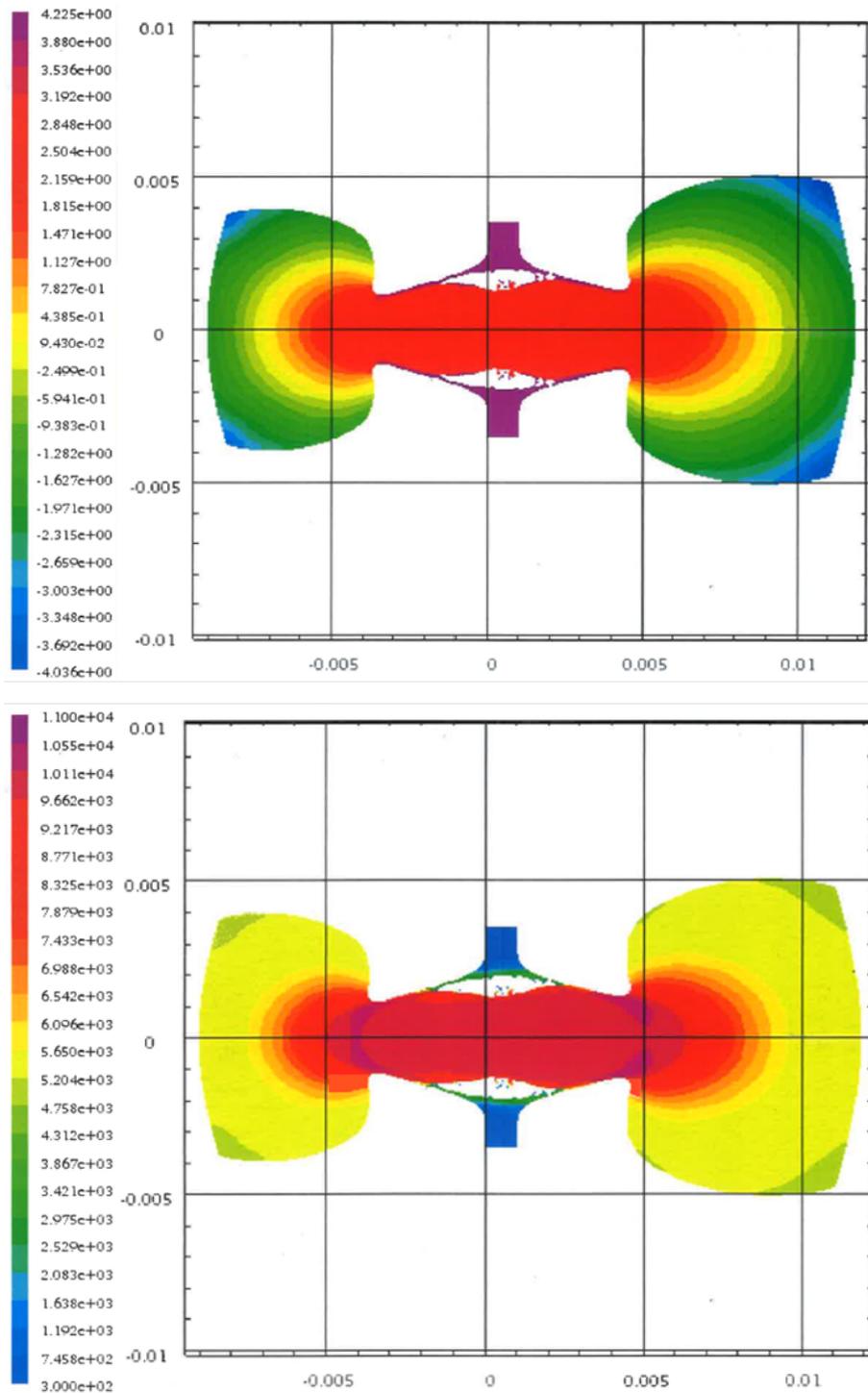


FIGURE 4.4 – Simulation d'une cible de tantale initialement plane et d'épaisseur 1 mm, $2 \mu\text{s}$ après l'interaction avec un faisceau d'électrons relativistes intense (20 MeV, 2 kA, 60 ns). Le faisceau arrive de la gauche, et les axes sont gradués en mètres. En haut est représentée la carte du logarithme décimal de la densité massique, elle-même exprimée en kg/m^3 . En bas la carte de la température en K.

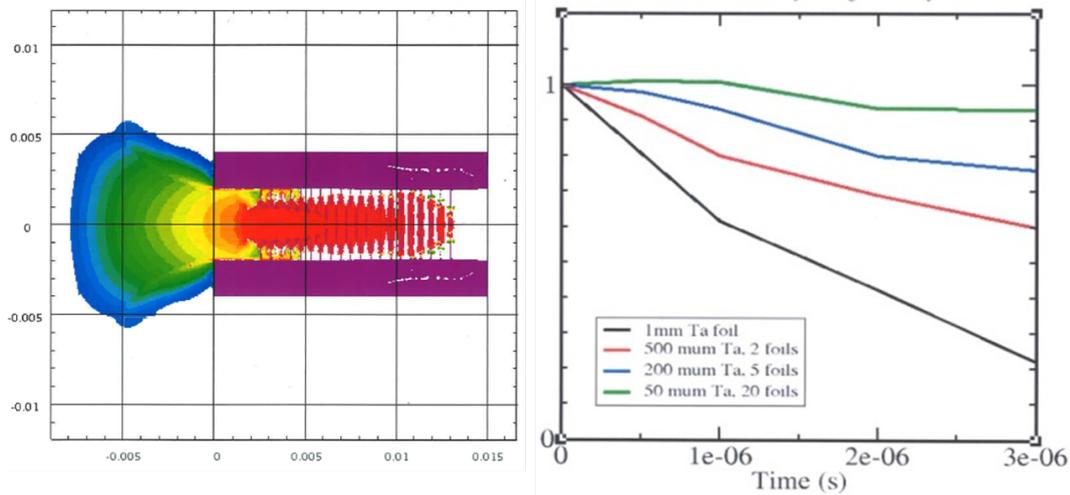


FIGURE 4.5 – (Gauche) : idem que figure 4.4 en haut, mais pour une cible distribuée à 20 feuilles. (Droite) : évolution au cours du temps après le passage de la première impulsion d'électrons, de la quantité de matière susceptible d'interagir avec une seconde impulsion (normalisée à 1 à l'instant initial) pour des cibles avec un nombre de feuille différent mais une épaisseur totale égale.

moyenne et donc la pression moyenne après chauffage, sont réduites d'un facteur 10. La figure 4.5 à gauche montre la modélisation d'un tel assemblage, contenu dans un cylindre en tantale de 4 mm de diamètre. La même figure à droite montre l'évolution temporelle après le passage de la première impulsion d'électrons, de la quantité de matière utile de la cible par rapport à l'instant initial, pour des cibles composées de 1, 2, 5, ou 20 feuilles (l'épaisseur totale des feuilles restant 1 mm). Pour une feuille simple l'évolution montre une nette diminution due à la détente de la cible, et il reste environ 20% de matière utile après 3 μ s. La cible à 20 feuilles présente encore plus de 90% de matière au même temps. On voit donc bien grâce à ces calculs l'efficacité du concept. Mais on remarque également que la majeure partie du gain est obtenue dès le passage de 1 à 2 feuilles, ce qui présente un net intérêt en termes de fabrication des cibles. L'apport que présente cette chaîne de codes pour le dimensionnement des cibles multi-pulse est donc évident.

Des développements numériques et théoriques restent à faire, notamment le calcul de l'émission X directement en injectant la géométrie "détendue" calculée par Hésione en entrée du code Monte-Carlo. Une seconde limitation est la densité électronique, qui n'est pas traitée dans Hésione mais dont on verra dans la section suivante qu'elle est un paramètre clef pour la propagation du faisceau d'électrons. Or on sait la difficulté de calculer précisément le degré d'ionisation dans le domaine WDM. Enfin un troisième axe d'amélioration est la possibilité de décrire la matière à plus basse densité, c'est à dire la partie de la plume la plus éloignée de la cible, et la plus susceptible d'agir sur la propagation du faisceau. Il existe en fait deux limitations à la description que l'on fait de la détente de la matière à très basse densité. La première est intrinsèque à la description "fluide" de la matière, et la seconde vient du traitement numérique de l'écoulement, même lorsque la description fluide est justifiée.

La description fluide de la matière suppose qu'à l'échelle de l'écoulement hydrodynamique, la fonction de distribution des particules a le temps de relaxer vers la distribution d'équilibre maxwellienne. Cela s'exprime par une condition sur le nombre de Knudsen $K_n = l_{mfp}/L \ll 1$,

où l_{mfp} est le libre-parcours moyen relatif aux collisions responsables de la thermalisation des particules, et L une distance caractéristique de l'écoulement. Dans le cas considéré ici, on peut estimer que cette condition cesse d'être valide quand la densité particulaire devient inférieure à $\approx 10^{16} \text{ cm}^{-3}$. La description fluide ne couvre donc pas a priori toute la gamme d'intérêt, et il faudrait faire un recouvrement avec un code cinétique. La seconde limitation évoquée concerne la description numérique de la matière. Le code Monte-Carlo calcule le dépôt d'énergie du faisceau électronique dans des mailles de masse fixée. Afin de faire le lien avec le code hydrodynamique, celui-ci doit utiliser une description lagrangienne (c'est-à-dire avec des mailles de masse fixées qui sont "attachées" à l'écoulement). Mais lorsque la détente hydrodynamique se développe, on passe à une description eulérienne (c'est-à-dire que l'espace est pavé par des mailles fixes qui sont traversées par l'écoulement) afin d'éviter les problèmes de retournement de maille qui pourraient arriver en description lagrangienne 2D ou 3D. En description eulérienne, nous sommes alors confrontés à une diffusion numérique à l'interface entre la plume de matière et le vide qui l'entoure. Cette diffusion se traduit par un piédestal qui prolonge la plume dans le vide, et qui entache la prédiction de la zone très diluée de la plume. Une façon d'y remédier serait de décrire cette zone par un modèle analytique (par exemple auto-semblable isentropique), en imposant à ce modèle un bon recouvrement de profil dans la zone non perturbée par le piédestal de diffusion numérique.

Indépendamment des développements que je viens d'évoquer et qui nécessiteraient un investissement théorique conséquent, il reste à valider expérimentalement la chaîne de calcul y compris dans le domaine où elle peut s'appliquer *a priori*, ne serait-ce que pour tester le réalisme du faisceau d'électron injecté dans le code de dépôt d'énergie et plus généralement de la description utilisée. Pour ce faire, j'ai commencé à préparer une expérience de radiographie transverse et résolue en temps de la plume. Le but est de mesurer la densité massique, à comparer directement avec la simulation hydrodynamique. Dans une telle expérience, une cible est placée au foyer du faisceau FEVAIR, et une source X impulsienne annexe est déclenchée au moment choisi après l'impulsion FEVAIR pour réaliser la radiographie. D'après des simulations de détente, la gamme d'énergie de photon recherchée pour la source X annexe est de quelques dizaines de keV. Les rayons X issus d'un X-pinch[11] sont dans la gamme spectrale adéquate, et la source est naturellement impulsienne. En collaboration avec des collègues du CEA-Gramat, j'ai donc mené des expériences pour tester l'adéquation d'un X-pinch développé par cette équipe[12] comme source X annexe pour notre application[13]. Schématiquement, le X-pinch comporte un banc d'énergie haute-tension relié par un circuit de très faible inductance à une charge en court-circuit, constituée de deux fils fins croisés en "X". Le fonctionnement, schématisé figure 4.6, mène à la génération de deux rayonnements X différents : au déclenchement de la décharge du banc d'énergie, le courant intense (300 kA typiquement) circulant dans les fils croisés les fait fondre, et génère également un champ magnétique azimutal qui comprime le plasma WDM obtenu. Ce plasma devient chaud et dense et génère un rayonnement X thermique copieux. Dans la seconde phase, le pincement dû au champ magnétique est tel, qu'un gap de quelques dizaines de micromètres se forme au point de croisement des fils. Des électrons sont arrachés de la "cathode" par la différence de potentiel qui reste appliquée sur le X-pinch, et leur interaction avec "l'anode" génère un rayonnement similaire à celui d'un tube à rayons X ou au rayonnement suprathermique décrit au chapitre 2.1. Le rayonnement thermique se situe dans la gamme de quelques keV et avait déjà été très largement étudié par mes collègues de Gramat. Le suprathermique s'étend jusqu'à la valeur de la différence de potentiel appliquée au X-pinch

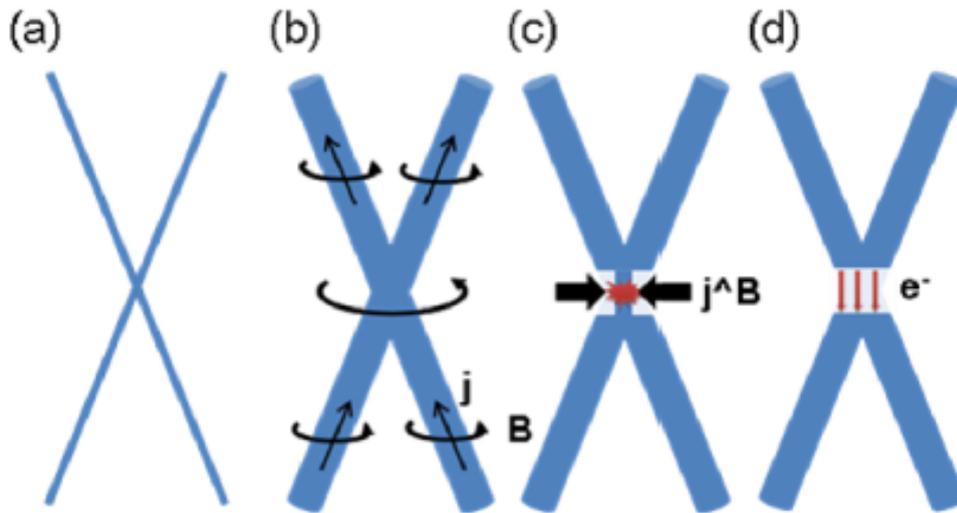


FIGURE 4.6 – Schéma du processus d'implosion d'un X-pinch. (a) Position initiale des fils, (b) Transition des fils vers un état de plasma WDM au passage du courant, (c) Compression du plasma au point de croisement des fils, qui conduit à l'émission d'une impulsion X "thermique" intense, (d) Séparation du plasma par le pincement magnétique, et formation d'un gap qui conduit à l'émission de rayonnement X "suprathermique". Figure tirée de [12].

(70 keV dans notre cas), et présente plus d'intérêt pour l'application visée. En revanche il avait été moins systématiquement étudié, c'est pourquoi une première expérience visait à caractériser la source X en termes de taille, de transmission à travers des épaisseurs de matériaux choisis (Ta, Cu, Al), et de durée d'émission X.

La figure 4.7 présente le principe des mesures de la taille de source et de la transmission à travers les échelons. La taille de source est mesurée par la méthode dite de *lame de couteau* (ou encore de *coin infiniment absorbant*). Elle est ici définie comme étant la pleine largeur à mi-hauteur de la fonction de dispersion linéique (ou LSF pour *Line Spread Function*), obtenue par dérivation des profils du signal enregistré. Le détecteur est un écran radio-luminescent à mémoire. La transmission à travers des échelons d'épaisseurs calibrées est mesurée en utilisant les mêmes détecteurs. La durée d'émission X a été mesurée par une diode de résolution temporelle de l'ordre de la nanoseconde.

Durant cette expérience, nous avons effectué des essais avec différentes charges (i.e. nature et diamètre des fils constituant le X-pinch : Cu, Mo, Ag, W, Au). Nous avons identifié la charge en or comme étant la plus prometteuse pour notre application : c'est à la fois celle pour laquelle nous avons mesuré la taille de source la plus petite (0.65 ± 0.05 mm), et qui présente une bonne capacité à différencier les épaisseurs des échelons testés. De plus son numéro atomique est élevé, ce qui assure une émission intense. Cette charge émet des rayons X sur une gamme spectrale étendue, mais avec une large proportion autour de 12 keV (raies L de Au), ce qui permet de différencier efficacement les échelons les moins absorbants.

Ainsi, la figure 4.8 montre que nous pouvons raisonnablement différencier, sur le même tir, des épaisseurs entre 2 et 120 μm de tantale (correspondant à 3.2×10^{-3} à 0.2 g/cm²). Ces densités linéiques correspondent à une partie significative de la plume d'après des simulations

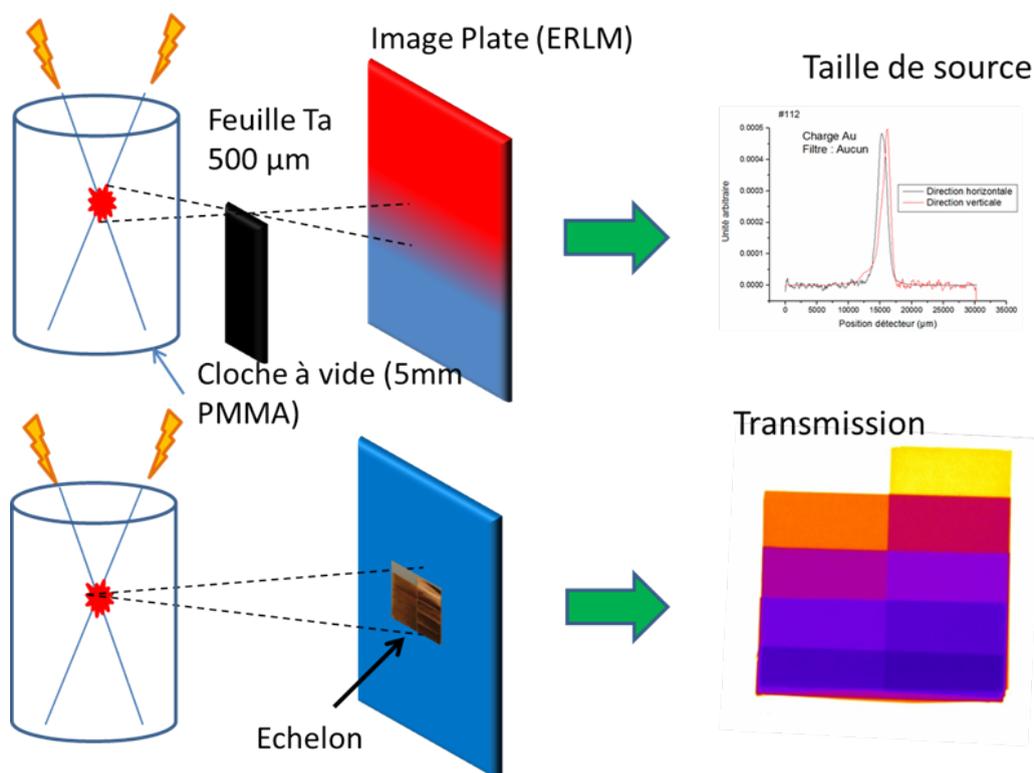


FIGURE 4.7 – Schéma de principe des expériences de caractérisation de la source X-pinch. En haut : détermination de la taille par technique de lame de couteau. En bas : détermination de la transmission à travers des échelons d'épaisseurs calibrées, liée au spectre d'émission.

hydrodynamiques faites en utilisant la chaîne de code décrite précédemment. En ce qui concerne l'aspect temporel, nous avons retrouvé le comportement habituel, à savoir des émissions brèves (quelques nanosecondes) mais répétées de façon erratique, sur une durée totale ne dépassant pas 100 ns. La gigue temporelle (*jitter*) est au maximum de quelques dizaines de nanosecondes.

La taille de la source atteint plusieurs centaines de microns, ce qui n'est pas optimum pour la résolution d'une radiographie telle qu'on la souhaite. Nous avons remarqué une corrélation entre le nombre d'émissions X brèves enregistrées par la diode et la taille de source. Il semblerait que ces comportements soient liés à l'évolution du gap qui se forme par pincement magnétique à l'endroit où les fils se croisent initialement. Cette évolution n'est pas parfaitement reproductible, et peut mener à une ou plusieurs émissions d'électrons à des endroits différents, ce qui impacte la taille apparente de la source X.

Afin de palier à cette situation, nous avons testé une géométrie de radiographie à faible grandissement, c'est à dire où l'objet à radiographier est loin de la source et proche du détecteur. Dans cette géométrie, l'influence de la taille de source sur la résolution reste limitée, et compte-tenu de la brillance de la source X, un niveau correct de signal était maintenu, en un seul tir et à une distance de 2 m. Nous avons pu observer la transition du coin infiniment absorbant avec une résolution de 180 μm, ce qui devient acceptable en regard de la taille de la plume à imager (plusieurs millimètres).

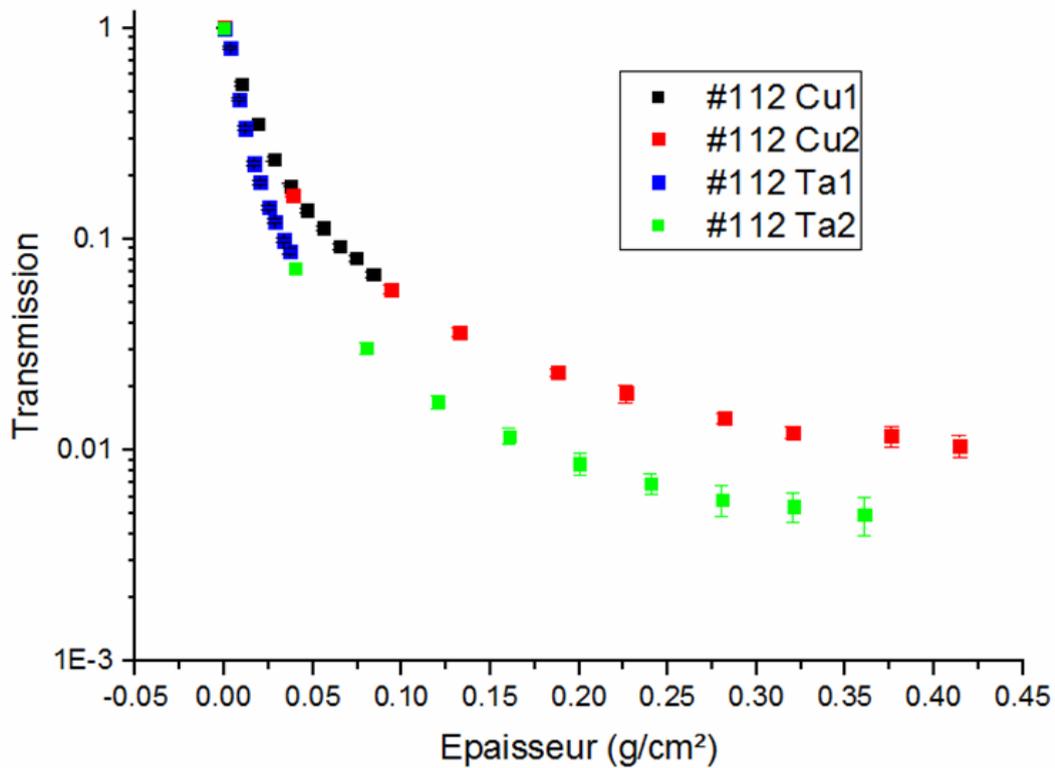


FIGURE 4.8 – Transmission mesurée d’une source X-pinch avec une charge en or, à travers des échelons de cuivre (points rouges et noirs), et de tantale (points bleus et verts) et en fonction de la densité surfacique.

En conclusion, la source X-pinch semble donc adéquate pour réaliser une radiographie transverse résolue en temps de la plume de plasma. Cette expérience permettrait une comparaison directe avec des simulations d’évolution hydrodynamique de la matière sur une échelle de temps micro-seconde, après une transition de phase solide-WDM. Au delà de la validation de la chaîne de code utilisée en vue du dimensionnement d’une cible multi-pulse, ce type d’expérience pourrait trouver des applications dans l’étude de la dynamique rapide de la matière soumise à de fortes contraintes impulsives.

4.2 Propagation du faisceau d’électrons dans un plasma

Cette section se rapporte aux travaux décrits dans la thèse de doctorat de Thomas Lahens[14].

4.2.1 Contexte et considérations théoriques

4.2.1.1 Motivation

L'interaction plasma-faisceau de particules est étudiée depuis des décennies, en particulier dans les domaines de la physique des hautes énergies[15], la fusion par confinement inertiel par ions lourds[16], l'accélération de faisceaux d'électrons par laser intense[17], et la propagation de faisceaux d'électrons très intenses[18; 19]. Les applications visées tirent en particulier profit de la capacité du plasma à compenser tout ou partie de la charge d'espace et du courant du faisceau, et ainsi permettre sa propagation et/ou sa focalisation.

Concernant les problématiques présentées en introduction de ce chapitre, il faut noter en premier lieu que la propagation du faisceau dans un nuage ionique issu de la surface de la cible n'est en soi pas très différente de sa propagation dans un plasma dont la densité électronique est inférieure à celle du faisceau. En effet dans ce cas, les électrons du faisceau chassent ceux du plasma, et on retrouve donc la situation du faisceau se propageant dans un nuage ionique. Ensuite, l'importance de l'interaction plasma-faisceau est aussi évidente dans le cadre de la situation multi-pulse, à cause de la plume de matière qui se développe. Cependant la situation est ici très complexe du fait de la variété des plasmas traversés. En plus de la très grande gamme de densité rencontrées dans la plume, le degré d'ionisation est mal connu et toutes ces quantités varient dans le temps et l'espace à cause de la détente hydrodynamique.

A l'aide d'une simulation numérique basée sur une description PIC (*Particle In Cell*), Sgro et Kwan ont décrit la propagation d'un faisceau (3.8 kA, 5.5 MeV) dans un plasma, en faisant varier la densité de celui-ci par rapport à celle du faisceau[20]. Le plasma est supposé complètement ionisé et les collisions sont négligées. Lorsque la densité du plasma est inférieure à celle du faisceau, celui-ci chasse les électrons du plasma et se trouve soumis au champs des ions résiduels. Lorsque la densité du plasma est bien supérieure à celle du faisceau, celui-ci se propage de façon balistique (les champs électromagnétiques sont quasi annulés), et une instabilité à deux faisceaux se développe après ~ 5 cm de propagation. Dans une configuration multipulse, il semblerait donc que la zone la plus dense de la plume, de taille centimétrique, ne soit pas vraiment problématique vis à vis de la propagation. En revanche, une zone de plus faible densité existe probablement sur des dizaines de centimètres en amont de la cible¹. Ce *halo* représente la queue de la plume hydrodynamique, ainsi que le résidu du nuage d'impuretés désorbées lors du passage de la première impulsion électronique. Dans la réalité le halo n'est pas forcément intégralement ionisé. Cependant la prise en compte de l'ionisation est limitée dans un code PIC à un temps simulé très court ou bien une très basse densité, car le nombre de particule à traiter peut croître énormément. Une des façons de contourner le problème est de recourir à une méthode hybride qui traite le plasma de façon fluide et le faisceau de façon PIC[19]. Cependant, à cause même de la description fluide, cette méthode est réservée aux densités relativement élevées, correspondant typiquement à 10^{17} atomes par centimètre cube.

Finalement, la propagation d'un faisceau d'électron typique d'un accélérateur à induction dans un plasma de densité voisine à celle du faisceau manque cruellement de données expérimentales pour étayer les quelques études numériques existantes ou en motiver de nouvelles. Ainsi j'ai démarré un projet visant à terme à fournir ces données, dans des conditions de plasma bien définies.

1. Ou bien entre la cible de conversion et la barrière ionique, le cas échéant.

4.2.1.2 Effets de neutralisation du plasma

On distingue deux mécanismes principaux de réponse des électrons du plasma au passage du faisceau. Le premier est la neutralisation de la charge électrique de celui-ci : le plasma écran le champ électrique du faisceau sur une longueur de Debye. Le second est la neutralisation en courant : le champ magnétique généré par le faisceau induit un courant dans le plasma, appelé *courant de retour*. Il est porté par les électrons du plasma qui sont accélérés dans le sens contraire à ceux de faisceau. On peut évaluer grossièrement ces effets dans le cadre de l'équation d'enveloppe[21], qui présente l'avantage d'être analytique donc "lisible" par rapport aux simulations PIC, et très rapide à résoudre donc propice à la réalisation d'études paramétriques. Elle décrit l'évolution du rayon d'un faisceau de symétrie cylindrique, stationnaire et paraxial, le long de sa direction de propagation. Elle fait notamment intervenir un terme (appelé terme de *pervéance*) qui représente la divergence pilotée par les champs auto-générés du faisceau (champ électrique radial généré par la charge d'espace du faisceau, champ magnétique azimutal généré par son courant). Le champ électrique est défocalisant, tandis que le champ magnétique est focalisant. La somme des deux s'annule presque, à un facteur $1/\gamma^2$ près (γ le facteur relativiste), et est globalement défocalisante. γ étant de l'ordre de 10 pour un faisceau de 5 MeV, la résultante ne représente que 1% de chaque force. On comprend donc que la modification, même faible, de l'une ou l'autre des forces peut avoir un effet important sur la résultante et donc la propagation du faisceau.

L'effet d'un plasma homogène de densité n_p , sur un faisceau dont on suppose la densité électronique n_b uniforme à l'intérieur de son rayon d'enveloppe R , est représenté en introduisant dans l'équation d'enveloppe des facteurs de neutralisation électrique et magnétique. Un facteur 1 signifie que la force correspondante est totalement annulée, un facteur 0 signifie aucune neutralisation (cas du vide). J'ai modélisé cet effet dans l'équation d'enveloppe en adoptant une expression classique pour le facteur de neutralisation électrique ($f_e = n_p/n_b$), mais en établissant une expression pour le facteur magnétique² qui prend en compte le fait que seule une partie du courant de retour est contenue dans le volume du faisceau pour deux raisons :

- Dans un plasma, les discontinuités de champ magnétique et de courant sont "lissées" sur une épaisseur de peau magnétique c/ω_p (ω_p la fréquence plasma électronique) et le courant de retour est donc induit dans un rayon plus large que le rayon du faisceau.
- Si le plasma a une conductivité finie, le courant diffuse au cours du temps dans le plasma (diffusion résistive).

La figure 4.9 illustre l'effet de neutralisation d'un plasma de densité 10^{13} cm^{-3} sur la propagation d'un faisceau (20 MeV, 2 kA). La résistivité du plasma est calculée par un modèle de Drude dans lequel j'ai fixé la fréquence de collisions à 0.1 GHz qui est l'ordre de grandeur de la fréquence de collisions électron-ion de Spitzer[21], pour un plasma d'hydrogène à cette densité et de température électronique 1 eV. L'évolution du rayon d'enveloppe du faisceau est représentée au cours de sa propagation dans le plasma, à différents instants entre lesquels la diffusion résistive opère. Lorsque le faisceau pénètre dans le plasma, sa densité est bien inférieure à celle du plasma ($n_b = 4 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$). La charge est complètement neutralisée, et le courant presque complètement. Au fur et à mesure que la taille du faisceau diminue, sa densité augmente pour atteindre $n_b \approx 1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$ au foyer, c'est à dire celle du plasma. La neutralisation est donc presque complète à la fois en charge et en courant sur toute l'étendue du

2. ($f_m = I_{p,R}/I_b$), où I_b représente le courant du faisceau et $I_{p,R}$ la partie du courant de retour dans le plasma qui est contenue dans le volume du faisceau.

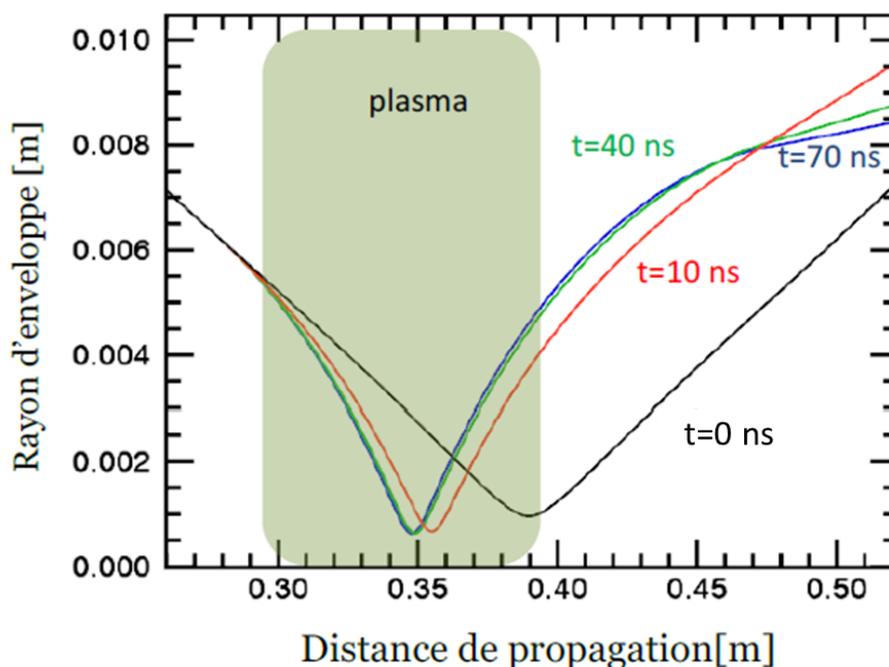


FIGURE 4.9 – Évolution du rayon d'enveloppe d'un faisceau (20 MeV, 2 kA, émittance géométrique 100 mm.mrad) au cours de sa propagation dans un plasma de densité 10^{13} cm^{-3} , à différents instants entre lesquels la diffusion résistive opère. Le plasma est présent sur une longueur de 10 cm (zone verte) précédant la position du foyer sans diffusion résistive qui correspond à $t = 0 \text{ ns}$ (Courbe noire).

plasma, et on ne voit pas d'effet très fort sur la focalisation. En revanche, lorsque la diffusion résistive du courant de retour a le temps d'opérer, la neutralisation magnétique diminue et on observe une sur-focalisation du faisceau, qui a pour conséquence de diminuer la taille du foyer mais également de le déplacer de quelques centimètres.

En faisant varier les caractéristiques du plasma dans le modèle d'équation d'enveloppe, on peut dégager les conclusions suivantes :

- La diffusion résistive est négligeable pour un plasma de densité inférieure à celle du faisceau, puisque aucun courant de retour ne peut être porté dans le volume du faisceau. En effet, le faisceau a chassé tous les électrons du plasma de ce volume.
- L'effet de focalisation du plasma dépend bien sûr de la densité plasma, et de sa longueur dans la direction de propagation du faisceau. En pratique, un déplacement significatif du foyer est attendu au bout de quelques dizaines de centimètres dans un plasma de densité 10^{10} cm^{-3} , et de quelques centimètres dans un plasma de densité 10^{13} cm^{-3} ou plus.

En ce qui concerne nos problématiques, cette étude confirme que l'effet de neutralisation du plasma pris individuellement ne semble pas poser de problème quand il s'exerce dans la plume représentée figure 4.4, qui a une extension inférieure au centimètre. En revanche, il peut être important dans le halo si celui-ci s'étend sur une grande distance. En ce qui concerne le dimensionnement d'une lentille plasma, il ressort qu'un plasma de basse densité et de quelques dizaines de centimètre de long semble être un bon compromis, dans la mesure où il serait stable

vis à vis de l'instabilité à deux faisceau, et affranchi de diffusion résistive. Il va sans dire que pour qu'une telle lentille soit optimale, il faudrait que la densité du plasma ne change pas significativement pendant la durée de l'impulsion. Ceci implique en particulier que dans l'hypothèse où le plasma ne serait pas complètement ionisé, son ionisation additionnelle par le faisceau soit négligeable.

4.2.1.3 Estimation de l'ionisation additionnelle du plasma par le faisceau.

On peut estimer le taux d'ionisation "directe" (*i.e.* par les électrons du faisceau) d'atomes de petit numéro atomique grâce aux sections efficaces d'ionisation en couches internes σ_{ion} données par la formule de Bethe relativiste[22]. En revanche, pour les atomes de numéro atomique plus élevé, l'ionisation se fait surtout à partir des couches externes et fait aussi intervenir l'effet Auger. L'augmentation de la densité électronique qui en résulte peut alors être bien plus grande[23] et plus difficile à estimer. Pour ces raisons, nous avons choisi d'utiliser de l'hélium dans l'expérience décrite plus loin. Pour des électrons d'énergie comprise entre 1 et 20 MeV, la section efficace d'ionisation en couche K de l'hélium σ_{ion} est de l'ordre de 10^{-19} cm². Le taux d'ionisation (défini ici comme le nombre moyen d'ionisation par seconde et par atome) est donné par le produit $\sigma_{ion} \cdot n_b \cdot \beta \cdot c$. La densité d'électrons du faisceau n_b varie typiquement entre 10^{11} cm⁻³ (pour un diamètre 1 cm) et 10^{13} cm⁻³ (diamètre 1 mm). En conséquence, le taux d'ionisation varie entre 300 et 30000 s⁻¹. Pendant la durée d'une impulsion de 60 ns, la probabilité pour un atome d'être ionisé est donc de l'ordre de 10^{-5} à 10^{-3} . Par conséquent, il faut que le degré d'ionisation du plasma dans lequel se propage le faisceau soit supérieur à ces valeurs (qui dépendent du diamètre du faisceau) pour négliger le processus d'ionisation directe.

Une deuxième voie d'ionisation ("indirecte") est possible, via les électrons du plasma qui portent le courant de retour. En effet, les sections efficaces d'ionisation par un électron sont maximales quand son énergie est proche de 100 eV, où elles sont de l'ordre de 10^{-16} cm². A cette énergie, $\beta = 0,02$ donc le produit $\sigma_{ion} \cdot \beta \cdot c$ est de l'ordre de 6×10^{-8} cm³/s. Le taux d'ionisation est obtenu en multipliant ce nombre par la densité électronique du courant de retour dans le plasma, qui est une fraction de la densité du plasma n_p . La condition pour laquelle on peut négliger l'ionisation indirecte ne dépend donc pas du diamètre du faisceau, mais de la densité dans laquelle il se propage. Par exemple, dans un plasma de densité 10^{11} cm⁻³, la probabilité pour un atome d'être ionisé de façon indirecte pendant la durée de l'impulsion électronique est $\sim 10^{-4}$. Pour négliger l'évolution de la densité électronique due à ce processus d'ionisation, il faut donc que le degré d'ionisation du plasma soit bien supérieur à $\sim 10^{-4}$. Dans un plasma de densité 10^{13} cm⁻³, la probabilité devient de l'ordre du pourcent, et il faut que le plasma soit presque entièrement ionisé pour négliger ce processus.

4.2.2 Expérience

Compte-tenu des considérations du paragraphe précédent, il ressort que les plasmas de basse densité (autour de 10^{11} cm⁻³) présentent des conditions d'étude pertinentes, à la fois en ce qui concerne la propagation de multi-impulsions dans le halo de grande dimension, et l'utilisation

d'une lentille plasma. L'objectif de placer une cellule contenant le plasma dans le trajet du faisceau relativiste très intense est en soi assez ambitieux et n'a jamais été réalisé. J'ai donc choisi d'alléger les difficultés expérimentales autant que possible pour démarrer cette activité. Une décharge luminescente[24] permet d'obtenir facilement un plasma de grande dimension³, de géométrie cylindrique adaptée au passage du faisceau, et sur de longues durées. En revanche, les décharges luminescentes sont limitées aux basses densités électroniques ($\lesssim 10^{10} \text{ cm}^{-3}$) et un degré d'ionisation faible ($\lesssim 10^{-4}$). Par conséquent, elles se situent *a priori* en dehors des conditions estimées dans le paragraphe précédent pour fournir un plasma insensible à l'ionisation par le faisceau, du moins quand celui-ci est focalisé pour atteindre une taille millimétrique. J'ai tout de même adopté ce moyen de générer le plasma pour deux raisons :

- Puisque la décharge luminescente est continue, elle peut servir de point de départ pour obtenir un plasma plus ionisé, par exemple à l'aide d'un système de chauffage impulsif beaucoup plus puissant.
- Le halo basse densité situé loin devant le convertisseur n'est lui-même pas forcément très ionisé quelques microsecondes après l'impulsion qui lui a donné naissance. Un plasma de décharge luminescente serait donc assez représentatif du milieu dans lequel doit se propager le faisceau, et étudier cette propagation constitue déjà une première expérience intéressante. De plus, si le faisceau est injecté de telle façon que sa taille dans le plasma reste de l'ordre du centimètre, on s'attend à pouvoir négliger l'ionisation additionnelle d'après l'estimation faite ci-dessus.

Dans la suite, je vais exposer le travail fait pour générer et caractériser une décharge luminescente, ainsi que sur les deux points que je viens d'énoncer.

4.2.2.1 Génération et caractérisation du plasma

Nous avons construit dans un premier temps une cellule permettant de générer une décharge plasma luminescente sur un banc d'expérience séparé de la machine FEVAIR. Les électrodes en cuivre sont cylindriques, ce qui permet à la fois de laisser l'axe de la décharge libre pour le passage du faisceau, et qui est aussi une configuration géométrique favorable pour obtenir une décharge à partir d'une faible densité de neutres, par effet de cathode creuse[24]. Nous avons utilisé de l'hélium pour générer la décharge. En plus de sa physique atomique simple évoquée ci-dessus, il permet d'éviter les voies d'ionisations moléculaires et ainsi de simplifier la description du plasma lors de l'interprétation des expériences.

La loi de Pashen[25], dont l'allure est donnée figure 4.10, décrit la tension minimale à appliquer entre les électrodes de la cellule pour allumer une décharge auto-entretenu par les mécanismes d'ionisation au sein du gaz et d'émission secondaire par bombardement ionique à la cathode. Cette tension s'exprime en fonction du produit $P.d$, où P est la pression de gaz et d la distance entre les électrodes, et dépend évidemment de la nature du gaz ainsi que de celle des électrodes (matériau, mais aussi propreté). Nous avons cherché à créer la décharge à partir d'une pression de gaz la plus basse possible en prévision de minimiser la densité d'atomes dans le plasma et donc la probabilité d'ionisation due au faisceau, une fois la cellule placée dans l'accélérateur. Cela signifie que nous nous sommes placés sur la partie à gauche du minimum de la loi de Pashen sur la figure 4.10, mais étions limité par la tension maximale de notre alimentation (5 kV). En

3. Par "grande dimension", j'entends non seulement la longueur suivant la direction de propagation, mais aussi le diamètre qui doit être supérieur à celui du faisceau, lui-même centimétrique.

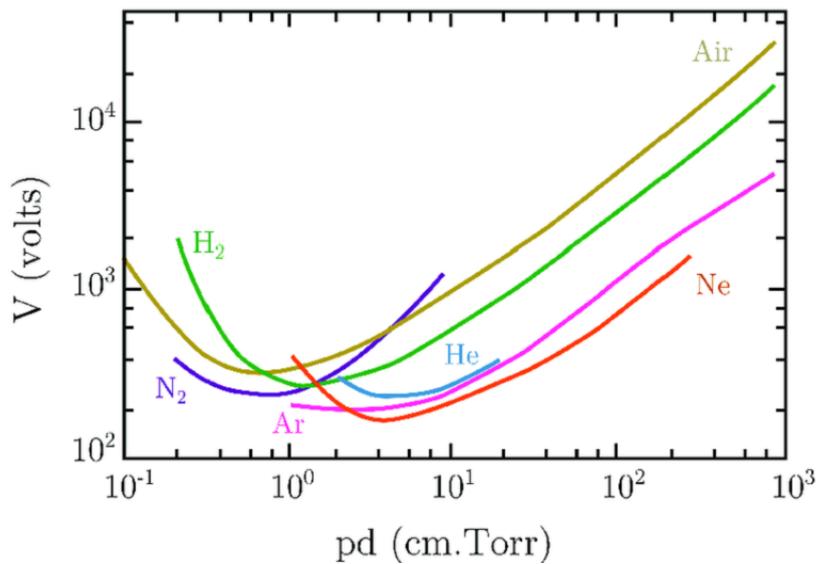


FIGURE 4.10 – Courbes de Paschen pour différents gaz[25]. P est la pression de gaz et d la distance entre les électrodes (1 Torr = 1 mmHg = 1.33 mbar).

pratique nous avons réalisé une décharges de ≈ 50 cm pour une pression d'hélium minimale de 10^{-2} mbar, soit un produit $P.d \approx 0.4$ cm.Torr.

Nous avons estimé la densité électronique par trois diagnostics indépendants : (i) une sonde de Langmuir réalisée sur place, dont on extrait aussi une estimation de l'énergie moyenne (température) des électrons mais qui présente l'inconvénient d'être intrusive pour le plasma ; (ii) un diagnostic capacitif que nous avons imaginé pour l'occasion et dont le principe repose sur la mesure de l'impédance, grâce à un analyseur de réseau vectoriel, d'une capacité dont l'élément diélectrique est le plasma. Ce diagnostic n'est pas intrusif et fourni aussi une estimation de la conductivité du plasma, mais il mesure des grandeurs intégrées sur toute une section de la décharge. (iii) Un interféromètre micro-onde à 26.5 GHz du commerce⁴, qui mesure la densité électronique intégrée sur un diamètre, et possède une résolution temporelle de quelques microsecondes. Les diagnostics sont en accord relativement bon (facteur ~ 4), sachant que les écarts sont cohérents avec le type de mesure effectuée : la densité électronique sur l'axe donnée par la sonde de Langmuir est supérieure à la densité moyenne sur un diamètre (interféromètre), elle-même supérieure à la moyenne sur une section (diagnostic capacitif). Finalement, la densité électronique atteinte varie entre 10^9 et 10^{10} cm^{-3} , pour des courants de décharge dans la gamme 10 – 100 mA. Compte-tenu de la pression de gaz utilisée, cela correspond à un degré d'ionisation de l'ordre de 10^{-5} . Ces valeurs sont assez conformes à ce que l'on attendait, et comme expliqué précédemment nous avons poursuivi le travail, d'une part en développant un système de chauffage additionnel à la décharge, et d'autre part en concevant un système de décharge luminescente qui peut recevoir le faisceau FEVAIR.

4. Miwitron MWI 2650

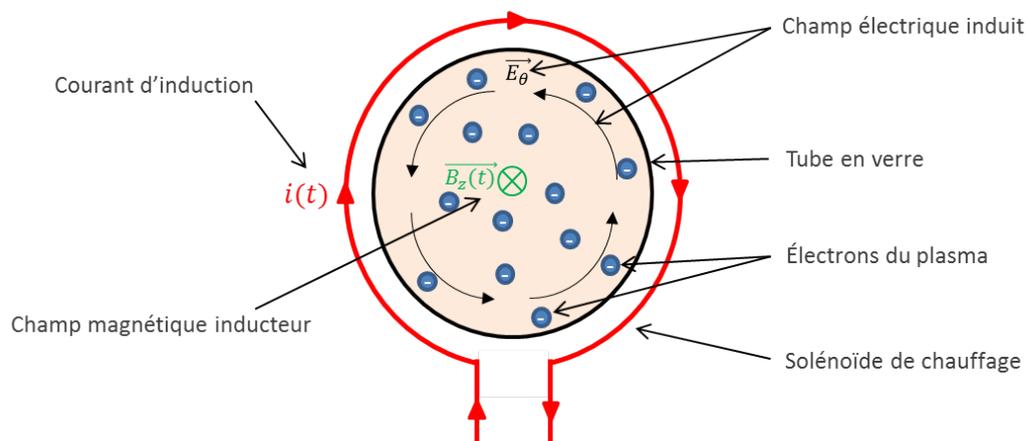


FIGURE 4.11 – Schéma de principe de chauffage inductif, vu dans un plan de section du plasma. Un courant électrique intense circulant dans un solénoïde induit un courant image dans le plasma et le chauffe par effet Joule.

4.2.2.2 Système de chauffage inductif pour la décharge lumineuse

Afin d'augmenter le degré d'ionisation dans le plasma, nous avons réalisé un système inductif impulsif destiné à chauffer la décharge lumineuse continue. Un système inductif est adapté à la géométrie cylindrique de notre plasma, et capable *a priori* de chauffer un volume important. Le principe en est schématisé figure 4.11 : un courant alternatif circule dans un solénoïde qui entoure le plasma à chauffer, et induit un champ électrique azimuthal, provoquant *in fine* un chauffage ohmique.

En géométrie cylindrique, le champ électrique azimuthal peut s'exprimer en tout point du plasma de façon analytique en fonction des conditions aux limites appliquées à l'extérieur[24]. À partir de la conductivité mesurée par le diagnostic capacitif évoqué précédemment, nous avons pu ainsi estimer la puissance de chauffage par effet Joule. Elle est de l'ordre de 100 W dans notre plasma en faisant circuler un courant de ≈ 1 kA, 1 MHz dans un solénoïde de quelques spires[14]. Cette puissance est supérieure d'un ordre de grandeur au moins à celle associée au courant de décharge. De plus, elle devrait croître avec la conductivité du plasma au fur et à mesure de l'ionisation additionnelle, et ainsi produire une croissance exponentielle de la densité. Afin de générer le courant alternatif fort, nous avons réalisé un circuit oscillant RLC dont l'inductance est constituée par le solénoïde d'induction. La capacité du circuit est un banc d'énergie haute tension (10 – 20 kV) qui avait été développé dans le passé au laboratoire et que nous avons adapté à notre besoin. Au final, notre système est capable de générer un courant pseudo-sinusoidal d'amplitude maximale ≈ 1 kA, pseudo-fréquence 1.2 MHz et constante de temps d'amortissement 1.8 μ s.

Nous avons mesuré la densité électronique atteinte avec le circuit de chauffage en utilisant le seul de nos diagnostics possédant une résolution temporelle, l'interféromètre micro-onde. Nous avons également placé une sonde de courant pour mesurer le courant de chauffage, et une photodiode pour enregistrer le flux lumineux émis. Ce dernier est lié au produit $n_e T_e$ du plasma. La figure 4.12 représente des signaux typiques relevés par ces trois diagnostics. La courbe rouge

représente le courant traversant le solénoïde de chauffage, avec les caractéristiques données précédemment. La courbe verte représente le signal issu de la photo-diode. On voit que le flux lumineux reçu par la photodiode croît considérablement sous l'influence des oscillations de courant, puis décroît avec une constante de temps similaire à celle du courant induit. L'intensité lumineuse émise par le plasma est maximale après quelques périodes d'oscillations du courant. Au tout début de la décharge, elle est sous le seuil de détection du diagnostic. En dilatant l'échelle temporelle, on remarque qu'elle varie à une fréquence double de celle du courant d'excitation, comme du reste doit le faire la puissance Joule, proportionnelle au carré du champs induit. La photo-diode indique donc le chauffage du plasma, qui se traduit par une augmentation de sa densité électronique, comme indiqué par la mesure de l'interféromètre (courbe bleue). Cependant celle-ci devient tellement grande qu'elle entraîne un déphasage supérieur à 2π , ce qui correspond pour 4 cm de plasma traversé, à une densité moyenne de $5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-3}$. L'augmentation de densité est trop rapide pour être résolue, mais on voit plusieurs sauts de 2π lors de sa diminution, convolués à la résolution de quelques microsecondes de l'interféromètre. On peut donc en tirer deux conclusions : (i) notre système de chauffage est très efficace puisque la densité électronique augmente de trois ordres de grandeur au moins ; (ii) d'un point de vue opérationnel, on pourrait choisir la densité voulue pour réaliser l'interaction en déclenchant l'arrivée du faisceau d'électron à un instant choisi pendant la décroissance, à condition toutefois que le processus soit reproductible. En pratique, nous avons vérifié que la densité maximale obtenue augmente avec la pression de gaz dans la décharge luminescente, avec le courant de décharge et avec le courant de chauffage. En revanche, nous avons constaté un manque de reproductibilité de l'efficacité du chauffage, que nous pouvons attribuer au manque de reproductibilité de la décharge luminescente elle-même.

En conclusion sur ce travail, nous pouvons dire que le principe a été démontré, mais que le système manque de maturité actuellement pour pouvoir être implanté sur faisceau. Les pistes de travail pour le fiabiliser sont d'une part d'augmenter la reproductibilité de la décharge luminescente de départ en travaillant notamment sur les électrodes de la décharge et la propreté du montage. D'autre part, on peut profiter de la marge considérable en énergie dans le circuit de chauffage pour modifier celui-ci et tenter d'obtenir un chauffage moins sensible aux conditions initiales du plasma.

4.2.2.3 Propagation du faisceau d'électrons dans la décharge luminescente

Comme je l'ai déjà évoqué, étudier la propagation d'un faisceau d'électrons de machine de radiographie dans un plasma de décharge luminescente est déjà intéressant en soi. De plus cela représente un certain nombre de défis expérimentaux, et j'ai dimensionné une cellule plasma à partir de celle du banc de test pour pouvoir la tester sur faisceau aussitôt que possible. En plus des fonctions de la cellule "de test", celle "pour faisceau" doit permettre le passage du faisceau à travers des fenêtres étanches qui séparent le vide de l'accélérateur du volume de plasma, et permettre le passage de tout ou partie du courant de retour porté par le plasma. La figure 4.13 présente un schéma de principe ainsi qu'une photographie de la cellule réalisée. Les fenêtres étanches sont en mylar ($6.5 \mu\text{m}$) recouvert de 50 nm d'aluminium sur une face.

Le dispositif est en fait constitué de deux parties : la partie externe est composée d'un tube de même diamètre que celui de l'accélérateur. La partie interne se glisse dedans et porte le tube

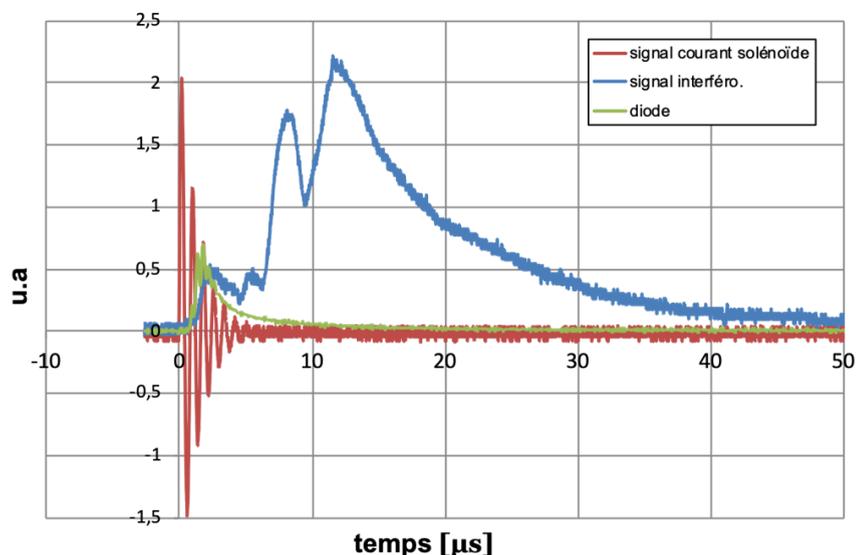


FIGURE 4.12 – Signaux de mesures typiques relevés pendant le chauffage inductif d'une décharge lumineuse d'hélium. Conditions : $P = 5 \times 10^{-2}$ mbar, tension de charge du système de chauffage 10 kV et courant initial dans la décharge lumineuse $I_p = 5$ mA.

en verre dans lequel la décharge est générée. Sur la partie externe, un hublot en verre permet l'observation de la lumière émise lors du passage du faisceau. Nous avons observé la lumière émise par le tube en verre contenant le plasma ainsi que par la fenêtre de sortie (émission Cherenkov). Quatre sondes *B-dots* permettent de suivre l'évolution temporelle du courant net (courant faisceau plus courant de retour) à différentes positions de la propagation. Chaque sonde mesure en fait la dérivée temporelle de champ magnétique en un point situé sur la surface intérieure du tube de l'accélérateur. Il faut donc procéder à une intégration numérique du signal pour connaître le champ magnétique azimutal à ce point, qui est lié au courant net dans le tube. Finalement, deux boucles de Rogowsky en entrée et sortie de cellule complètent les mesures de courant.

Pour des raisons d'occupation de la machine, nous avons réalisé pour le moment une seule session d'expérience sur ce sujet[8], qui a bénéficié de sept jours de faisceau. Comme lors de l'expérience précédente, le courant faisceau au plateau était de 1.8 kA et son énergie 3.4 MeV. Le schéma d'implantation est représenté figure 4.14. Le gaz utilisé était de l'hélium, et la longueur totale de propagation était fixée à 46 cm. Pour des raisons d'encombrement, l'émission Cherenkov de la fenêtre de sortie est observée après réflexion sur un miroir inséré dans la partie externe, et nous avons vérifié que celui-ci n'a pas de contribution mesurable sur la lumière observée. Les détecteurs de lumière sont deux caméras intensifiées (ICCD) dont le temps d'acquisition était réglé à 3 ns. Des images étaient prises au début du plateau de courant de l'impulsion électronique, et au milieu.

Nous avons d'abord qualifié le faisceau dans la partie externe de la cellule en imageant son profil à l'aide d'un radiateur Cherenkov positionné successivement à trois positions, correspondant aux fenêtres d'entrée et sortie de la partie interne, plus une position intermédiaire⁵. Le rayon

5. On suppose que l'image Cherenkov reflète bien celle du faisceau, ce qui est admis en général tant que le

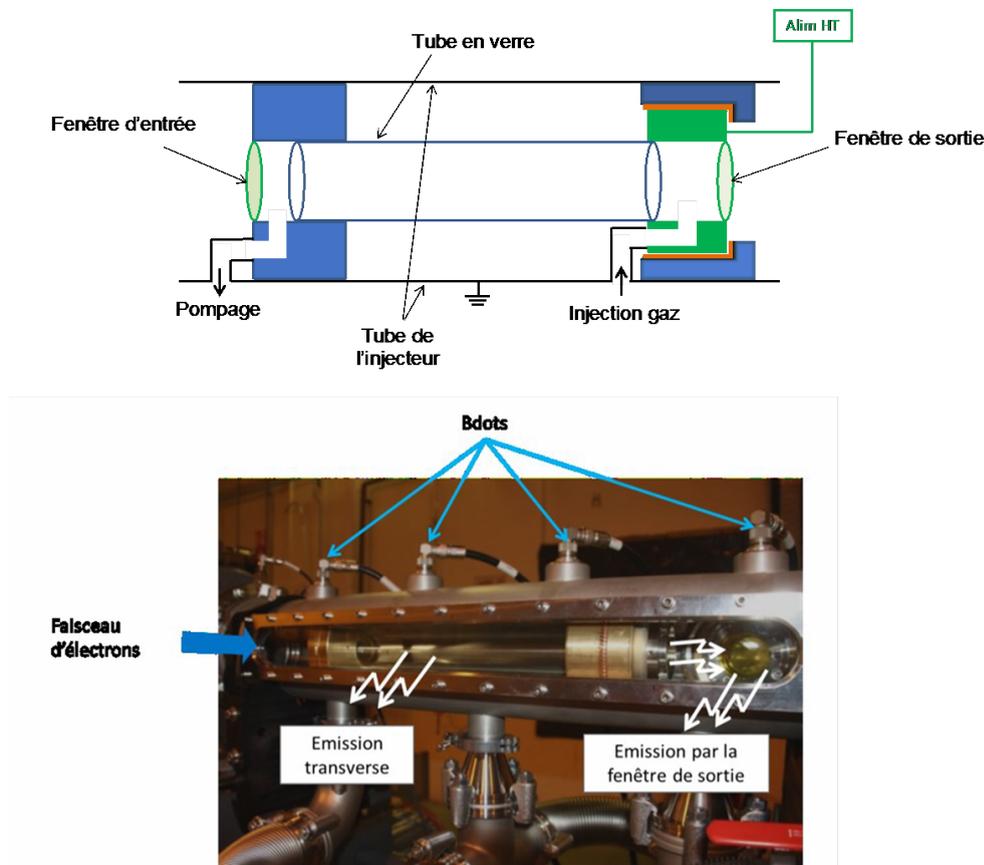


FIGURE 4.13 – (En haut) Schéma de principe de la cellule plasma. Les fenêtres permettent le passage du faisceau, et l'isolant mince (orange) permet de maintenir la tension nécessaire pour produire la décharge lumineuse. Le passage du courant de retour est permis par claquage à travers un gap étroit entre les pièces verte et bleue. (En bas) Photographie de la cellule plasma réalisée.

d'enveloppe, défini comme étant le double du rayon RMS du faisceau, reste dans l'intervalle $\approx 13 - 16$ mm dans toute la cellule. Un foyer peu marqué se situe à mi-chemin entre le centre de la partie interne et la fenêtre de sortie.

Dans un second temps, nous avons observé l'influence de la fenêtre d'entrée seule sur le faisceau. Comme attendu, elle a un léger effet focalisant dû à sa surface conductrice reliée à la masse, qui tend à annuler le champ électrique radial répulsif du faisceau[26]. En dépit de sa finesse, la fenêtre provoque forcément une légère diffusion angulaire. Néanmoins, on ne constate pas d'autre effet néfaste; le faisceau reste bien circulaire et son rayon d'enveloppe est dans la gamme $\approx 10 - 16$ mm dans toute la zone correspondant à la partie interne de la cellule. Au niveau de la fenêtre de sortie, il est de 13 mm

En revanche, la partie interne de la cellule même maintenue sous vide, altère la propagation du faisceau : par rapport au cas précédent où seule la fenêtre d'entrée était présente, le rayon d'enveloppe du faisceau mesuré à la fenêtre de sortie est plus petit au début du plateau de courant (10 mm), mais plus gros (17 mm) au milieu de celui-ci. Les images de la lumière transverse

faisceau n'est pas "trop" focalisé comme c'est le cas ici.

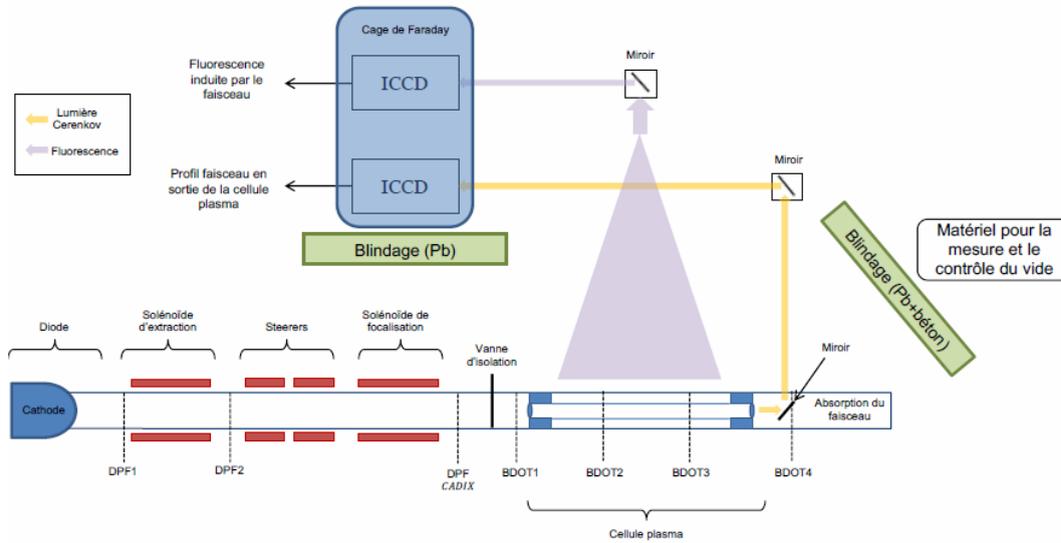


FIGURE 4.14 – Représentation schématique de l'expérience de propagation.

indiquent quant à elles que des électrons de la périphérie du faisceau impactent le tube en verre sur ≈ 10 cm avant la fin de celui-ci. Les diagnostics de courant apportent des informations complémentaires. La figure 4.15 à gauche montre les signaux des B-dots, ainsi que le profil de courant en amont de la cellule ("DPF Cadix"). Lorsque seule la fenêtre d'entrée est présente, toutes les B-dots sont identiques. Avec la partie interne complète de la cellule, les B-dots 1 et 2 ne sont pas changées, mais les 3 et 4 indiquent que le courant ne se propage pas intégralement jusqu'au bout de la cellule, dès le début de l'impulsion. De plus, à partir du milieu de l'impulsion environ, le faisceau est suffisamment perturbé pour qu'une fraction importante ne soit pas vue par la B-dot 4. Au même moment, les signaux bruts (figure 4.15 à droite) montrent des oscillations à 0.4 GHz, dont l'origine n'est pas clairement identifiée pour l'instant; il pourrait s'agir d'une onde électromagnétique voyageant dans la cavité formée par le tube accélérateur et les 2 extrémités conductrices de la partie interne de la cellule, et excitée par un claquage de surface sur le tube en verre qui s'est chargé suite aux impacts électroniques. Cette onde pourrait se coupler au faisceau et être responsable de la forte perturbation de celui-ci.

La figure 4.16 montre le faisceau à la fenêtre de sortie après propagation dans de l'hélium à différentes pressions, au début et au milieu du plateau de courant, et sans allumer la décharge luminescente. Les images montrent que le gaz a un effet sur la propagation du faisceau d'électrons, même à la pression de remplissage de quelques 10^{-2} mbar qui correspond à la pression la plus basse pour laquelle on avait pu allumer une décharge luminescente sur le banc de test. Au début de l'impulsion cet effet se traduit par une diminution de la taille observée du faisceau d'autant plus que la pression de gaz augmente. A 0.6 mbar une instabilité se développe et le faisceau filamente. Après quelques dizaines de nanosecondes la filamentation du faisceau est observée pour des pressions inférieures. L'expérience montre donc clairement l'effet du gaz sur la propagation, par l'intermédiaire du plasma issu de l'ionisation par le faisceau, et ce dès le début du plateau de courant. On peut estimer la densité atteinte par ionisation directe de l'hélium par la méthode expliquée précédemment. Par exemple, à la pression de 5×10^{-2} mbar, la densité atomique du gaz est de l'ordre de 10^{15} cm^{-3} . La densité de notre faisceau est de l'ordre de

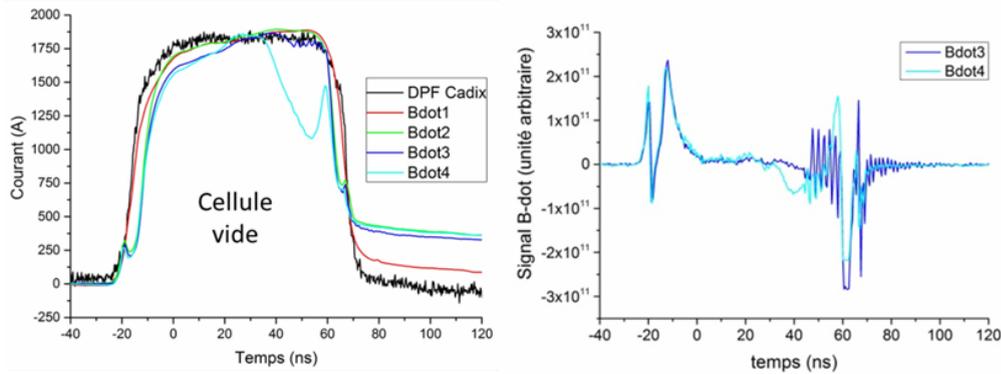


FIGURE 4.15 – (Gauche) Courant net calculé à partir des signaux des sondes B-dots, dans le cas de la cellule plasma vide. Le non-retour à 0 après l'impulsion est dû à une saturation négative des signaux pendant le flanc descendant du faisceau qui ne nuit pas à la validité des signaux pendant le plateau. (Droite) Signaux avant intégration numérique des B-dots numéro 3 et 4. La position des B-dots est schématisée figure 4.14. Les signaux ont été recalés temporellement pour compenser les délais de propagation du faisceau entre les différentes positions des diagnostics.

10^{11} cm^{-3} , et la probabilité d'ionisation directe en 5 ns, de l'ordre de 2×10^{-6} . Au début du plateau de courant, on s'attend donc à générer un plasma de densité $\approx 2 \times 10^9 \text{ cm}^{-3}$. L'ionisation indirecte est environ un ordre de grandeur plus faible, et on peut la négliger. A cette densité de plasma, notre modèle d'équation d'enveloppe prévoit une diminution de 8% du rayon d'enveloppe au niveau de la fenêtre de sortie, par rapport à la propagation sous vide. En comparaison, l'observation à 5 ns montre un rayon d'enveloppe de 7.3 mm pour une pression d'hélium de $5.2 \times 10^{-2} \text{ mbar}$, soit une diminution de l'ordre de 30% par rapport à la propagation sous vide (10 mm). Le désaccord avec le calcul d'enveloppe peut provenir du traitement nécessairement simpliste qui est fait dans ce modèle, comme l'hypothèse de la densité constante du plasma dans l'espace. En réalité, le taux d'ionisation augmente avec la densité du faisceau. Il est donc d'autant plus élevé que le faisceau est plus étroit, ce qui favorise sa focalisation.

Compte-tenu du temps imparti pour l'expérience, nous n'avons pu faire qu'un seul essai avec la décharge plasma, pour une pression initiale de gaz égale à $5 \times 10^{-2} \text{ mbar}$ et une densité électronique dans la décharge de l'ordre de 10^9 cm^{-3} . Nous n'avons pas noté de différence par rapport à un tir à la même pression de gaz mais sans décharge lumineuse, ce qui confirme l'estimation faite ci-dessus, à savoir que l'ionisation du gaz seul mène à une densité supérieure à 10^9 cm^{-3} .

En conclusion, cette première expérience a permis de tester notre design de cellule plasma, des diagnostics, et plus généralement la faisabilité de l'étude. Dans la configuration testée, nous avons observé l'impact des électrons périphériques du faisceau sur le tube en verre associé à une perturbation de sa propagation, ainsi que le déclenchement d'une instabilité. Malgré cela, nous avons pu montrer que l'ionisation des neutres a un effet notable pour une pression qui correspond à quelques 10^{15} atomes par centimètre cube. Ceci souligne la nécessité de maîtriser le halo basse densité issu de la cible de conversion pour une application de radiographie multipulse, par exemple en limitant son extension spatiale le long de l'axe de propagation.

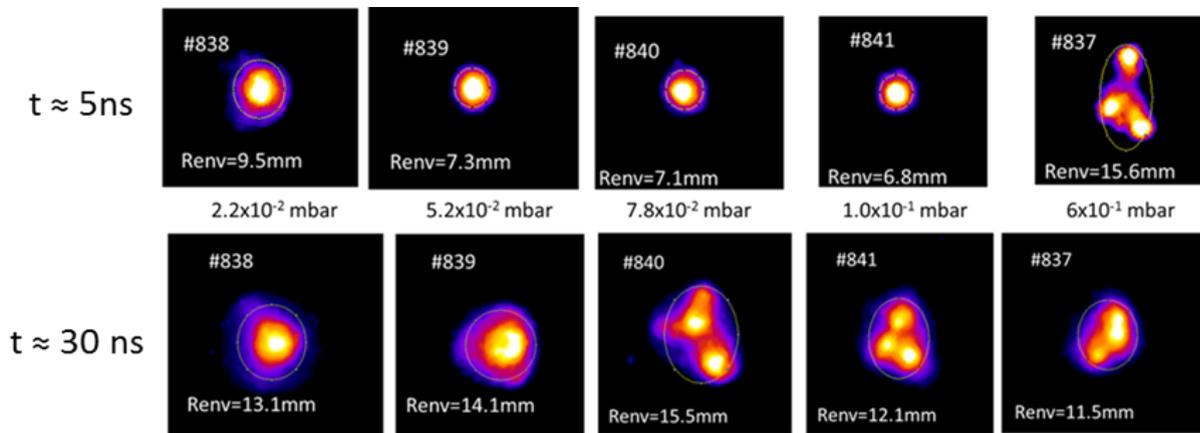


FIGURE 4.16 – Émission lumineuse de la fenêtre de sortie après propagation du faisceau dans de l'hélium pour les pressions indiquées. Les images du haut sont prises au début du plateau de l'impulsion électronique (5 ns) et celle du bas à son milieu (30 ns). Le rayon R_{env} indiqué est le rayon d'enveloppe, égal au double du rayon RMS.

4.2.3 Perspectives

L'expérience que je viens de décrire a été riche en enseignements. Elle a motivé la réalisation de simulations PIC/Monte-Carlo par mon collègue Rémi Maisonnny du CEA-Gramat. Celles-ci traitent à la fois les champs électromagnétiques et les collisions binaires de façon détaillée, par opposition aux simulations PIC-hybrides évoquées plus tôt. Ceci n'est rendu possible que par l'utilisation d'un gaz monoatomique à basse pression ($< 10^{-1}$ mbar), couplée à une parallélisation massive des calculs. Ce travail vient de démarrer, mais les premiers résultats montrent l'interception par le tube en verre d'un certain nombre d'électrons périphériques, ainsi qu'une sur-focalisation du faisceau par le gaz. En revanche ils ne reproduisent pas l'évolution "catastrophique" sur le courant transmis et accompagné d'une instabilité que nous avons observé même sous vide. Concernant ce point, j'envisage une nouvelle expérience pour comprendre le rôle inattendu de la partie interne de la cellule. Cette expérience consistera essentiellement à comparer des situations avec ou sans tube en verre, de longueur différente, et pouvant induire un claquage ou pas (tube conducteur ou diélectrique).

En ce qui concerne le but initial de l'expérience, qui est d'étudier la propagation du faisceau dans un plasma préformé de basse densité, il ressort de ces premiers essais qu'il faut impérativement augmenter le degré d'ionisation initial du plasma. Néanmoins, comme l'ionisation du gaz se fait déjà sentir sur cette longueur de propagation, il faut diminuer la pression du gaz et/ou la longueur de la cellule. Typiquement, le plasma souhaité aurait $\approx 10 - 20$ cm de long, une densité électronique $\geq 10^{10}$ cm $^{-3}$, mais pour une pression de gaz $\leq 10^{-2}$ mbar. Ceci implique de diminuer le produit pression-distance de la loi de Paschen, et rend la décharge lumineuse plus difficile à initier. Nous pourrions utiliser un système de chauffage inductif, mais celui-ci doit pour l'instant obligatoirement partir d'un plasma précurseur. Il conviendra donc de réussir à générer ce plasma, soit en optimisant notre décharge lumineuse (électrodes, alimentation haute tension), soit en utilisant un autre moyen d'ionisation.

4.3 Conclusion sur le chapitre 4

On a pu voir au cours de ce chapitre plusieurs aspects liés à l'excitation intense de la matière par un faisceau d'électrons relativistes de fort courant. Dans le contexte de la radiographie éclair, l'interaction avec le convertisseur porte celui-ci dans des conditions WDM, et a des répercussions à la fois sur le faisceau proprement dit et la source X, aux échelles de temps nanoseconde (émission d'ions) et microseconde (détente hydrodynamique). A coté de cet aspect opérationnel, l'interaction entre un faisceau relativiste de radiographie éclair et la matière, que celle-ci soit sous forme condensée ou très diluée, présente un réel intérêt académique.

Le faisceau d'électrons est capable de chauffer un solide jusqu'au domaine WDM dans un volume millimétrique (donc bien plus important que les lasers), tout en le laissant accessible à des fins de diagnostics (par rapport à l'enclume de confinement d'un fil explosé). En dépit du fait que l'énergie est déposée sur plusieurs dizaines de nanosecondes, le chauffage est isochore pour la très grande majorité d'un échantillon d'épaisseur millimétrique. Néanmoins une détente se produit à la surface, empêchant l'utilisation de diagnostics optiques. La technique reste tout de même intéressante si on la couple à des systèmes de diagnostics pénétrants (rayonnement X par exemple).

De plus, une des particularité d'un faisceau d'électrons par rapport à un faisceau laser, est l'importance de l'effet d'un gaz même très dilué sur sa propagation. Ceci nous impose de considérer une gamme de densité électronique qui s'étend sur une dizaine d'ordres de grandeur, jusque à des valeurs où un traitement hydrodynamique ne s'applique plus, et nous permet également d'envisager des systèmes focalisants très efficaces à base de lentille plasma.

Des études théoriques et expérimentales ont démarré afin de traiter certains de ces aspects. En particulier l'expérience de propagation rapportée ici montre déjà clairement l'importance de limiter à quelques centimètres l'extension du halo de vapeur issu de la cible de conversion pour une chaîne de radiographie multipulse, ce qui pourrait être réalisé par une feuille mince qui jouerait également le rôle de barrière ionique. D'autre part l'expérience de radiographie transverse de la plume de détente en utilisant la source annexe X-Pinch présente un réel intérêt pour valider la chaîne de simulation mise en place pour concevoir des cibles multipulses.

En ce qui concerne la propagation du faisceau dans un plasma dilué, le travail expérimental démarré a établi les bases à partir desquelles on peut chercher à générer un plasma présentant à la fois la gamme de densité électronique adéquate ($\geq 10^{10} \text{ cm}^{-3}$) et un degré d'ionisation élevé ($\geq 10^{-3}$). De plus, des mécanismes imprévus ont été mis en évidence lors de notre expérience de propagation, qui pourraient être dus à une instabilité issue du couplage entre le faisceau et un mode de la cavité formée par la cellule expérimentale. L'interprétation des expériences devrait grandement profiter de la description de l'interaction par une méthode complètement cinétique PIC/Monte-Carlo à 2 ou 3 dimensions, qui devient possible grâce aux calculateurs hautes performances.

Références du chapitre 4

- [1] N. C. CHRISTOFILOS, R. E. HESTER, W. A. S. LAMB, D. D. REAGAN, W. A. SHERWOOD et R. E. WRIGHT : High current Linear Induction Accelerator for electrons. *Review of Scientific Instruments*, 35(7):886–890, 1964.
- [2] C. EKDAHL : Modern electron accelerators for radiography. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 30(1): 254–261, Feb 2002.
- [3] J. E. COLEMAN et J. COLGAN : Collisional heating and adiabatic expansion of warm dense matter with intense relativistic electrons. *Phys. Rev. E*, 96:013208, Jul 2017.
- [4] T. J. T. KWAN, C. M. SNELL et P. J. CHRISTENSON : Electron beam–target interaction and spot size stabilization in flash X-ray radiography. *Physics of Plasmas*, 7(5):2215–2223, 2000.
- [5] C. VERMARE, H. A. DAVIS, D. C. MOIR et T. P. HUGHES : Ion emission from solid surfaces induced by intense electron beam impact. *Physics of Plasmas*, 10(1):277–284, 2003.
- [6] A. COMPANT LA FONTAINE : Ion emission at the target of the radiographic devices PIVAIR and AIRIX. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 40(6):1712–1732, Mar 2007.
- [7] Y.-J. CHEN, G. J. CAPORASO et A. PAUL : Controlling backstreaming ions from X-ray converter targets with time varying final focusing solenoidal lens and beam energy variation. *In 19th International Linear Accelerator Conference*, 8 1998.
- [8] C. FOURMENT : Premières expériences d’interaction faisceau-cible sur l’installation FEVAIR. Rapport technique, CEA CESTA, 2019.
- [9] A. V. BUSHMAN, I. V. LOMONOSOV et V. E. FORTOV : Models of wide-range equations of state for matter under conditions of high energy density. *Sov. Tech. Rev. B : Therm. Phys.*, 5:1, 1993.
- [10] P. A. PINCOSY, N. BACK, P. M. BERGSTROM, Yu-Jiuan CHEN et P. POULSEN : Multiple pulse electron beam converter design for high power radiography. *Review of Scientific Instruments*, 72(6):2599–2604, 2001.
- [11] D. H. KALANTAR et D. A. HAMMER : The X-pinch as a point source of X-rays for backlighting. *Review of Scientific Instruments*, 66(1):779–781, 1995.
- [12] F. ZUCCHINI, S. N. BLAND, C. CHAUVIN, P. COMBES, D. SOL, A. LOYEN, B. ROQUES et J. GRUNENWALD : Characteristics of a molybdenum X-pinch X-ray source as a probe source for X-ray diffraction studies. *Review of Scientific Instruments*, 86(3):033507, 2015.
- [13] C. FOURMENT : Rapport préliminaire d’essais sur le X-pinch XP2 du CEA/GRAMAT. Rapport technique, CEA CESTA, 2019.
- [14] T. LAHENS : *Propagation d’un faisceau d’électrons relativistes intense de radiographie éclair dans un plasma froid*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, 2019.
- [15] J. J. SU, T. KATSOULEAS, J. M. DAWSON et R. FEDELE : Plasma lenses for focusing particle beams. *Phys. Rev. A*, 41:3321–3331, Mar 1990.
- [16] I. D. KAGANOVICH, G. SHVETS, E. STARTSEV et R. C. DAVIDSON : Nonlinear charge and current neutralization of an ion beam pulse in a pre-formed plasma. *Physics of Plasmas*, 8(9):4180–4192, 2001.
- [17] J. J. SANTOS, D. BATANI, S. D. BATON, F. N. BEG, T. CECCOTTI, A. DEBAYLE, F. DORCHIES, J.-L. FEUGEAS, C. FOURMENT et L. et al. GREMILLET : Supra-thermal electron beam stopping power and guiding in dense plasmas. *Journal of Plasma Physics*, 79(4):429–435, 2013.

-
- [18] M. C. MYERS, J. A. ANTONIADES, R. A. MEGER, D. P. MURPHY, R. F. FERNSLER et R. F. HUBBARD : Transport and centering of high current electron beams in neutral gas filled cells. *Journal of Applied Physics*, 78(6):3580–3591, 1995.
- [19] D. R. WELCH, D. V. ROSE, B. V. OLIVER, E. SCHAMILOGLU, K. HAHN et J. E. MAENCHEN : Transport of a relativistic electron beam in gas and plasma-filled focusing cells for X-ray radiography. *Physics of Plasmas*, 11(2):751–760, 2004.
- [20] A. G. SGRO et T. J. T. KWAN : Long time scale electron beam penetration of blowoff plasma in multipulse X-ray radiography. *Physics of Plasmas*, 10(3):849–854, 2003.
- [21] Jr. S. HUMPHRIES : *Charged particle beams*. Dover Publications, Inc., 2013.
- [22] C. J. POWELL, X. LLOVET et F. SALVAT : Use of the Bethe equation for inner-shell ionization by electron impact. *Journal of Applied Physics*, 119(18):184904, 2016.
- [23] Y.-K. KIM, J.P. SANTOS et F. PARENTE : Extension of the binary-encounter-dipole model to relativistic incident electrons. *Phys. Rev. A*, 62:052710, Oct 2000.
- [24] M.A. LIEBERMAN et A.J. LICHTENBERG : *Principles of plasma discharges and materials processing*. Wiley-Interscience, 2005.
- [25] Y.P. RAIZER : *Gas discharge physics*. Springer, 1991.
- [26] R. F. FERNSLER, R. F. HUBBARD et S. P. SLINKER : Foil focusing of electron beams. *Journal of Applied Physics*, 68(12):5985–5994, 1990.