



HAL
open science

Photoionisation habillée par laser pour la métrologie temporelle, à l'échelle attoseconde et femtoseconde, de sources XUV ultrabrèves générées par plasma

Laila Dakroub

► **To cite this version:**

Laila Dakroub. Photoionisation habillée par laser pour la métrologie temporelle, à l'échelle attoseconde et femtoseconde, de sources XUV ultrabrèves générées par plasma. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Université Paris-Saclay, 2023. Français. NNT : 2023UPASP069 . tel-04187432

HAL Id: tel-04187432

<https://theses.hal.science/tel-04187432v1>

Submitted on 24 Aug 2023

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.

Photoionisation habillée par laser pour la métrologie temporelle, à l'échelle attoseconde et femtoseconde, de sources XUV ultrabrèves générées par plasma

*Laser-dressed photoionization for the temporal metrology, at the
attosecond and femtosecond timescale, of ultra-short XUV sources
generated by plasma*

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n°572, Ondes et Matière (EDOM)

Spécialité de doctorat : Physique

Graduate School : Physique. Référent : Faculté des sciences d'Orsay

Thèse préparée dans l'unité de recherche **Institut des Sciences Moléculaires d'Orsay**
(Université Paris-Saclay, CNRS), sous la direction d'**Annie KLISNICK**, Directrice de
recherche

Thèse soutenue à Paris-Saclay, le 03 Juillet 2023, par

Laila DAKROUB

Composition du Jury

Membres du jury avec voix délibérative

Annette CALISTI

Directrice de recherche, CNRS,
Université d'Aix-Marseille

Présidente

Michael MEYER

Directeur de recherche, European
XFEL, Hamburg, Allemagne

Rapporteur & Examineur

Eric CONSTANT

Directeur de recherche, CNRS,
Université Claude Bernard Lyon 1

Rapporteur & Examineur

Pascal SALIÈRES

Directeur de recherche, CEA (LIDYL),
Université Paris-Saclay

Examineur

Stefan HAESSLER

Chargé de recherche, CNRS, ENSTA
Institut Polytechnique de Paris

Examineur

Titre : Photoionisation habillée par laser pour la métrologie temporelle, à l'échelle attoseconde et femtoseconde, de sources XUV ultrabrèves générées par plasma.

Mots clés : Photoionisation, spectromètre VMI, laser XUV injecté, harmoniques attoseconde sur miroir plasma, habillage infrarouge, distribution angulaire photoélectronique, polarisation.

Résumé : Cette thèse s'inscrit dans le cadre des travaux visant à caractériser temporellement des sources XUV ($\lambda=2-50$ nm) intenses, cohérentes et ultracourtes, en particulier les harmoniques d'ordre élevé générées par un miroir plasma et le laser XUV généré dans un plasma chaud et injecté par une harmonique d'ordre élevé. La génération de ces sources fait intervenir des processus physiques différents dans chaque cas, il en résulte des profils temporels d'impulsion spécifiques à chaque source, avec une durée qui couvre le domaine de la femtoseconde (10^{-15} s) jusqu'à l'attoseconde (10^{-18} s). La mesure des profils temporels correspondants permet, d'accéder à des informations fines sur la physique complexe des sources et d'interpréter de façon pertinente les expériences d'interaction des impulsions ultra-brèves XUV avec la matière. À ce jour, la connaissance de ces profils repose principalement sur des simulations numériques, les mesures expérimentales sont encore très rares, en raison du manque de diagnostic expérimental avec une résolution temporelle adaptée, ce qui fait que ces études restent toujours un défi international important. Le but de la thèse était de mettre en œuvre, pour ces deux types de sources, la technique de photoionisation habillée par laser, déjà démontrée pour d'autres sources XUV ultrabrèves, principalement les harmoniques gaz et les lasers XUV à électrons libres. La technique est basée sur la spectroscopie de photoélectrons ionisés par l'impulsion XUV à caractériser, en présence d'un champ d'habillage infrarouge. L'apparition de bandes latérales (sidebands) et la modulation du spectre de photoélectrons induite par l'interaction avec le laser d'habillage permet, dans un second temps, de remonter à la structure temporelle de l'impulsion XUV, en amplitude et/ou en intensité, au moyen d'algorithmes itératifs. Dans le cadre de cette thèse un nouveau spectromètre à électrons, de type imageur de vitesse (VMI) à configuration en lentille épaisse, a été caractérisé et optimisé. Ce

VMI a ensuite été implanté sur deux installations laser, UHI100 au LIDYL (CEA Saclay) et LASERIX à IJCLab (Orsay), pour mettre en œuvre la technique de photoionisation habillée par laser avec les harmoniques sur miroir plasma et le laser XUV injecté respectivement. Avec les deux sources, des spectres de photoélectrons résolus angulairement ont été enregistrés avec succès en mode accumulation multi-tirs aussi bien qu'en mono-tir. Pour chaque source, un montage expérimental spécifique a été conçu et mis en œuvre pour assurer le recouvrement spatial et temporel de l'impulsion XUV et de l'impulsion IR d'habillage dans la zone d'interaction du VMI, avec la précision ultime requise. Des simulations numériques de l'effet d'habillage attendu dans chaque cas ont été effectuées, à l'aide d'un code basé sur un modèle dit « SFA » (Strong Field Approximation). Dans le cas des harmoniques XUV par miroir plasma, l'asymétrie de la distribution angulaire des spectres photoélectroniques, prédites par les simulations, n'a pas pu être observée. Dans le cas du laser XUV injecté, un faible effet d'habillage (apparition de sidebands) a pu être mis en évidence. Nous discutons les points critiques qui ont pu empêcher ou gêner l'observation de l'effet d'habillage sur les spectres de photoélectrons, en particulier la présence de rayonnement incohérent de durée plus longue que la source à caractériser. Enfin nous proposons des pistes d'amélioration pour la réalisation de futures expériences. L'accès à la distribution angulaire des photoélectrons émis nous a permis de mener une étude originale sur l'effet de l'état de polarisation du laser XUV ionisant, plus particulièrement d'étudier l'influence sur cette distribution de la présence d'émission « ASE » non-polarisée qui accompagne l'harmonique amplifiée cohérente. Nous présentons une méthode expérimentale qui pourrait être utilisée pour minimiser la contribution de ce rayonnement, préjudiciable dans ce type d'expériences.

Title : Laser-dressed photoionization for the temporal metrology, at the attosecond and femtosecond timescale, of ultra-short XUV sources generated by plasma.

Keywords : Photoionization, VMI spectrometer, seeded XUV laser, attosecond harmonics from plasma mirrors, infrared laser dressing, photoelectron angular distribution, polarization.

Abstract : This thesis is a contribution to the studies aiming at the temporal characterization of intense, coherent, and ultra-short XUV sources ($\lambda=2-50$ nm), at the femtosecond (10^{-15} s) to attosecond (10^{-18} s) timescale, more specifically high-order harmonics generated from plasma mirrors, and XUV lasers generated from a hot plasma and seeded with a high-order harmonic pulse. The generation of each of these sources involves different physical processes, resulting in distinct specific pulse temporal profiles. The characterization of these temporal profiles provides refined information about the complex physics underlying the source generation, while being essential for interpreting in a relevant way experiments of interaction of these ultra-short XUV pulses with matter. To date however, the knowledge on these temporal profiles is mainly based on numerical simulations, since experimental measurements are still scarce, due to the lack of diagnostic tools with adequate temporal resolution. Hence, the development of such reliable, robust temporal diagnostics remains an important international challenge. The objective of this thesis was to implement for these two types of sources, the laser-dressed photoionization technique, already demonstrated with other ultra-short XUV sources, notably high-order harmonics from gas, and XUV free-electron lasers. The technique is based on the spectroscopy of photoelectrons ionized by the XUV pulse to be characterized, in the presence of an infrared laser dressing field. The appearance of sidebands and the modulation of the photoelectron spectrum induced by the interaction with the dressing laser allow, in a second step, to retrieve the temporal structure of the XUV pulse, in amplitude and/or intensity, using iterative algorithms. In this thesis, a new velocity-map imaging (VMI) spectrometer, with a thick lens configuration, was characterized and optimized.

The spectrometer was then implemented at two laser facilities, UHI100 at LIDYL (CEA Saclay) and LASERIX at IJCLab (Orsay), where the laser-dressed photoionization technique was applied to plasma mirror harmonics and seeded XUV laser, respectively. For both sources, angularly-resolved photoelectron spectra were successfully recorded in both multi-shot and single-shot modes. For each source, a specific experimental setup was designed and implemented to ensure that the XUV pulse and the IR dressing pulse overlap temporally and spatially in the VMI interaction zone, with the required ultimate accuracy. Numerical simulations, using a code based on a "SFA" (Strong Field Approximation) model, were carried out to predict the effect of the dressing field for each source. In the case of XUV harmonics from plasma mirrors, the predicted asymmetry of the photoelectron angular distribution could not be demonstrated. In the case of the seeded XUV laser, a weak effect of the dressing laser (appearance of sidebands) was observed. We discuss the critical points that may have prevented or hindered the observation of a dressing effect on the photoelectron spectra, in particular the contribution of incoherent radiation with a duration longer than the source to be characterized. Finally, we suggest several improvements for future experiments. The measurement of the photoelectron angular distribution with the VMI spectrometer allowed us to investigate the effect of the state of polarization of the ionizing XUV laser, more specifically the influence of unpolarized "ASE" emission that accompanies the coherent amplified harmonics pulse. We propose an experimental method that could be used to minimize the contribution of this unwanted radiation, which plays a detrimental role in this type of experiment.

Remerciements

Je tiens à exprimer ma sincère appréciation envers tous ceux qui ont contribué d'une manière significative à la réalisation de cette thèse. Leur appui, leur encouragement et leur aide ont joué un rôle crucial tout au long de ce parcours académique exigeant.

Mes premiers remerciements vont à Michael Meyer et Eric Constant d'avoir accepté d'être rapporteurs à mon jury de thèse. Merci également à Annette Calisti, Pascal Salières et Stefan Haessler d'avoir accepté de faire partie de mon jury. Merci à tous pour vos retours très positifs, vos précieux commentaires et vos remarques constructives qui ont grandement enrichi ce travail.

Je remercie tout particulièrement Annie Klisnick, ma directrice de thèse. Merci pour m'avoir accueilli dans ton équipe et avoir dirigé cette thèse. Par ton esprit critique, ta pédagogie et tes remarques, tu m'as fait apprendre une autre façon de voir les choses. Le travail avec toi était vraiment exceptionnel et inoubliable.

Ce travail n'aurait en effet pu arriver à son terme sans la lourde intervention de Denis Cubaynes qui, pendant toutes mes années d'études doctorales, m'a toujours apporté ses judicieuses remarques. Merci Denis pour ta disponibilité et ta présence jusqu'à la dernière ligne droite ! Nos discussions et tes délicieux chocolats pendant les soirées dans les salles de manip restent toujours des beaux souvenirs.

Cette thèse a émergé d'une série de collaborations étroites et abondantes, Je ne pourrai jamais assez remercier tous les personnels dans les différents laboratoires. En premier, l'équipe de Fabien Quéré (du LIDYL, CEA-Saclay). Merci infiniment à Fabien, Cédric Bomme et Ludovic Chopineau. J'en profite pour remercier également Charles Bourassin-Bouchet (de LCF, IOGS). Merci Charles pour ta grande organisation, ta souplesse et le temps que tu as accordé pour me faire apprendre les codes Matlab et répondre à mes questions. Un grand merci à Gustavo Garcia (du Synchrotron Soleil) avec qui, la collaboration était autant enrichissante qu'agréable. Merci Gustavo pour tes suggestions, tes conseils et tes aides dans la réalisation et l'optimisation du VMI. Dans le cadre de plusieurs campagnes d'expériences, j'ai également pu travailler sur l'installation LASERIX (IJC-Lab à Orsay). Merci beaucoup à Olivier Guilbaud, Moana Pittman, Elsa Baynard, Julien Demailly, Sophie Kazamias, et Alok Kumar Pandey, C'était un vrai plaisir de travailler ensemble. Olivier, merci pour ta motivation, ta disponibilité, tes conseils et ta bonne humeur durant toutes ces années d'études.

J'ai eu aussi l'occasion d'interagir avec de nombreuses personnes qui m'ont permis d'avancer dans la compréhension des résultats, et je remercie donc : Laurent Nahon (du Synchrotron Soleil) et à Olivier Peyrusse (du PIIM de l'université Aix-Marseille). Je remercie également Lionel Poisson (de l'ISMO) pour son aide lors de l'optimisation du VMI et l'analyse des données ainsi que les échanges fructueux que nous avons eus ! un pensé particulier à notre collaborateur Jorge J. Rocca (Advanced Beam Laboratory, Colorado State University, USA).

Au sein du laboratoire, j'aimerais exprimer ma gratitude envers tous les personnels des services mécanique et électronique, en particulier Jérôme Guigand et Christophe Charrière. C'est grâce à eux que la réalisation du spectromètre VMI a été rendue possible. Un grand merci à l'ensemble des membres de l'équipe DIRAM, Danielle Dowek, Ségolène Diehl-Guilbaud, Raluca Cireasa, Lou Barreau, Lionel Poisson, Eric Charron et Fabien Gatti. Merci à vous tous pour les discussions et les remarques appréciables durant les réunions d'équipe. Mes remerciements vont également à Tatiana Sinyakova, qui a été présente à mes côtés au début de ce projet. Merci à tous les doctorants, les chercheurs post-doctoraux ainsi que les stagiaires qui ont intégré notre équipe, apportant ainsi une valeur ajoutée à la période que j'ai passée au laboratoire : Jennifer Joseph, Sirine Amri, Samrit Mainali, et les chers futurs docteurs : Annie Pichery, Lei Shi et Jean Nicolas Vigneau ; roller coaster guys !

Dans la douce mélodie de la connaissance, une note profonde résonne en l'honneur du regretté Osman Atabek. Ses idées intemporelles et sa passion pour la découverte continueront de guider les doctorants dans le monde de la recherche. Il restera à jamais présent dans mes pensées.

Merci à mes amis en France et au Liban pour leur soutien lors de ces mémorables années de thèse. Merci du fond du cœur à tous les membres de la famille El-Harake à Marseille pour avoir rendu cette aventure académique possible et m'avoir accompagné tout au long de ce voyage. Mes sousous, Ammo Hassan, je vous aime si fort !

Je voudrais adresser un très grand merci à ma famille, ma mère, mon père et mes deux frères qui ont toujours cru en moi et qui m'ont soutenu dans mes objectifs et dans ce défi que je me suis fixé. Je vous remercie pour tout l'amour et le soutien indéfectible que vous m'avez toujours donnés. Je serai toujours fière d'avoir des parents comme vous, avec toutes les valeurs humaines que vous avez, parce que finalement c'est ça qui compte et c'est ça qui reste. Vous méritez une reconnaissance incommensurable. Je vous aime tous !

Enfin (le meilleur pour la fin comme on dit), mille mercis à mon Hassan. Tu m'as poussé à aller de l'avant, et c'est grâce à toi que je peux donner le meilleur de moi-même. Toujours soutenu, écouté et accompagné. Thank you for the love, joy and the mercy you bring to my heart.

À ma petite Sama

« Le manque de définition est plutôt une perfection qu'un défaut, parce qu'il ne vient pas de leur obscurité, mais au contraire de leur extrême évidence »

Blaise Pascal

Table des matières

TABLE DES MATIERES	VIII
INTRODUCTION.....	XII
I. DE LA GENERATION A LA CARACTERISATION TEMPORELLE DES SOURCES XUV ULTRA-BREVES.....	17
I. Sources XUV ultra-intenses fournissant des impulsions courtes	17
I.1. Les lasers X/XUV à électrons libres	18
I.2. Génération des harmoniques d'ordre élevé d'un laser	19
I.2.1. Harmoniques d'ordre élevé générées dans les gaz rares	19
I.2.2. Harmoniques d'ordre élevé générées par miroir plasma	21
I.2.2.1. Principe de génération de la source ; notion de miroir plasma	21
I.2.2.2. Mécanismes de génération CWE et ROM	23
I.3. Les lasers XUV générés dans les plasmas	24
I.3.1. Pompage des inversions de population dans un plasma	25
I.3.2. Différents types de lasers XUV collisionnels	26
I.3.2.1. Pompage par décharge électrique dans un capillaire	26
I.3.2.2. Pompage dans un plasma-laser en régime quasi-stationnaire (QSS)	27
I.3.2.3. Pompage par ionisation en champ laser intense dans un gaz (OFI)	27
I.3.2.4. Pompage dans un plasma-laser en régime transitoire (TCE)	27
I.3.2.5. Les lasers XUV transitoire fonctionnant en mode injecté	29
II. Métrologie temporelle des sources XUV ultrabrèves	32
II.1. Etat de l'art des techniques de caractérisation temporelle des sources XUV ultrabrèves	33
II.1.1. Caméras streak à balayage de fente	33
II.1.2. Autocorrélation XUV- ionisation à deux photons	34
II.1.3. Corrélation croisée : photoionisation en présence d'un champ d'habillage	34
II.1.4. Autres techniques de corrélation croisée	35
II.2. Bases théoriques de la photoionisation habillée par laser	36
II.2.1. Interprétation semi-classique	36
II.2.2. Description quantique de l'habillage	37
II.2.2.1. Photoionisation avec l'impulsion XUV seule	37
II.2.2.2. Modèle SFA en présence du champ laser	38
II.2.2.3. Régimes du processus de photoionisation habillée par laser	39
II.2.2.4. Régime des sidebands	40
III. Distribution angulaire de photoélectrons	43
III.1. Cas d'un rayonnement polarisé linéairement	44
III.2. Cas d'un rayonnement non polarisé	45
II. CONCEPTION ET CARACTERISATION D'UN SPECTROMETRE IMAGEUR DE VECTEUR VITESSE.....	47
I. Introduction	47
II. Principe de fonctionnement du spectromètre VMI	50
II.1. Les lentilles électrostatiques présentes	51
II.2. Choix de la gamme d'énergie de détection maximale	53
II.3. Inversion d'Abel	54
II.4. Principe de pBASEX	57

III. Description du spectromètre VMI construit à l'ISMO	58
III.1. La lentille électrostatique	59
III.2. Blindage magnétique	60
III.3. Système de détection	60
III.3.1. L'emploi d'un pulseur pour moduler le gain de la galette MCP	62
III.4. Système d'injection du gaz cible	63
III.5. Pompage et de l'enceinte à vide	65
IV. Imagerie et polarité des électrodes.....	66
IV.1. Imagerie des ions	66
IV.1.1. Imagerie spatiale des ions	67
IV.1.1.1. <i>Mesure de la taille du jet de gaz et du faisceau ionisant</i>	72
IV.1.2. Imagerie des vitesses des ions	74
IV.1.2.1. <i>Comparaison entre l'aiguille et la vanne pulsée</i>	75
IV.2. Imagerie des vitesses des électrons	77
V. Calibration en énergie du spectromètre VMI	78
V.1. Calibration en énergie par des simulations SIMION	79
V.1.1. Pour une tension de répulsion (Vrépulseur) donnée	79
V.1.2. Pour une énergie cinétique donnée	80
V.2. Mesure expérimentale de la constante de calibration C	81
VI. Etude de la résolution en énergie du spectromètre VMI	84
VI.1. Effet de la dimension de la source	84
VI.1.1. Variation de la longueur de la source	85
VI.1.2. Variation du rayon de la source	86
VI.2. Effet de la position de la source	88
VI.3. Effet des tensions appliquées sur V2 et V4	90
VI.4. Effet de la tension appliquée sur l'aiguille	92
VI.5. Effet de la résolution spatiale de la galette de microcanaux (MCP)	93
VII. Conclusion.....	94
III. APPLICATION DE LA PHOTOIONISATION HABILLEE PAR LASER A LA CARACTERISATION TEMPORELLE DES HARMONIQUES GENEREES SUR UNE CIBLE SOLIDE.	96
I. Introduction	96
II. Simulations numériques des spectres des photoélectrons en présence d'habillage	96
II.1. Paramètres de simulations	97
II.2. Résultats des simulations numériques : asymétrie angulaire	98
III. Mise en œuvre expérimentale.....	103
III.1. Le laser UHI100	104
III.2. Description du dispositif expérimental	104
III.2.1. Génération d'une pré-impulsion IR	106
III.2.2. Choix du filtre aluminium	106
III.2.3. Choix du miroir elliptique pour la focalisation des faisceaux dans le VMI	107
III.3. Contrôle des impulsions XUV et IR dans le VMI	108
III.3.1. Superposition spatiale et synchronisation temporelle des faisceaux XUV et IR	108
III.3.2. Contrôle de l'intensité du faisceau d'habillage	110
IV. Résultats expérimentaux.....	110
IV.1. Impulsion XUV seule	111

IV.1.1.	Identification des ordres harmoniques présents	111
IV.1.2.	Inversion des images brutes	113
IV.1.3.	Fluctuations tir à tir de la source XUV	115
IV.1.4.	Passage d'un MCP à 2 MCP	117
IV.2.	Photoionisation en présence du champ d'habillage IR	117
V.	Discussion des résultats expérimentaux	119
V.1.	Analyse critique des conditions essentielles pour les impulsions XUV et IR	119
V.2.	Distorsions du chemin optique et synchronisation temporelle	120
V.3.	Emission thermique du plasma	123
V.3.1.	Emission thermique du plasma : simulation numérique	125
V.3.2.	Transmission de la ligne de transport des photons XUV vers le VMI	126
VI.	Conclusion	128
IV.	VERS LA CARACTERISATION TEMPORELLE DU LASER XUV INJECTE PAR LA TECHNIQUE DE PHOTOIONISATION HABILLEE PAR LASER.	131
I.	Introduction	131
II.	Simulations numériques des spectres des photoélectrons en présence d'habillage	131
II.1.	Paramètres d'entrée des simulations	132
II.2.	Balayage temporel et intensité des sidebands	133
II.3.	Corrélation croisée et impulsion XUV	136
III.	Mise en œuvre expérimentale	138
III.1.	Laser pilote de la station LASERIX	138
III.2.	Description du dispositif expérimental	138
III.3.	Ligne de transport et de contrôle du faisceau d'habillage infrarouge	140
III.4.	Contrôle des impulsions XUV et IR dans le VMI	141
III.4.1.	Superposition spatiale et synchronisation temporelle des faisceaux XUV et IR	141
III.4.2.	Contrôle de l'intensité du faisceau d'habillage dans la zone de recouvrement	142
IV.	Résultats expérimentaux	145
IV.1.	Photoionisation avec l'impulsion XUV seule	145
IV.2.	Photoionisation en présence du champ d'habillage IR	146
IV.2.1.	Spectre avec habillage pour une résolution instrumentale $\Delta E/E = 8\%$	146
IV.2.2.	Retard relatif entre l'impulsion XUV injectée et le faisceau d'habillage IR dans l'expérience	147
IV.2.3.	Durée d'habillage 50 fs – Normalisation du signal	148
IV.2.4.	Durée d'habillage 900 fs - Mise en évidence de sidebands	152
IV.2.4.1.	<i>Intensité d'habillage 2,4 TW/cm²</i>	153
IV.2.4.2.	<i>Intensité d'habillage 0,5 TW/cm²</i>	156
IV.2.4.3.	<i>Effet de l'intensité d'habillage pour $\Delta t_{XUV}/I_{Rexp} = 990$ fs</i>	157
V.	Conclusion	157
V.	EFFET DE LA POLARISATION DU RAYONNEMENT IONISANT SUR LA DISTRIBUTION ANGULAIRE DES PHOTOELECTRONS. APPLICATION A L'ETUDE DE LA CONTRIBUTION DU RAYONNEMENT NON-POLARISE SUR NOS MESURES.	160
I.	Introduction	160
II.	Motivation de l'étude : contribution du rayonnement ASE et habillage	161

III. Influence de l'état de polarisation du rayonnement ionisant sur la DAP	164
III.1. Simulations numériques des spectres photoélectroniques	164
III.2. Expression analytique reliant β_{apparent} à la proportion de rayonnement non-polarisé	171
III.2.1. Cas d'une polarisation dans le plan du détecteur	171
III.2.2. Cas d'une polarisation perpendiculaire au plan du détecteur	174
III.2.3. Relation avec β_{apparent}	175
IV. Mise en œuvre expérimentale	179
IV.1. Changement de direction de la polarisation linéaire du laser XUV injecté	180
IV.2. Filtrage spatial de la contribution d'ASE dans le signal du laser XUV injecté	182
IV.3. Spectres de photoélectrons pour différents états de polarisation et mesure de β_{apparent}	183
IV.3.1. Mesure de β_{apparent} sans inversion d'Abel, transformation en coordonnées polaires	185
IV.3.2. Mesure de β_{apparent} après inversion d'Abel par le logiciel pBasex*	187
V. Comparaison des mesures de β_{app} avec le modèle analytique	189
V.1. Estimation du coefficient K à partir du profil spatial du laser XUV	189
V.2. Effet du taux de polarisation et comparaison avec le modèle analytique	190
VI. Conclusion.....	192
Conclusion et perspectives.....	194
LISTE DES REFERENCES	197

Introduction

" *J'ai vu ma mort* ". Cette célèbre citation, attribuée à la femme de Wilhelm Roentgen, marque l'histoire de la découverte des rayons X en 1895. Cette remarque saisissante témoigne de l'impact profond que la découverte des rayons X a eu sur la compréhension de la réalité invisible qui nous entoure, notamment dans les domaines de la médecine, de la physique et de la chimie. Au fil du temps, les chercheurs ont continué à explorer et à améliorer les techniques de génération de rayons X, donnant naissance à une grande diversité de sources de plus en plus brèves et intenses, notamment dans le domaine XUV (extrême ultraviolet, longueur d'onde $\lambda \sim 2\text{-}50$ nm) auquel nous nous intéressons dans cette thèse. Dans ce domaine spectral, contrairement aux rayons X évoqués au début de ce paragraphe, le rayonnement est fortement absorbé par la matière, avec des longueurs de pénétration qui sont généralement très inférieures au millimètre.

Le développement de sources pulsées et brillantes dans le domaine XUV a particulièrement bénéficié de l'essor des lasers de puissance, à partir du début des années 1980. Ainsi en 1985 a été observée aux Etats-Unis la première émission laser XUV à partir d'un plasma chaud produit par laser. Les progrès réalisés au cours des décennies suivantes ont permis d'améliorer considérablement les propriétés de ces sources, notamment grâce à leur fonctionnement en mode injecté, démontré pour la première fois en 2004. Dans la même période, une autre avancée significative dans le domaine de la génération de sources de lumière XUV extrêmement courtes et intenses revient à la génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG) d'un laser infrarouge ultrabref, focalisé dans un gaz. Observé pour la première fois en 1987 au CEA Saclay, le spectre de ces sources est constitué d'un peigne des multiples entiers et impairs de la fréquence laser originale, atteignant la région de l'extrême ultraviolet (XUV) voire au-delà. Dans le domaine temporel ces sources cohérentes à large bande spectrale permettent d'accéder au domaine de l'attoseconde (10^{-18} s), sous la forme de trains d'impulsions, voire d'une impulsion attoseconde isolée. Ces propriétés temporelles uniques ont été utilisées pour sonder les transitions électroniques rapides, les mouvements des électrons dans les atomes et les molécules, ainsi que pour observer les réarrangements moléculaires et les réactions chimiques, ouvrant le domaine de la science attoseconde. Enfin avec le développement de lasers encore plus puissants, de classe 100 TW, des avancées majeures ont pu être obtenues au début des années 2000 sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé à partir de miroirs plasma. Ces harmoniques sont produites au cours de la réflexion d'une impulsion ultra-intense avec un plasma très dense (surcritique) et de gradient très raide. Même si encore peu utilisées pour des applications, ces sources ont un grand potentiel, car elles fonctionnent également dans le domaine attoseconde, avec une efficacité de génération plus élevée que les harmoniques gaz.

En parallèle avec le développement des sources XUV générées par des lasers intenses, les sources XUV générées par rayonnement synchrotron sur des accélérateurs d'électrons ont connu également des avancées majeures. En particulier, l'extension du concept de lasers à électrons libres dans le domaine XUV, a été démontrée en 2003 sur l'installation FLASH en Allemagne. La brillance extrêmement élevée et encore inégalée de ces sources a ouvert la voie à de nouvelles études d'interaction du rayonnement XUV avec la matière dans des régimes encore inexplorés.

Grâce à la mise au point de ces différentes sources XUV, on dispose maintenant d'impulsions intenses

et ultra-brèves avec des durées couvrant la femtoseconde (10^{-15} s) jusqu'à à l'attoseconde (10^{-18} s). Afin de comprendre l'ampleur de cette avancée, il est souvent souligné que l'attoseconde, une unité de temps incroyablement courte, est à la seconde ce que la seconde est à l'âge de l'univers (environ 14 milliards d'années, soit environ 5×10^{17} secondes). C'est à cette échelle de temps que se produisent les déplacements des électrons dans les atomes et les molécules (figure 1). Les sources XUV ultrabrèves offrent alors un accès sans précédent à l'étude en temps réel des processus ultra-rapides qui régissent notre monde microscopique.

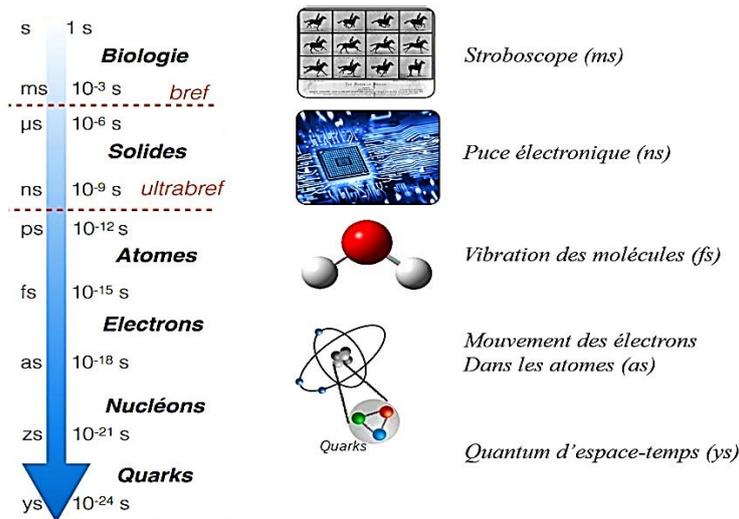


Figure 1. Evolution d'un système dynamique : différents phénomènes et temps caractéristiques associés.

Dans le développement de ces sources XUV ultrabrèves, on comprend donc que la métrologie temporelle revêt une importance cruciale. En effet, la mesure précise de la durée, voire du profil en amplitude et en phase de ces impulsions est essentielle pour de nombreuses applications. Si la métrologie temporelle des lasers XUV à électrons libres, et des harmoniques d'ordre élevé générées dans des gaz a considérablement progressé au cours des 10 à 15 dernières années, celle des harmoniques générées sur miroir plasma et des lasers XUV fonctionnant en mode injecté est comparativement beaucoup moins développée. Ainsi la connaissance du profil temporel de ces deux sources repose essentiellement sur les informations fournies par des simulations numériques. Dans cette thèse, nous avons étudié la possibilité d'appliquer à ces deux sources la technique de photoionisation habillée par laser, déjà mise en œuvre avec succès pour les lasers à électrons libres XUV et X (à l'échelle femtoseconde), et pour les harmoniques générées dans une cible gazeuse (à l'échelle attoseconde). La technique est basée sur la spectroscopie d'électrons, et utilise la modulation introduite par un champ d'habillage laser (ici infrarouge) sur le spectre des photoélectrons ionisés par l'impulsion XUV à caractériser. Une des originalités de notre étude est que nous avons fait le choix d'utiliser un spectromètre à électrons de type imagerie des vitesses (VMI) qui nous permet d'accéder à la distribution angulaire des photoélectrons émis.

Dans le chapitre I, des éléments conceptuels sur le principe de génération de différentes sources XUV mentionnées plus haut sont présentés, en se concentrant sur les harmoniques générées par miroir plasma et également les lasers XUV générés dans les plasmas. La deuxième partie du chapitre présente l'état de

l'art des différentes techniques de caractérisation temporelle utilisées jusqu'à présent pour les sources XUV ultrabrèves, en particulier celles basées sur la photoionisation en présence d'un champ d'habillage. Les principales bases théoriques de la photoionisation habillée par laser sont rappelées, utilisant une description semi-classique ou quantique. Les différents régimes de photoionisation habillée par laser utilisés pour la caractérisation temporelle des impulsions sont discutés, en particulier le régime des sidebands. Enfin, les équations décrivant la forme de la distribution angulaire du spectre de photoélectrons sont rappelées, dans le cas d'un rayonnement ionisant polarisé linéairement et celui d'un rayonnement non polarisé.

Le chapitre II présente en détail le spectromètre VMI (Velocity Map Imaging) conçu et fabriqué spécifiquement pour ce projet de thèse, ainsi que sa caractérisation. Le choix d'une configuration comportant 11 lentilles électrostatiques (dite à lentille épaisse) est expliqué ainsi que les autres paramètres en liaison avec la gamme d'énergie cinétique considérée. Nous présentons le principe du programme pBASEX que nous avons utilisé pour effectuer l'inversion d'Abel des spectres détectés. Le fonctionnement du spectromètre, dans ses différents modes (imagerie des vitesses, imagerie spatiale), est étudiée à partir de simulations utilisant le logiciel SIMION et de tests expérimentaux utilisant une source XUV continue (lampe à hélium). Enfin, nous présentons une étude de la résolution en énergie du spectromètre VMI, en discutant les facteurs principaux qui peuvent l'influencer. Cette étude de la résolution en énergie contribue à une meilleure compréhension des performances qui peuvent être atteintes et du rôle des différents paramètres pour son optimisation.

Dans le chapitre III, nous explorons l'utilisation de la technique de photoionisation habillée par laser pour la caractérisation temporelle des harmoniques générées sur un miroir plasma, à l'échelle attoseconde. L'effet du champ d'habillage sur les spectres de photoélectrons est d'abord étudié à l'aide de simulations numériques. Cet effet se traduit par une asymétrie angulaire haut-bas le long de l'axe de polarisation, qui oscille avec le retard entre l'impulsion XUV et l'impulsion d'habillage infrarouge, à l'échelle sub-cycle. Nous présentons la campagne expérimentale effectuée sur l'installation UHI100 (LIDYL, CEA Saclay) pour mettre en œuvre cette technique en tenant compte des spécificités de la source. Nous discutons les résultats obtenus, en particulier le rôle parasite de l'émission plasma sur nos mesures.

Dans le chapitre IV nous présentons l'application de la technique d'habillage de la photoionisation avec un laser infrarouge pour caractériser temporellement, à l'échelle femtoseconde, l'impulsion d'un laser XUV injecté par une harmonique d'ordre élevé. Les campagnes expérimentales ont été réalisées sur l'installation LASERIX (IJC-Lab, Orsay, Université Paris Saclay). Nous présentons d'abord les résultats de simulations numériques des spectres de photoélectrons en présence d'habillage, pour introduire le principe de la mesure par corrélation croisée par l'observation de la variation de l'intensité des sidebands avec le balayage temporel. Nous décrivons ensuite la mise en œuvre expérimentale et nous présentons les résultats expérimentaux obtenus au cours de la campagne pendant laquelle le laser XUV injecté et le faisceau d'habillage infrarouge ont pu être utilisés simultanément. Le rôle sur nos mesures de la résolution en énergie de notre spectromètre VMI, ainsi que celui de l'émission ASE du laser XUV est discuté.

Enfin, dans le chapitre V, nous présentons une étude originale de l'effet d'un mélange de rayonnement polarisé et non polarisé dans l'impulsion XUV ionisante, sur la distribution angulaire apparente du spectre des photoélectrons, telle qu'observée dans le plan du détecteur VMI. Ce cas correspond à la présence de rayonnement ASE non polarisé dans l'impulsion émise par le laser XUV injecté. La contribution du rayonnement non polarisé est d'abord illustrée à l'aide de simulations numériques, pour deux directions de polarisation du rayonnement polarisé, dans le plan du détecteur et perpendiculaire à celui-ci. Nous présentons ensuite un modèle analytique simple qui nous permet de relier le paramètre d'asymétrie apparent, mesuré sur les spectres, à la proportion de rayonnement non polarisé dans l'impulsion ionisante, pour les différents états de polarisation considérés. Les résultats obtenus sont comparés aux valeurs expérimentales mesurées sur les spectres obtenus à LASERIX, en faisant varier la direction de polarisation de l'harmonique injectée, ainsi que la proportion de rayonnement ASE envoyé dans la zone d'interaction du VMI. Nous discutons l'intérêt de notre étude comme méthode pour caractériser et contrôler la présence de rayonnement non polarisé dans une impulsion ultrabrève XUV.

La conclusion générale de ce manuscrit donne une synthèse des travaux que nous avons présentés, ainsi qu'une brève discussion de leurs perspectives. Nous résumons en particulier les principales améliorations à mettre en œuvre pour aller plus loin dans l'application de la technique de photoionisation habillée par laser aux deux sources XUV que nous avons étudiées.

Chapitre I

De la génération à la caractérisation temporelle des sources XUV ultra-brèves.

I. Sources XUV ultra-intenses fournissant des impulsions courtes

Les équations d'Einstein, prédisant le phénomène d'émission stimulée, ont ouvert la voie au concept du LASER : « Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation ». Il a fallu attendre l'année 1960 pour que le physicien Theodore Maiman, dans un laboratoire à Malibu en Californie, génère pour la première fois une émission laser à 694.3 nm l'aide d'un cristal de rubis [1]. La mise en œuvre de ce type de source de rayonnement a révolutionné la physique. La première utilisation du laser, pour usiner un perçage dans du diamant [2] a eu lieu en 1965. Depuis, une large gamme de systèmes laser a été produite avec des propriétés très variées, notamment en termes de longueur d'onde, d'intensité ou de durée d'impulsion, ce qui a été extrêmement profitable à la recherche. L'utilisation de la lumière laser est devenue centrale dans une grande diversité de domaines tels que, par exemple, l'industrie (usinage, traitement des matériaux), la médecine (chirurgie laser), la communication, la télémétrie, le spectacle et les applications militaires. Des progrès importants dans la recherche scientifique visant à augmenter l'énergie des lasers et diminuer leur durée d'impulsion, ont permis d'ioniser la matière et de créer des plasmas. Un axe important dans le développement des sources de photons consistait à produire un rayonnement cohérent à des longueurs d'onde de plus en plus courtes, jusqu'au domaine X. C'est dans ce cadre qu'au milieu des années soixante, le principe du laser a été transposé théoriquement aux transitions ioniques dans un plasma chaud afin de générer un effet laser dans le domaine XUV. En 1971, Pierre Jaeglé et son équipe au laboratoire LIXAM ont montré qu'un effet laser dans le domaine XUV ($\lambda = 117.41 \text{ \AA}$) pouvait se produire dans la zone chaude du plasma d'aluminium [3]. Mais ce n'est qu'en 1985, qu'un rayonnement laser XUV a été produit expérimentalement pour la première fois ($\lambda = 206 \text{ \AA}$ et 209 \AA) [4].

Généralement, le domaine XUV ou ultraviolet extrême correspond au domaine spectral situé entre $\lambda = 3$ et 60 nm , c'est à dire une énergie photonique typiquement entre ~ 20 et 500 eV . Dans ce domaine XUV, des progrès considérables ont été accomplis au cours des 30 dernières années pour générer des sources intenses, brèves et cohérentes, à partir de deux techniques différentes. La première est basée sur le rayonnement secondaire des accélérateurs de particules, qui a permis de générer les lasers XUV à électrons libres. La deuxième technique est basée sur le rayonnement secondaire dans l'interaction laser-matière à haute intensité, elle a donné naissance à plusieurs types de sources XUV intenses et ultrabrèves: les lasers XUV générés par plasma d'une part, et les harmoniques d'ordre élevé générées dans les gaz, ou dans des plasmas de surface. Le travail de thèse que nous allons présenter s'inscrit plus particulièrement dans le contexte des sources XUV générées par des lasers intenses. Toutefois la caractérisation temporelle de l'impulsion, qui a motivé ce travail, et la technique de photoionisation habillée par laser, que nous avons étudiée, concernent également les lasers XUV à électrons libres. C'est pourquoi nous les avons inclus dans la présentation des principes de génération et des principales

propriétés des différentes sources XUV cohérentes, avec un accent particulier sur leurs propriétés temporelles.

I.1. Les lasers X/XUV à électrons libres

Les lasers X/XUV à électrons libres « LEL-X » ou « X-FELs » en anglais pour Free Electron Lasers, représentent la quatrième génération du rayonnement synchrotron. L'émission synchrotron « traditionnelle » [5] est produite lorsque des électrons sont accélérés à des vitesses relativistes (de l'ordre de quelques GeV) puis déviés par un champ magnétique. Cette émission peut atteindre les rayons X mais elle n'est pas cohérente. Le principe du LEL est de rendre alors la source synchrotron plus cohérente en faisant interagir le rayonnement avec des paquets d'électrons relativistes (qui est sa source) en traversant une structure magnétique périodique appelée onduleur. Sous l'effet du champ magnétique, les électrons vont osciller transversalement et émettre spontanément un rayonnement synchrotron. L'interaction des électrons avec l'onde électromagnétique ainsi obtenue sur toute la longueur de l'onduleur cause une modulation longitudinale du paquet d'électrons (bunching), d'une manière à mettre en phase les trains d'onde émis, ce qui crée ainsi la cohérence de la source. Dans ce cas, les électrons moins énergétiques absorbent les photons émis et sont par suite accélérés en émettant à leur tour des photons à plus courtes longueurs d'onde. Le rayonnement peut alors être amplifié au cours de la propagation dans l'onduleur par un simple passage. Cet effet est connu sous le terme SASE pour « Self-Amplification of Spontaneous Emission » [6] par analogie avec les lasers traditionnels. Les LEL sont des sources partiellement cohérentes capables de produire de fortes intensités crêtes sur une large gamme spectrale allant des ondes millimétriques aux rayons X.

Historiquement, les premiers précurseurs d'un laser à électrons libres ont été testés en laboratoires en 1971 par l'équipe de J. Madey pour une longueur d'onde de 10 μm [7]. Mais le premier laser de ce type n'a été élaboré qu'en 1976 [8]. Depuis, il faut attendre jusqu'à l'année 2009 pour avoir un dispositif fournissant un LEL dans le domaine XUV sur l'installation FLASH à Hambourg (Allemagne). Citons aussi l'installation FERMI à Trieste (Italie) dans cette gamme spectrale. Pour le X-FEL, plusieurs installations sont actuellement en fonctionnement notamment le LCLS à Stanford en Californie qui peut produire des lasers dans la gamme X mou à X dur et le SACLA au Japon pour la gamme X dur. Plus récemment, en 2017, le « European X-FEL » a été construit près de Hambourg, devenant non seulement le plus grand du monde de sa catégorie, mais aussi le plus puissant et le plus rapide. Il peut émettre un rayonnement X à une longueur d'onde comprise entre 0.05 et 4.7 nm permettant la mesure à l'échelle de l'atome. Son intensité exceptionnelle est utilisée pour caractériser des structures à l'échelle nanométrique. La durée des impulsions de l'ordre de la femtoseconde est utilisée pour suivre en temps réel des processus fondamentaux comme le fonctionnement de nano-objets et de nombreuses réactions chimiques.

La plupart des X-FELs fonctionnent en mode SASE, caractérisés par des impulsions partiellement cohérentes. Dans la Figure I-1, on montre le spectre d'un X-FEL sur l'installation SACLA [9], formé des structures appelées spikes présentant d'importantes fluctuations statistiques. Dans le domaine temporel ce profil spectral correspond à une impulsion formée d'une succession de pics avec un profil fluctuant. Les propriétés de X-FELs et notamment sa cohérence peuvent être améliorées par un fonctionnement en mode injecté. Ainsi l'injection d'une source harmonique d'ordre élevé générée dans un gaz, déjà proposée dans le cas des lasers XUV générés par plasma, a été appliquée avec succès pour

la première fois au Japon [10] en 2008. L'injection des X-FELs permet donc de générer un rayonnement plus intense et parfaitement cohérent dans cette gamme spectrale [11].

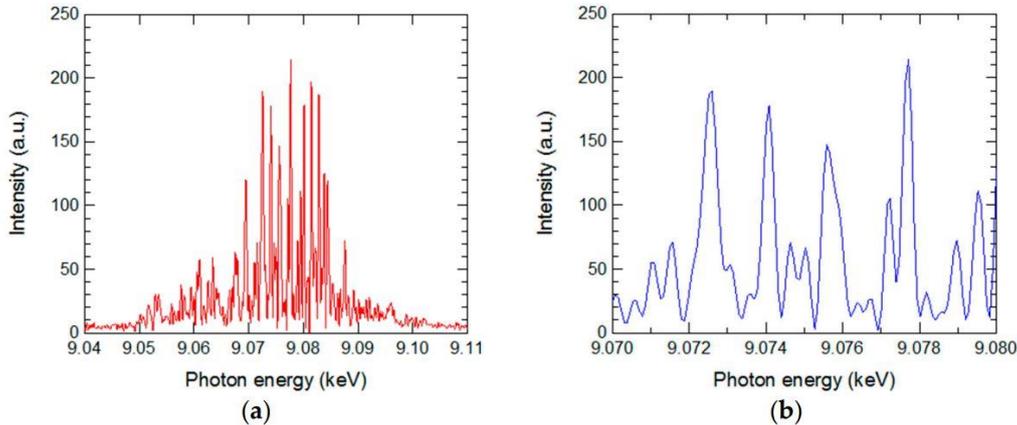


Figure I-1: (a) Exemple d'un spectre de X-FEL mesuré sur l'installation SCALA, (b) spectre agrandi autour du centre de la figure a, tirés de l'article [9].

Par leurs propriétés exceptionnelles, en terme de durée d'impulsion (picoseconde à dizaine de femtosecondes), et d'intensité focalisée (jusqu'à 10^{18} W/cm²) pour une largeur spectrale relative de l'ordre de 10^{-2} à 10^{-4} les lasers X/XUV à électrons libres ont amplement démontré leur intérêt, pour accéder à de nouveaux champs de recherche impliquant l'étude la dynamique ultra-rapide ou des phénomènes non linéaires dans l'interaction avec la matière. Néanmoins, les X-FELs demeurent des installations de grande échelle en termes de surface et de coût. Elles ne peuvent exister qu'en nombre limité, rendant leur accès relativement difficile pour la communauté scientifique. Heureusement d'autres sources XUV, complémentaires en termes de performances et utilisables à l'échelle d'un laboratoire, ont été développées en parallèle, notamment les harmoniques d'ordre élevé d'un laser intense, ou les lasers XUV à base de plasma qui sont les sources étudiées dans le cadre de cette thèse.

I.2. Génération des harmoniques d'ordre élevé d'un laser

Des harmoniques d'un laser peuvent être produites suite à une interaction fortement non-linéaire avec la matière. Le rayonnement harmonique obtenu est constitué des fréquences multiples et plus élevées que la fréquence ω du laser de génération. Lorsque l'interaction a lieu à très forte intensité, elle permet de générer des harmoniques dans le domaine XUV, en focalisant une impulsion laser courte et ultra-intense dans un gaz rare, ou à la surface d'une cible solide. Les processus physiques qui aboutissent à la génération d'harmoniques d'ordre élevé sont très différents dans les deux cas. Dans ce travail de thèse, on s'intéresse plus particulièrement à la caractérisation temporelle d'harmoniques d'ordre élevé (HH) générées sur une cible solide. Par ailleurs, les harmoniques d'ordre élevé générées dans les gaz rares sont à la base des lasers XUV injectés qui seront étudiés dans la deuxième partie de notre travail. C'est pourquoi nous les présentons brièvement tout d'abord.

I.2.1. Harmoniques d'ordre élevé générées dans les gaz rares

En 1967, New et Ward ont démontré expérimentalement pour la première fois la production d'harmonique d'ordre 3 dans le gaz [12]. Jusque dans les années 70, les études ont été limitées à des ordres d'harmoniques peu élevés (jusqu'à HH9) [13]. Le développement des lasers intenses et de courte

durée d'impulsion (\sim centaines de picoseconde) dans les années 1980 et 1990 a permis l'observation de plusieurs dizaines d'ordres harmoniques, notamment à la fin des années 80 par deux équipes de Chicago [14] et du CEA-Saclay [15]. Une impulsion laser infrarouge (IR) intense est focalisée sur une cible de gaz rare qui peut être obtenue par un jet de gaz pulsé ou une cellule, ou bien en couplant le laser générateur par une fibre creuse remplie de gaz. Des éclaircements de l'ordre de 10^{13} - 10^{14} W/cm² sont nécessaires pour réaliser le processus d'interaction fortement non-linéaire avec les atomes et obtenir une émission d'harmoniques d'ordre élevé. Pour décrire le processus de génération des harmoniques au niveau microscopique on utilise le plus couramment un modèle « semi classique » [16] constitué de 3 étapes. Une première étape consiste à ioniser l'atome par effet tunnel. La perturbation périodique du potentiel coulombien induite par le champ laser IR permet à l'électron de franchir la barrière de potentiel coulombienne. Cet électron sera alors libéré et accéléré dans un second temps dans le champ laser, sans qu'il ressente l'effet du potentiel attractif du noyau (approximation du champ fort). La 3^{ème} étape est la recombinaison sur l'état fondamental qui se produit lorsque le champ du laser polarisé change de signe à la demi-période suivante. L'électron est alors accéléré dans la direction inverse et ramené vers l'ion parent avec lequel il peut recombiner, en émettant l'énergie cinétique acquise dans le champ laser sous forme d'un photon dans le domaine XUV.

Ce processus à trois étapes se répète toutes les demi-périodes du laser IR (l'ionisation étant initiée à chaque extremum du champ électrique). L'émission XUV obtenue est alors périodique de période $T_{IR}/2$ avec $T_{IR} = 2\pi/\omega_0$. Cette périodicité temporelle se traduit dans le domaine spectral par une émission XUV cohérente constituée de raies harmoniques séparées par $2\omega_0$. Le fait que les électrons sortent du puit de potentiel dans des directions opposées entre deux demi-périodes consécutives, implique que les harmoniques émises ont des ordres impairs de la fréquence du laser excitateur. Autrement dit, la symétrie à champ central du potentiel atomique interdit l'émission de fréquences paires. Le spectre d'émission du rayonnement harmoniques présente une allure caractéristique comme montré dans la Figure I-2: après une décroissance rapide de l'efficacité d'émission pour les harmoniques de premiers ordres, une zone appelée le plateau suit, dans laquelle l'intensité des harmoniques reste quasiment constante jusqu'à des ordres élevés, suivi d'une brusque coupure où leur intensité chute rapidement avec l'ordre harmonique. La présence de cette coupure est due au fait que l'énergie cinétique acquise par les électrons dans le champ laser a une valeur maximale de $3,17 \cdot U_p$, où U_p est le potentiel pondérateur du laser, relié à l'intensité et à la longueur d'onde du champ excitateur.

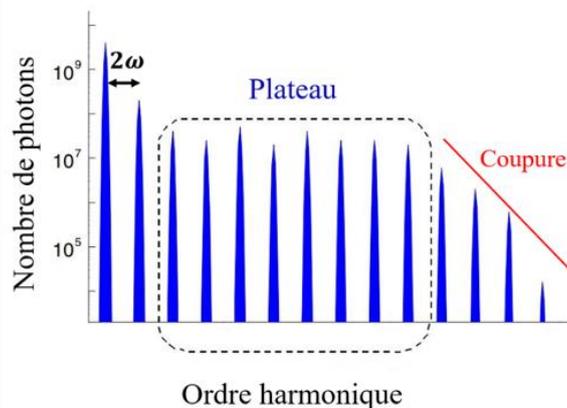


Figure I-2: Exemple d'un spectre harmonique typique, adapté de l'article de Salières & Lewenstein 2001 [17].

Une des spécificités qui a fait le succès de cette source est la possibilité de générer des impulsions dans le domaine temporel attoseconde. En effet, au peigne d'harmoniques dans le domaine spectral correspond, dans le domaine temporel, un train d'impulsions séparées temporellement d'une demi-période du laser générateur (soit 1,3 fs pour un laser à 800 nm). Cependant augmenter l'énergie par impulsion reste un réel défi, l'énergie par impulsion attoseconde étant actuellement limitée à la gamme microjoule. En effet, une limite essentielle des harmoniques générées dans les gaz est que l'ionisation du gaz doit rester partielle, l'intensité maximale du laser ne peut pas donc dépasser un certain seuil ($I \sim 10^{14-15} \text{ W/cm}^2$). Il existe toutefois un autre mode de génération d'harmoniques efficace à des intensités laser plus élevées, impliquant l'interaction du laser avec un plasma généré sur cible solide. Les harmoniques d'ordre élevé générées sur cible solide, qui seront étudiées dans le chapitre 3 de ce manuscrit, sont présentées dans la partie suivante.

1.2.2. Harmoniques d'ordre élevé générées par miroir plasma

Contrairement à l'interaction dans un milieu dilué comme un jet de gaz, le processus de génération des harmoniques d'ordre élevé diffère totalement dans le cas d'un plasma dense ($N_e \sim 10^{23} \text{ cm}^{-3}$).

1.2.2.1. Principe de génération de la source ; notion de miroir plasma

Le principe de la génération des harmoniques d'ordre élevé dans un plasma surdense, généré à la surface d'une cible solide, est illustré dans la Figure I-3. Une impulsion infrarouge ultra-intense ($I > 10^{16} \text{ W/cm}^2$) est focalisée en incidence oblique sur une cible solide, à la surface de laquelle un plasma d'une densité surcritique a été préalablement créé par une préimpulsion de plus faible intensité. Les mécanismes non-linéaires produits lors de l'interaction avec le plasma conduisent à la transformation d'une partie du faisceau laser IR réfléchi en harmoniques d'ordre élevé, avec simultanément la production d'un faisceau d'électrons accélérés à des énergies quasi relativistes.

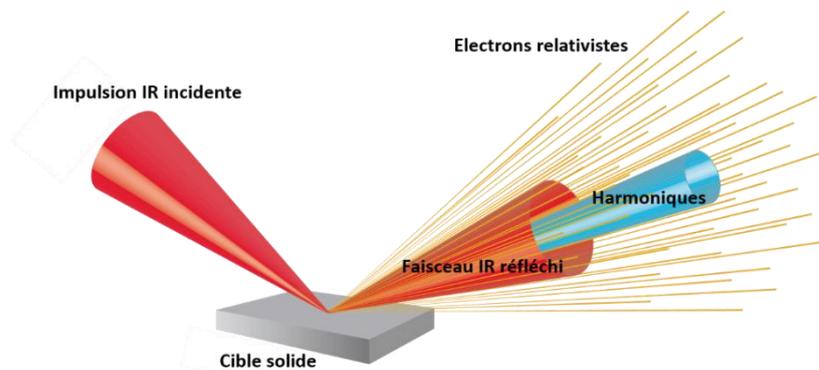


Figure I-3: principe de génération des harmoniques sur cible solide, schéma adapté de [18].

Comme précédemment, le spectre des harmoniques est constitué d'un peigne de fréquences multiples de la fréquence fondamentale du laser qui éclaire la cible, qui se traduit dans le domaine temporel par un train d'impulsions attosecondes. Toutefois à la différence des harmoniques impaires produites par une cible gazeuse, ici les harmoniques paires et impaires apparaissent. En effet, sous l'effet du champ de l'impulsion laser qui irradie le plasma de surface, des électrons sont éjectés vers le vide à chaque période du champ laser puis réinjectés dans le plasma pendant la demi-période suivante. Ce mécanisme déclenche des oscillations de plasma par les électrons libres, dont la fréquence propre augmente avec la

densité N_e (donc avec la profondeur), ce qui induit une émission qui part du visible jusqu'à atteindre le domaine XUV. Ce processus se répète à chaque période du laser [19], ce qui correspond à l'émission d'harmoniques paires et impaires dans toute cette gamme de longueur d'onde.

Les harmoniques générées sur cible solide sont aussi nommées des harmoniques générés sur miroir plasma. En effet, le plasma dense créé à la surface de la cible par la préimpulsion se comporte –sous certaines conditions- comme un miroir de qualité optique qui réfléchit l'impulsion laser principale dans la direction de réflexion spéculaire. Pour agir comme un miroir, le plasma doit être « surdense », c'est à dire que sa densité doit être supérieure à la densité critique correspondant à la longueur d'onde du laser incident ($N_c = 1,5 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ pour $\lambda = 800 \text{ nm}$). De plus la longueur L_g du gradient de densité électronique (pour un profil de densité $N_e \sim \exp(-x/L_g)$) doit être suffisamment courte par rapport à la longueur d'onde du laser ($L_g < \lambda$), ce qui permet d'assurer que l'interface entre le plasma dense et le vide est suffisamment raide. La longueur de gradient, qui représente la distance sur laquelle le plasma se détend après sa création par la préimpulsion, est un paramètre essentiel de la génération des harmoniques d'ordre élevé sur miroir plasma.

Pour obtenir un gradient de densité le plus raide possible, il est nécessaire que les impulsions envoyées sur la cible aient un excellent contraste temporel, c'est à dire que le rapport entre l'intensité focalisée au pic temporel de l'impulsion et à au minimum de l'ordre de 10^{10} . Un tel contraste ne peut être obtenu directement à la sortie de la chaîne laser et nécessite un dispositif complémentaire, le double-miroir plasma (DPM) [19]. Le principe de ce dispositif consiste à focaliser le faisceau laser incident sur un miroir diélectrique traité anti-reflet. Ainsi le piédestal à faible intensité n'est pas réfléchi, jusqu'à la formation d'un miroir plasma qui réfléchit la partie haute intensité de l'impulsion. En répétant ce processus deux fois, on augmente ainsi le contraste temporel d'un facteur 10^4 , comme le montre la Figure I-4, tirée de [19].

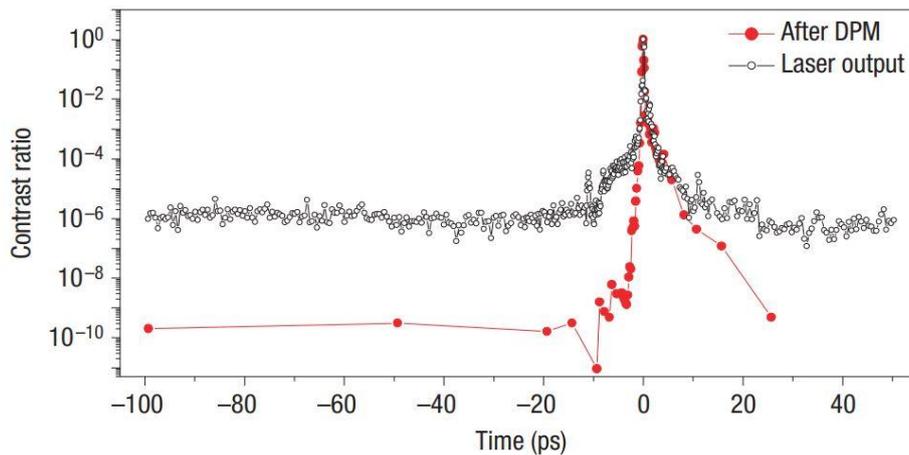


Figure I-4: Amélioration du contraste temporel d'une impulsion laser après l'utilisation d'un double miroir plasma (figure tirée de [19]).

L'amélioration du contraste temporel influe d'une manière spectaculaire sur la génération des harmoniques d'ordre élevé, comme illustré sur la Figure I-5, tirée de [20]. On voit que l'introduction du miroir plasma (PM) permet d'observer les harmoniques d'ordre 10, 11 et 12, alors que seule l'émission incohérente de plasma est détectée lorsque le miroir plasma n'est pas introduit.

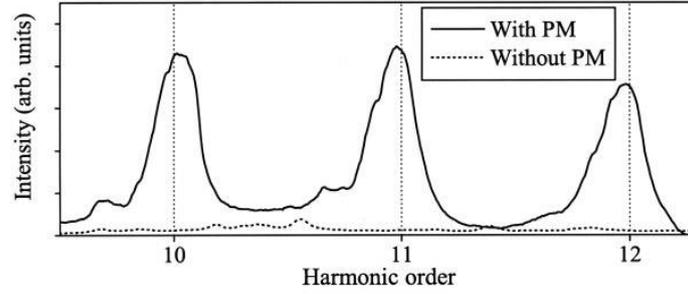


Figure I-5: Influence du miroir plasma sur la génération d'harmonique d'ordre élevé (figure tirée de [20]).

I.2.2.2. Mécanismes de génération CWE et ROM

Les études expérimentales et théoriques des harmoniques générées par miroir plasma ont permis de mettre en lumière deux mécanismes de génération différents suivant l'éclairement du laser incident : le régime CWE pour « Coherent Wave Emission » [21] et le régime ROM pour « Relativistic Oscillating Mirror » [22] [23]. Le passage de l'un à l'autre régime dépend de la valeur de l'intensité du laser incident, représentée par l'amplitude normalisée a_0 du champ laser correspondant (amplitude E_0 , pulsation ω_L , longueur d'onde λ), définie par [18]: $a_0 = eE_0/mc\omega_L = \lambda_{[\mu\text{m}]} \sqrt{I_0[\text{W}/\text{cm}^2]}/1,37 \cdot 10^{18}$.

On peut montrer que le facteur relativiste de Lorentz γ pour la quantité de mouvement p d'un électron libre, placé dans une onde plane et se propageant dans le vide, est lié à l'amplitude a_0 par la relation $\gamma = \sqrt{1 + p^2/(mc)^2} = 1 + 0.5a_0^2$.

Pour des éclairagements de l'ordre de 10^{16} - 10^{18} W/cm², on a $a_0 \ll 1$ et $\gamma \approx 1$. On est donc dans le régime non-relativiste ($p \ll mc$), où domine le mécanisme CWE. A chaque période du laser incident, une partie des électrons, dits de Brunel, est arrachée de la surface du plasma, puis accélérée dans le vide. A la demi-période suivante ces électrons sont renvoyés dans le plasma dense, où ils excitent des oscillations plasma à des fréquences correspondant aux densités électroniques traversées. Ces oscillations plasma induisent elle-même des impulsions de rayonnement attoseconde, conduisant à l'émission d'un peigne d'harmoniques. Pour des éclairagements plus élevés ($> 10^{19}$ W/cm²), on a $a_0 > 1$ et $\gamma > 1$, le mouvement des électrons devient relativiste. Dans ce régime relativiste les harmoniques sont principalement générées par le mécanisme ROM, qui nécessite un gradient un peu moins raide ($L_g = \lambda/15$). Au cours de la réflexion de l'impulsion laser incidente, les électrons de la surface plasma oscillent à chaque cycle optique autour d'une position moyenne. Ceci induit à chaque cycle une distorsion par effet Doppler de l'impulsion réfléchie, qui conduit à la génération des harmoniques d'ordre élevé, jusqu'à des ordres qui ne sont plus limités par la densité du plasma. La Figure I-6, adaptée de [19], montre le changement du spectre des harmoniques générées sur une cible de polypropylène, lorsque l'intensité incidente passe de $I = 3 \cdot 10^{18}$ W/cm² à $I = 8 \cdot 10^{18}$ W/cm². On voit que les harmoniques d'ordre supérieur à 15 ne sont produites que dans le régime relativiste.

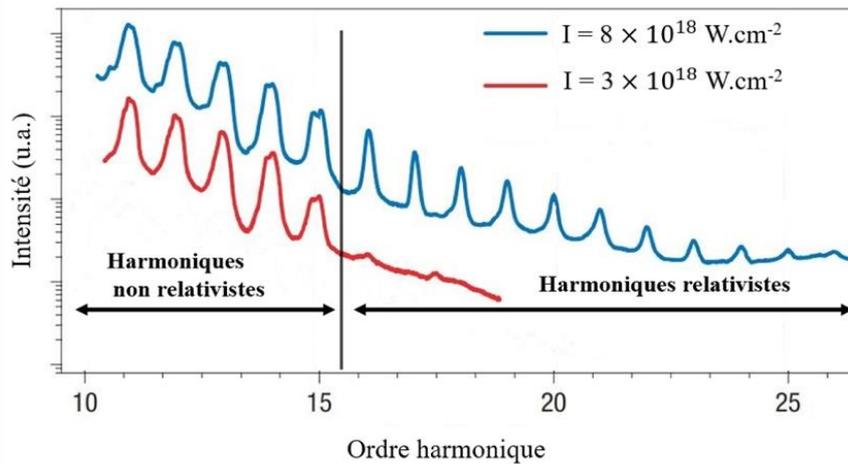


Figure I-6: Spectres des harmoniques générées sur miroir plasma pour deux intensités du laser incident différentes, correspondant respectivement au régime non-relativiste (CWE) et relativiste (ROM). Adapté de [19].

I.3. Les lasers XUV générés dans les plasmas

Comme pour les lasers émettant dans le visible à l'infrarouge, le fonctionnement des lasers XUV repose sur l'existence d'une inversion de population entre deux niveaux énergétiques du milieu lasant. Cette inversion de population favorise l'émission stimulée, au détriment de l'absorption, des photons émis à la longueur d'onde de cette transition et permet l'amplification au cours de la propagation dans le milieu lasant. Dans le domaine spectral XUV, l'écart énergétique entre les niveaux atomiques de la transition laser doit être de quelques dizaines à centaines d'électron-volts (eV). Ceci exclut les milieux actifs traditionnels, tels les solides ou les molécules, dont les énergies de liaison sont de l'ordre de quelques eV. Des inversions de population correspondant à des transitions dans le domaine XUV sont par contre possible dans les ions multichargés d'un plasma.

Contrairement aux lasers conventionnels, le plasma ne peut être placé dans une cavité optique qui permettrait l'amplification du rayonnement XUV sur plusieurs passages. Ceci est dû, d'une part, à l'impossibilité de réaliser des miroirs hautement réfléchissants dans ce domaine spectral et, d'autre part, à la courte durée de vie des inversions de population par rapport au temps nécessaire aux photons pour effectuer plusieurs aller-retours. Le milieu à gain étant un plasma dense, chaud et fortement ionisé, la densité des ions lasants est élevée, de même que la valeur des coefficients de gain. La saturation de l'amplification peut donc être obtenue en un seul passage (parfois deux) dans le plasma. On parle alors d'amplification du rayonnement dans le régime ASE (Amplification of Spontaneous Emission), car le germe de l'amplification est l'émission spontanée du plasma, à la longueur d'onde de l'inversion de population. Il en résulte que le faisceau laser XUV amplifié dans le régime ASE a une cohérence temporelle et spatiale partielle, de même que les lasers X/XUV à électrons libres fonctionnant en régime SASE. Ces propriétés de cohérence peuvent être fortement améliorées en injectant à l'entrée du plasma une source XUV cohérente à la même longueur d'onde que la transition laser, comme cela a également été démontré dans le cas des X-FELs. On parle alors de laser XUV fonctionnant en mode injecté, que nous présenterons plus en détail plus loin, puisque c'est une des sources XUV ultrabrèves étudiées dans ce travail de thèse.

1.3.1. Pompage des inversions de population dans un plasma

Trois principaux schémas de pompage ont été proposés et étudiés expérimentalement pour produire une inversion de population XUV à partir des ions d'un plasma :

i) Par recombinaison à trois corps : proposé dès 1965 [24] ce schéma de pompage repose sur la création d'un plasma suffisamment froid et dense pour favoriser la recombinaison à trois corps (ou recombinaison collisionnelle) qui peuple préférentiellement les niveaux supérieurs de l'ion considéré. Un des avantages de ce schéma de pompage est qu'il permet d'atteindre des longueurs d'onde très courtes (inférieures à 1 nm). Toutefois, les coefficients de gain démontrés avec ce schéma sont faibles et n'ont pas permis à ce jour d'atteindre la saturation de l'amplification.

ii) Par photoionisation de couche interne : proposé en 1967 [25], ce schéma de pompage consiste à arracher un électron de la couche interne K de l'atome à l'aide d'une source X intense et de courte durée. Cette dernière est alors créée suite à la photoionisation d'un atome par le rayonnement X. Le niveau fondamental de l'ion une fois chargé étant initialement non peuplé, on crée ainsi une inversion de population avec ce niveau, et la transition laser correspond à la désexcitation radiative d'un électron de couche externe vers le niveau fondamental. La première démonstration expérimentale de ce schéma a été effectuée en 2012 [26], en utilisant des photons de 960 eV du X-FEL du LCLS (Etats-Unis) comme source de pompage.

iii) Par excitation collisionnelle : ce schéma de pompage, proposé pour la première fois en 1975 [27], est celui qui a permis la première démonstration incontestable d'une émission laser XUV intense, en 1985 [4], puis d'atteindre pour la première fois la saturation de l'amplification en 1992 [28]. Il repose sur l'excitation collisionnelle des ions par les électrons libres du plasma. Les ions utilisés possèdent à l'état fondamental une structure avec une couche externe fermée, à laquelle correspond une énergie d'ionisation élevée, ce qui permet à ces ions d'être plus résistants aux processus d'ionisation par collisions électroniques. Le schéma de pompage par excitation collisionnelle est à la base de pratiquement tous les lasers XUV, générés dans un plasma, opérationnels dans le monde, dont le laser XUV à 32,6 nm que nous avons étudié dans cette thèse. Nous allons donc présenter ce schéma de pompage plus en détail.

Le principe du pompage est schématisé sur la Figure I-7 (a) pour les ions néonoïdes (couche $n=2$ complète, 10 électrons liés) et nickelloïdes (couche $n=3$ complète, 28 électrons liés). Le niveau supérieur de l'inversion est peuplé par excitation collisionnelle à partir du niveau fondamental : $2p^6 \rightarrow 2p^5 3p$ pour les ions néonoïdes, $3d^{10} \rightarrow 3d^9 4d$ pour les ions nickéloïdes. Le niveau inférieur de l'inversion se dépeuple rapidement par désexcitation radiative vers l'état fondamental, car les transitions correspondantes ($2p^5 3s \rightarrow 2p^6$ et $3d^9 4p \rightarrow 3d^{10}$ respectivement) sont permises par les règles de sélection dipolaire et ont donc une force d'oscillateur élevée.

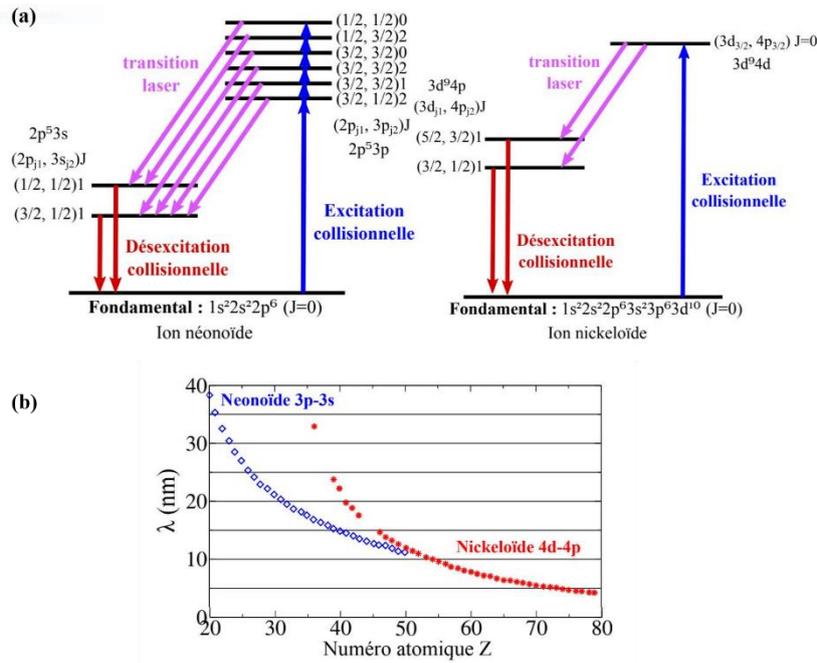


Figure I-7: (a) Principe du pompage par excitation collisionnelle dans les ions néonoïdes (à gauche) et nickeloïdes (à droite), (b) longueur d'onde des transitions lasers XUV en fonction du numéro atomique pour les deux types d'ions.

Finalement en se basant sur le même schéma de pompage, la longueur d'onde des transitions laser XUV dépend du numéro atomique Z de l'ion considéré, comme le montre dans la Figure I-7 (b), ce qui permet de couvrir une large gamme spectrale entre 40 nm à 4 nm. On peut voir que les ions nickeloïdes permettent d'atteindre des longueurs d'onde plus courtes que les ions néonoïdes, même si, à longueur d'onde équivalente, ils nécessitent des éléments de Z plus élevés.

I.3.2. Différents types de lasers XUV collisionnels

Pour établir dans le plasma des conditions favorables pour le pompage par excitation collisionnelle, il faut que les ions lasants soient présents avec une forte abondance, et que la densité et la température électroniques soient élevées : typiquement $N_e \sim 10^{18} - 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ et $kT_e \sim 50 - 500 \text{ eV}$. Comme nous allons le voir, ces conditions sont réalisables dans les plasmas produits par laser sous certaines conditions, mais aussi dans des plasmas produits par décharge électrique rapide.

I.3.2.1. Pompage par décharge électrique dans un capillaire

Comme indique son nom, ce schéma consiste à générer un plasma à partir d'une décharge électrique rapide dans un gaz confiné dans un tube capillaire. La génération d'un laser XUV à 46,9 nm avec ce type de plasma a été démontrée pour la première fois en 1994 par J.J. Rocca et collaborateurs au Colorado State University [29]. La raie laser correspond à la transition 3p-3s dans l'ion d'argon néonoïde Ar^{8+} . Malgré les efforts tentés, ce type de pompage n'a pas pu être jusqu'à présent étendu à des éléments plus lourds pour atteindre des longueurs d'onde plus courtes. Les lasers XUV pompés par décharge capillaire ont l'avantage d'être des systèmes compacts, délivrant des impulsions d'une durée de l'ordre de la nanoseconde, pour une énergie par impulsion de l'ordre du milliJoule.

I.3.2.2. Pompage dans un plasma-laser en régime quasi-stationnaire (QSS)

Les premiers lasers XUV pompés par excitation collisionnelle ont été réalisés à la fin des années 1980 sur les grandes installations laser existant à l'époque, qui délivraient des impulsions de forte énergie (~kilojoule) et de durée de l'ordre de la nanoseconde. Après la première démonstration d'un laser XUV à 20,6 nm en 1985 au Laboratoire Livermore (Etats-Unis) [4], ce type de pompage, dit quasi-stationnaire (QSS), a permis des avancées significatives dans les années qui ont suivi, notamment atteindre la saturation de l'amplification [30] [28], ou des longueurs d'onde plus courtes, jusqu'à 4 nm [32].

Le laser incident est focalisé sur une cible solide selon une ligne focale de quelques centimètres de long, créant ainsi un petit filament de plasma. Lorsque les inversions de population sont créées pendant le chauffage du plasma par l'impulsion laser, le rayonnement XUV à la longueur d'onde de l'inversion est amplifié le long de l'axe du filament dans les deux directions. Actuellement, il ne reste plus qu'un laser XUV pompé dans le régime quasi-stationnaire, sur l'installation PALS à Prague (République Tchèque). Ce laser XUV émet à 21,2 nm, longueur d'onde de la transition 3p-3s dans le zinc néonoïde, et délivre des impulsions de plusieurs milliJoules pour une durée d'une centaine de picosecondes.

Les coefficients de gain obtenus par le pompage en régime quasi-stationnaire sont relativement faibles (quelques cm^{-1}) [30], pour une énergie laser incidente élevée. Pour améliorer l'efficacité du pompage, l'utilisation d'impulsions laser plus courtes pour ioniser et chauffer le plasma a été proposée par plusieurs auteurs [31]. Ces schémas ont pu être mis en œuvre expérimentalement avec succès quelques années plus tard grâce aux lasers Ti :Sa CPA de classe 1J (100 TW) qui devenaient disponibles dans les laboratoires. Ces avancées ont abouti à deux nouveaux types de lasers XUV que nous allons maintenant présenter : les lasers XUV à pompage OFI (Optical Field Ionization) et les lasers XUV à pompage transitoire (TCE : Transient Collisional Excitation).

I.3.2.3. Pompage par ionisation en champ laser intense dans un gaz (OFI)

Ici une impulsion laser ultrabrève (~ 30 fs) et très intense (~ 10^{16} - 10^{17} W/cm^2), focalisée dans une cible gazeuse, induit l'ionisation multiple jusqu'à l'état d'ionisation désiré, par suppression de la barrière de potentiel (ionisation par champ laser, OFI). Les électrons libérés sont chauffés et induisent le pompage par excitation collisionnelle des ions lasants. Proposé en 1994, ce schéma de pompage a été démontré expérimentalement dans le xénon palladiumoïde en 1995 [32], puis étendu au krypton nickéloïde en 2000 par l'équipe de Stéphane Sebban au LOA.

Des avancées majeures ont été réalisées ensuite avec ce laser XUV OFI, émettant à 32,8 nm, notamment : la première démonstration d'un laser XUV injecté en 2004 [33], ou plus récemment l'extension de la durée des lasers XUV OFI injectés dans le domaine de la femtoseconde [34] [35], grâce à l'augmentation significative de la densité électronique du plasma. Contrairement aux autres lasers XUV générés dans les plasmas créés par laser, le pompage est ici longitudinal, c'est à dire que l'axe du laser incident et du laser XUV généré coïncident.

I.3.2.4. Pompage dans un plasma-laser en régime transitoire (TCE)

Le principe du pompage par excitation collisionnelle en régime transitoire (TCE) est d'utiliser deux impulsions laser successives, pour séparer l'étape d'ionisation du plasma de celle du chauffage des électrons libres et permettre de les optimiser séparément. Comme représenté dans la Figure I-8, une première impulsion relativement longue (quelques 100 ps) et d'intensité modérée ($I \sim 10^{12}$ W/cm^2) est

focalisée sur une cible solide pour créer un filament de plasma (longueur quelques mm) contenant les ions d'intérêt (néonoïde ou nickeloïdes). Quelques centaines de picosecondes plus tard une deuxième impulsion, plus courte (quelques ps) et plus intense ($I \sim 10^{15} \text{ W/cm}^2$) est utilisée pour induire un chauffage rapide des électrons libres du plasma, qui permet un pompage par excitation collisionnelle efficace, conduisant à des coefficients de gain très élevés ($\sim 10\text{-}100 \text{ cm}^{-1}$). La durée de vie de l'inversion de population est beaucoup plus courte (quelques picosecondes) que dans le cas du pompage quasi-stationnaire, ce qui nécessite l'utilisation d'un pompage en onde progressive [36]. Dans cette configuration le front d'énergie de l'impulsion de pompe est incliné de 45° , pour assurer que le chauffage du plasma a lieu au fur et à mesure de la propagation de l'impulsion XUV le long du plasma amplificateur.

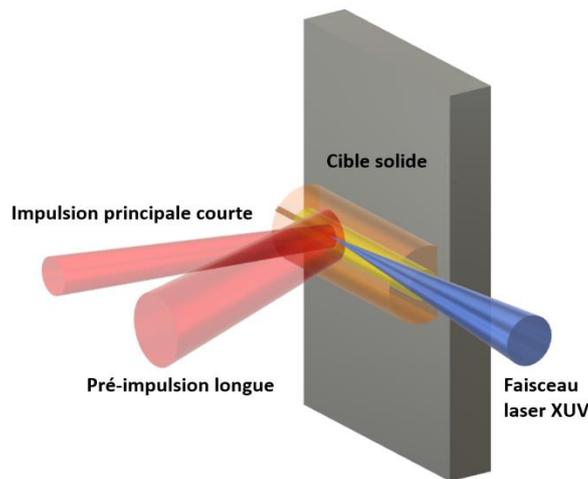


Figure I-8: Principe de génération du laser XUV transitoire (TCE).

Le pompage transitoire a été proposé en 1989 [37], puis démontré expérimentalement pour la première fois en 1997 par l'équipe de Nickles et collaborateurs [38], avec des ions néonoïdes d'un plasma de titane. Il a ensuite été étendu par l'équipe de J. Rocca au Colorado State University à des éléments plus lourds pour générer des lasers XUV dans une large gamme spectrale, jusqu'à 5, 8 nm [39] [40] [41]. L'efficacité du pompage a pu être améliorée en envoyant le faisceau principal de pompe en incidence rasante ($\sim 15\text{-}20^\circ$) sur le préplasma formé par la première impulsion [42]. Par rapport à l'incidence normale utilisée jusqu'alors, cette configuration de pompage, appelée GRIP (Grazing Incidence Pumping), permet notamment, en adaptant l'angle d'incidence, de déplacer l'absorption du laser légèrement en deçà de la densité critique ($N_c = 1,5 \cdot 10^{21}$ pour $\lambda = 800 \text{ nm}$), dans une zone où l'abondance des ions lasants est maximale. De plus la réfraction subie par le faisceau dans le gradient de densité, permet d'allonger sa longueur de propagation et donc d'améliorer l'efficacité du chauffage du plasma. La configuration GRIP a été adoptée notamment sur l'installation LASERIX du IJC-Lab à Orsay [43], sur laquelle les expériences présentées dans les chapitres IV et V du présent manuscrit ont été réalisées. Comparés aux autres lasers XUV présentés précédemment les lasers XUV transitoires possèdent plusieurs atouts. Ils nécessitent une énergie de pompage beaucoup plus faible que les lasers XUV QSS, et peuvent donc fonctionner sur des installations laser de taille beaucoup plus modeste, et surtout à beaucoup plus haut taux de répétition : de 10 Hz [44] jusqu'à 100 Hz [45] et au-delà (contre 1 ou 2 tirs par heure pour les lasers XUV QSS). La durée de l'impulsion est plus courte que les lasers XUV QSS. En 2002, une durée de 2 ps a été mesurée pour un laser XUV transitoire fonctionnant à une longueur

d'onde de à 13.9 nm [46]. Cette durée peut, dans une certaine mesure, être contrôlée par celle du laser de pompe [47]. Enfin comme mentionné plus haut, même s'il ne s'agit pas d'un laser accordable, les lasers XUV transitoires sont capables de couvrir une large gamme spectrale, typiquement des longueurs d'onde comprises entre 35 et 6 nm, en changeant le numéro atomique de l'élément composant la cible. Cependant malgré ces atouts, les faisceaux des lasers XUV générés en régime transitoire, comme les autres lasers XUV fonctionnant en mode ASE, sont caractérisés par une relativement faible cohérence spatiale : la divergence du faisceau (une dizaine de milliradians) est essentiellement contrôlée par la géométrie du milieu amplificateur (typiquement par le rapport entre sa taille transverse et sa longueur) et le profil d'intensité présente une structure fortement inhomogène, due à la présence de speckles (ou tavelures) [48]. Pour améliorer ces propriétés de cohérence, puisqu'il n'est pas possible de placer le milieu amplificateur dans une cavité résonnante, une idée consiste à injecter à l'entrée du plasma amplificateur une source cohérente de rayonnement XUV, résonnante avec la transition laser. Les harmoniques d'ordre élevé générées dans un gaz constituent une source bien adaptée. Le faisceau XUV issu de ces sources possède en effet une bonne cohérence temporelle et spatiale, avec une divergence de l'ordre du milliradian. En plus, les expériences ont montré que le front d'onde des sources harmoniques est généralement de bonne qualité [49].

Le principe de l'injection d'un laser XUV par une harmonique d'ordre élevé a été démontré expérimentalement pour la première fois en 1995 [50]. Il a ensuite été réalisé en 2004 dans un laser XUV de type OFI [33]. Enfin la première démonstration expérimentale de l'injection d'harmonique dans un laser XUV transitoire a été démontrée en 2006 par l'équipe de J.J. Rocca (Colorado State University, USA), dans un plasma de titane néonoïde [51].

I.3.2.5. Les lasers XUV transitoire fonctionnant en mode injecté

La Figure I-9, tirée de [52], montre l'influence de l'injection d'une harmonique dans le plasma amplificateur d'un laser X transitoire émettant à 32.6 nm. La colonne de gauche montre le spectre intégré angulairement, la colonne de droite montre le spectre résolu angulairement, respectivement pour (a) le laser XUV fonctionnant en mode ASE, (b) l'harmonique H25 injectée à l'entrée du plasma et (c) le laser XUV en mode injecté. On remarque que l'intensité du laser XUV injecté est ~ 10 fois plus grande que le laser XUV en mode ASE. Par ailleurs, la divergence du faisceau est fortement réduite en mode injecté, devenant similaire à celle de l'harmonique injectée.

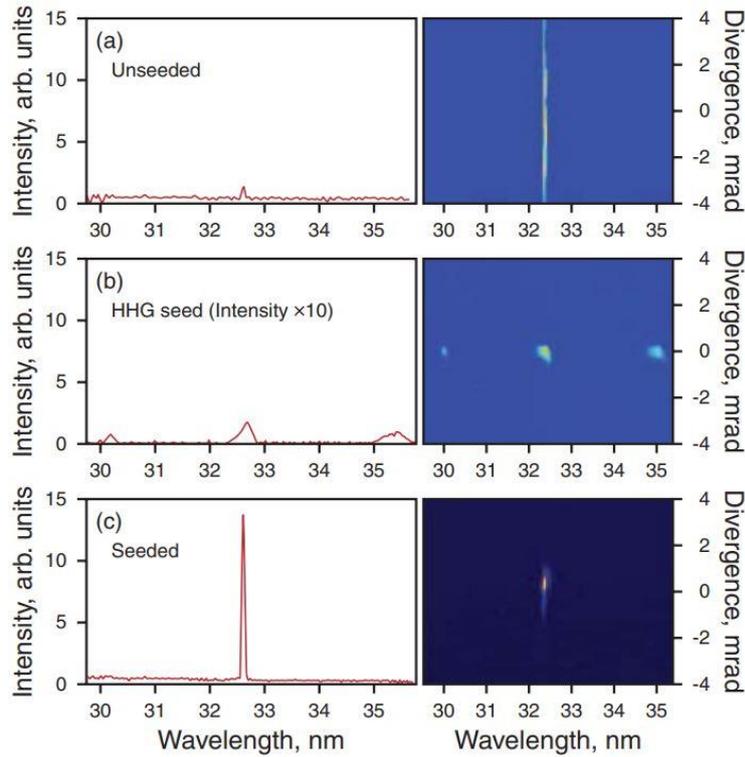


Figure I-9: Spectres illustrant l'intensité relative et la divergence du faisceau XUV à 332,6 nm pour (a) mode ASE (non injecté), (b) harmonique H25 injectée et (c) mode injecté. Figure tirée de [52].

D'autres études ont montré que les qualités optiques spatiales du faisceau harmonique (cohérence, front d'onde, polarisation) étaient préservées après amplification dans le plasma [53] [54]. Un autre bénéfice attendu du fonctionnement des lasers XUV en mode injecté est la diminution de la durée de l'impulsion, pour atteindre le domaine femtoseconde (ou sub-picoseconde).

Le pompage en régime transitoire a permis de réduire significativement la durée des lasers XUV fonctionnant en mode ASE. En effet celle-ci est directement contrôlée par la durée de l'inversion de population, elle-même liée à la durée de l'impulsion de pompe qui chauffe les électrons du plasma et induit le pompage par excitation collisionnelle. Ainsi la durée typique des lasers XUV pompés en régime QSS est d'une centaine de picosecondes [55]. Avec le pompage transitoire, une durée de 2 ps a pu être mesurée en 2002 [46] pour un laser XUV émettant à 13,9 nm (Ni-like Ag), pompé par une impulsion de durée 1 ps. Cette mesure a été réalisée en utilisant une caméra Streak ultrarapide, avec une résolution temporelle de 1,9 ps.

Pour accéder à des durées encore plus courtes, dans le domaine de la femtoseconde (i.e. dizaines à centaines de femtosecondes), il est nécessaire de fonctionner en mode injecté, pour deux raisons. D'une part parce que l'ionisation du plasma et le pompage des inversions de population impliquent des processus collisionnels, dont les temps caractéristiques sont supérieurs à la picoseconde, dans la gamme de densité considérée. Par conséquent la durée de vie des inversions de population sera donc toujours plus longue que la picoseconde, même si la durée du laser de pompe est plus courte. D'autre part, comme l'ont montré les mesures réalisées précédemment, les lasers XUV sont des sources extrêmement monochromatiques, avec une largeur spectrale $\Delta\lambda/\lambda$ de l'ordre de 10^{-5} [56] A cette largeur spectrale très

fine correspond un temps de cohérence, et donc une durée minimale limitée par Fourier, de l'ordre de la picoseconde [57].

Lorsqu'une impulsion XUV de durée femtoseconde, issue d'une source harmonique d'ordre élevé, est injectée à l'entrée du filament de plasma amplificateur, elle déclenche une réponse dynamique du plasma qui aboutit à une structure temporelle particulière de l'impulsion émise en sortie. Pour décrire l'amplification de l'harmonique XUV dans le plasma il est nécessaire d'utiliser un formalisme basé sur les équations de Bloch-Maxwell [58], pour décrire l'évolution du champ associé à la transition laser, couplé à la polarisation des dipôles émetteurs. La Figure I-10, tirée de [59], montre le résultat de simulations numériques basées sur ce formalisme. Dans cette figure est représenté le profil temporel de l'intensité de l'impulsion XUV amplifiée, calculé à différentes positions le long de la direction de propagation. Le champ associé à l'impulsion harmonique injectée à $z=0\text{mm}$, résonant avec la transition laser, provoque une polarisation du milieu, qui induit l'émission cohérente des dipôles à la longueur d'onde de l'inversion de population. On voit donc se former à la suite de l'impulsion harmonique une impulsion de sillage, qui est elle-même amplifiée en se propageant le long de la colonne de plasma. Lorsque l'intensité amplifiée devient suffisante (de l'ordre de l'intensité de saturation, ici à $z=3\text{mm}$) elle déclenche des oscillations de Rabi, dont la période est inversement proportionnelle à l'amplitude du champ. Ces oscillations de Rabi se manifestent par une succession de pics successifs, de durée très courte (quelques dizaines à une centaine de femtosecondes). Ces pics sont ensuite suivis d'une partie décroissante, qui correspond à la dépolarisation progressive des dipôles, sur une durée correspondant au temps de cohérence temporelle τ_c . De plus on voit sur la Figure I-10 qu'à partir de $z=4\text{mm}$, l'impulsion amplifiée cohérente induite par l'harmonique injectée est précédée par un piédestal qui est dû à la contribution de l'ASE.

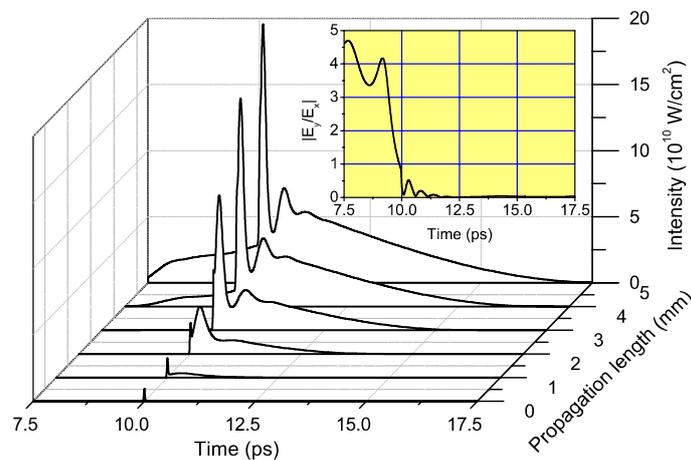


Figure I-10 : Evolution temporelle de l'intensité du champ amplifié à plusieurs positions le long de l'axe de propagation z , lorsqu'une impulsion XUV résonnante de durée fs est injectée à $z=0$ dans le plasma amplificateur. Figure tirée de [59].

La durée du piédestal ASE, ainsi que sa position et son niveau d'intensité par rapport à l'impulsion XUV cohérente dépendent de nombreux paramètres, notamment l'instant d'injection ou la durée de l'inversion de population. Ainsi d'autres simulations numériques réalisées en prenant en compte la réfraction et la diffraction du faisceau au cours de sa propagation [60] prédisent qu'en ajustant les paramètres de l'injection on peut obtenir en sortie une impulsion cohérente ultracourte (~ 10 fs), beaucoup plus intense

que le piédestal ASE. Les profils de la Figure I-10 sont donc uniquement destinés à illustrer les principales caractéristiques temporelles d'un laser XUV fonctionnant en mode injecté. Pour pouvoir contrôler le profil temporel des lasers XUV injectés dans les expériences il est donc essentiel de pouvoir le mesurer. Comme nous allons le voir, les techniques utilisées jusqu'à présent pour accéder au profil temporel des lasers XUV ne sont pas adaptées pour atteindre la résolution temporelle nécessaire (quelques centaines à quelques dizaines de femtosecondes).

II. Métrologie temporelle des sources XUV ultrabrèves

L'émergence récente de ces différentes sources XUV ultrabrèves intenses, que nous venons de présenter, a motivé un effort important pour développer des outils fiables, précis et polyvalents pour caractériser leurs principales propriétés. En particulier, la caractérisation temporelle précise de leur profil temporel, de leur phase spectrale et/ou de leur durée est particulièrement importante. D'une part pour assurer une interprétation correcte des données expérimentales acquises en utilisant ces sources, par exemple pour le sondage des processus dynamiques à des échelles de temps femtosecondes voir attosecondes. D'autre part pour permettre une meilleure compréhension de la physique des processus de génération qui contrôlent le profil temporel, elle-même nécessaire pour le développement de concepts de fonctionnement nouveaux et plus avancés.

La Figure I-11 montre l'allure typique des profils temporels (tels que prédits par des simulations numériques) correspondant aux trois types de sources XUV ultrabrèves que nous avons présentés dans la section 1 de ce chapitre : les lasers XUV à électrons libres (en mode SASE), les harmoniques d'ordre élevé attosecondes, les lasers XUV à plasma en mode injecté. On a vu dans cette section que la variété des processus physiques sous-jacents à la génération de ces impulsions XUV se reflétait directement dans leurs différents profils spectraux, qui correspondent donc à des profils temporels très dissemblables, ainsi que des durées d'impulsion très différentes. Dans les trois cas on voit qu'on est loin du profil d'impulsion gaussien largement répandu dans les sources pulsées « usuelles ». Ainsi la structure temporelle est composée d'une succession aléatoire de pics dans le cas des lasers XUV à électrons libres (Figure I-11 a), d'un train impulsions attosecondes régulièrement espacées pour les harmoniques d'ordre élevé (Figure I-11 b). Comme on l'a vu le profil temporel du laser XUV à base du plasma fonctionnant en mode injecté, illustré dans la Figure I-11 c, présente une structure complexe composée de plusieurs pics intenses de courte durée suivis d'une partie décroissante, le tout reposant sur un piédestal ASE moins intense et de durée plus longue.

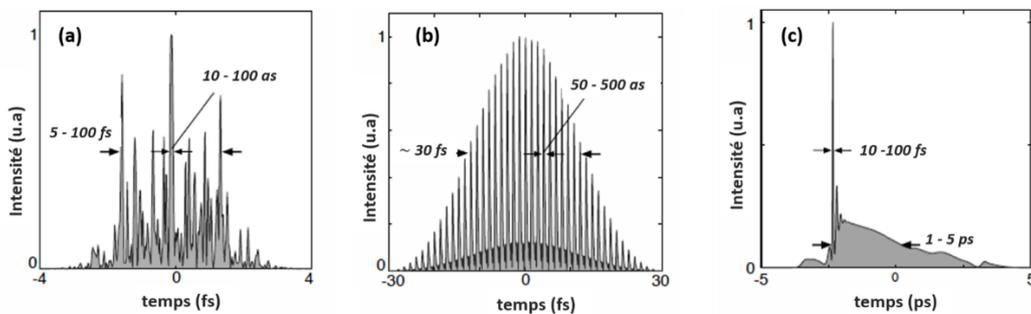


Figure I-11 : Profils temporels typiques (simulations numériques) de trois types de sources XUV ultrabrèves: (a) laser à électrons libres (SASE), (b) harmoniques d'ordre élevé et (c) laser XUV à base du plasma en mode injecté. Dans chaque cas les échelles temporelles mises en jeu sont indiquées.

Pour ces trois types de sources XUV ultrabrèves, la caractérisation expérimentale du profil temporel représente jusqu'à présent un grand défi pour lequel des efforts importants sont investis au niveau international. Au cours des 15 dernières années, une instrumentation et des méthodes innovantes, adaptées aux spécificités de la source, ont ainsi été développées et mises en œuvre. Des progrès considérables ont notamment été réalisés pour la caractérisation temporelle des impulsions attosecondes basées sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé (HH) à partir de gaz [61], et pour celles des impulsions femtosecondes XUV basées sur les lasers à électrons libres [62] [63] en mode SASE ou en mode injecté. Dans la plupart des cas, la technique utilisée pour la mesure temporelle reposait sur la photoionisation d'atomes dans un gaz par l'impulsion XUV en présence d'un champ laser d'habillage [64] qui sera présentée en détail plus loin.

Dans cette thèse, démarrée dans le cadre du projet PIFOMETRIX (« PICO-Femto-attOsecond pulse temporal METRology for advanced Xuv sources ») du LabeX PALM, notre but était d'étudier la possibilité, encore largement inexplorée, d'étendre la technique de la photoionisation habillée par laser aux deux sources XUV ultrabrèves générées par plasma : harmoniques d'ordre élevé générées sur miroirs plasma d'une part, et laser XUV à base de plasma, fonctionnant en mode injecté, d'autre part. Ces deux sources sont (ou étaient) développées respectivement sur l'installation UHI100 du LIDYL (CEA-Saclay) et sur l'installation LASERIX de IJC-Lab (Faculté des Sciences, Orsay), installations où se sont déroulées les campagnes de mesures décrites dans les chapitres III à V de ce manuscrit. Avant d'expliquer en détail la technique utilisée pour caractériser temporellement ces deux sources, un aperçu sur les différentes techniques existantes est présenté dans la partie suivante.

II.1. Etat de l'art des techniques de caractérisation temporelle des sources XUV ultrabrèves

II.1.1. Caméras streak à balayage de fente

La résolution temporelle d'impulsions lumineuses, à l'échelle nanoseconde à picoseconde, a été rendue possible dans les laboratoires par le développement des caméras à balayage de fente (ou Streak camera en anglais) [65]. Initialement réservées au domaine IR-visible-UV elles ont été étendues au domaine X en 1974, par Coleman et Mc Conaghy [66]. Le concept de base d'une caméra à balayage conventionnelle est de convertir une impulsion photonique en un paquet d'électrons par photoémission à partir d'une photocathode. Les photoélectrons sont ensuite accélérés vers le détecteur tout en étant déviés transversalement par une rampe de tension rapide. Ainsi les premiers électrons, émis au début de l'impulsion lumineuse, vont subir une faible déviation, alors que les suivants vont ressentir un champ plus important et être déviés de plus en plus fortement en fonction de leur instant d'émission. La résolution temporelle est donc convertie en résolution spatiale dans la direction perpendiculaire au temps de vol des électrons.

La résolution temporelle des caméras Streak est limitée notamment par la rapidité de balayage du champ électrique, et par la dispersion en énergie des photoélectrons émis par la photocathode. Différentes techniques ont été développées, (tension pulsée de la photocathode [67], commutateurs photoconducteurs [68]) pour repousser la limite de résolution jusqu'à 100 fs, dans le domaine IR-visible-UV. Une résolution temporelle de ~350 fs a été démontrée pour des impulsions de rayonnement X d'énergie 2-5 keV [69]. Dans le domaine X mou et XUV (quelques dizaines à quelques centaines d'eV), la résolution temporelle effectivement démontrée reste actuellement limitée à ~1 ps.

Les caméras Streak X ultrarapides ont permis de réaliser en 2001 la première mesure de durée d'un laser XUV pompé en régime transitoire et fonctionnant en mode ASE [46], puis quelques années plus tard d'étudier la variation de cette durée en fonction de la durée de l'impulsion de pompe [47]. Enfin en 2009 une durée minimale de l'ordre de 1 ps a été mesurée par l'équipe de J.J. Rocca (CSU, USA) [70] pour un laser XUV transitoire émettant à 32.6 nm et fonctionnant en mode injecté. Ces mesures ont donc été réalisées avec une résolution temporelle du même ordre grandeur, ou légèrement inférieure aux durées mesurées. Même si les caméras Streak ont le grand avantage de fournir une caractérisation monotir de l'impulsion XUV, elles ne permettent pas d'atteindre une résolution temporelle femtoseconde, encore moins attoseconde. Il faut donc avoir recours à d'autres techniques.

II.1.2. Autocorrélation XUV- ionisation à deux photons

Le développement de méthodes de caractérisation temporelle d'impulsions, à l'échelle femtoseconde à attoseconde, est un enjeu partagé par toutes les sources XUV ultrabrèves décrites dans la section 1. Les avancées les plus significatives ont été réalisées avec les harmoniques XUV gaz [61] et avec les lasers XUV à électrons libres [62]. Ainsi l'autocorrélation en intensité (ou du deuxième ordre) a été utilisée pour mesurer la durée des impulsions du laser XUV à électrons libres FLASH (Allemagne) [71]. Cette technique consiste à diviser l'impulsion à caractériser en deux répliques identiques, et à les recombinaison dans un gaz pour produire un processus non-linéaire, lorsqu'elles sont superposées spatialement et temporellement. Dans ces expériences l'ionisation (simple ou double) à deux photons d'atomes d'hélium était utilisée comme processus non-linéaire. L'intensité du processus en fonction du retard entre les deux répliques était mesurée par la présence des ions (He^+ ou He^{2+}), équivalente à la courbe d'autocorrélation en intensité, à partir de laquelle durée de l'impulsion XUV à caractériser peut-être déduite (en supposant un profil gaussien).

Dans le domaine attoseconde (ou sub-femtoseconde) l'autocorrélation en intensité a été appliquée aux harmoniques d'ordre élevé générées dans des gaz, pour mesurer la durée moyenne d'une impulsion d'un train d'impulsions attoseconde [72] ou d'une impulsion attoseconde unique [73]. Enfin, en 2009, cette technique a été appliquée aux harmoniques générées par miroir plasma [74] étudiées dans cette thèse. Les expériences ont permis de confirmer la génération d'un train d'impulsions, avec une durée τ_{XUV} de 900 as pour chaque impulsion individuelle [75].

Malgré que la technique d'autocorrélation a fourni une preuve très directe de l'existence des impulsions attosecondes, elle reste cependant très difficile à mettre en œuvre. Elle nécessite des intensités XUV focalisées élevées, pour que la mesure de durée soit fiable. De plus, elle ne permet pas d'avoir une reconstruction complète du champ électrique de l'impulsion puisqu'elle ne permet pas d'accéder à la phase spectrale. Cette information est pourtant particulièrement importante pour les sources XUV attosecondes, issues de la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

II.1.3. Corrélation croisée : photoionisation en présence d'un champ d'habillage

Au cours des années 90, la méthode qui fut trouvée pour caractériser temporellement les impulsions XUV femtoseconde est basée sur le phénomène de photoionisation à deux couleurs, étudié par l'équipe de Pierre Agostini en France [76] et celle de Charles Vernon Shank aux Etats Unis [77].

L'idée centrale de cette technique est de profiter de la courte longueur d'onde des impulsions étudiées afin de photoioniser les molécules ou les atomes d'un gaz. Le profil temporel d'émission des photoélectrons ainsi créés correspond au profil d'intensité de l'impulsion excitatrice que l'on va chercher

à mesurer. La réalisation de la photoionisation à deux couleurs aussi nommée photoionisation en présence d'un champ laser appelé « champ d'habillage » dont le principe est illustré dans la Figure I-12, s'effectue en focalisant simultanément dans un jet de gaz l'impulsion XUV à caractériser et une impulsion de rayonnement à plus grande longueur d'onde (Infrarouge ou TéraHertz). Dans un phénomène de photoionisation, l'énergie cinétique des photoélectrons émis est généralement donnée par la différence entre l'énergie des photons incidents et le potentiel d'ionisation (I_p) des atomes de gaz cible. La présence d'un champ d'habillage induit une variation de l'énergie cinétique des photoélectrons émis. La mesure de la distribution de l'énergie cinétique des photoélectrons produits, fournit un spectre de photoélectrons. Cependant, l'évolution d'un tel spectre en fonction du retard imposé à l'impulsion d'habillage par rapport à l'impulsion XUV permet de retrouver les propriétés de cette dernière et notamment sa durée.

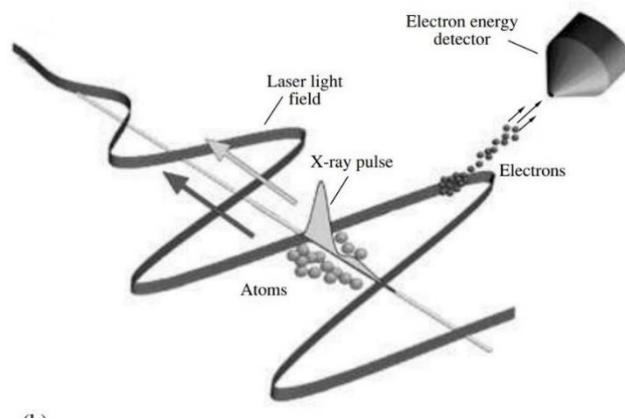


Figure I-12: Principe de la photoionisation habillée par laser : les atomes cibles sont ionisés par une impulsion XUV en présence d'une impulsion d'habillage. Les photoélectrons émis sont dirigés vers un spectromètre à électrons placé dans un plan parallèle à la polarisation de deux impulsions. Schéma tiré de [78].

Ce principe de base a donné naissance à une grande diversité de méthodes, adaptées en fonction des caractéristiques de la source. Pour les harmoniques d'ordre élevé générées dans des gaz, plusieurs techniques ont ainsi été démontrées avec succès: RABBIT (Reconstruction of Attosecond Beatings By Interference of Two-photon transitions) [79], streaking attoseconde [80], ou encore FROG-CRAB (Frequency-Resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Bursts) [81]. Pour les lasers XUV à électrons libres, de durée plus longue, la technique de streaking THz [82] [83] [84] [85] a permis des progrès importants dans la mesure de durée en un seul tir.

II.1.4. Autres techniques de corrélation croisée

Une autre approche, utilisant la corrélation entre l'impulsion XUV à caractériser et une autre impulsion à une longueur d'onde différente, consiste à perturber sur un temps court la transmission ou la réflexion d'une lame placée dans le trajet du faisceau. Cette technique a été démontrée pour la première fois en 2013, pour mesurer en un seul tir la durée de l'impulsion du laser XUV à électrons libres de FLASH [86].

Une méthode similaire a été mise en œuvre plus récemment par l'équipe de Stéphane Sebban au LOA-ENSTA, pour mesurer la durée d'impulsion d'un laser XUV pompé en régime OFI et fonctionnant en mode injecté. Dans cette expérience la réflectivité d'un miroir multicouche XUV est perturbée par l'arrivée d'une impulsion femtoseconde infrarouge, suffisamment intense pour endommager la couche

réfléchissante instantanément (i.e. sur un temps court devant la durée à mesurer). Ce diagnostic a en particulier permis de démontrer une diminution significative de la durée de l'impulsion, lorsque la densité électronique du plasma amplificateur est augmentée. Ainsi lorsque la densité électronique passe de 4 à $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, la durée de l'impulsion XUV mesurée est réduite de 1.4 ps à 520 fs [35].

II.2. Bases théoriques de la photoionisation habillée par laser

II.2.1. Interprétation semi-classique

On rappelle tout d'abord la description classique de la dynamique de l'électron lors de l'ionisation d'un atome dans son niveau fondamental simultanément par deux impulsions de rayonnement : (i) un rayonnement de grande fréquence $\omega_{XUV} \gg I_p$ capable d'arracher l'électron vers le continuum et (ii) un rayonnement de faible fréquence $\omega_L \ll I_p$ et d'intensité modérée, de sorte que le champ d'habillage correspondant n'affecte pas l'état lié des électrons à l'intérieur de l'atome. Cette grande différence de fréquence entre les champs utilisés ($\omega_{XUV} \gg \omega_L$) permet de séparer le processus de photoionisation à deux couleurs en 2 étapes successives: l'ionisation de l'atome par absorption d'un photon XUV, puis une accélération de l'électron libéré dans le continuum par le champ laser (E_L) [87].

D'une manière classique, au moment de l'ionisation (t_i) de l'atome par le champ XUV, l'électron est éjecté dans le continuum avec une énergie cinétique initiale $W_0 = m_e v_0^2/2 = E_{XUV} - I_p$, où v_0 représente la vitesse initiale de l'électron. L'effet du potentiel ionique sur le mouvement de l'électron libéré dans le continuum est négligé en raison de la grande valeur de ω_{XUV} par rapport à I_p . Lorsqu'un champ d'habillage est présent, la vitesse de l'électron (en unités atomiques), varie en fonction du temps selon:

$$v(t) = -A(t) + (v_0 + A(t = t_i)) \quad (\text{équation I-1})$$

$A(t)$ étant le potentiel vecteur total de deux impulsions, donné par $A(t) = A_{XUV}(t) + A_L(t)$, qui sont respectivement les potentiels du champ XUV et du champ laser d'habillage. Etant donné que $|A_{XUV}(t)| \approx \frac{|E_{XUV}(t)|}{\omega_{XUV}}$, et $|A_L(t)| \approx \frac{|E_L(t)|}{\omega_L}$, et en raison de la différence des fréquences et des amplitudes entre les deux champs, le terme A_{XUV} est négligeable devant A_L , et l'équation précédente s'écrit alors :

$$v(t) = -A_L(t) + (v_0 + A_L(t_i)) \quad (\text{équation I-2})$$

Le premier terme de l'équation ci-dessus correspond à l'oscillation de l'électron libre dans le champ laser, dont la moyenne est nulle une fois que l'impulsion laser d'habillage est terminée : $A_L(t) = 0$. La vitesse de l'électron v_f , mesurée expérimentalement à la fin de l'interaction, vaut donc :

$$v_f = v_0 + A_L(t_i) \quad (\text{équation I-3})$$

L'énergie cinétique finale de l'électron dépend donc de la phase du potentiel vecteur $A_L(t_i)$ (et donc de du champ $E_L(t_i)$) à l'instant d'ionisation t_i où l'électron est libéré. Autrement dit, en fonction de leur instant d'ionisation t_i les électrons interagissent avec le champ d'habillage à différentes phases,

conduisant à des énergies cinétiques différentes. Le champ d'habillage $E_L(t)$, qu'on suppose polarisé linéairement, s'écrit :

$$E_L(t) = E_{0L}(t) \cdot \cos(\omega_L t + \varphi) \quad (\text{équation I-4})$$

A l'instant d'ionisation (t_i), le potentiel vecteur correspondant, dans l'approximation d'enveloppe lentement variable vaut donc :

$$A_L(t_i) = \int_{t_i}^{+\infty} E_L(t) dt = -\frac{E_{0L}}{\omega_L} \sin(\omega_L t_i + \varphi) \quad (\text{équation I-5})$$

En posant $\Phi_i = \omega_L t_i + \varphi$, et en utilisant l'équation I-3, on trouve que l'expression de l'énergie cinétique finale de l'électron $W = m_e v_f^2 / 2$ s'écrit [88]:

$$W = W_0 + 2U_p \cos 2\theta \sin^2(\Phi_i) \pm \sigma \sqrt{8W_0 U_p} \cos \theta \sin(\Phi_i) \quad (\text{équation I-6})$$

$$\text{Avec } \sigma = \sqrt{1 - \left(\frac{2U_p}{W_0}\right) \sin^2 \theta \sin^2(\Phi_i)} \quad (\text{équation I-7})$$

$$U_p = \frac{e^2 E_{0L}^2}{4m_e \omega_L^2} = \frac{E_{0L}^2}{4\omega_L^2} \quad (\text{équation I-8})$$

L'énergie pondéromotrice U_p représente l'énergie cinétique acquise par l'électron dans le champ laser de fréquence ω_L , W_0 est l'énergie cinétique initiale des photoélectrons, θ l'angle entre le vecteur vitesse du photoélectron et la direction de polarisation du champ d'habillage.

L'équation I-6 montre à nouveau clairement que l'énergie cinétique finale W dépend de la phase Φ_i à l'instant d'ionisation du champ d'habillage, qui induit une modulation périodique. Par ailleurs, on voit que le décalage en énergie $\Delta W = W - W_0$ varie en fonction de l'angle θ .

II.2.2. Description quantique de l'habillage

L'impulsion XUV ultrabrève génère un paquet d'ondes électronique dans le continuum lors de la photoionisation de l'atome cible. Pour étudier en détail l'effet d'un champ laser de basse fréquence sur les électrons libérés, un traitement quantique est nécessaire. Ce modèle proposé par Dykhne et Yudin en 1977 [87], permet d'étudier comment le champ laser affecte l'énergie cinétique des photoélectrons en menant dans un cas à l'apparition des pics supplémentaires et dans d'autre à un élargissement dans le spectre en énergie, comme nous expliquons dans la partie II.2.2.3 de ce chapitre.

II.2.2.1. Photoionisation avec l'impulsion XUV seule

On considère un atome dans l'approximation d'un seul électron actif ionisé par un champ électrique XUV (E_{XUV}). Dans le cadre de la théorie des perturbations au premier ordre, la probabilité pour qu'un électron soit libéré de l'atome avec une quantité de mouvement v , à la suite de l'ionisation, est exprimée par l'amplitude $a_v(W)$. C'est l'amplitude de transition d'un électron de son état fondamental vers un état final $|v\rangle$ de continuum, donnée (en unités atomiques) par l'expression [88]:

$$a_v(W) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} d_v E_{XUV}(t) e^{iI_p t} \cdot e^{iWt} dt \quad (\text{équation I-9})$$

$$= -i \int_{-\infty}^{+\infty} d_v E_{XUV}(t) e^{i(W+I_p)t} dt$$

$$= -iTF[d_v E_{XUV}(t) e^{i(W+I_p)t}]$$

$$= -id_v |\tilde{E}_{XUV}(W + I_p)| \cdot e^{i\varphi_{XUV}(W+I_p)} \quad (\text{équation I-10})$$

où d_v correspond à l'élément de la matrice de transition dipolaire de l'état fondamental au continuum, \tilde{E}_{XUV} est la transformée de Fourier du champ $E_{XUV}(t)$, $W = 1/2m_e v^2$ est l'énergie cinétique de l'électron dans l'état final $|v\rangle$, I_p est le potentiel d'ionisation de l'atome et φ_{XUV} représente la phase spectrale du champ XUV.

L'équation I-9 relie le paquet d'ondes électronique au spectre du rayonnement XUV qui le promeut dans le continuum, et le spectre électronique $|a_v(W)|^2$ au spectre du rayonnement XUV, à la fois en phase et en amplitude. D'après l'équation I-10, on constate que le champ XUV dans le domaine temporel et le paquet d'onde électronique généré après ionisation de l'atome sont reliés par une transformée de Fourier. Le paquet d'onde électronique $d_v \tilde{E}_{XUV}(W + I_p)$ a les mêmes propriétés en amplitude et en phase que l'impulsion XUV initiale à un déphasage et un décalage près (dans le terme I_p du fait de l'ionisation). La grandeur physique accessible expérimentalement est le spectre des photoélectrons $S_v(W)$, qui peut être considéré comme une réplique du spectre des photons XUV tel que :

$$S_0(W) = |d_v \tilde{E}_{XUV}(W + I_p)|^2 \quad (\text{équation I-11})$$

Au final, la caractérisation spectrale du paquet d'électrons, par la mesure de leur distribution d'énergie cinétique, fournit une information sur la structure temporelle de l'impulsion XUV. Cependant, pour obtenir une caractérisation complète d'une impulsion, il est également nécessaire de déterminer l'évolution temporelle de son amplitude et de sa phase.

II.2.2.2. Modèle SFA en présence du champ laser

La méthode la plus simple pour étudier théoriquement la photoionisation en présence d'un champ d'habillage est basée sur une approximation appelée « Strong Field Approximation » (SFA), ou approximation du champ fort [89]. Cette approche consiste à négliger les effets de la structure atomique en particulier le potentiel coulombien lors de la propagation d'un électron dans un champ laser. Dans le cas de l'approximation de l'électron actif unique, en résolvant l'équation de Schrödinger, l'amplitude de transition d'un électron vers l'état final $|v\rangle$ est exprimée en fonction du retard relatif (τ) entre l'impulsion XUV et le champ laser d'habillage. Cette expression, basée sur les travaux [90][91], est donnée par la formule suivante :

$$a_v(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt d_{p(t)} \cdot E_{XUV}(t - \tau) e^{-i \int_t^{+\infty} dt' [p^2(t')/2 + I_p]}$$

$$= -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt d_{p(t)} \cdot E_{XUV}(t - \tau) e^{i[I_p t - \int_t^{+\infty} dt' p^2(t')/2]} \quad (\text{équation I-12})$$

La quantité de mouvement instantanée de l'électron libre dans le champ laser est représentée par $p(t)$, qui est égal à $p(t) = v + A(t)$, où $A(t)$ est le potentiel vecteur du champ laser. L'intégrale contenant le terme $p^2(t')/2$ représente l'intégrale de l'énergie instantanée d'un électron libre dans le champ laser, depuis l'instant d'ionisation de l'atome jusqu'à l'instant de détection. Afin de mieux comprendre l'effet du champ laser d'habillage sur le paquet d'électrons et pour faciliter la comparaison entre les équations I-9 et I-12, respectivement sans et avec habillage, le terme $p^2(t')$ est remplacé par $v^2 + A^2(t) + 2vA(t)$. De plus, rappelons que l'énergie cinétique de l'électron est donnée par $W = 1/2 m_e v^2 = v^2/2$. Ainsi, l'amplitude des probabilités peut être exprimée sous la forme suivante :

$$a_p(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt d_{p(t)} \cdot E_{XUV}(t - \tau) e^{i\Phi(t)} e^{i(W+I_p)t} \quad (\text{équation I-13})$$

$$\Phi(t) = - \int_t^{+\infty} dt' [v \cdot A(t') + A^2(t')/2] \quad (\text{équation I-14})$$

Le spectre des photoélectrons peut être par suite déduit puisque $S(\tau) = |a_p(\tau)|^2$.

On obtient donc l'expression du spectre en énergie $S(W, \tau)$ en présence du champ d'habillage:

$$S(W, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} dt d_{p(t)} \cdot E_{XUV}(t) e^{i\Phi(t-\tau)} e^{i(W+I_p)t} \right|^2 \quad (\text{équation I-15})$$

L'équation I-13 montre que le champ laser d'habillage introduit une modulation de phase temporelle sur le paquet d'électrons généré par le champ XUV, représentée par le terme $\Phi(t)$. De plus, la présence du produit scalaire $(v \cdot A(t'))$ dans l'équation I-14 indique clairement que l'effet du champ d'habillage ne se manifeste que lorsque la modulation de phase a une valeur non nulle. Par conséquent, l'effet d'habillage sera nul lorsque la polarisation du champ laser est perpendiculaire au vecteur vitesse des photoélectrons détectés. Par ailleurs, lorsqu'un champ laser d'habillage polarisé linéairement et a la forme $E_L(t) = E_{0L}(t) \cdot \cos(\omega_L t)$, avec une enveloppe qui varie lentement ($E_L \approx \text{constante}$) [88] est utilisé, l'équation I-14 permet de calculer la modulation de phase temporelle induite par le champ d'habillage sur le paquet d'électrons généré par l'impulsion XUV:

$$\Phi(t) = - \int_t^{+\infty} dt' \left[\frac{E_L^2(t')}{2\omega_L^2} \sin^2(\omega_L t') - \frac{v E_L(t')}{\omega_L} \sin(\omega_L t') \cos \theta \right] \quad (\text{équation I-16})$$

θ correspond à l'angle entre le vecteur vitesse v des photoélectrons et la direction de polarisation du champ laser d'habillage.

En résumé, l'importance fondamentale d'utiliser un champ d'habillage réside dans sa capacité à induire un déphasage $\Phi(t)$ sur le paquet d'ondes électroniques, qui dépend du retard τ entre les deux impulsions. Il est donc crucial de choisir expérimentalement ce retard en tenant compte de la durée de l'impulsion d'habillage utilisée, afin que les deux impulsions se recouvrent temporellement. Actuellement, la plupart des techniques de caractérisation temporelle complète des impulsions XUV ultrabrèves (allant de la femtoseconde à l'attoseconde) reposent sur la mesure des spectres $S(W, \tau)$ en faisant varier le retard τ , ce qui permet de déduire la phase spectrale de l'impulsion XUV à caractériser.

II.2.2.3. Régimes du processus de photoionisation habillée par laser

Différents scénarios du processus de photoionisation habillée par laser peuvent être discutés en fonction des caractéristiques de l'impulsion XUV et du champ laser d'habillage. Les paramètres critiques qui

déterminent la nature du processus sont la durée de l'impulsion XUV (τ_{XUV}) à caractériser, la durée d'habillage (τ_L) et la période du champ et sa période (T_L). Selon la valeur de T_L par rapport à τ_{XUV} , on observe différentes réponses au champ d'habillage, ce qui se traduit par des structures variées dans le spectre photoélectronique.

- Lorsque la durée de l'impulsion XUV est beaucoup plus courte que le cycle optique du champ laser d'habillage ($\tau_{XUV} \ll T_L$), la modulation de phase du paquet d'ondes électroniques peut être linéairement développée. En raison de cette modulation linéaire, la raie des photoélectrons est déplacée de sa position initiale vers une autre position déterminée par la valeur du potentiel vecteur du champ d'habillage au moment de l'ionisation. Cet effet est nommé "streaking" [90]. En fonction du décalage temporel relatif entre l'impulsion XUV et le potentiel vecteur du champ d'habillage, le spectre photoélectronique de l'impulsion XUV peut être soit élargi (streaked) soit décalé. Sachant que, lorsque l'impulsion XUV se recouvre temporellement avec un extremum du potentiel vecteur du champ d'habillage, un décalage maximal et un élargissement non prononcé du spectre photoélectronique est manifesté. Tandis que lorsque le recouvrement entre les deux impulsions s'établit par un passage par zéro du potentiel vecteur du champ d'habillage, le spectre des photoélectrons est élargi autour de l'énergie centrale. La technique de streaking a été largement utilisée pour caractériser les impulsions attosecondes, notamment dans [92], et elle a également été avec succès avec des lasers à électrons libres XUV [93].
- Par contre, lorsque la durée de l'impulsion XUV est plus longue que la période du champ laser d'habillage ($\tau_{XUV} \gg T_L$), les paquets d'ondes électroniques émis à des temps différents mais avec la même énergie finale vont subir un phénomène d'interférence dans le domaine spectral. Ce phénomène est due à la modulation périodique de l'énergie causée par le champ laser. Ces interférences donnent lieu à l'apparition des pics supplémentaires dans le spectre photoélectronique appelés bandes latérales ou « sidebands » en anglais. Les bandes latérales sont théoriquement provoquées par les termes $A^2(t)$ et $v \cdot A(t)$ de l'équation I-14, et elles représentent une absorption ou une émission stimulée d'un ou plusieurs photons de l'impulsion d'habillage. On se réfère à ce phénomène comme étant le régime de " sidebands " qui a été étudié théoriquement [94] [95] ainsi que sur le plan expérimental [96] [97].

Une explication détaillée donnée par Radcliffe et ses collaborateurs [64], montre la différence entre le régime de streaking et de sidebands. En outre, le cas intermédiaire, lorsque la durée d'impulsion XUV est proche ou égale à la période du champ d'habillage, a été observé expérimentalement en 2012 [98] et étudié théoriquement par Kazansky et al, [99] où ils expliquent la transition du régime de streaking vers le sidebands. Dans le cadre de cette thèse, on s'intéresse plutôt au régime de sidebands expliqué en détail dans la section ci-dessous.

II.2.2.4. Régime des sidebands

Malgré qu'une grande partie de la physique de ce processus est décrite par le modèle semi-classique, le phénomène d'interférence dans le domaine spectral reste un élément manquant dans ce modèle [100]. Pour décrire de façon plus fine le comportement des sidebands il est donc important de se baser sur le

modèle quantique de la photoionisation habillée par laser. Ce modèle est largement utilisé pour interpréter les expériences de caractérisation temporelle complète (en amplitude et en phase) des impulsions XUV femtosecondes voire attosecondes avec un champ d’habillage infrarouge de longueur d’onde de l’ordre de 800 nm ($T_{IR} \approx 2.66$ fs). Dans tout le reste de cette partie, pour simplifier l’écriture, on suppose que le champ d’habillage utilisé est une impulsion dans le domaine infrarouge. Dans le cas d’une impulsion XUV unique (à une seule fréquence ω_{XUV}) en présence d’un champ d’habillage, des transitions à multiphotoniques et à deux couleurs sont possibles. Ceci est représenté sur la Figure I-13.

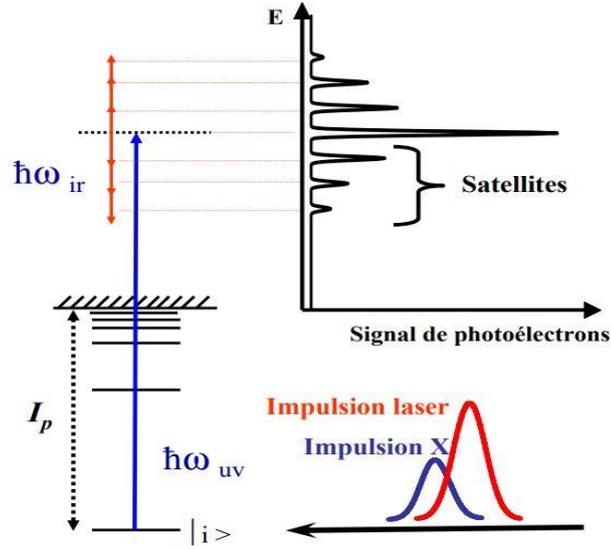


Figure I-13: Photoionisation à deux couleurs et formation de sidebands par absorption multiphotonique.

Les photoélectrons générés par l'absorption d'un photon XUV (flèche bleue) vont pouvoir induire des transitions libres-libres (flèches rouges) impliquant l'absorption ou l'émission stimulée d'un ou plusieurs photons infrarouges. Lors de l'analyse du spectre des photoélectrons, une raie principale due à l'ionisation par les photons XUV est observée, entourée par des bandes latérales séparées de multiples de la fréquence du champ laser comme $\pm \omega_{IR}, \pm 2\omega_{IR} \dots \pm n\omega_{IR}$. En supposant que n est un entier représentant le nombre des photons IR absorbés ou émis, l'énergie de photons des sidebands (SB) est alors donnée par :

$$E_{SB,n} = \hbar\omega_{XUV} \pm n \hbar\omega_{IR} \quad (\text{équation I-17})$$

D'une manière classique, l'énergie cinétique finale des photoélectrons XUV en présence d'un champ d'habillage infrarouge peut être écrite suivant l'équation I-6. La valeur maximale de cette énergie est pour $\cos \theta \sin(\Phi_i) = 1$, correspondant aux photoélectrons libérés suivant la direction de polarisation du champ d'habillage et à un passage par zéro du potentiel vecteur du champ IR. Dans ce cas, le décalage maximal de l'énergie cinétique finale des photoélectrons sera :

$$W_{max} = W_0 + 2U_p + \sqrt{8 W_0 U_p} \quad (\text{équation I-18})$$

Cette équation permet d'évaluer le nombre des sidebands présentes dans le spectre comme [76]:

$$N_{SB} = \frac{2\Delta W}{\omega_{IR}} = \frac{2\sqrt{8 W_0 U_p}}{\omega_{IR}} \quad (\text{équation I-19})$$

En remplaçant l'expression de U_p (équation I-8) dans l'équation I-19, N_{SB} peut être exprimé en fonction de l'intensité du champ d'habillage IR comme :

$$N_{SB} = cste \sqrt{8 W_0 I_{IR}} \quad (\text{équation I-20})$$

Le nombre des sidebands créées dans le spectre photoélectronique augmente donc proportionnellement avec la racine carrée de l'intensité du champ d'habillage.

L'énergie cinétique des photoélectrons à la position des sidebands est donnée par l'expression suivante :

$$E_{SB,n} = \hbar\omega_{XUV} - I_p \pm n \hbar\omega_{IR} - U_p \quad (\text{équation I-21})$$

Où n est un entier représentant le nombre des photons IR absorbés ou émis, I_p est le potentiel d'ionisation de l'atome cible, et U_p est le potentiel pondéromoteur, ou décalage pondéromoteur, correspondant à l'effet Stark causé par le champ d'habillage IR sur le potentiel d'ionisation des atomes [101].

Partant de l'expression initiale (équation I-8) : $U_p = \frac{e^2 E_{0IR}^2}{4m_e \omega_L^2}$ et en utilisant $I \propto |E_{0IR}|^2$ [102], on obtient l'expression de ce décalage pondéromoteur en fonction de la longueur d'onde et de l'intensité du champ d'habillage comme:

$$U_p [eV] = 9.33 \times 10^{-14} \times \lambda_{IR}^2 [\mu m^2] \times I_{IR} [W.cm^{-2}] \quad (\text{équation I-22})$$

En comparant la position en énergie cinétique des raies dans le spectre des photoélectrons obtenue avec et sans champ d'habillage, il est ainsi possible de déduire ou calibrer l'intensité du champ d'habillage effectivement présent dans la zone d'interaction, comme montré dans [103].

Des conditions expérimentales essentielles doivent être vérifiées autre que l'intensité suffisante de l'habillage ($I_{IR} > 10^{11} \text{ W/cm}^2$), notamment la synchronisation spatiale et temporelle entre l'impulsion XUV ionisante et le champ d'habillage [104].

La présence des sidebands dans le spectre photoélectronique a été à l'origine du développement de plusieurs techniques de caractérisation temporelle des impulsions XUV ultrabrèves. Ainsi la technique RABBITT (Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of two-photon Transitions) a permis la caractérisation des trains d'impulsions attosecondes émis par les sources harmoniques d'ordre élevé générées dans des gaz [79], grâce à la mesure des phases spectrales relatives des harmoniques successives. La technique de corrélation croisée décrite en détail dans les articles de Schins et al [105]

et Bouhal et al [106], que nous avons mentionnée dans la section II.1.3, avait quant à elle permis de mesurer la durée de l'enveloppe de ce train d'impulsion, à l'échelle femtoseconde. Cette méthode repose sur la mesure de la variation du signal des sidebands en fonction du délai XUV/IR, qui fournit la fonction de corrélation croisée entre les enveloppes de deux impulsions, donnée par:

$$I_{SB}^{(n)}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} f[I_{IR}(t - \tau)] I_{XUV}(t) dt \quad (\text{équation I-23})$$

La durée du champ d'habillage IR utilisé étant connue, et dans le cas où l'intensité des sidebands dépend linéairement de l'intensité I_{IR} , on peut ainsi déterminer par déconvolution celle de l'impulsion XUV $\tau_{correlation}^2 = \tau_{IR}^2 + \tau_{XUV}^2$. La durée de l'impulsion XUV à caractériser est finalement donnée par l'expression suivant :

$$\tau_{XUV} = \sqrt{\tau_{correlation}^2 - \tau_{IR}^2} \quad (\text{équation I-24})$$

III. Distribution angulaire de photoélectrons

Nous avons constaté d'après les équations I-14 et I-15 que l'effet du champ d'habillage dans le spectre des photoélectrons varie angulairement en fonction de l'angle θ défini comme étant l'angle entre les vecteurs vitesses des photoélectrons émis et la direction de polarisation de l'impulsion d'habillage utilisé. Cet effet sera maximal pour un angle $\theta = 0^\circ$, et devient nul pour $\theta = 90^\circ$. L'observation de la variation de l'effet du champ d'habillage à différents angles θ sera donc essentiel. La distribution angulaire de l'émission des photoélectrons est également une information importante pour comprendre la physique de la photoionisation des systèmes irradiés.

La forme générale de la distribution angulaire des photoélectrons (abrégée par la suite par le terme « DAP »), dont le calcul est détaillé par Cooper [107], repose sur le fait qu'une fonction d'onde photoélectronique (ψ_e), qui résulte de la diffusion d'un électron à partir d'un noyau atomique, peut toujours être exprimée en termes de superposition de fonctions harmoniques sphériques ($Y_{LM}(\theta, \Phi)$) [108]. La DAP résulte du carré cohérent de la fonction d'onde (ψ_e) peut être exprimée comme :

$$I(\theta, \Phi) \propto \psi_e^* \psi_e = \sum_{L=0}^{Lmax} \sum_{M=-L}^L \beta_{LM} Y_{LM}(\theta, \Phi) \quad (\text{équation I-25})$$

Les coefficients " β_{LM} " varient en fonction du processus de photoionisation lui-même, y compris la dynamique de la photoionisation, l'orbite à partir de laquelle l'électron est éjecté, l'énergie de photoionisation et la polarisation du rayonnement ionisant. Le premier coefficient, " β_{00} ", est proportionnel à l'intensité des photoélectrons intégrés angulairement, tandis que les coefficients suivants décrivent l'anisotropie de la distribution angulaire des photoélectrons. Ainsi, nous pouvons observer que toute la physique de la photoionisation des gaz rares (et des molécules) est encapsulée dans le paramètre d'anisotropie β_{LM} , également connu sous le nom de paramètre d'asymétrie, qui est l'élément essentiel étudié au sein du chapitre V. Les deux angles θ et Φ sont définis en fonction de la direction de polarisation et de la direction de propagation des photons incidents, comme illustré dans la Figure I-14.

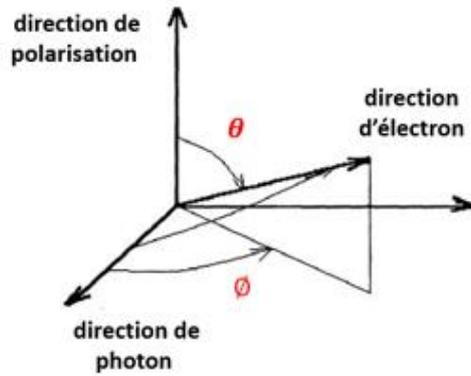


Figure I-14 : Définition des angles θ et Φ relativement à la direction de polarisation et de propagation des photons.

Partant de la formule générale de la distribution angulaire des photoélectrons donnée par l'équation I-25, les fonctions harmoniques sphériques $Y_{LM}(\theta, \Phi)$ peuvent être substituables (sous certaines conditions) avec des polynômes de Legendre. Dans la section suivante, l'expression de la section efficace différentielle de la photoionisation d'un gaz rare pour différents états de polarisation du rayonnement ionisant est discutée. Une discussion plus détaillée des équations sera présentée dans le chapitre 5.

III.1. Cas d'un rayonnement polarisé linéairement

Dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, lorsqu'un photon interagit avec une cible atomique ou moléculaire, la corrélation angulaire entre le photon incident et le photoélectron éjecté est proportionnelle à une combinaison linéaire de 1 et $\cos^2\theta$, où θ représente l'angle d'éjection du photoélectron sortant par rapport au vecteur de polarisation du photon incident [109] [110]. Notant que cette approximation est valide lorsque la longueur d'onde du photon est beaucoup plus grande que les dimensions de la cible (atomes ou molécules). Autrement dit, l'onde ne varie pas à l'intérieur de l'atome. Généralement, la section efficace différentielle pour la photoionisation à un photon d'un gaz par une lumière incidente polarisée linéairement, dans l'approximation dipolaire électrique, peut être écrite comme [111]:

$$\left[\frac{d\sigma}{d\Omega}\right]_{pol} = \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} [1 + \beta P_2(\cos\theta)] \quad (\text{équation I-26})$$

Où σ_{tot} est la section efficace totale qui détermine l'intensité globale du processus, $P_2(\cos\theta) = (3\cos^2\theta - 1)/2$ est le polynôme de Legendre d'ordre 2.

D'après l'équation I-26, on constate que la distribution angulaire est entièrement déterminée par le paramètre d'asymétrie β , qui incarne toutes les informations dynamiques relatives à la distribution angulaire. Vue l'exigence que la valeur de $d\sigma/d\Omega$ soit toujours positive pour toutes les valeurs de θ , la valeur du paramètre β est limité dans la gamme $-1 \leq \beta \leq +2$. Cependant, dans le cas d'une photoionisation multi-photonique, le signal total sera la somme des polynômes de Legendre d'ordre supérieur [112], l'équation I-26 sera donc étendue en :

$$I(\theta) \propto 1 + \beta_2 P_2(\cos\theta) + \beta_4 P_4(\cos\theta) + \dots + \beta_n P_n(\cos\theta) \quad (\text{équation I-27})$$

III.2. Cas d'un rayonnement non polarisé

En prenant en compte le cas où le rayonnement incident est non polarisé, Born et Wolf [113] ont démontré que la lumière incidente non polarisée peut être considérée comme une superposition incohérente de deux faisceaux polarisés linéairement, vibrant le long des axes orthogonaux x et y et se propageant suivant z avec une intensité équivalente [110]. L'expression de la section efficace différentielle devient alors la somme de deux signaux polarisés et peut être formulée de la manière suivante :

$$\left[\frac{d\sigma}{d\Omega} \right]_{NPol} = \frac{1}{2} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} [1 + \beta P_2(\cos\theta_x)] + \frac{1}{2} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} [1 + \beta P_2(\cos\theta_y)] \quad (\text{équation I-28})$$

Par ailleurs, l'expression de la section efficace différentielle peut être simplifiée [110] sous la forme

$$\left[\frac{d\sigma}{d\Omega} \right]_{NP} = \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \left[1 - \frac{1}{2} \beta P_2(\cos\theta_z) \right] \quad (\text{équation I-29})$$

Dans le travail que nous allons présenter, nous avons utilisé un nouveau spectromètre à électrons de type imageur de vitesses (VMI pour Velocity-Map Imaging Spectrometer), pour accéder à la distribution angulaire des photoélectrons. On verra que cette information angulaire joue un rôle central et précieux dans les expériences de photoionisation habillée par laser que nous décrirons dans les chapitres III et IV. Au chapitre V nous montrerons que la distribution angulaire peut également être utilisée pour remonter à des informations sur l'état de polarisation de la source.

Chapitre II

Conception et caractérisation d'un spectromètre imageur de vecteur vitesse

I. Introduction

L'étude des particules émises lors de l'interaction d'un système avec un faisceau ionisant (photons, particules) permet d'obtenir des informations à la fois sur l'interaction elle-même et sur le système en question. Ces particules émises sont très souvent des électrons, ce qui a amené à développer les techniques d'analyse de ceux-ci. Pour ce faire, la technique de la spectroscopie électronique est donc nécessaire. Un spectromètre à électrons est un appareil qui sert à mesurer un ou plusieurs paramètres caractérisant les électrons émis (énergie cinétique, angle d'émission, polarisation de spin) suite à une interaction entre une cible (atome, molécule, surface, solide...) et un faisceau ionisant. Actuellement, il existe plusieurs types de spectromètres à électrons. Comme expliqué ci-dessous, un tel appareil peut s'appuyer sur différents principes de fonctionnement.

Un spectromètre à temps de vol ou **TOF** pour « Time-Of-Flight » [114], mesure le temps écoulé entre l'émission d'un électron et sa détection à une position de l'espace donnée. En pratique, il est constitué d'un long tube placé entre la zone d'interaction d'où les électrons sont issus et un détecteur. Ce dernier reçoit les électrons émis dans une toute petite partie de l'espace (à un angle solide donné). En mesurant le temps écoulé depuis l'émission des électrons et connaissant la longueur du tube, il est possible de calculer la vitesse et donc l'énergie cinétique d'émission suivant :

$$Ec = \frac{1}{2} m_e v_e^2 = \frac{m_e L^2}{2 t^2} \quad (\text{équation II-1})$$

avec m_e la masse de l'électron, L la distance entre la région d'émission des électrons et le détecteur et t le temps nécessaire pour que les électrons atteignent le détecteur. Les électrons ayant de grandes énergies cinétiques arriveront en premier, tandis que les derniers correspondront à ceux de plus faibles énergies.

Cette technologie du temps de vol a été améliorée en utilisant le principe d'un spectromètre à temps de vol à bouteille magnétique ou, en anglais, **MBES** pour « Magnetic Bottle Electron Spectrometer ». Le principe d'un tel analyseur est de guider les électrons jusqu'au détecteur au moyen de lignes de champ magnétique. En pratique, il est constitué d'un tube autour duquel est bobiné un fil électrique, l'ensemble constituant un solénoïde. Un aimant est placé en face du solénoïde au plus près de l'intersection entre le faisceau ionisant et le jet de gaz. Les lignes de champ magnétique de ces deux composants se combinent en décrivant la forme d'une bouteille d'où le nom de ce spectromètre. Ces lignes de champ guident donc pratiquement tous les électrons émis du volume source jusqu'au détecteur, ce qui donne une efficacité de détection très élevée (collection proche de 4π stéradians au lieu d'un angle solide défini par la taille et la distance du volume source au détecteur dans un TOF) et donc un signal beaucoup plus fort par rapport au TOF ordinaire. La première conception d'une bouteille magnétique permettant la

détection de photoélectrons avec un niveau de signal important a été proposée en 1983 par Kruit et Read [115].

La première technique que j'ai présentée consiste à mesurer le temps de vol des électrons jusqu'au détecteur (TOF ou MBES). Un autre principe consiste à interagir avec ces électrons au moyen d'un champ électrostatique afin de modifier leur trajectoire en fonction de leur énergie cinétique. Le développement de l'électronique puis de l'informatique a permis de réaliser des analyseurs électrostatiques très performants tels qu'aujourd'hui les analyseurs hémisphériques (HSA) [116]. Ce type d'analyseur est constitué généralement de deux électrodes creuses hémisphériques entre lesquelles est appliquée une différence de potentiel constante. Les électrons émis dans le volume source entrent par une fente étroite et sont focalisés sur le détecteur. Ainsi, pour une tension donnée, cet analyseur ne transmet jusqu'au détecteur que les électrons autour d'une énergie cinétique donnée appelée énergie de transmission ou énergie de passage. L'énergie cinétique des particules est calculée dans les analyseurs hémisphériques suivant l'équation suivante :

$$Ec = = \frac{q \Delta V}{c} \quad (\text{équation II-2})$$

avec q la charge de la particule, ΔV la différence de potentiel appliquée entre les électrodes et C la constante associée à la géométrie de l'analyseur. Malgré la faible transmission donnée par ce spectromètre et son coût assez élevé, l'analyseur hémisphérique dispose d'une résolution en énergie inégalée, ce qui fait qu'il est largement utilisé.

Si ces analyseurs électrostatiques proposent une excellente résolution spectrale, ils sont peu adaptés à la mesure de la distribution angulaire des électrons émis. Il existe actuellement des spectromètres à électrons qui au contraire permettent d'accéder aisément à cette information. On peut citer par exemple les spectromètres imageurs de vecteur vitesse (VMIS) ou « Velocity Map Imaging Spectrometer » proposés pour la première fois par Eppink et Parker en 1997 [117]. Les VMI permettent de mesurer non seulement l'énergie cinétique, mais aussi l'angle d'émission des particules émises. On accède aux composants du vecteur vitesse initial des électrons. Le principe d'un VMI consiste à projeter, au moyen d'un potentiel accélérateur, la sphère en expansion des électrons émis sur un détecteur capable de localiser en position les événements détectés. Généralement, le VMI standard est constitué de 3 électrodes concentriques sur lesquelles est appliquée une différence de potentiel entre la première et la deuxième électrode, ce qui va créer un champ électrostatique intense. Ce champ accélère la totalité des particules chargées créées au niveau du volume source localisé entre les deux premières électrodes vers le détecteur.

Le tableau ci-dessous montre les principales différences entre les spectromètres à électrons fréquemment employés. Des caractéristiques comme la transmission des photoélectrons (autrement dit, l'angle solide de détection), la distribution angulaire et la résolution spectrale, tout en tenant compte du coût, sont des conditions essentielles lors du choix du spectromètre à utiliser durant les expériences de photoionisation, en fonction du but recherché.

Spectromètres	Temps de vol	Lentille électrostatique	Transmission des photoélectrons	Distribution angulaire	Résolution spectrale
TOF	✓	X	quelques %	X	☹
Bouteille magnétique	✓	X	~ 100 %	X	😊
Analyseur hémisphérique	X	✓	quelques %	X	😊
VMI	X	✓	100 %	✓	☹

Tableau II-1: Tableau récapitulatif des principales différences entre les spectromètres à électrons.

Alors, quel type de spectromètre est le plus adapté aux études que l'on souhaite réaliser ? Dans notre travail, comme déjà expliqué dans le premier chapitre, afin de remonter au profil temporel des sources XUV, le diagnostic utilisé est basé sur la technique de la photoionisation habillée par laser (THz à infrarouge) où l'on mesure l'énergie et la distribution angulaire des photoélectrons émis par le rayonnement ionisant. Comme discuté dans le chapitre 1, la modulation du spectre de photoélectrons produite par le champ d'habillage varie avec l'angle d'émission des photoélectrons. La distribution angulaire des particules est donc une information essentielle pour déduire finalement le profil temporel complet des impulsions XUV. Pour étudier soigneusement l'effet du champ d'habillage, un spectromètre permettant de mesurer la variation induite de l'émission des électrons dans différentes directions est donc nécessaire.

En utilisant une bouteille magnétique, les informations angulaires sont perdues à cause du champ magnétique qui modifie les trajectoires des particules chargées avant leur arrivé au niveau du détecteur. Par ailleurs, en utilisant un spectromètre à temps de vol ou un analyseur hémisphérique, l'accès aux distributions angulaires est possible seulement en variant à chaque mesure l'angle du spectromètre, ou en modifiant la polarisation du laser, ce qui rend la mesure plus difficile et plus lente. Une autre façon possible serait d'utiliser simultanément deux TOF placés à 90° l'un de l'autre. Mais ce qui rend cette méthode difficile est la calibration relative des 2 TOF d'une part et d'autre part de s'assurer qu'ils regardent le même volume source. De plus, toute l'information angulaire hors de ces deux angles d'émission est perdue. Par contre, l'utilisation d'un spectromètre VMI donnant l'accès simultanément à toutes les distributions radiales et angulaires des photoélectrons, élimine le besoin de tourner ou de déplacer le spectromètre durant chaque mesure comme dans le cas du TOF ou de l'analyseur hémisphérique. De plus, toute l'information sur un seul tir est collectée simultanément, ce qui présente l'énorme avantage de s'affranchir des problèmes de fluctuation de la source de photons. Ceci nous a conduit à choisir finalement ce type de spectromètre.

Dans ce chapitre, un aperçu de la technique expérimentale d'imagerie de vecteur vitesse est présenté. Les dernières sections de ce chapitre sont dédiées à la calibration de cet instrument, ainsi qu'aux simulations numériques nécessaires pour optimiser les performances du spectromètre, en particulier la résolution spectrale.

II. Principe de fonctionnement du spectromètre VMI

Comme son nom l'indique, un spectromètre d'imagerie des vecteurs vitesses nous donne accès non seulement à la norme des vitesses des particules détectées, mais aussi à leur direction d'émission. Le principe de fonctionnement du VMI est illustré dans la Figure II-1 lors de la photoionisation d'un gaz cible (atomes, molécules) par un laser.

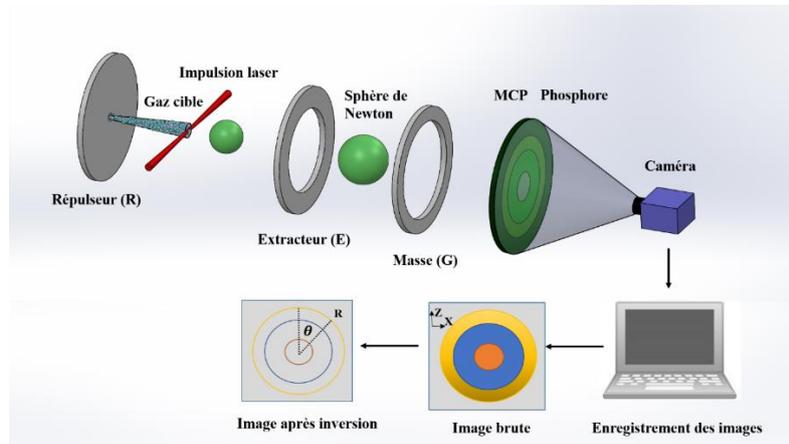


Figure II-1: Schéma explicatif du principe de fonctionnement d'un spectromètre VMI. L'angle θ correspond à l'angle entre le vecteur vitesse des particules chargées et la direction de polarisation du rayonnement ionisant.

Comme je l'ai déjà mentionné, un VMI dans sa version la plus simple est constitué de trois électrodes annulaires concentriques nommées respectivement le répulsor (R), l'extracteur (E) et une dernière mise à la masse (G) pour « ground » en anglais qui définit une zone de vol sans champ jusqu'au détecteur. Le faisceau ionisant est focalisé sur un jet de gaz entre les deux premières électrodes et forme par cette intersection ce qu'on appelle la zone d'interaction. Des électrons et des ions sont alors produits et forment un nuage électronique ou ionique en expansion appelé « sphère de Newton ». La différence de potentiels appliqué entre le répulsor et l'extracteur génère un champ électrostatique qui projette ces sphères en expansion dans le tube de vol sur un détecteur. L'électrode constituant l'extracteur étant annulaire, les lignes de champ créées présentent une courbure qui a un effet de focalisation sur les trajectoires de ces particules. Ceci implique que toutes les particules ayant le même vecteur de vitesse initial sont focalisées au même endroit sur le détecteur indépendamment de leur position d'émission, d'où le nom de lentille électrostatique. Le système de détection lui-même sensible à la position d'impact des particules est formé d'une ou plusieurs galettes à micro-canaux (MCP pour Micro-Channel Plate), couplée(s) à un écran phosphore qui a la propriété d'émettre un flash lumineux lors de l'impact d'un pulse d'électrons. L'image enregistrée à l'aide d'une caméra correspond à la projection des sphères de Newton (3D) sur un détecteur bidimensionnel (2D). Pour remonter à la distribution initiale des vitesses des particules émises à partir de cette sphère « écrasée » (la distribution spatiale des électrons sur le détecteur), une transformation d'Abel inverse est donc nécessaire. Cette transformation -pour être applicable- nécessite l'existence d'une symétrie cylindrique du système et donc d'un axe de symétrie cylindrique parallèle au plan du détecteur. Généralement l'axe de symétrie correspond à l'axe de polarisation du faisceau ionisant s'il est polarisé linéairement. Notons que la composante angulaire est conservée dans le spectre photoélectronique. Le principe de l'inversion d'Abel ainsi que les différentes

méthodes existantes pour la réaliser sont détaillés dans la partie II.3 de ce chapitre.

En utilisant un système de coordonnées polaires (R, θ), on peut donc obtenir des informations sur l'énergie cinétique des particules détectées en mesurant le rayon des raies suivant la relation suivante :

$$E_c = \frac{q V_{\text{Répulseur}} R^2}{C^2} \quad (\text{équation II-3})$$

q étant la charge des particules émises, $V_{\text{Répulseur}}$ la tension appliquée au répulseur, R le rayon mesuré et C la constante d'étalonnage du spectromètre VMI. Cette relation montre que pour un voltage de répulsion donné, les électrons les moins énergétiques seront localisés au centre du détecteur, tandis que les plus énergétiques seront détectés à des rayons plus grands.

Le développement des lentilles électrostatiques et les méthodes de la transformation d'Abel inverse existantes sont abordés dans les parties ci-après.

II.1. Les lentilles électrostatiques présentes

Historiquement, la première méthode d'imagerie des vitesses a été développée par Chandler et Houston en 1987 [118], dans le but d'étudier la distribution spatiale des produits de photodissociation de la molécule CH_3I à la suite d'un impact photonique. L'analyseur employé est composé d'un répulseur avec deux grilles métalliques. Les ions produits dans le volume source (entre le répulseur et la première grille), sont projetés vers le détecteur à l'aide d'un champ électrique créé par une différence de potentiel entre les grilles. L'utilisation des grilles métalliques pour la projection des particules chargées sur le détecteur génère des distorsions dans les images dues à l'inhomogénéité du champ électrostatique (des déviations importantes de trajectoires de ces particules) [118]. La résolution spatiale de cet analyseur était limitée, ce qui était dû à l'extension de la région d'interaction (la géométrie de la source est donc non ponctuelle), puisque sans effet de focalisation. Des améliorations décisives dans la technique d'imagerie des électrons/ions par rapport à la méthode de Chandler sont alors proposées par Eppink et Parker [117]. Ils ont introduit le concept d'imagerie des vitesses (VMI) en utilisant une lentille électrostatique. Cette lentille, comme mentionné ci-dessus, sert à focaliser sur le détecteur les particules ayant le même vecteur vitesse, mais créées à des endroits différents du volume source. En conséquence, la résolution en énergie est améliorée et l'effet de la taille de la zone d'interaction est minimisé. Notons que la conception de la lentille électrostatique donnée par Eppink et Parker en 1997 est toujours exploitable. Plusieurs designs ont été proposés par la suite, afin d'améliorer la résolution globale des images enregistrées, et surtout pour étendre le domaine spectral d'analyse tout en y conservant une résolution quasi constante. Suivant les besoins expérimentaux, on peut modifier la géométrie du spectromètre VMI en agissant sur plusieurs paramètres notamment le nombre des électrodes utilisées, le diamètre et l'espacement entre celles-ci et la longueur du VMI, ceci afin d'optimiser le compromis entre la résolution de l'analyseur et l'étendue du domaine spectral d'analyse. Les effets de chacun de ces paramètres sont couplés, ce qui rend l'optimisation difficile. Cette optimisation se fait une fois les deux paramètres principaux qui sont le diamètre du détecteur et le voltage maximal appliqué sur les électrodes choisis.

Par ordre chronologique de développement, et après la conception d'Eppink et Parker en 1997 pour la

lentille électrostatique avec 3 électrodes, vient celle de Offerhaus et al. [119] en 2001. Le but était de maximiser le grandissement de l'image sur le détecteur en l'augmentant d'un facteur 20. Pour cela, un système composé de 3 électrodes annulaires supplémentaires formant une lentille d'Einzel est ajouté à la version originelle proposée par Eppink et Parker. Parallèlement, pour mesurer l'imagerie des ions avec une très haute résolution, Wrede et al. [120] proposent une nouvelle géométrie dans laquelle un profil particulier d'électrodes est mis en œuvre. La longueur de la zone sans champ est étendue au moyen d'une électrode cylindrique supplémentaire. L'image en a été améliorée et l'aberration chromatique est réduite d'un facteur 3.5 par rapport à celle obtenue avec une conception conventionnelle. En 2005, Garcia et al. [121] développèrent un « DELICIOUS VMI », adapté au rayonnement synchrotron (SR). Les principales modifications par rapport à la conception standard est l'emploi d'un répulseur percé permettant le couplage du VMI avec un autre analyseur électrostatique dans des expériences en mode coïncidence électrons-ions. De plus, l'utilisation d'une double lentille d'Einzel (6 électrodes en plus) permet de détecter des particules à de hautes énergies cinétiques. D'après les simulations numériques, ces lentilles peuvent augmenter la gamme spectrale d'analyse d'un facteur $\sim 2,5$. Dans le cadre d'une expérience de photoionisation avec le rayonnement synchrotron, en 2007 Rolles et al. [122] ont optimisé un spectromètre VMI à 4 électrodes, la dernière n'étant pas mise à la masse. L'utilisation de quatre lentilles électrostatiques au lieu de deux permet d'obtenir une meilleure focalisation dans le cas d'une région d'interaction étendue, ce qui est essentiel pour la plupart des applications utilisant le SR. En 2014, Skruszewicz et ses collaborateurs [123] ont réussi à étendre la gamme énergétique détectée jusqu'au régime du keV tout en utilisant des tensions d'extraction encore raisonnables (< 20 kV). L'idée consistait à ajouter au système d'extraction deux électrodes équipotentielles de polarités opposées. Les électrodes supplémentaires forment ainsi une lentille électrostatique concave, qui agit comme un doublet achromatique. Avec cette lentille achromatique, l'aberration chromatique est considérablement réduite par rapport à celle du système d'Eppink et Parker entraînant une amélioration de la résolution en énergie d'environ 20%. Simultanément, Kling et al. [124] ont conçu un nouveau spectromètre VMI composé de 11 électrodes. Cette extension spatiale du champ due au grand nombre d'électrodes utilisées forme une lentille épaisse d'où le nom de : « Thick lens VMIS ». Cela permet de détecter des particules chargées très énergétiques tout en conservant une bonne résolution sur une large gamme d'énergies cinétiques. Dans leur article, Kling et al montrent l'amélioration de la résolution en énergie obtenue avec un VMI à lentille épaisse par rapport à un VMI standard (pour le même voltage de répulsion de -10kV).

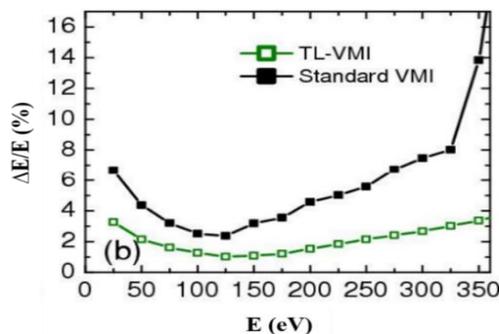


Figure II-2: Courbes extraites de l'article de Kling et al. [124] comparant la résolution sur une large gamme d'énergie cinétique, obtenue avec un VMI standard et un VMI à lentille épaisse.

La Figure II-2 extraite de cet article, illustre la variation de la résolution $\Delta E/E$ sur une gamme d'énergie

cinétique allant de 25 à 350 eV dans les 2 configurations du VMI. Pour un VMI standard, la valeur de la résolution varie de 7% pour une énergie cinétique de 25 eV à 14% pour 350 eV, avec un minima de 2.3% atteint à une énergie de 125 eV. Par contre, avec cette nouvelle configuration dite à « lentille épaisse », une résolution améliorée d'un facteur 2.3 est obtenue avec une valeur minimale de l'ordre de 1%, et celle-ci est beaucoup plus homogène sur toute la gamme d'énergie détectée avec des valeurs extrêmes présentant une légère différence (entre 3.3 et 3.8%).

Récemment en 2021, Ranke et al. [125] ont développé un VMI similaire au VMI standard, mais avec une modification dans la géométrie des électrodes. Ils ont utilisé des électrodes ayant une forme conique au lieu de plaques plates, pour s'adapter au système d'injection de gaz installé.

II.2. Choix de la gamme d'énergie de détection maximale

Pour concevoir un spectromètre du type VMI adapté à nos expériences, il nous faut tout d'abord définir le domaine spectral sur lequel il est destiné à opérer. Suivant le choix de ce domaine, on optimise les différentes parties du spectromètre VMI. Comme montré dans l'équation II-3, l'énergie cinétique des photoélectrons/photoions est proportionnelle au carré du rayon de la sphère de Newton projetée sur le détecteur. Par conséquent, la taille du détecteur utilisé définit le rayon maximal de cette sphère. Plus le diamètre du détecteur est important, plus on détecte des particules de grande énergie cinétique pour un même voltage appliqué. D'autre part, et suite à la même équation, la vitesse des électrons composant la sphère de Newton en expansion dépend fortement de la tension de répulsion. Plus la tension $V_{\text{Répulseur}}$ est importante, plus l'énergie maximum des particules détectées sera élevée. En revenant à la relation entre la vitesse d'expansion de la sphère (V), le temps de vol (T_{vol}), et le rayon de la raie (R) qui apparait sur l'image, on peut écrire $R = V \cdot T_{\text{vol}}$. L'énergie cinétique détectée s'écrit $E_c = m \cdot V^2 / 2 = m \cdot R^2 / (2 \cdot T_{\text{vol}}^2)$. Elle est inversement proportionnelle au carré du temps de vol des particules projetées sur le détecteur, donné par l'expression: $T_{\text{vol}} \propto \sqrt{\frac{m}{q V_{\text{Répulseur}}}}$. La situation est moins simple dans le cas d'un VMI à lentille épaisse. L'optimisation des potentiels permet de définir le point de focalisation des trajectoires électroniques, ce qui amène, lors de la conception, à définir la longueur de la zone sans champ pour que cette focalisation ait lieu au niveau du détecteur. En conclusion, l'énergie cinétique maximale que l'on peut détecter dépend de 3 paramètres essentiels: la taille du détecteur (R_{MCP}), la tension appliquée sur le répulseur ($V_{\text{Répulseur}}$) et la longueur de vol (L_{vol}):

$$E_{\text{Cmaximale}} \propto \frac{R_{\text{MCP}}^2 \cdot V_{\text{Répulseur}}}{L_{\text{vol}}^2} \quad (\text{équation II-4})$$

Le choix du diamètre du détecteur MCP est également critique pour la conception du VMI car il définit l'encombrement qu'il impose à l'ensemble du dispositif expérimental. Notons que, au-delà des contraintes physiques, les contraintes financières sont aussi limitantes : plus le détecteur est grand, plus son prix est important. Une fois le détecteur défini, il faut trouver un compromis entre la tension maximale que l'on peut appliquer sur le répulseur et la longueur de vol. Cette tension maximale doit rester raisonnable pour être appliquée sans contraintes spéciales excessives. Par exemple dans notre cas, une tension allant jusqu'à une valeur de l'ordre de 7 keV délivrée par une alimentation commerciale est employée.

II.3. Inversion d'Abel

Comme déjà mentionné dans la partie 2, l'image obtenue suite à l'utilisation d'un spectromètre d'imagerie des vecteurs vitesses est une projection bidimensionnelle de la distribution complète tridimensionnelle des particules chargées. Pour reconstruire la distribution initiale des vitesses des électrons (dans le volume source) à partir de la distribution spatiale des électrons sur le détecteur, l'inversion d'Abel [126] est donc indispensable. La transformation d'Abel nommée d'après Niels Henrik Abel en 1823, est une méthode mathématique pour reconstruire un objet 3D à partir de sa projection sur un plan. Cet objet doit être de symétrie cylindrique autour d'un axe perpendiculaire à l'axe de projection de l'image. Dans notre cas, nous avons vu que l'axe de symétrie est défini par la polarisation linéaire du faisceau ionisant : La distribution des vitesses des particules émises est de symétrie cylindrique autour de cet axe de polarisation.

La Figure II-3 montre le principe général de la transformation d'Abel, avec x étant l'axe de propagation du faisceau ionisant, et z son axe de polarisation. Le détecteur est placé dans le plan (x,z) . Soit $I(x,y,z)$ la distribution initiale des vecteurs vitesses (en 3D) des particules émises dans la zone d'interaction, et $P(x,z)$ la distribution spatiale des photoélectrons/ions sur le détecteur 2D. Mathématiquement, l'image projetée dans le plan du détecteur désigne simplement la somme suivant l'axe y de la distribution 3D initiale comme le montre l'expression suivante:

$$P(x,z) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(x,y,z) dy = 2 \int_0^{+\infty} I(x,y,z) dy \quad (\text{équation II-5})$$

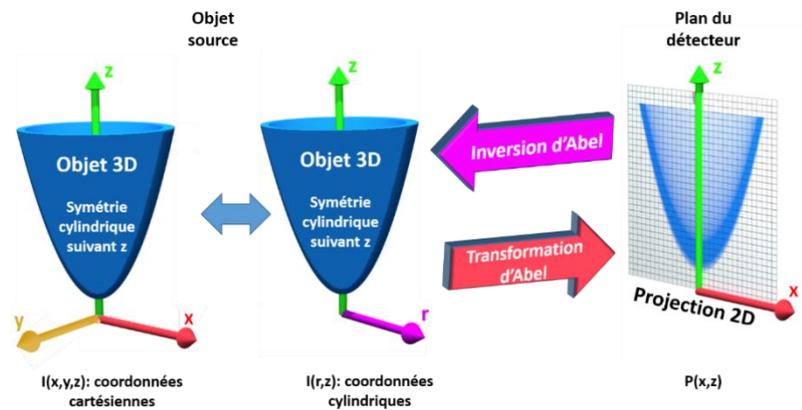


Figure II-3: Principe de la transformation d'Abel et Abel inverse adapté de l'article de Hickstein [126].

En prenant en compte la symétrie cylindrique autour de l'axe z , l'équation II-5 peut être écrite en coordonnées cylindriques (r,z) , r étant le rayon de l'objet tel que $r^2 = x^2 + y^2$. La distribution initiale en 3D $I(x, y, z)$ devient donc $I(r, z)$ et le terme dy est remplacé par :

$$dy = \frac{r dr}{\sqrt{r^2 - x^2}} \quad (\text{équation II-6})$$

On peut alors réécrire l'équation II-5 selon :

$$P(x,z) = 2 \int_x^{+\infty} \frac{r \cdot I(r,z)}{\sqrt{r^2-x^2}} dr \quad (\text{équation II-7})$$

La formule II-7, connue sous le nom de la transformation d'Abel directe ou « Forward Abel transform », permet d'obtenir la projection (2D) des positions d'impact des particules détectées à partir d'une distribution des vitesses (3D) notée $I(r, z)$. Dans notre travail, nous mesurons la projection 2D de la sphère de Newton sur le plan du détecteur. On cherche donc à remonter à la distribution initiale des vitesses (en 3D) afin d'extraire les informations physiques contenues dans nos images, notamment le spectre énergétique des photoélectrons ainsi que leur distribution angulaire. L'intérêt de la transformée d'Abel est que sa réciproque connue sous le nom de l'inversion d'Abel, peut être obtenue analytiquement suivant la formule :

$$I(r,z) = \frac{-1}{\pi} \int_r^{+\infty} \frac{dP(x,z)}{dx} \frac{1}{\sqrt{x^2-r^2}} dx \quad (\text{équation II-8})$$

Comme la distribution 3D est de symétrie cylindrique, appliquer cette reconstruction à toutes les lignes z est équivalent à récupérer une coupe de l'objet dans un plan perpendiculaire à l'axe à travers la distribution d'origine $I(r, z)$. Ceci rend l'inversion d'Abel appropriée aux images obtenues avec une caméra CCD (elle est appliquée à chaque ligne dans la matrice des pixels (x, y) de l'image enregistrée). Dans ce cas, la reconstruction de la distribution initiale est simple. Par contre, lorsque les images sont bruitées, l'inversion d'Abel n'est pas optimale. Le bruit sur l'image est amplifié (à cause de la présence du terme dérivatif $dP(\mathbf{x}, z) / d\mathbf{x}$) et accumulé suivant l'axe de symétrie (l'axe z) suite à l'application de l'inversion d'Abel. Dans les années 60, les efforts pour effectuer la transformation d'Abel inverse à partir des dérivées calculées analytiquement se sont révélés globalement infructueux, car la pollution des images enregistrées par du bruit électronique limite considérablement la possibilité d'obtenir une inversion satisfaisante et de haute qualité.

D'autres méthodes ont été proposées, mais cette fois-ci en partant de la transformation d'Abel directe. En effet, on remarque que l'équation II-7 ne contient pas des termes de dérivées : Elle est donc plus simple à développer numériquement que la transformée inverse. C'est dans ce cadre que Smith et al. [127], ont proposé en 1988, la méthode de Fourier-Hankel. Cette technique consiste à reformuler la transformation d'Abel. L'inversion d'Abel est alors obtenue en partant de la transformée de Fourier de l'image que l'on exprime sous la forme d'une somme infinie de fonctions de Bessel suivie de celle de Hankel inverse. Malgré la rapidité d'application de cette méthode lors du traitement des données d'une expérience d'imagerie des vitesses, le bruit dans les images expérimentales est amplifié et des structures artificielles sont produites lors de la reconstruction, ce qui limite son intérêt. Comme montré dans l'article de Dribinski [128], des structures artificielles se répartissent suivant l'axe de symétrie (le long de la ligne centrale) sur toute l'image reconstruite, et causent par la suite une diminution de la résolution et du rapport signal sur bruit.

Une méthode de « rétroprojection » a été proposée en 1995 par Sato et Matsumi [129]. Les images (en 2D) sont d'abord filtrées dans le domaine fréquentiel pour réduire les bruits, puis traitées par la méthode de rétroprojection. Ce filtrage (ou lissage des données) cause une perte importante d'informations, ce qui n'est pas optimum pour l'analyse des données.

Dans le cas du VMI, les images obtenues sont par nature de symétrie cylindrique et l'on peut tirer parti de cette symétrie pour développer des modèles d'inversion plus performants. En 1996, une méthode nommée « Onion-peeling » est proposée par Bordas et ses collaborateurs [130], [131]. Comme son nom l'indique, l'image est inversée couche par couche en partant de la couche de plus grand rayon pour finir par celles de rayons les plus faibles. Dans l'imagerie des vitesses, cela correspond à traiter en priorité les particules de très hautes énergies qui occupent les plus grands rayons sur le détecteur jusqu'à arriver à celles détectées au centre. L'idée de commencer avec les particules les plus énergétiques, de mesurer leur signal puis de le soustraire du signal total, revient au fait qu'au centre, toutes les sphères de Newton correspondant à des énergies cinétiques différentes contribuent au signal détecté. Pour reconstruire une structure ayant une contribution au centre, il est donc très difficile de soustraire correctement les différentes contributions de toutes les sphères de plus grand rayon. Une limitation de cette méthode vient du fait que dans l'image reconstruite, le bruit augmente progressivement au fur et à mesure que l'on s'approche du centre de l'image.

Une autre procédure itérative pour extraire la distribution des vitesses des particules détectées a été proposée par Vrakking [132] en 2001. Cette méthode a un grand avantage par rapport aux précédentes techniques. Elle n'introduit pas de bruit suivant l'axe de symétrie et élimine le bruit au centre qui est l'un des principaux artefacts dans de nombreuses expériences d'imagerie des vitesses. Par contre, le point faible de cette procédure est qu'elle est coûteuse en temps de calcul lors de l'analyse des données expérimentales.

Un grand progrès dans les méthodes d'inversion a été introduit par Dribinski et al en 2002 [128] en développant l'algorithme BASEX pour "Basis Set Expansion". Cette méthode est basée sur la représentation de l'image obtenue sur le détecteur (la projection 2D) sur un ensemble de fonctions de base gaussiennes bien définies (expansion en Anglais). Pour reconstruire la distribution 3D initiale, il suffit de faire une combinaison linéaire de ces fonctions avec les mêmes coefficients de la base que la projection. Le choix d'une base adéquate transforme le problème de l'inversion d'Abel en un simple problème de recherche des coefficients appropriés. La procédure sera par suite seulement une multiplication matricielle. Cette technique est efficace pour les images expérimentales très bruitées et elle est peu coûteuse en termes de calculs puisque les fonctions de base sont unidimensionnelles et sont calculées rapidement. Par contre lorsque la taille ou le centre de l'image changent, elles doivent être recalculées de nouveau.

A leur tour, en 2004, Garcia, Nahon et Powis [133] ont proposé une amélioration de la méthode BASEX qu'ils ont nommée pBASEX pour "Polar Basis Set Expansion". La lettre p dans pBASEX signifie que les fonctions de bases pour effectuer l'inversion sont choisies en coordonnées polaires, bien adaptées à la symétrie du processus de photoionisation. Ceci a pour effet que, contrairement à BASEX, les fonctions de base peuvent être réutilisées lorsque le centre de l'image est modifié. Un point commun avec l'approche proposée par Vrakking, est que lors de l'inversion, l'effet du bruit est concentré en un point au centre de l'image ce qui généralement n'affecte pas l'analyse des données. Dans ce cas, une optimisation de la résolution énergétique et angulaire est obtenue. Un autre point important de la méthode pBASEX provient du fait qu'elle est beaucoup moins sensible au bruit provenant du détecteur. En utilisant cette méthode, avant d'effectuer l'inversion, l'image est convertie en coordonnées polaires,

ce qui va lisser le bruit expérimental. Dans le même article, afin de tester la performance de la méthode pBASEX, Garcia et ses collaborateurs ont montré une comparaison entre cette méthode et d'autres algorithmes d'inversion notamment BASEX et l'inversion d'Abel. Avec l'inversion par ces trois algorithmes d'images expérimentales et simulées, ils ont comparé les courbes de la distribution radiale des photoélectrons, les paramètres angulaires, les incertitudes attribuées ainsi que le temps de calcul. Non seulement une meilleure distribution radiale a été obtenue par pBASEX par rapport aux autres méthodes, mais en plus elle procure une plus faible erreur sur la mesure de la distribution angulaire et les incertitudes sur le paramètre b_2 (polynôme de Legendre d'ordre 2) : Celles-ci sont respectivement de l'ordre de 0.03, 0.26 et 0.45 avec pBASEX, BASEX et Abel. En terme du temps de calcul nécessaire pour l'inversion, les 3 méthodes s'effectuent respectivement en 1.3s, 64s et 7s.

Suite à tous les avantages de pBASEX par rapport aux autres méthodes d'inversion, et dans le cadre d'une collaboration avec G. Garcia du Synchrotron Soleil dans le projet PIFOMETRIX, l'algorithme pBASEX a été choisi dans cette thèse pour inverser les images brutes obtenues. Le principe de pBASEX est détaillé dans la partie suivante. Nous notons qu'un algorithme déjà développé par Lionel Poisson (ISMO, Université Paris Saclay) [134], et effectué avec le même principe et les mêmes fonctions de bases que pBASEX a été également utilisé pour traiter les données présentées aux chapitre IV et V. Cet algorithme nommé par la suite par pBASEX+, permet d'obtenir plus des points dans les spectres de photoélectrons.

II.4. Principe de pBASEX

Nous avons vu dans la partie précédente, pourquoi, afin de remonter aux paramètres physiques que sont la distribution en angle et en énergie des photoélectrons, il est nécessaire d'utiliser un programme d'inversion, et que en partant de la symétrie de la distribution angulaire des photoélectrons/photoions détectés lors d'une expérience de photoionisation/photofragmentation, Garcia et al. [133] ont développé l'algorithme pBasex de façon à obtenir les paramètres d'énergie et de distribution angulaire directement de la procédure d'inversion. Il n'est pas donc nécessaire dans ce cas d'ajuster des polynômes supplémentaires sur les données inversées qui décrivent les distributions angulaires obtenues tout d'abord numériquement.

Les fonctions de base $f_{k,l}(R, \Theta)$ définies dans pBasex en coordonnées polaires, sont formées de fonctions gaussiennes pour modéliser la distribution des particules en énergie suivant :

$$f_{k,l}(R, \Theta) = e^{-(R-R_k)^2/\sigma} P_l(\cos \Theta) \quad (\text{équation II-9})$$

σ étant la largeur des fonctions gaussiennes, R_k le centre de la $k^{\text{ème}}$ gaussienne, P_l le polynôme de Legendre d'ordre l et Θ l'angle entre le vecteur vitesse des particules émises et l'axe de polarisation de la lumière (dans le cas d'un rayonnement polarisé) ou l'axe de propagation (si le rayonnement était polarisé circulairement ou non polarisé). En principe, les coordonnées polaires (R, Θ) sont utilisées dans un système pour définir les fonctions de base, tandis que les coordonnées (r, θ) représentent le système de coordonnées pour la distribution initiale des photoélectrons (3D). Dans ce qui suit, il n'y a pas de différence entre les systèmes de coordonnées parce qu'ils sont en coïncidence avec un angle $\phi=0$.

En partant toujours de l'hypothèse d'une distribution de symétrie cylindrique dans le plan xz, la distribution initiale (en 3D) peut donc être décrite avec ces fonctions de base suivant:

$$i(r, \theta) = \sum_{k=0}^{k_{max}} \sum_{l=0}^{l_{max}} c_{k,l} f_{k,l}(r, \theta) \quad (\text{équation II-10})$$

Avec le principe de l'inversion d'Abel décrit par l'équation II-7, la projection 2D notée $g_{k,l}(r, \theta)$ des fonctions de base $f_{k,l}(r, \theta)$ données dans l'équation II-9 est :

$$g_{k,l}(r, \theta) = 2 \int_{|x|}^{\infty} \frac{f_{k,l}(r, \theta) r}{\sqrt{r^2 - x^2}} dr \quad (\text{équation II-11})$$

Finalement, l'image projetée (en 2D) sur le détecteur peut être écrite dans l'algorithme pBasex comme étant un développement linéaire de fonctions de base bien définies par la formule suivante :

$$P(r, \theta) = \sum_{k=0}^{k_{max}} \sum_{l=0}^{l_{max}} c_{k,l} g_{k,l}(r, \theta) \quad (\text{équation II-12})$$

Pour reconstruire la distribution initiale, il suffit d'extraire les coefficients $c_{k,l}$ et de les substituer dans l'équation II-10 [133]. Dans le même article, Garcia et al expliquent la méthode utilisée pour déterminer la matrice du coefficient $g_{k,l}$ et transformer ces intégrales en une multiplication matricielle simple pour faire l'inversion. Le spectre radial et la forme de la distribution angulaire finale définie par le paramètre d'asymétrie β obtenu avec le logiciel pBasex sont expliqués en détails dans le chapitre V. Pour illustrer la différence entre une image brute obtenue avec un VMI et une image inversée par pBasex, on montre dans la Figure II-4 l'inversion d'une image simulée.

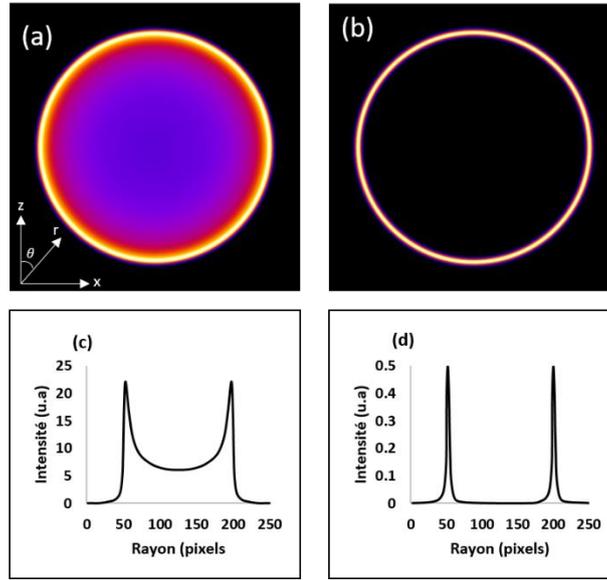


Figure II-4: Image simulée pour une distribution angulaire isotrope des photoélectrons, et image inversée par l'algorithme pBasex correspondante. (a) l'image 2D de la sphère de Newton projetée sur le détecteur. (b) coupe centrale (slice centrale) de la distribution 3D obtenue après inversion. Les 2 spectres en bas sont obtenus suite à des coupes horizontales respectivement avant (c) et après inversion (d).

III. Description du spectromètre VMI construit à l'ISMO

La géométrie initiale de notre spectromètre a été inspirée du VMI proposé par Kling et ses collaborateurs

[124], soit un spectromètre VMI à lentille épaisse avec 11 électrodes. Le choix de cette configuration déjà discuté dans la partie 2.1 revient initialement au choix de l'énergie de détection maximale souhaitable, et à l'optimisation de la résolution spatiale sur une large gamme spectrale. C'est dans ce cadre que des simulations numériques avec le logiciel SIMION [135] ont été réalisées par Charles Bourrasin-Bouchet au début du projet "PIFOMETRIX". Une fois la géométrie optimale du VMI définie, on peut donc passer à la conception puis à la réalisation mécanique dont une description détaillée du VMI est donnée dans cette partie. Le dispositif expérimental PIFOMETRIX peut être décomposé en 3 parties essentielles : la lentille électrostatique, le dispositif de détection des photoélectrons et le système d'injection du gaz. Le système complet est formé -en plus de ces 3 parties précédentes- de l'enceinte à vide et du système de pompage.

III.1. La lentille électrostatique

Comme présenté dans Figure II-5-(a) et (b), le spectromètre VMI du dispositif expérimental PIFOMETRIX est constitué de 11 électrodes comprenant notamment le répulseur (V_1), l'extracteur (V_2) et l'électrode de focalisation (V_{focus}). La dernière électrode (V_{11}) est reliée à la masse. Les électrodes (V_4) à (V_{10}) placées sur le trajet des photoélectrons permettent d'améliorer la focalisation des particules sur le détecteur [136]. L'électrode de répulsion nommée « répulseur » est un disque annulaire en molybdène de 80 mm de diamètre, présentant une ouverture au centre ($\Phi = 3\text{mm}$) (voir Figure II-5-(c)) qui sert à injecter le gaz cible dans la zone d'interaction. Les 10 autres électrodes sont des anneaux en acier inoxydable amagnétique de diamètre extérieur 80 mm et avec un orifice au centre de diamètre croissant de 2mm pour chaque électrode, commençant à 40 mm pour l'extracteur. L'utilisation d'électrodes avec des diamètres intérieurs croissants de la zone d'interaction jusqu'au détecteur sert à réduire les effets de chromaticité non souhaitables dans le spectromètre. Toutes les électrodes sont de 1mm d'épaisseur. Elles sont recouvertes d'une couche de graphite afin de minimiser d'une part le nombre d'électrons secondaires produits par collisions électrons-électrodes, mais aussi pour s'assurer de l'homogénéité du champ électrique créé à la surface de ces électrodes. Un montage réalisé à l'aide de pièces isolantes en PEEK permet de positionner d'une manière concentrique les différentes électrodes qui sont séparées de 8 mm les unes des autres. Par contre, l'espacement entre le répulseur et l'extracteur est plus grand et de l'ordre de 15.5 mm afin de disposer d'une zone d'interaction convenable pour les différents types de rayonnement à utiliser, et d'éviter donc que le faisceau ionisant ne touche les électrodes, produisant ainsi un signal parasite significatif. Les photoélectrons émis dans la zone d'interaction traversent toutes les électrodes polarisées et sont focalisés sous l'action des champs électriques issus des potentiels appliqués sur les électrodes. Au niveau de V_{11} , l'électrode mise à la masse, ces photoélectrons traversent une zone nommée « Free-Field Region » avant d'atteindre le détecteur. Le choix optimal de la longueur du spectromètre (défini par la longueur de vol ou la distance entre la zone d'interaction et le détecteur) déterminée à partir de simulations, est de 176.5 mm. La région sans champ s'étend donc sur 86.5 mm.

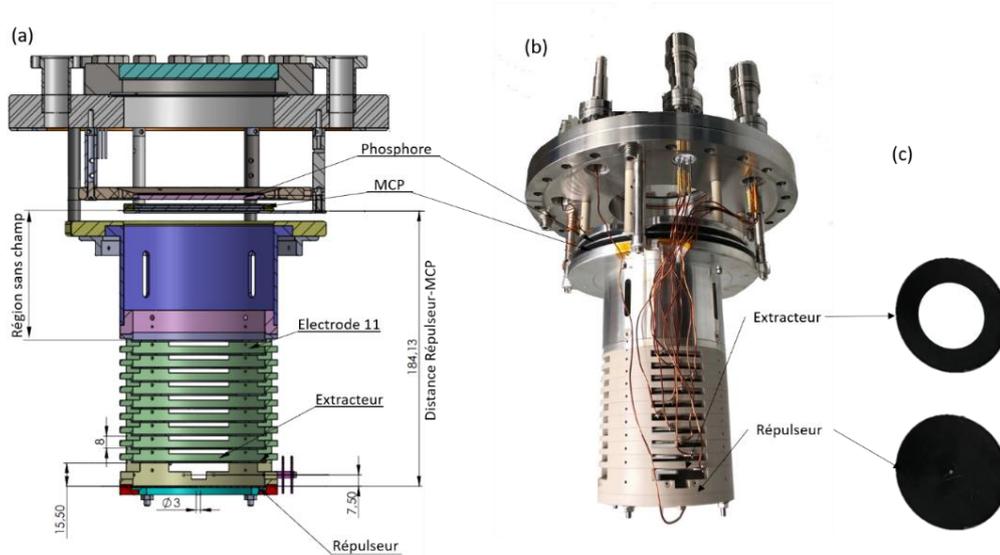


Figure II-5: (a) Conception 2D du spectromètre VMI. (b) Photo du VMI avec toutes les électrodes polarisées via les câbles de tension. (c) Photo de l'électrode de répulsion (en bas) et d'extraction (en haut)

III.2. Blindage magnétique

Afin de ne pas perturber les trajectoires des particules chargées, il est indispensable de protéger le VMI des champs magnétiques extérieurs. Ceci est accompli en blindant le tube de vol par un double cylindre en μ -métal, qui est un alliage de nickel et de fer ayant une perméabilité magnétique extrêmement élevée. Comme montré dans la Figure II-6, ce double cylindre en μ -métal est installé autour du VMI, avec des orifices oblongs pour laisser passer le faisceau ionisant. D'autres ouvertures beaucoup plus petites facilitent le pompage du spectromètre tout en maintenant un blindage magnétique.



Figure II-6: Photo du blindage de l'ensemble du VMI par le μ -métal.

III.3. Système de détection

Afin d'imager la distribution de vitesse des particules chargées et plus précisément, pour récupérer les informations à la fois sur le nombre et la position d'impact de ces particules, un détecteur sensible à la position « PSD » est nécessaire. Ce type de détecteurs fournit un signal localisable pour chaque particule incidente et implique par la suite un dispositif pour enregistrer leur position d'impact. Il est constitué donc d'une (ou plusieurs) galette à micro-canaux (MCP), qui génère une gerbe d'électrons à partir d'un

événement unique (arrivée d'un électron ou d'un ion). Cette galette doit être couplée à un dispositif permettant la localisation de cette impulsion d'électrons, qui peut être dans le cas général soit un écran phosphore suivi d'une caméra pour enregistrer l'image, soit une anode à ligne à retard et une électronique mesurant un temps. Comme dans notre expérience un grand nombre de photoélectrons arrivent simultanément sur le détecteur (en quelques nanosecondes), l'utilisation d'une ligne à retard est impossible. Le système de détection utilisé au cours de cette thèse est composé d'une galette MCP de 86 mm de diamètre du constructeur PHOTONIS, un écran phosphore de type P43 et une caméra CCD.

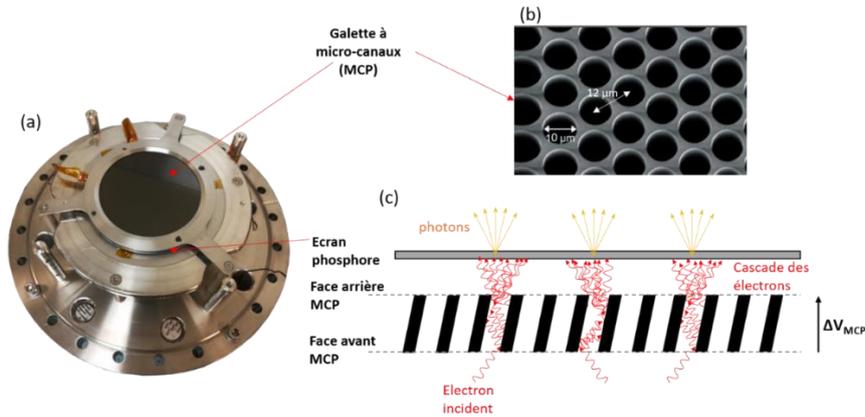


Figure II-7: (a) Le couplage de la galette micro-canaux avec un écran de phosphore. (b) Illustration des pores dans la MCP. (c) Schéma explicatif du fonctionnement de la galette MCP (gain).

La photographie de la Figure II-7-(a) montre le montage du détecteur employé. Afin de comprendre tout d'abord le principe de fonctionnement d'une MCP, des illustrations sont présentées dans les Figure II-7-(b) et (c). La galette de micro-canaux est une plaque circulaire de 610µm d'épaisseur, de 86 mm de diamètre total avec une surface utile de 75 mm de diamètre, formée de canaux de 10 µm de diamètre et séparés de 12 µm l'un de l'autre (Figure II-7-(b)). Afin d'optimiser le gain de ce système, ces derniers sont inclinés de 8° par rapport au plan de la galette. Lorsqu'un électron arrive au niveau de la galette, des électrons secondaires sont émis par collision sur la paroi du canal, puis accélérés grâce à la différence de potentiel appliquée entre la face avant et la face arrière de MCP (V_{MCP}). Ce processus se répète de nombreuses fois à l'intérieur du canal pour arriver à un effet d'avalanche (voir Figure II-7-(c)). Le signal d'origine est alors amplifié avec un gain de l'ordre de $\sim 10^3 - 10^4$ qui dépend de la tension V_{MCP} appliquée. Par exemple pour une tension de $V_{MCP} = +1200$ V appliquée sur une galette, un électron incident sur la paroi d'un canal entraîne la production d'environ de 10^4 électrons en sortie de canal.

À 7mm de la face arrière de MCP, on place un écran phosphore P43 qui permet de convertir le signal électronique en signal lumineux grâce au phénomène d'électroluminescence. Cet écran fourni par la société « GIDS », délivre des photons de longueur d'onde centrée à 545 nm, avec un temps de décroissance de 1,6 ns. La conversion permet de produire jusqu'à 600 photons par électron de 10 keV. Il est recouvert d'une couche d'Aluminium pour réfléchir les photons émis dans le mauvais sens. Le phosphore est également alimenté en haute tension : les électrons de l'impulsion issu de la MCP sont accélérés via la différence de potentiel entre la face arrière de la galette et le phosphore (on utilise une tension $V_{Ph} = V_{MCP}$ arrière +3000V). Une caméra CCD (Charge-Coupled Device) est installée à l'air libre, à une dizaine de centimètres de l'écran phosphore visible via un hublot. Elle est interfacée à un

ordinateur qui sauvegarde les images à traiter. Un objectif de haute résolution (Edmund Optics série HP 50 mm) focalisé sur la face arrière du phosphore permet de récupérer la lumière émise. Pour maximiser le nombre de photons captés, il est préférable d'utiliser un objectif à grande ouverture numérique et de courte focale. La caméra utilisée dans notre dispositif, de référence Thorlabs KAI-04070M-USB-TE, est monochrome avec une surface d'imagerie de 15.15 mm (horizontale)x 15.15 mm (verticale) soit 2048 (H) x 2048 (V) pixels actifs. Chaque pixel est un carré de 7.4 μm de côté. Le temps d'exposition varie entre 0 et 1000 millisecondes avec un incrément d'une milliseconde. La plage dynamique de la caméra est une propriété importante qu'il faut prendre en compte lors de l'expérience. C'est l'écart entre l'intensité minimale et maximale détectée sur une image. Pour détecter correctement tout niveau de signal, il est essentiel d'utiliser une caméra ayant une plage dynamique élevée.

III.3.1. L'emploi d'un pulseur pour moduler le gain de la galette MCP

Les images enregistrées par la caméra, lors des expériences réalisées sur les installations LIDYL et LASERIX, où des sources XUV pulsées ont été utilisées pour ioniser des gaz rares, présentent un fort signal d'électrons en leur centre. Ce signal ne peut provenir de la photoionisation directe d'un atome. C'est donc un signal parasite. Nous avons suspecté que ce signal provenait d'électrons parasites secondaires créés par impact des ions sur une surface, car la différence de voltage entre le répulseur et l'extracteur a pour double effet de projeter les électrons vers le détecteur et les ions vers le répulseur. Ces derniers ont alors assez d'énergie pour émettre des électrons secondaires de faible énergie qui, à leur tour vont être projetés vers le détecteur. Des simulations, effectuées sur SIMION, ont montré que l'image observée est cohérente avec cette hypothèse. On peut alors discriminer les électrons primaires des électrons secondaires. En effet, si le temps de vol des électrons entre le volume source et le détecteur est de l'ordre de la nanoseconde, celui des ions vers le répulseur se chiffre en micro-secondes. Les électrons secondaires sont donc détectés bien après les électrons primaires. Il est donc possible de s'en affranchir en diminuant le gain de la galette après détection des électrons primaires.

Nous avons pour cela employé un pulseur réalisé par le service électronique du laboratoire afin de n'appliquer la tension de détection qu'au moment de l'arrivée des électrons primaires. Ce pulseur présente une large gamme de fonctionnement. Il peut, entre autres, être déclenché par un signal externe, et commuter avec des durées et retards ajustables, avec un pas de 5 ns, des tensions de l'ordre du kV fournies par des alimentations extérieures. Le temps de stabilisation de la tension est de l'ordre de 100 ns. Une sortie délivre un signal atténué, ce qui permet de voir, via un oscilloscope l'état des tensions appliquées en fonction du temps. Notons que ce pulseur n'était pas disponible lors de l'expérience réalisée au LIDYL et décrite dans le chapitre III. D'autre part, il n'est d'aucune utilité lorsque le rayonnement ionisant est délivré par une source continue telle qu'une lampe à Hélium, car un rayonnement pulsé est nécessaire. Il a donc été employé pour la première fois lors des expériences réalisées sur l'installation LASERIX décrites au chapitre IV de ce manuscrit.

Dans le cas qui nous intéresse, la galette va être polarisée à une tension basse constante V_{bas} de 700 V, qui ne permet pas d'amplifier le nombre d'électrons. Cette tension sera temporairement augmentée à une valeur V_{haut} de 1150 V lors de l'arrivée des électrons primaires afin de disposer momentanément d'un gain de l'ordre de 10^4 . Le signal de déclenchement de la chaîne laser IR qui génère le rayonnement XUV est utilisé pour piloter le pulseur, et un oscilloscope permet de mesurer simultanément ce signal

laser et la forme de l'impulsion appliquée à la galette. Le délai et la largeur de l'impulsion sont réglés de façon à ce que le front descendant de tension, de V_{haut} à V_{bas} , se produise juste après le comptage des électrons primaires. Pour cela, le retard entre signal laser et la rampe de tension de V_{bas} à V_{haut} a été progressivement diminué jusqu'au seuil d'atténuation du signal de photoélectrons. Les valeurs optimum finales employées sont de 66 μs pour le retard par rapport au déclenchement du laser et 2.8 μs pour la durée. Avec ces réglages, la tache centrale parasite est considérablement atténuée de l'ordre d'un facteur 2,5. Ceci confirme la validité de l'hypothèse attribuant la majeure partie de l'intensité de la tache centrale sur les images à la production d'électrons parasites produits par un phénomène collisionnel impliquant les ions.

III.4. Système d'injection du gaz cible

Dans nos expériences, l'injection du gaz dans le VMI se fait grâce à un capillaire qui pénètre dans le VMI par l'ouverture de 3 mm au centre du répulseur. L'aiguille est constituée de deux tubes de molybdène emboîtés l'un dans l'autre comme montré dans la Figure II-8-(a). Les diamètres intérieur et extérieur du tube externe utilisé pour avoir un système de gaz rigide et facile à mettre en place, sont respectivement 0.7 mm et 1 mm. Le deuxième tube interne est de diamètres plus petits (0.3 mm intérieur et 0.5 mm extérieur). De la laque d'argent assure la fixation de ces deux tubes tout en établissant la conduction électrique. L'aiguille est montée sur un manipulateur (x,y,z) ce qui fait qu'elle est réglable en position sous vide à l'intérieur du VMI. On peut donc contrôler sa hauteur (un mouvement suivant z) par rapport au répulseur, et on peut la régler dans le plan horizontal pour assurer un positionnement optimal au centre du VMI (à quelques dizaines de μm près). Le fait que l'aiguille soit placée au-dessus du répulseur nécessite qu'elle soit polarisée pour minimiser la perturbation des lignes de champ qu'elle introduit dans la zone d'interaction. Elle est donc isolée par un support en PEEK et son extrémité polarisée. Elle doit être polarisée à une tension comprise entre celle du répulseur et de l'extracteur, en prenant en compte sa hauteur (Z_{aig}) par rapport à la face interne du répulseur. Plus l'aiguille est proche de la zone d'interaction, plus la tension à appliquer devient critique.

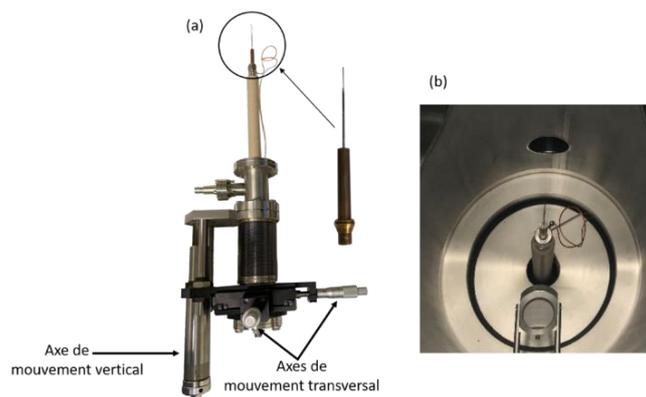


Figure II-8: (a) Le système d'injection de gaz par une aiguille. (b) Le positionnement de l'aiguille dans l'enceinte à vide.

A la fin de cette thèse, nous avons testé une modification du dispositif d'introduction du gaz afin d'améliorer les performances du système expérimental. Cette évolution consiste à utiliser une vanne pulsée à solénoïde avec un orifice de diamètre 300 μm (voir Figure II-9-(a)) qui nous a été prêtée. Sur le

même manipulateur que l'aiguille, la vanne a été introduite dans l'enceinte, sa hauteur donc a été bien contrôlée (suivant l'axe du spectromètre VMI). Elle a été placée initialement à 3 cm d'un écorceur en nickel situé juste sous le répulseur. Cet écorceur a une forme conique qui permet de ne sélectionner que la partie centrale du jet de gaz dans la zone d'interaction sans modifier son écoulement. C'est un cône de dimension typique de 2.79 cm de base, 2 cm de hauteur et 0.2 mm de diamètre d'orifice. Il a tout d'abord été polarisé suivant le potentiel du répulseur. Suite à la présence de claquages, l'écorceur a été isolé grâce à une pièce en PEEK et mis à la masse (Figure II-9-(b)).

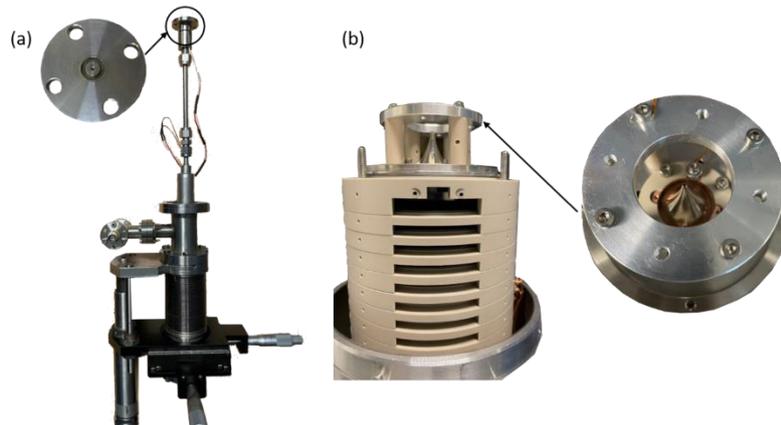


Figure II-9: (a) Couplage de la vanne pulsée sur un manipulateur de mouvement avec un zoom de la face avant de la vanne. (b) Montage de l'écorceur sur la face avant du répulseur.

L'utilisation d'une vanne à solénoïde à la place d'une aiguille permet de ne plus avoir un jet de gaz continu, mais un jet qui est pulsé. Une porte de tension synchronisée avec le laser ionisant est appliquée pour contrôler l'ouverture de la vanne pendant une durée courte de quelques centaines de μs , ce qui est censé optimiser la densité de gaz en présence des photons. De plus la forme de jet n'est pas la même ce qui va influencer la taille du volume source. L'aiguille donne un jet effusif de forme conique avec un angle au sommet de l'ordre de 30 à 40°, tandis que la vanne pulsée permet d'avoir un faisceau d'atomes collimaté avec une faible ouverture de cône comme on le montre sur la Figure II-10. La longueur du volume source est donc diminuée, ce qui améliore la résolution comme nous le verrons dans la section VI.1.1 de ce chapitre.

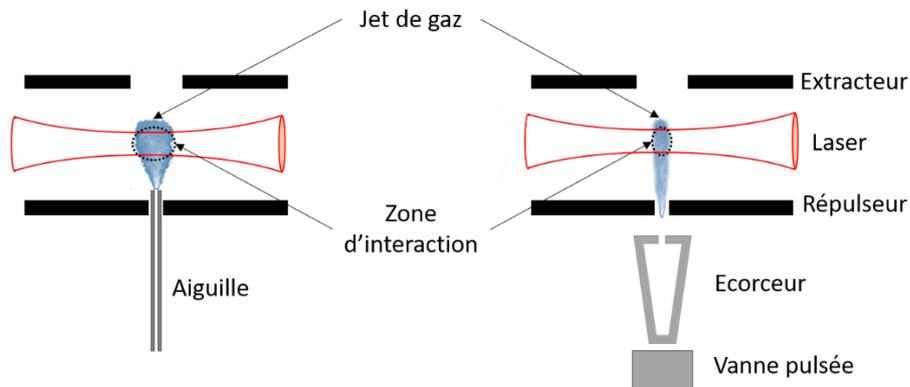


Figure II-10: Illustration montrant la différence de jet de gaz issu d'une aiguille (jet effusif) et d'une vanne pulsée (faisceau collimaté). Les cercles pointés en noir montrent la taille qualitative de la zone d'interaction.

En utilisant une vanne, la quantité de gaz diffusé dans l'enceinte du VMI est moins importante qu'avec l'aiguille, ce qui améliore le rapport signal/bruit sur les images.

Quelques jours de faisceau ont été utilisés pour tester ce dispositif. Il a été observé que l'emploi de la vanne procure bien une amélioration de la résolution, mais cette amélioration est minime, et se fait au prix d'une perte importante de signal. Ceci rend les expériences de photoionisation en mode single shot irréalisables dans cette configuration expérimentale. Une étude complète des tests réalisés avec la vanne pulsée sera présentée à la fin du chapitre IV.

III.5. Pompage et de l'enceinte à vide

L'expérience nécessite d'être réalisée sous vide pour des nombreuses raisons :

- Pour que les galettes à micro-canaux (MCP) fonctionnent en toute sécurité, la pression doit être inférieure à 10^{-5} mbar.
- Le libre parcours moyen des électrons doit être suffisamment important pour leur permettre d'atteindre le détecteur. Autrement dit, les électrons ne doivent pas être diffusés par le gaz résiduel.
- Les rayonnements VUV sont fortement absorbés dans l'atmosphère et de plus, ils sont très mal transmis par les matériaux utilisés pour réaliser des hublots. L'absence de fenêtre implique donc d'être en vue directe de la source de photons (notons que l'on peut toutefois utiliser un pompage différentiel).
- Il faut également prendre en compte la pollution de l'échantillon. Si on travaille à mauvaise pression, la zone d'interaction irradiée par le faisceau ionisant contiendra un mélange composé d'azote, d'oxygène et du gaz à ioniser, ce qui produira des raies supplémentaires dans le spectre des photoélectrons détectés.

L'enceinte expérimentale contenant le VMI est une croix à 6 branches réalisée sur plan par la société Lesker. Le montage de l'enceinte est montré dans la Figure II-11-(a). Verticalement, elle est composée de 2 brides de 200 mm de diamètre. Le VMI, le détecteur ainsi que les passages de tension, montés ensemble sur une bride unique afin d'avoir un système aisément amovible, est placé sur l'orifice supérieur. Un hublot permet le passage des photons émis par le phosphore. Un support est fixé à cette bride pour positionner la caméra CCD. La bride inférieure est utilisée pour le système d'introduction du gaz.

Dans le plan horizontal, nous avons 2 brides de 150 mm de diamètre qui sont utilisées pour le pompage et 2 brides 100 mm pour l'entrée et la sortie des photons. Une vanne automatique est placée sur la bride d'entrée des photons. La bride de sortie est utilisée pour permettre l'analyse des photons en sortie de l'expérience (mesure de l'énergie et/ou de la durée d'une impulsion laser ; mesure de la tâche focale...). L'enceinte expérimentale comprend également quelques piquages de 35 mm pour différents éléments tels jauges ou miroirs de contrôle.

Deux pompes turbomoléculaires de la marque PFEIFFER et de vitesse de pompage 700 L/s permettent d'atteindre un vide limite de 10^{-8} mbar. Elles sont reliées à une pompe primaire sèche de type ACP40 d'un vide limite de 10^{-2} mbar. Un coffret contrôle deux jauges : une jauge primaire placée entre la pompe primaire et les pompes turbomoléculaires et une jauge (Full Range) placée sur l'enceinte expérimentale.

Un automate réalisé à l'ISMO gère cette expérience. Il dispose de deux modes de fonctionnement : un

mode automatique et un mode dit « expert ». En mode automatique, le démarrage successif de chacun des éléments du dispositif se fait sans intervention de l'utilisateur et est piloté par la bascule d'interrupteurs générée par des valeurs de pression préprogrammées sur le coffret de jauge. En mode expert, chaque élément peut être indépendamment contrôlé. Ce coffret est également chargé de la sécurité de l'expérience. En cas de remontée de pression dépassant un seuil programmé sur le coffret de jauge, l'automate met le détecteur hors tension, ferme la vanne automatique placée entre le VMI et la ligne de lumière, isole les pompes turbomoléculaires de la pompe primaire via une vanne pilotée et les arrête. Les différents éléments « sensibles » du VMI sont donc placés en sécurité sous vide statique.

L'enceinte expérimentale montrée dans la Figure II-11-(b) est placée sur un châssis réglable en hauteur, en translation latérale et en rotation pour un alignement facile de l'enceinte du VMI sur l'axe des photons. Le châssis est mobile ce qui permet de transférer ce VMI sur plusieurs installations et effectuer des expériences avec différentes sources de rayonnement.

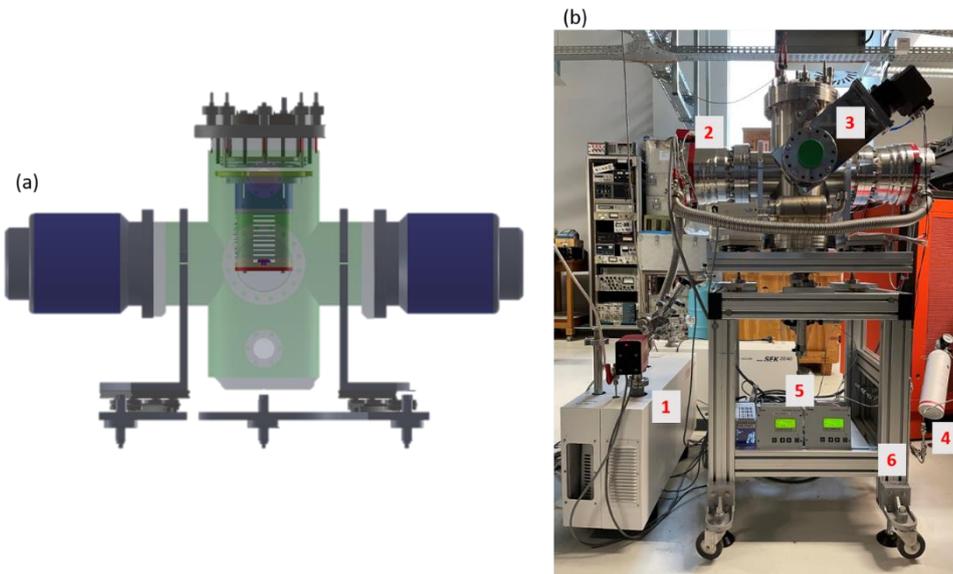


Figure II-11: (a) La géométrie de l'enceinte du VMI avec ses branches et le positionnement du spectromètre VMI à l'intérieur. (b) Photo de l'enceinte expérimentale utilisée dans les expériences avec : (1) la pompe primaire ACP40, (2) les deux pompes turbo-moléculaires, (3) la vanne d'entrée des photons, (4) une mini-canne pour l'injection de gaz cible, (5) les coffrets de commande des pompes turbomoléculaires et le coffret pour contrôler la pression dans l'enceinte à vide, (6) le châssis réglable du VMI.

IV. Imagerie et polarité des électrodes

Nous avons vu dans les paragraphes précédents que le concept du VMI consiste à focaliser au même point du détecteur toutes les particules émises ayant la même vitesse initiale. Selon la polarité des tensions appliquées sur les électrodes, un spectromètre VMI peut être utilisé comme un instrument d'imagerie des électrons ou des ions produits par le phénomène de photoionisation. Durant cette thèse, le spectromètre VMI a été utilisé selon plusieurs modes expliqués ci-dessous.

IV.1. Imagerie des ions

Pour réaliser l'imagerie des ions, les électrodes du VMI sont réglées sur des tensions positives, de sorte que les ions sont projetés vers le détecteur. Le fait que les ions soient créés au niveau de la zone

d'interaction située entre le répulseur et l'extracteur, nécessite l'application de tensions bien précises au niveau de ces deux électrodes, et donc un rapport $V_{\text{extracteur}}/V_{\text{répulseur}}$ (i.e. V_2/V_1) bien défini. Selon le rapport V_2/V_1 utilisé, un VMI peut fonctionner en mode imagerie spatiale des ions (imageur des positions des ions) ou en mode imagerie des vitesses des ions (analyse des vecteurs vitesses).

IV.1.1. Imagerie spatiale des ions

L'imagerie spatiale permet de connaître la position initiale des particules chargées et donc l'emplacement de la zone d'interaction. Dans le cas où les ions sont détectés, ceux-ci étant plus lourds que les électrons, on considère qu'ils n'acquièrent pas de vitesse lors du processus de photoionisation. Leur seule énergie est leur énergie thermique que l'on va négliger : on va les considérer initialement comme quasi-immobiles. Pour effectuer l'imagerie spatiale, il suffit d'appliquer les tensions uniquement sur le répulseur et l'extracteur et de mettre les autres électrodes à la masse (dans le cas des VMI non standards). Ce faisant, les ions sont projetés vers le détecteur et l'image obtenue donne leurs positions au niveau de la source. La Figure II-12 montre un exemple d'image obtenue en mode imagerie spatiale suite à l'ionisation d'atomes de Xénon avec des photons de 21.21 eV d'énergie issus d'une lampe à décharge. Cette image peut être décomposée en deux parties: La partie centrale la plus intense qui correspond aux ions produits dans le jet de gaz, et une autre partie beaucoup plus longue et moins intense, qui correspond aux ions produits par la photoionisation du gaz résiduel tout le long du faisceau de photons.

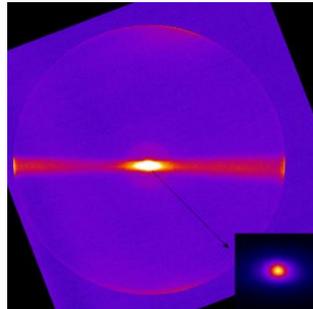


Figure II-12: Image expérimentale du VMI en mode imagerie spatiale des ions suite à l'ionisation d'atomes de Xénon par un faisceau de photons de 21.21 eV d'énergie. L'encart présente un zoom sur la partie centrale pour montrer la forme du jet de gaz.

L'imagerie spatiale permet de vérifier l'alignement du faisceau ionisant avec le jet de gaz, comme on le montre dans la figure ci-dessus. Dans le cas où le faisceau laser n'est pas parfaitement centré, le foyer du laser ne sera pas aligné avec le jet de gaz et par suite la tache centrale sera dissymétrique. Dans ce cas, le mode imagerie spatiale permet de régler ce recouvrement, en changeant la position en latéral du faisceau ionisant. Avoir bien aligné le faisceau laser sur le jet de gaz est essentiel avant d'utiliser le VMI en mode d'imagerie des vitesses.

Une fois que cet alignement est effectué, il est possible grâce à l'imagerie spatiale de mesurer la taille du jet de gaz et celle du faisceau ionisant au centre du VMI, en prenant en compte le grandissement de l'image i.e. la différence de taille de la zone d'interaction dans le plan de la source et le plan du détecteur. Pour avoir la taille exacte au niveau du volume source, le grandissement de l'image doit être connu. Les

valeurs des tensions appliquées sur le répulseur et l'extracteur et donc plus précisément le rapport des tensions $V_{\text{extracteur}}/V_{\text{répulseur}}$ influe sur le grandissement de l'image. Donc il faut tout d'abord déterminer la valeur du grandissement pour un rapport de tension donné. C'est dans ce cadre qu'une étude des trajectoires des particules chargées a été réalisée au moyen du logiciel SIMION dans lequel la géométrie de notre VMI a été reproduite. Cette étude consiste à simuler la zone d'interaction par un cylindre de longueur $L= 4\text{mm}$ et de rayon $R = 0.5\text{mm}$ comme illustré dans la Figure II-13 (a), placé à 7.5 mm du répulseur (au centre du VMI). Dans cette simulation, on prend l'axe X comme étant l'axe du VMI (axe de propagation des particules émises vers le détecteur), Y l'axe du cylindre et Z l'axe perpendiculaire. Le détecteur est placé dans le plan YZ. Les trajectoires de 5000 particules chargées positivement correspondant aux ions produits uniformément dans ce cylindre suite à l'ionisation d'atomes d'argon par des photons sont simulées.

Pour le même voltage du répulseur nommé V_1 (avec $V_1 = +3000\text{V}$), on change à chaque fois la valeur de la tension d'extraction notée V_2 afin d'en déterminer la valeur optimale qui donne un grandissement que nous choisissons de l'ordre de l'unité. Dans cette étude, le grandissement de l'image « K » est défini comme étant la longueur de la tâche obtenue sur le détecteur par rapport à la longueur du cylindre dans le plan de la source fixée au départ à 4mm.

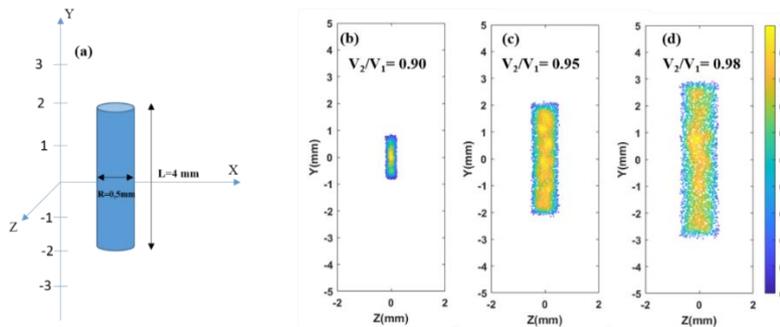


Figure II-13: Simulation des ions par le logiciel SIMION, pour une tension V_1 fixée à $+3000\text{V}$ pour différents $V_2/V_1 = 0.90, 0.95, 0.98$ représentés en (b), (c) et (d) respectivement.

Les résultats de cette simulation sont présentés dans la Figure II-13 (b), (c) et (d). Chaque panneau représente l'image (en 2D) de la zone d'interaction obtenue sur le détecteur pour les différents rapports V_2/V_1 . Afin de calculer la valeur du grandissement K, on mesure sur chaque image la longueur de l'image du cylindre (de même, on peut mesurer le rayon du cylindre et le comparer au rayon de départ). On trouve donc une longueur $L = 1.6 \text{ mm}$, $L = 4 \text{ mm}$ et $L = 5.8 \text{ mm}$ respectivement pour les rapports $V_2/V_1 = 0.9, 0.95$ et 0.98 . De même, des valeurs obtenues pour les rayons sont respectivement de 0.2 mm , 0.49 mm et 0.7 mm . Les valeurs de K calculées sont donc $K = 0.4$ pour $V_2/V_1 = 0.90$, $K = 1$ pour 0.95 et $K = 1.45$ pour 0.98 . On déduit donc que l'image obtenue est de la même dimension que le volume source pour un rapport des tensions $V_2/V_1 = 0.95$ en mode imagerie spatiale des ions. Pour toute autre tension appliquée sur le répulseur, ce rapport reste le même. Notons que pour une géométrie de VMI différente de la nôtre, mais similaire, Johnson et ses collaborateurs [137] déterminent une valeur optimale de V_1/V_2 de 0.98 , voisine de celle que nous obtenons. Une fois le rapport V_2/V_1 donnant un grandissement $K=1$ déterminé, une question intéressante se pose : Ce grandissement reste-il constant quand on considère comme zone d'émission les différentes positions suivant l'axe Y du cylindre

représentant le volume source? Pour répondre à cette question une autre simulation SIMION a été effectuée. La zone d'interaction a été représentée par deux cylindres coaxiaux de rayon chacun de $R = 0.5\text{mm}$. Un schéma explicatif de la zone d'interaction simulée est montré dans la Figure II-14. La zone d'interaction (cylindre violet) a été simulée par le petit cylindre de longueur $L=4\text{mm}$ contenant 10000 ions produits par la photoionisation des atomes du jet du gaz. Un second cylindre (rouge) plus long ($L = 60\text{mm}$) contenant 2500 particules, recouvrant le premier cylindre, simule les ions produits par l'ionisation du gaz résiduel tout le long du faisceau de photons.

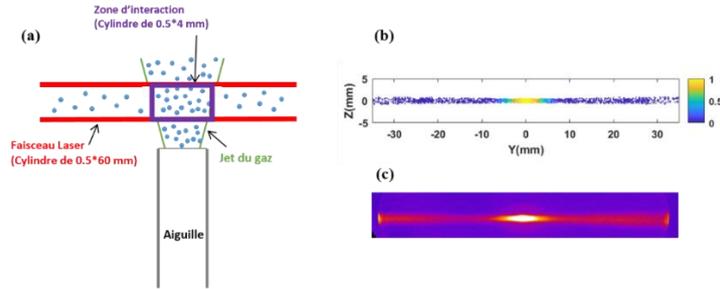


Figure II-14: (a) Schéma explicatif de l'interaction du faisceau ionisant avec le jet du gaz. (b) résultat obtenu avec les simulations SIMION en mode imagerie spatiale des ions pour un rapport $V_2/V_1 = 0.95$ et (c) image expérimentale obtenue avec le spectromètre VMI pour le même rapport V_2/V_1 .

La Figure II-14-(b) montre le résultat de cette simulation pour une tension de répulsion de $+3000\text{V}$ et le rapport $V_2/V_1 = 0.95$ qui donne un grandissement 1 au centre du détecteur. Pour estimer comment varie ce grandissement pour les différentes positions sur le détecteur, j'ai mesuré la largeur de deux cylindres coaxiaux à différents rayons (pour $Y = 0, 10, 20, 30\text{ mm}$) puis divisé par la largeur introduite au départ de cette simulation (diamètre du cylindre = 1mm). Les valeurs de K trouvées pour chaque position sur le détecteur sont regroupées sur la courbe de la Figure II-15-(a). Comme on peut le remarquer, ce grandissement n'est pas constant sur tout le détecteur. Le facteur K augmente de 1 à 1.7 entre les positions au centre et au bord du détecteur respectivement. Pour retrouver les largeurs « réelles » de la zone d'interaction obtenues expérimentalement, j'ai mesuré sur la Figure II-14-(c) la largeur du jet et celle de la partie du gaz résiduel à différents endroits sur le détecteur a été mesurée sur la figure II-15-(c) puis les valeurs déterminées ont été divisées par les valeurs de K à chaque position. Les résultats sont regroupés dans le tableau de la Figure II-15-(b).

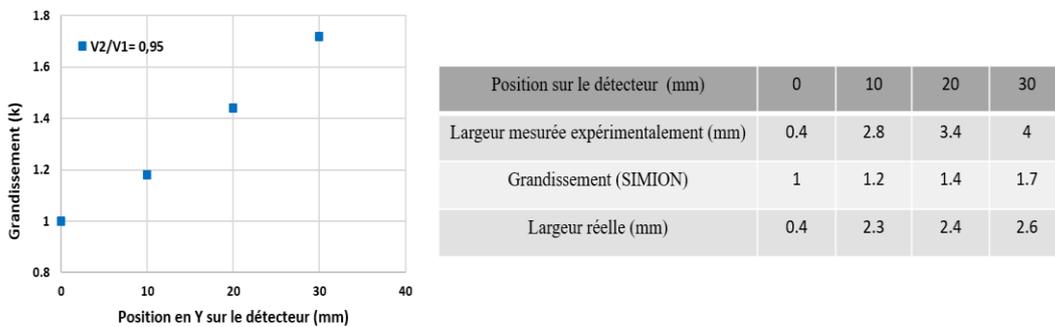


Figure II-15: Courbe montrant la variation du grandissement en fonction de la position sur le détecteur. A droite le tableau regroupant les mesures des largeurs à différents endroits sur l'image spatiale des ions et le calcul de la largeur réelle de la zone d'interaction.

D'autre part, afin de vérifier si le grandissement est le même dans la direction de propagation du faisceau ionisant et la direction perpendiculaire, j'ai simulé cette fois-ci la zone d'interaction par un ensemble de 12 sphères contenant chacune 2500 ions, séparées de 3mm l'une de l'autre et ayant des diamètres différents. Toujours en prenant pour l'axe X, l'axe du spectromètre, ces sphères sont toutes situées à la même position en X (au centre du VMI à 7.5 mm du répulseur), et sont dirigées suivant l'axe Y comme illustré sur la Figure II-16-(a). Les trajectoires des ions de chaque sphère dans SIMION sont présentées dans la partie (b) de la même figure. On remarque que les positions des particules dans la zone d'interaction et sur le détecteur sont inversées. Donc au niveau du détecteur, on obtient une image inversée de la source car le VMI agit comme une lentille électrostatique. L'image obtenue pour cette simulation donnant les positions des sphères sur le détecteur est montrée dans la Figure II-16-(c).

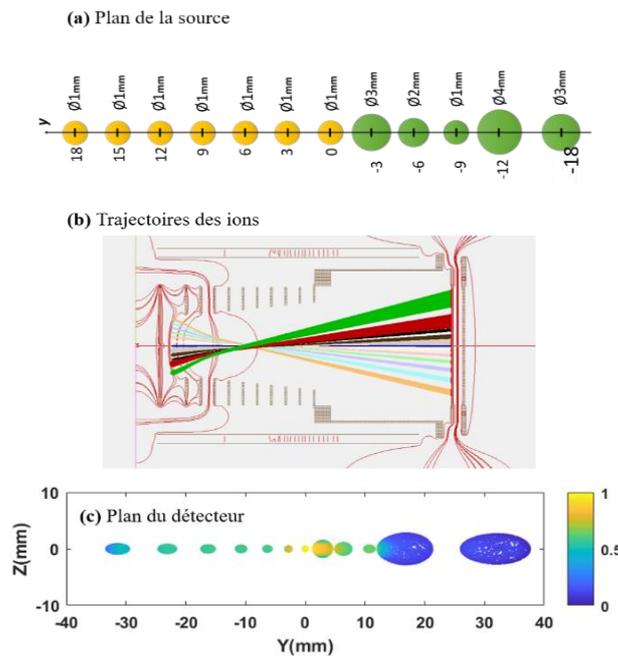


Figure II-16: figure montrant les sphères d'ions créés dans le plan de la source (a), la trajectoire effectuée par chaque sphère de la zone d'interaction jusqu'au détecteur (b) et les positions des sphères projetées sur le détecteur (c).

Lorsqu'on compare les 2 Figure II-16 (a) et (c), on constate que les sphères séparées initialement dans le plan de la source par une distance de 3 mm ne sont pas séparées de la même façon dans le plan de détecteur, et qu'elles n'arrivent pas à la même position. Si on prend par exemple les deux sphères d'ions créées au départ à la position $Y = 15$ et 18 mm, on remarque qu'elles sont détectées pour des positions Y de -23 et -31 mm respectivement. La position de chaque sphère sur le détecteur est représentée sur la courbe de la Figure II-17.

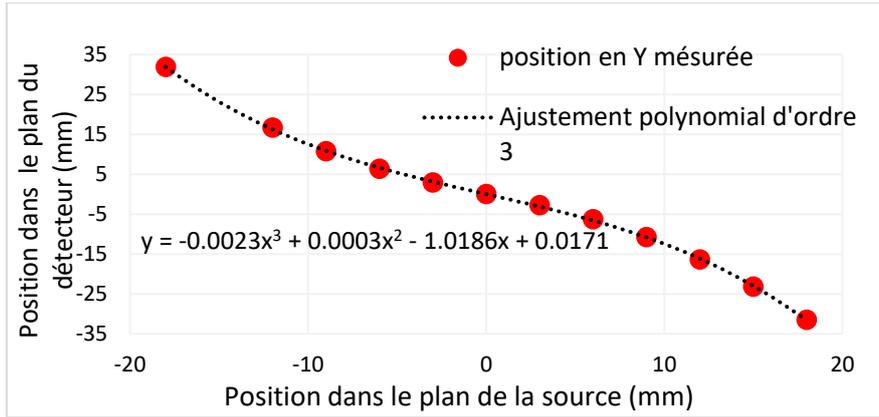


Figure II-17: Courbe montrant les positions relatives dans le plan du détecteur et celui de la source.

Un polynôme d'ordre 3 a été utilisé pour modéliser cette courbe. D'après l'équation donnée par cet ajustement et indiquée sur cette courbe, on peut remonter à la position initiale dans le plan de la source de chaque sphère détectée. Une autre information importante concernant la taille des sphères projetées peut être déduite de la comparaison des figures II-16 (a) et (c). On constate que plus on s'éloigne du centre du VMI (à $Y=0\text{mm}$), plus l'image observée est distordue : Les taches deviennent de plus en plus allongées suivant l'axe Y par rapport à l'axe Z. Après avoir mesuré les dimensions de chaque structure suivant Y et Z et les avoir comparés aux diamètres initiaux indiqués sur la Figure II-16-(a), j'ai calculé les valeurs du grandissement K obtenues suivant les deux directions pour différentes positions sur le détecteur montré sur la Figure II-18. On remarque que pour chaque direction, plus on s'éloigne du centre du VMI ($Y=0\text{ mm}$), plus le grandissement devient important et la différence des valeurs de K suivant Y (points verts) et Z (points oranges) devient significative. Chaque courbe est symétrique par rapport au centre du VMI et prend la forme de « papillon » nommée profil de Pincushion bien remarqué dans les images expérimentales en mode spatial à l'extrémité du détecteur.

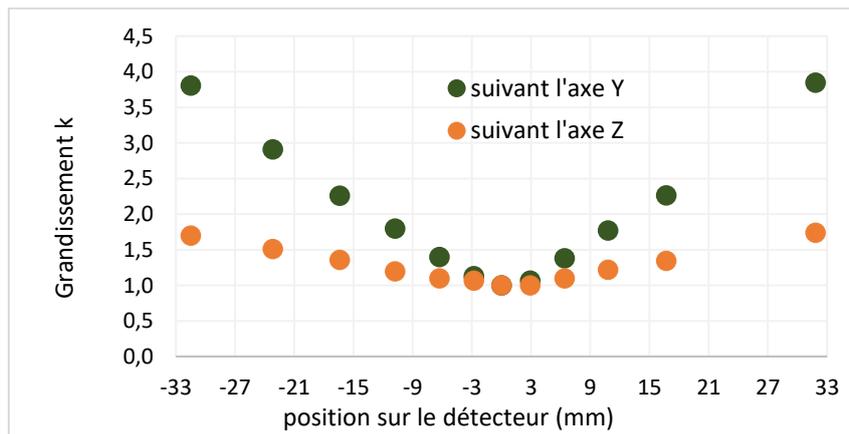


Figure II-18: Courbe montrant la différence entre le grandissement calculé suivant chaque direction pour différents endroits sur le détecteur.

D'après cette simulation, le rapport des tensions V_2/V_1 optimal pour notre spectromètre en mode imagerie spatiale des ions qui donne un grandissement de l'ordre de l'unité au centre du VMI (V_2/V_1 trouvé = 0.95) a été déterminé. De plus, la comparaison entre les simulations SIMION et l'image expérimentale du VMI en mode spatial permet de remonter à la taille réelle de la source à différentes

positions sur l'image obtenue sur le détecteur. En outre, dans la deuxième partie de cette étude, j'ai établi une expression qui relie la position relative dans les deux plans du détecteur et la source. La mesure de la taille des sphères détectées dans le plan (Y, Z) et la comparaison à la dimension initiale de chacune, permet de calculer le grandissement à chaque position sur le détecteur dans la direction de propagation de la source et la direction perpendiculaire. D'après cette étude, on peut remonter à la taille réelle du jet de gaz et du faisceau ionisant obtenue expérimentalement par l'imagerie spatiale des ions comme on le montrera dans la partie suivante.

IV.1.1.1. Mesure de la taille du jet de gaz et du faisceau ionisant

Comme déjà discuté dans la partie précédente, le mode imagerie spatiale des ions sert non seulement à vérifier l'alignement du faisceau ionisant avec le jet de gaz, mais aussi à quantifier la dimension de la zone d'interaction. Dans le cas où le gaz est injecté à l'aide d'une aiguille, la taille de la zone d'interaction change suivant la position verticale de l'aiguille nommée « Z_{aig} » par rapport au répulseur. Pour déterminer la meilleure position en hauteur de l'aiguille dans chaque expérience, une étude montrant la variation de ces grandeurs, ainsi que celle de l'intensité du signal obtenu est essentielle.

Les différentes hauteurs de l'aiguille utilisées dans cette étude sont illustrées dans la Figure II-19-(a). Les images brutes en mode imagerie spatiale des ions produits suite à l'ionisation d'atomes de xénon par des photons de 21,21 eV d'énergie issus d'une lampe à décharge sont présentées dans la Figure II-19-(b). Un agrandissement sur la partie centrale pour chaque image mise à la même échelle de couleur est également représenté dans la figure (c) pour montrer la variation de la forme de la zone d'interaction en fonction de Z_{aig} . Pour chaque hauteur de l'aiguille, le voltage appliqué sur celle-ci a été optimisé.

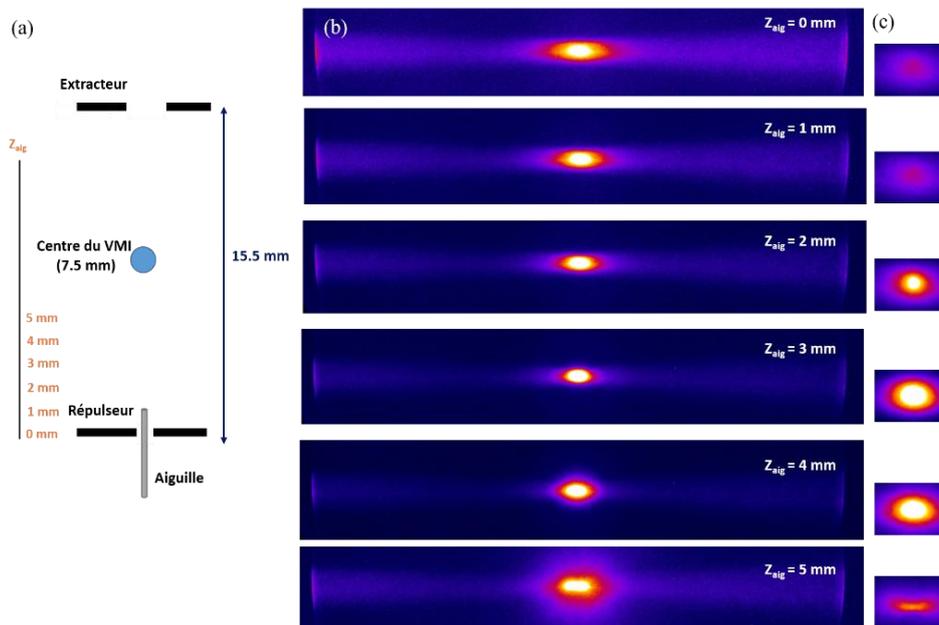


Figure II-19: schéma de la hauteur de l'aiguille par rapport au répulseur (a), images brutes en mode imagerie spatiale pour différents Z_{aig} (b), un agrandissement de la partie centrale des images des ions (c).

Qualitativement, d'après la Figure II-19-(c), on remarque que la forme de l'image du jet de gaz varie lorsque la hauteur de l'aiguille par rapport au répulseur devient importante. Pour $Z_{aig} = 0$ (aiguille au niveau du répulseur) le signal provenant du jet est assez faible, ce qui rend sa forme difficile à

déterminer. Pour une valeur de $Z_{aig} = 2\text{mm}$, le signal devient plus important et la forme du jet devient circulaire. Ce signal s'intensifie pour les deux valeurs suivantes de la hauteur de l'aiguille ($Z_{aig} = 3$ et 4 mm), puis diminue pour une hauteur de 5mm (à -2.5 mm par rapport au centre du VMI). En outre, pour cette valeur de Z_{aig} , une déformation de l'image est très visible : Le jet n'est pas cette fois-ci circulaire, mais plutôt allongé dans la direction de propagation du faisceau. Polariser l'aiguille pour compenser la perturbation introduite par celle-ci sur les lignes de champ n'est plus suffisant lorsque l'aiguille pénètre profondément dans le VMI. Quantitativement, pour étudier l'effet de Z_{aig} sur le signal du jet de gaz, on effectue une coupe de l'image le long de l'axe de propagation du faisceau ionisant et dans la direction perpendiculaire. Les résultats de cette étude sont représentés dans les deux courbes de la Figure II-20 . Ces figures montrent la variation du signal du jet de gaz en fonction de la position dans le plan de la source. On mesure le signal sur l'image brute du détecteur, puis pour passer du plan du détecteur au plan de la source, l'ajustement trouvé avec les simulations SIMION présentées ci-dessus est utilisé. Pour chaque position sur le détecteur, on retrouve la position au niveau de la source en appliquant l'expression $y = -0.0023x^3 + 0.0003x^2 - 1.0186x + 0.0171$.

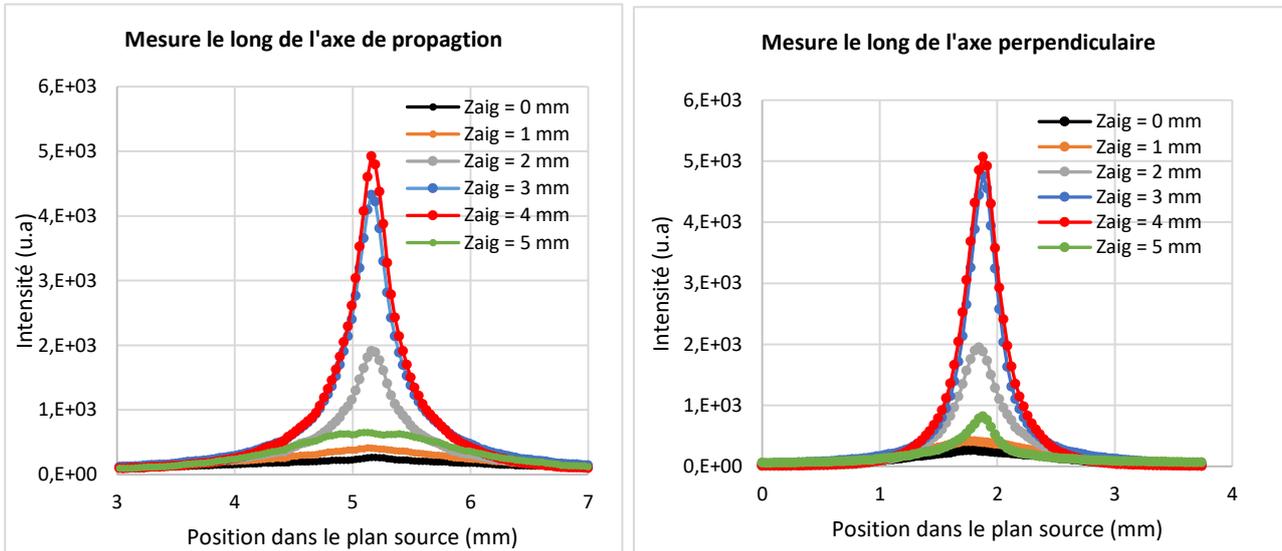


Figure II-20 : Courbes montrant le signal de la partie centrale mesuré dans la direction de propagation du faisceau (a), et la direction perpendiculaire (b) pour différentes hauteurs de l'aiguille.

Suivant les deux directions, le signal de la zone d'interaction devient plus important lorsque la valeur de Z_{aig} augmente. Le niveau du signal diminue uniquement pour $Z_{aig} = 5\text{ mm}$ à cause de forte perturbation des lignes de champ électrostatique dans le VMI. La dimension de la zone d'interaction peut être déduite dans chaque cas en calculant la largeur à mi-hauteur de la courbe. Rappelons que le rapport des tensions V_2/V_1 utilisé dans cette étude était de 0.95, qui correspond à un grandissement de 1 au centre du VMI. Il en résulte que la largeur FWHM calculée sur ces courbes est la largeur réelle dans le plan de la source. Finalement, après le calcul de la largeur FWHM pour chaque courbe, on constate que pour $Z_{aig} = 4\text{ mm}$, le signal est maximum et la FWHM est de l'ordre de $400\text{ }\mu\text{m}$ dans les deux directions. La reconstruction de l'image dans le plan source est également possible en la découpant en tranches ΔY , sachant que pour chaque tranche on applique les grandissements K_y et K_z donnés par SIMION suivant les deux directions y et z respectivement.

IV.1.2. Imagerie des vitesses des ions

Les ions détectés dans le mode d'imagerie des vitesses doivent être regroupés sous forme d'un point bien focalisé au centre du détecteur car leur distribution d'énergie cinétique est extrêmement étroite et proche de 0 eV. Cependant, la tension appliquée sur l'extracteur ou plus précisément le rapport V_2/V_1 joue un rôle très important sur la focalisation des ions au niveau du détecteur. Ceci est montré dans les différentes images de la Figure II-21, prises dans les mêmes conditions expérimentales, mais où l'on fait varier le rapport V_2/V_1 en modifiant V_2 seulement. Ces images correspondent à la détection d'ions issus de la photoionisation d'atomes de Xénon par des photons de 38 eV produits par l'installation LASERIX fonctionnant en mode ASE. On remarque que lorsque l'on modifie la tension appliquée sur l'extracteur, la focalisation des particules sur le détecteur se dégrade d'une manière significative. Au lieu d'avoir des particules bien focalisées dont le signal est regroupé sous forme d'un point, on trouve une tâche au centre distordue comme par exemple pour un rapport des tensions V_2/V_1 de 0.937. La dimension de la tâche augmente de plus en plus lorsqu'on s'éloigne du rapport V_2/V_1 optimal égal à 0.943 dans notre cas. Par conséquent, ce mode permet d'optimiser la tension à appliquer sur l'extracteur à quelques volts près. Une étude montrant l'influence de la tension appliquée à l'extracteur sur la résolution en énergie du VMI fonctionnant en mode électrons sera présentée dans la partie 6 de ce chapitre.

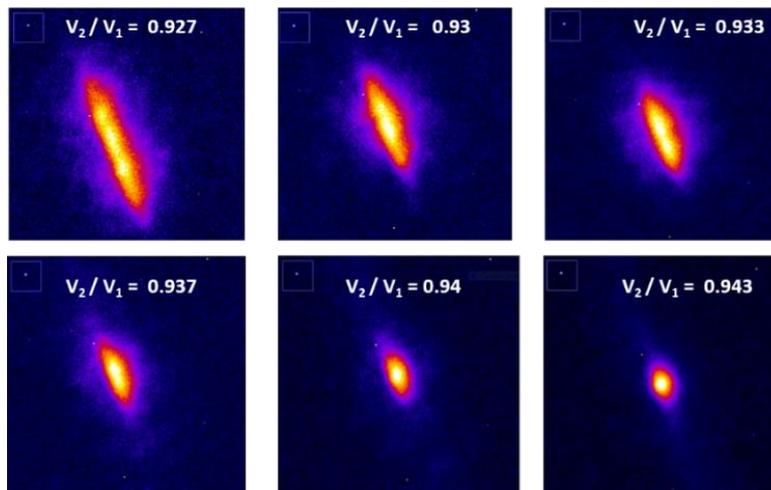


Figure II-21: Evolution de la focalisation des ions sur le détecteur dans un spectromètre VMI en mode imagerie de vitesse pour différents rapports V_2/V_1 .

Le mode imagerie des vitesses des ions combinés au mode spatial permet également de régler finement la position de la zone d'interaction au centre du VMI. Les ions émis de la zone d'interaction sont focalisés au centre du détecteur. Cela fournit une référence de la position du centre du VMI. D'autre part, l'imagerie spatiale nous permet de déterminer la position de la zone d'interaction dans le VMI. La superposition d'une image spatiale sur une image obtenue en mode imageur des vitesses des ions permet de régler très soigneusement la position de la zone d'interaction au centre du VMI, afin d'améliorer la focalisation des particules chargées sur le détecteur.

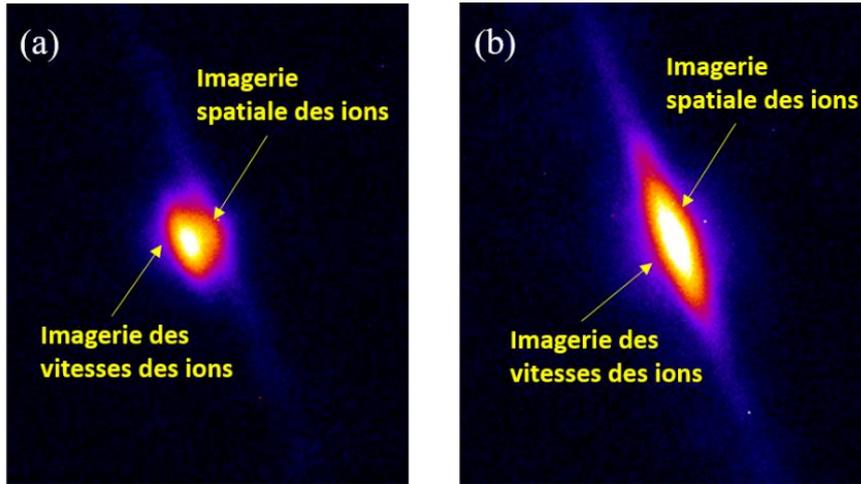


Figure II-22: Vérification de l'alignement du faisceau ionisant au centre du VMI en superposant une image des ions en mode spatiale avec une autre en mode imagerie de vitesse.

La Figure II-22 illustre la méthode d'alignement du faisceau ionisant au centre du VMI en effectuant cette superposition. On remarque en (a) qu'un décalage est observé entre l'image des ions et l'image spatiale au niveau de la zone d'interaction. Ce décalage provient d'un désalignement de la zone d'interaction qui est dû à un petit désalignement du faisceau ionisant par rapport au centre du VMI. Après avoir ajusté la position du faisceau de photons en réglant les miroirs utilisés pour le positionner dans le VMI, on reprend deux nouvelles images en mode vitesse et spatial dont on affiche la superposition. L'intensité du signal peut alors être optimisée en ajustant finement la position de l'aiguille. La Figure II-22-(b) montre l'alignement final de la zone d'interaction au centre du VMI, où on observe les deux images correctement superposées.

IV.1.2.1. Comparaison entre l'aiguille et la vanne pulsée

En revenant à la partie III .4, dans notre travail, l'injection du gaz cible dans l'enceinte du VMI a été réalisée en utilisant deux méthodes différentes. Dans un premier temps, une aiguille a été employée. Dans l'espoir d'augmenter l'intensité du signal et afin de réduire l'intensité des structures parasites dans nos images, nous avons pu emprunter en fin d'expérience, une vanne pulsée dont nous avons testé les performances dans le VMI. Dans cette partie, on montre d'une manière qualitative la différence entre les images brutes obtenues à l'aide de ces deux systèmes d'injection de gaz. D'une manière quantitative, on compare également le signal détecté suite à l'injection des atomes cibles via ces deux méthodes différentes. Dans la Figure II-23, on compare les images brutes obtenues à l'aide du VMI en mode imagerie spatiale (a et b) et imagerie de vitesses des ions (c et d) respectivement, suite à l'injection du gaz cible via une aiguille placée à 4mm au-dessus du répulseur (a et c) et une vanne pulsée (b et d).

Dans la Figure II-23 (a) qui correspond à l'imagerie spatiale des ions, on observe une tache intense encadrée par une partie beaucoup plus longue, mais peu intense, suivant la propagation du faisceau de photons, qui correspond à la photoionisation du gaz diffusé dans l'enceinte. Dans le panel (b) qui correspond à l'image obtenue en employant la vanne pulsée, on élimine une très grande partie du gaz diffusé autour du jet de gaz, et on n'observe qu'une petite partie intense au centre de l'image. Afin de quantifier le niveau de signal détecté dans ces deux images, on mesure le signal intégré sur chaque image à l'aide du logiciel ImageJ que l'on montre sur la figure suivante. Les deux signaux sont comparés après

normalisation de chaque signal suivant le nombre des tirs effectués et l'ouverture du diaphragme de la caméra CCD.

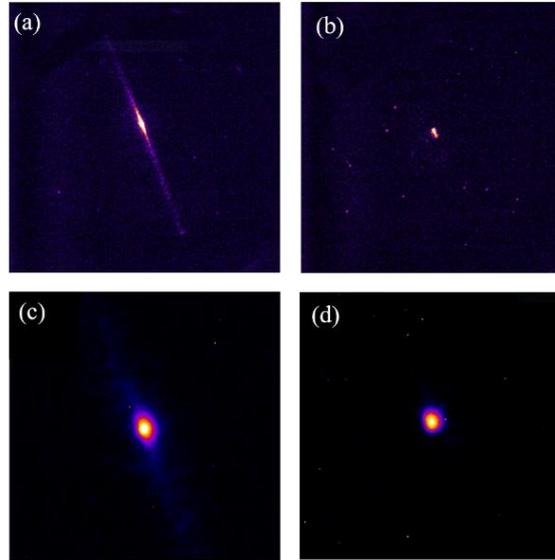


Figure II-23: Comparaison entre les images brutes VMI obtenues en mode imagerie spatiale et imagerie de vitesse des ions respectivement lors de l'injection du gaz cible via une aiguille (a et c) et via une vanne pulsée (b et d).

Notons que, tant dans le cas de l'utilisation de la vanne pulsée que dans celle de l'aiguille, la pression de gaz injectée dans l'enceinte était maximum, tout en restant compatible avec le fonctionnement de la MCP. Dans ces conditions, on obtient avec l'aiguille, un signal 12 fois plus intense par rapport à l'emploi de la vanne pulsée. Si on reprend maintenant les images en mode imagerie des vitesses des ions (Figure II-23 (c) et (d)), on constate qu'avec une vanne pulsée (en d), la tâche qui correspond aux ions observés au centre du détecteur est de forme circulaire, bien plus que celle obtenue dans le cas de l'utilisation d'une aiguille (en c). L'aiguille délivre un jet de gaz jet effusif tandis qu'avec la vanne, le faisceau d'atomes est plus collimaté.

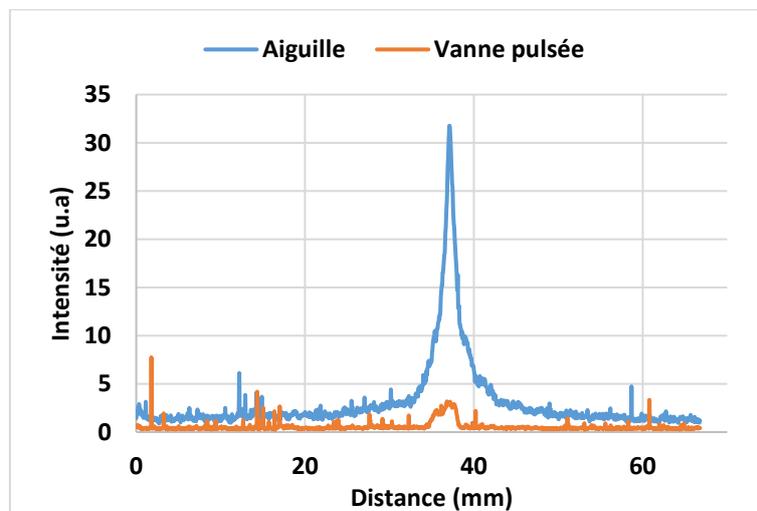


Figure II-24: Signal intégré mesuré sur les images en mode spatial dans le cas d'injection du gaz avec une aiguille (en bleu) et une vanne pulsée (orange).

Après quantification du signal détecté dans les deux systèmes d'injection du gaz, comme présenté dans la Figure II-25, on détermine que le signal obtenu lors de l'utilisation d'une aiguille est 9 fois plus intense par rapport à celui obtenu avec la vanne pulsée. Les deux modes d'imagerie des ions montrent que le signal détecté en utilisant une vanne pulsée est presque 10 fois moins intense que le signal mesuré dans le cas de l'emploi d'une aiguille.

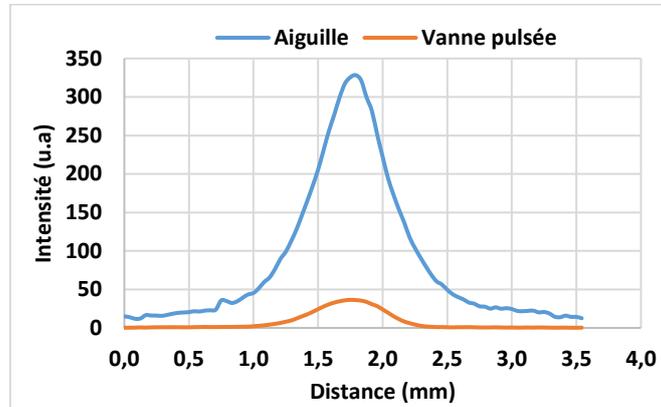


Figure II-25: Mesure du signal sur les images en mode imagerie des vitesses des ions dans le cas d'injection du gaz avec une aiguille (en bleu) et une vanne pulsée (orange).

IV.2. Imagerie des vitesses des électrons

Une fois que l'alignement du faisceau ionisant avec le jet de gaz au centre du VMI est optimum, le mode imagerie des vitesses des électrons peut être abordé. Pour exploiter les spectres d'électrons produits par le spectromètre VMI fonctionnant en mode imageur de vecteur vitesse, deux caractéristiques essentielles doivent être déterminées : la calibration en énergie du spectromètre qui permet la mesure des énergies cinétiques des raies d'électrons observées à partir de leur position sur le détecteur, et la résolution en énergie qui dépend de la bonne focalisation des photoélectrons dans le plan du détecteur. Les différences de potentiel entre les électrodes génèrent des lignes de champ électrostatique qui déterminent ces deux caractéristiques. Ceci impose une optimisation des tensions appliquées sur les électrodes du VMI avant son utilisation en mode imagerie des vitesses des électrons. Dans le cas de ces particules qui sont chargées négativement, il faut appliquer des tensions négatives sur les électrodes, de valeur absolue décroissante, de la première à la 10ème électrode pour accélérer les particules chargées dans la direction du détecteur et les y focaliser. Etant donné que l'extracteur est l'électrode critique pour réaliser cette focalisation, pour chaque mode d'emploi du spectromètre, un rapport V_2/V_1 précis est essentiel à déterminer. Comme discuté dans la partie précédente, le mode imagerie des vitesses des ions permet d'optimiser ce rapport qui est proche de la valeur optimum à utiliser en mode d'imagerie de vitesse des électrons.

Les tensions à appliquer sur les différentes électrodes de V_2 à V_{10} (V_{11} liée à la masse) ont été déterminées à partir d'un script dans le logiciel SIMION, pour un potentiel répulsif de -7kV. Ce script a été réalisé en optimisant la focalisation des particules sur le détecteur. Il permet aussi de définir la position optimale de la source d'électrons entre le repulseur et l'extracteur. Le repulseur était polarisé à ce potentiel de 7kV dans le script, limite haute imposée par l'alimentation de tension, qui définit les électrons de plus haute énergie qu'il est possible d'analyser. Dans un premier temps, les paramètres à

optimiser par le script sont les potentiels du répulseur, de l'extracteur et des deux premières électrodes de focalisation (V_3 et V_4 dans une configuration d'un VMI à lentille épaisse). Les électrodes supérieures agissant comme des " stabilisateurs ", la valeur du potentiel qui leur est appliqué est calculée par interpolation linéaire à partir du potentiel optimisé de V_4 et la masse appliquée à la dernière électrode.

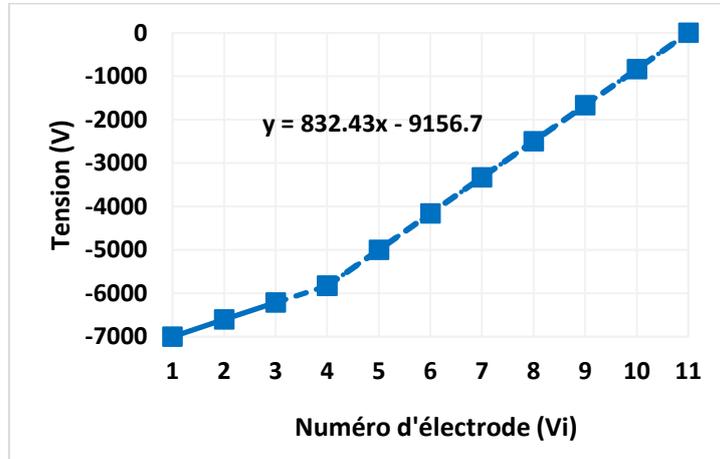


Figure II-26: distribution des tensions appliquées aux 11 électrodes, pour une tension de répulsion $V_1 = -7kV$.

La Figure II-26 montre la courbe de distribution des tensions sur les 11 électrodes du VMI donnée par SIMION pour un $V_1 = -7kV$. Les tensions appliquées entre V_4 et V_{11} sont ajustées par une interpolation linéaire avec $y = 832.43x - 9156.7$ où x est le numéro de l'électrode. La distribution des tensions pour d'autres potentiels de répulsion (V_1) est déduite en appliquant un coefficient de proportionnalité aux valeurs déterminées pour $V_1 = -7kV$. En première approximation, quelle que soit la tension appliquée au répulseur, les rapports V_2/V_1 et V_4/V_1 doivent rester constants. Toutefois, selon la valeur de l'énergie cinétique des photoélectrons analysés, ces rapports peuvent être légèrement modifiés pour des énergies cinétiques extrêmes, très basses ou très hautes. Une étude plus détaillée de l'influence de ces deux rapports sur la résolution en énergie du VMI sera présentée dans la partie 6 de ce chapitre.

V. Calibration en énergie du spectromètre VMI

L'image obtenue suite à un phénomène de photoionisation d'un gaz cible par un rayonnement VUV est constituée à partir de la position d'impact des photoélectrons détectés. Après une inversion d'Abel de cette image, la mesure des rayons des raies de photoélectrons sera possible. La reconstruction du spectre en énergie des photoélectrons se fait alors suite à la calibration en énergie du spectromètre VMI. Une des propriétés clé de l'imagerie de vecteurs vitesse est la relation linéaire entre la quantité de mouvement des particules détectées et leur rayon d'impact sur le détecteur. Une manière plus explicite pour expliquer cette relation consiste à écrire l'énergie cinétique en fonction du carré du rayon d'impact comme déjà montré dans l'équation II-3 : $E_c = \frac{q V_{\text{Répulseur}} R^2}{C^2}$, avec C la constante d'étalonnage du spectromètre VMI. Le coefficient C nommé aussi la constante de calibration du VMI que l'on cherche à déterminer dans cette partie, est propre à la géométrie de chaque spectromètre (plus précisément sa longueur). Dans cette partie, une première estimation de la valeur de la constante C sera proposée à partir d'une modélisation des trajectoires des électrons. Cette valeur sera ensuite comparée à celle obtenue expérimentalement.

V.1. Calibration en énergie par des simulations SIMION

Les simulations numériques effectuées grâce au logiciel SIMION permettent d'établir une première calibration en énergie du spectromètre VMI. Ce logiciel calcule les trajectoires des photoélectrons d'énergie connue, issus du volume source du spectromètre et projetés vers le détecteur. Dans cette modélisation SIMION, seuls les électrons éjectés avec un vecteur vitesse initial compris dans le plan du détecteur ont été pris en compte. Ce faisant, au lieu d'avoir une sphère projetée sur le détecteur qui nécessite l'utilisation d'une inversion d'Abel pour mesurer son rayon, on obtient directement un cercle égal à sa projection au niveau du détecteur appelée aussi « slice » qui est la tranche centrale de la sphère de Newton totale. Je rappelle que, d'après l'équation II-3, la position radiale R des photoélectrons dépend non seulement de leur énergie cinétique initiale, mais aussi de la tension appliquée au répulseur. Faire varier un de ces deux paramètres permet donc de simuler des raies des photoélectrons à différentes positions radiales. Par exemple, pour une énergie cinétique définie, on peut varier la tension de répulsion, pour varier le rayon d'impact sur le détecteur. La modélisation permet également de simuler des particules dans une large gamme d'énergies cinétiques de sorte que leur position radiale recouvre tout le détecteur, pour une même tension de répulsion. Les simulations permettant la calibration en énergie du spectromètre VMI sont regroupées en deux études détaillées ci-dessous.

V.1.1. Pour une tension de répulsion ($V_{\text{répulseur}}$) donnée

Dans cette simulation, la tension appliquée au répulseur a été fixée à -3000V . La zone d'interaction a été modélisée par un cylindre de rayon $r_{\text{cyl}} = 0.5\text{mm}$ et de longueur $l_{\text{cyl}} = 4\text{mm}$, d'où sont émis des électrons de différentes énergies cinétiques allant de 1eV jusqu'à 51eV . Ces valeurs d'énergies cinétiques correspondent physiquement à celles des électrons émis lors de l'ionisation d'atomes d'Argon par les photons d'un peigne d'harmoniques d'ordre élevé généré dans un gaz (de HH11 jusqu'à HH43). Cela permet d'établir une estimation de la calibration en énergie du VMI dans le domaine spectral des expériences réalisées durant cette thèse. Pour une énergie cinétique donnée, 50000 électrons dont les trajectoires sont simulées sont émis du cylindre source. Les rayons des cercles observés sur les images ainsi formées sont mesurés et représentés sur la figure ci-dessous.

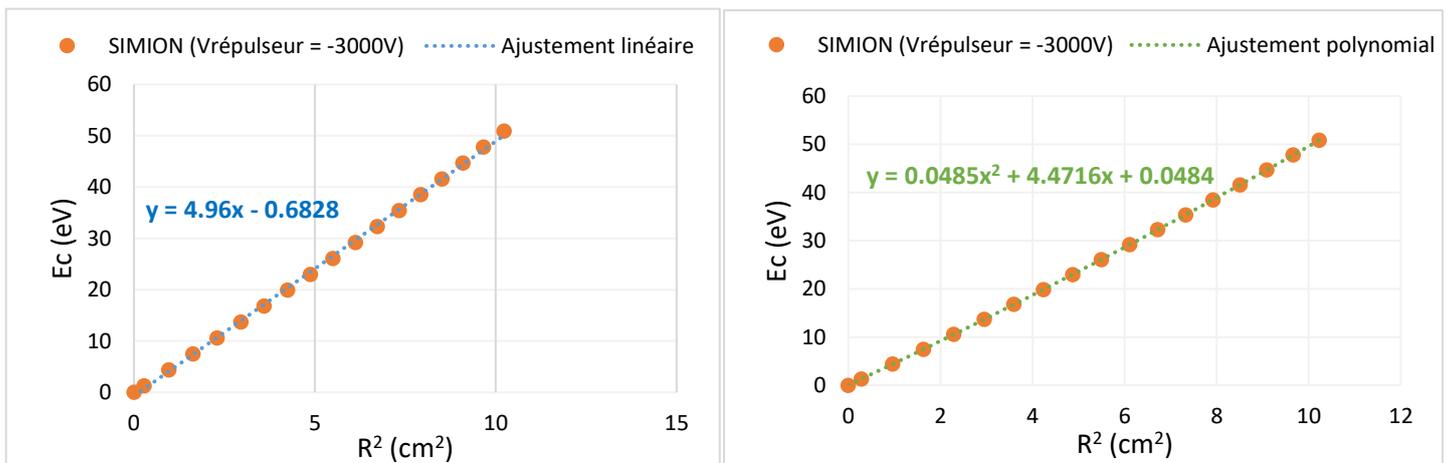


Figure II-27: Courbe de calibration en énergie du VMI obtenue à partir de simulations SIMION pour une tension de répulsion fixée à -3000V . Les deux ajustements utilisés sont représentés : un linéaire en (a) et un autre polynomial d'ordre 2 en (b).

Les courbes de la Figure II-27 permettent de déterminer l'énergie cinétique des photoélectrons en

fonction du carré du rayon de leur position d'impact mesurée sur le détecteur. D'après l'équation II-3 on trace la courbe $E = \alpha \cdot R^2$ avec $\alpha = V_1 / C^2$. L'ajustement linéaire représenté Figure II-27 (a) permet de déterminer une valeur de $4,96 \text{ V/cm}^2$ pour le paramètre α . On en déduit que la constante C caractéristique du spectromètre est de $24,6 \text{ cm}$. Pour une meilleure précision sur la détermination de la calibration en énergie, les valeurs obtenues par les simulations peuvent être ajustées à un polynôme du second degré $E = \beta \cdot R^2 + \delta \cdot R^4$ comme montré Figure II-27 (b), avec $\beta = 4.4716 \text{ V.cm}^{-2}$ et $\delta = 0.00485 \text{ V.cm}^{-4}$. On voit que la correction du second ordre est faible, et donc le paramètre β est proche du paramètre α précédemment déterminé. La constante de calibration en énergie du VMI trouvée par un ajustement polynomial vaut donc $C = 25.9 \text{ cm}$. La Figure II-28 présente les valeurs résiduelles issues de la différence entre les valeurs d'énergies issues des simulations et celles obtenues par les ajustements linéaires et quadratiques sur la gamme d'énergies simulées entre 1 eV et 51 eV .

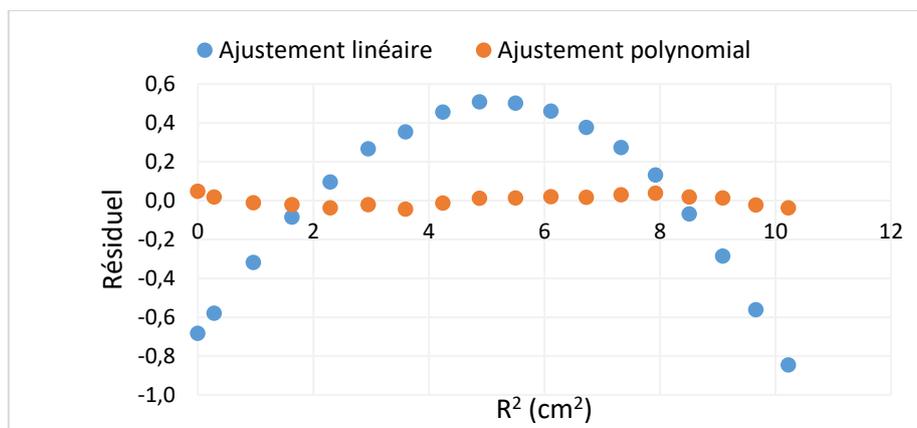


Figure II-28: Les valeurs du résiduel en fonction de l'énergie cinétique des photoélectrons pour chaque ajustement utilisé, linéaire (points bleus) et polynomial (points oranges).

L'écart entre les données obtenues par la simulation et l'ajustement linéaire à ces données est représenté par les points bleus dans la Figure II-28. On observe une bonne représentation de la tendance ($E_c \propto R^2$), avec un écart pouvant atteindre $\pm 0.6 \text{ V.cm}^{-2}$. Par contre, des valeurs plus faibles de plus d'un ordre de grandeur des résidus ($\pm 0.04 \text{ V.cm}^{-2}$) sont obtenues en utilisant un ajustement polynomial d'ordre 2 représenté sur cette figure par les points oranges. Les simulations SIMION mettent en évidence une composante en R^4 sur les valeurs des énergies mesurées. Il est donc préférable d'utiliser un ajustement polynomial plutôt que linéaire pour interpoler les valeurs de l'énergie cinétique des structures observées à partir de leur rayon mesuré dans les images. Le choix du meilleur ajustement permet de diminuer les erreurs sur la calibration en énergie des spectres expérimentaux. Autrement dit, il permet de réduire le décalage en énergie entre les différentes structures observées dans les spectres obtenus, ce qui est important dans nos expériences.

V.1.2. Pour une énergie cinétique donnée

Une seconde méthode, pour déterminer la constante de calibration via les simulations SIMION, consiste à fixer l'énergie cinétique des photoélectrons et à faire varier systématiquement le potentiel appliqué au répulseur. Dans cette étude, l'énergie cinétique a été fixée à 20 eV , et le potentiel du répulseur a été varié de -1 kV à -4 kV . Les paramètres tels que la géométrie, la dimension de la source et le nombre des particules émises restent les mêmes que dans l'étude précédente. De même, en repartant de l'équation

II-3, on trace la courbe de V_1 en fonction de $1/R^2$ suivant la fonction $V_1 = E_c.C^2/R^2$. La valeur de C peut être déterminée à partir d'un ajustement polynomial d'ordre 2 de la courbe $V_1 = f(1/R^2)$. Comme montré dans la Figure II-29, on obtient donc à partir du coefficient du terme linéaire : $E_c . C^2 = 1,3073.10^4$ eV.cm² ce qui donne une valeur de la constante C de 25,6 cm.

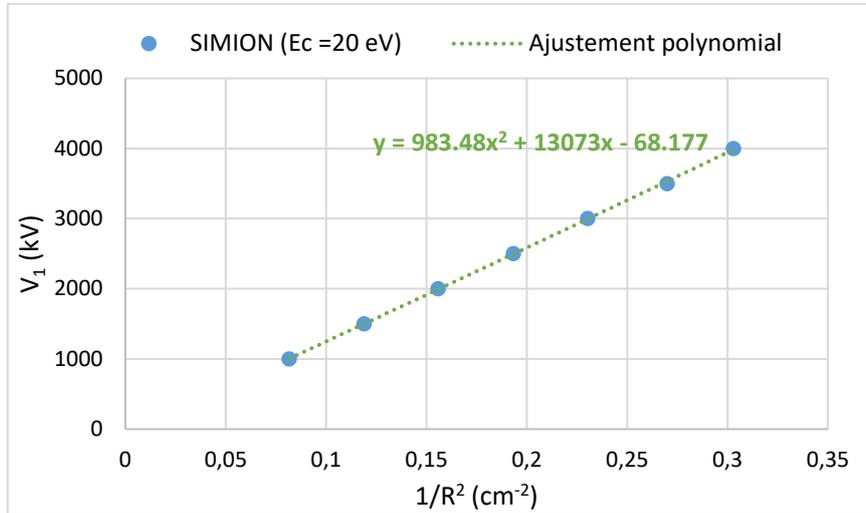


Figure II-29: Relation entre le rayon des anneaux observés et le potentiel V_1 pour une valeur de l'énergie cinétique fixée à 20 eV.

Finalement, nous voyons que ces deux méthodes de détermination de la constante de la calibration du spectromètre (pour une tension de répulsion constante et à une valeur donnée de l'énergie cinétique), donnent deux valeurs de C très proches ($C = 25.9$ cm et $C = 25.6$ cm respectivement) ce qui confirme la fiabilité des simulations employées. Cette légère différence est probablement due à l'erreur de pointé du rayon des raies de photoélectrons.

V.2. Mesure expérimentale de la constante de calibration C

Pour calibrer expérimentalement notre VMI, une lampe à décharge émettant des photons UV de 21.21 eV d'énergie (He I) a été utilisée pour ioniser différents gaz cibles (Argon, Xénon et Krypton). Rappelons que ce rayonnement est non polarisé. Les images expérimentales obtenues sur le détecteur sont présentées dans la Figure II-30. Elles correspondent respectivement aux spectres de photoélectrons issus de l'interaction du rayonnement émis par la lampe à Hélium avec un jet d'argon (a), de krypton (b) et de xénon (c). Ces trois gaz ont des potentiels d'ionisation différents, ce qui va induire des raies de photoélectrons avec des énergies cinétiques différentes qui sont regroupées dans le Tableau II-2. L'énergie cinétique des photoélectrons après un processus de photoionisation peut être calculée à partir de l'énergie des photons (E_{hv}) et du potentiel d'ionisation du gaz ionisé ($I_{p\text{ gaz}}$) en écrivant la conservation de l'énergie, suivant l'équation :

$$E_{c\text{ photoélectrons}}(eV) = E_{hv} - I_{p\text{ gaz}} \quad (\text{équation II-13})$$

Gaz cible	$I_{p3/2}$ (eV)	$I_{p1/2}$ (eV)	$E_{c3/2}$ (eV)	$E_{c1/2}$ (eV)
Argon	15.76	15.94	5.45	5.27
Krypton	14.00	14.67	7.21	6.54
Xénon	12.13	13.44	9.08	7.77

Tableau II-2: Tableau regroupant les potentiels d'ionisation des différents gaz rares ainsi que les énergies cinétiques des photoélectrons correspondantes après ionisation par des photons de 21.21 eV.

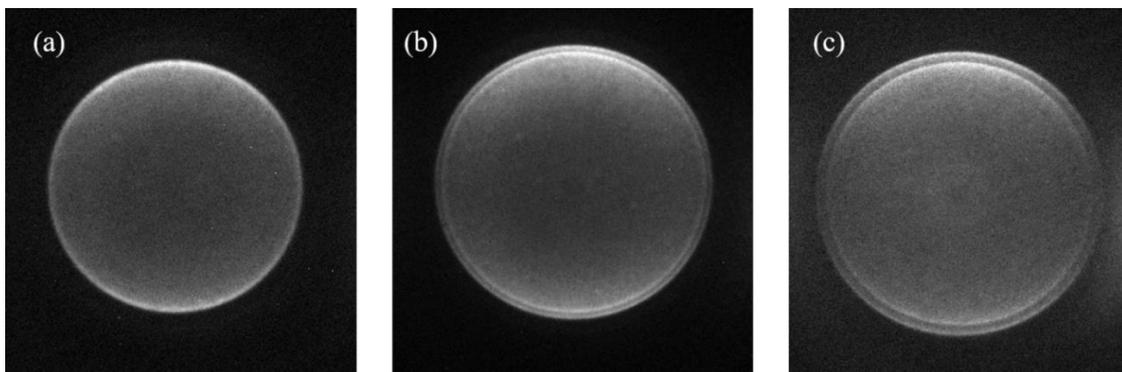


Figure II-30: Images brutes obtenues avec le VMI montrant les spectres de photoélectrons obtenus suite à la photoionisation d'atomes d'argon (a), de krypton (b) et de xénon (c) avec des photons de 21,21 eV pour une tension de répulsion de -1.5kV et un rapport $V_2/V_1 = 0.94$

Sur ces images brutes, chaque raie est constituée de photoélectrons de même énergie cinétique, émis dans des directions différentes. Dans un premier temps, l'information que l'on peut extraire de cette image est la position de la raie en pixels. Le passage du pixel au mm se fait grâce à la mesure du diamètre intérieur de la MCP (en px) que l'on convertit en mm, sachant que la taille active du détecteur est de 75mm. Pour déterminer la constante de calibration C du VMI, des mesures ont été réalisées pour différentes tensions de répulsion qui s'étendent de -500V à -3.5kV avec un pas de 500V. Une fois les spectres expérimentaux obtenus, une inversion d'Abel effectuée au moyen de l'algorithme pBasex permet de mesurer la position des pics des photoélectrons comme montré dans la Figure II-31 dans le cas de krypton. Les spectres intégrés angulairement obtenus avec pBasex pour deux tensions appliquées sur le répulseur ($V_1 = -1kV$ en (a) et $-2.5kV$ en (d)) illustrent l'influence du voltage du répulseur sur le diamètre des structures observées. Notons que la résolution du VMI est suffisante pour résoudre les deux composantes du doublet correspondant aux seuils $2P_{1/2}$ et $2P_{3/2}$, dont les raies d'électrons ne sont séparées que de 0,7 eV ($E_c = 6.54$ eV et 7.21 eV respectivement).

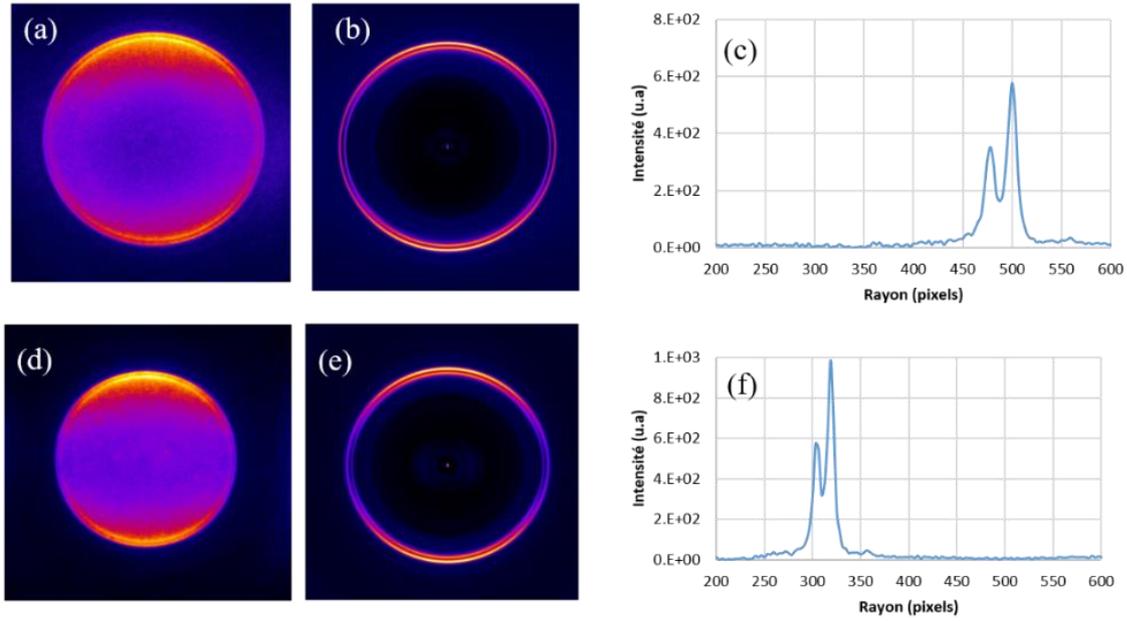


Figure II-31: Images expérimentales montrant les raies obtenues lors de l'ionisation de krypton par des photons de 21,21 eV d'énergie, pour une tension de répulsion $V_1 = -1000$ V (en haut) et $V_1 = -2500$ V (en bas), avant (a et d) et après inversion d'Abel (b et e) et la distribution radiale des photoélectrons correspondante (c et e). Dans les deux courbes, la raie avec un rayon inférieur correspond à une énergie $E_c = 6.54$ eV et celle avec un rayon plus grand correspond à une énergie $E_c = 7.21$ eV.

Pour calculer la constante de calibration C du VMI, après avoir mesuré les rayons des raies pour différents gaz cibles et différentes tensions de répulseur, le rapport E_c/V_1 est tracé en fonction de R^2 ($E_c/V_1 = k \cdot R^2$ avec $k = 1/c^2$). On suppose de plus que les photoélectrons d'énergie cinétique nulle seront détectés au centre du VMI ($R=0$).

Comme la relation entre le carré du rayon d'impact des photoélectrons et leur énergie cinétique est linéaire, le coefficient k qui permet d'obtenir par suite la valeur de la constante de calibration C , est déterminé par un ajustement à une droite. Il est représenté dans la Figure II-32 par la relation $y = 0.0015x + 6E-05$. On en déduit la valeur de la constante $k = 0.0015 \text{ cm}^{-2}$ et donc de la constante $C = 25.8 \text{ cm}$.

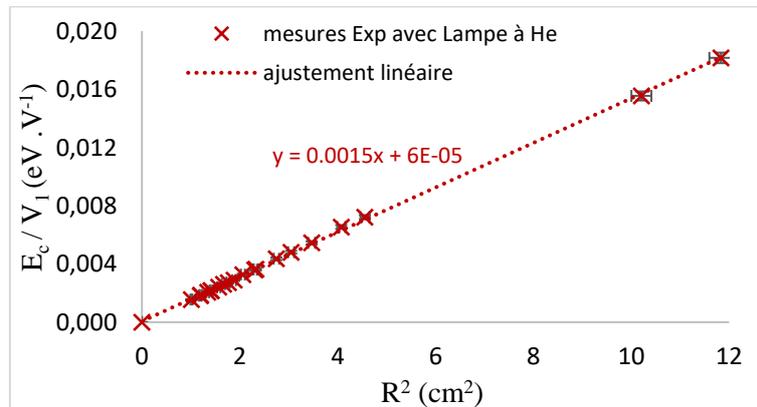


Figure II-32: courbe de calibration du spectromètre VMI obtenue à partir de la photoionisation d'atomes de gaz rares par des photons de 21,21 eV. Les incertitudes sur les mesures du rayon sont de l'ordre du mm.

Cette valeur de 25,8 cm est comprise entre les deux valeurs obtenues par les simulations, suivant deux méthodes différentes, qui étaient respectivement de 25,6 cm et 25,9 cm. Un tel accord souligne la fiabilité

de la modélisation, qui sera utilisée par la suite pour étudier l'influence de différents paramètres sur la résolution du VMI.

VI. Etude de la résolution en énergie du spectromètre VMI

Dans les expériences de photoionisation habillée par laser, la résolution en énergie du VMI utilisé est un paramètre important à prendre en compte. Il caractérise la capacité du spectromètre à distinguer des photoélectrons d'énergies proches. Cela permet de résoudre expérimentalement sur le détecteur les raies de photoélectrons produites par l'impulsion XUV des side-bands générées par le champ d'habillage. La résolution expérimentale relative est déterminée à partir du rapport entre la largeur de la raie des photoélectrons (ΔR) et son rayon (R) après l'inversion des images brutes obtenues. La résolution en énergie en est alors déduite par l'expression $\Delta E/E \cong 2 \Delta R/R$ basée sur la relation $E \propto R^2$. On peut donc déterminer la résolution absolue (ΔE) ou relative ($\Delta E/E$). La largeur des raies mesurées n'est pas issue seulement de la résolution instrumentale du VMI. Selon la source de photons utilisée, la largeur spectrale de l'impulsion influe sur la largeur spectrale mesurée. La largeur naturelle de la structure atomique est, elle, négligeable pour les processus que nous étudions. Dans ce cas, la résolution instrumentale du VMI que l'on cherche à optimiser s'obtiendra à partir de la différence quadratique entre la résolution totale mesurée et celle de la source. Pour obtenir la meilleure résolution du VMI possible, qui reste « presque » constante sur un large gamme d'énergies cinétiques, il est indispensable d'étudier les différents facteurs qui peuvent affecter sa valeur. En principe, plusieurs paramètres dans un VMI peuvent influencer la focalisation des photoélectrons et donc la résolution du spectromètre. En pratique, la résolution d'un spectromètre VMI est limitée principalement par: (i) la dimension et la position de la zone d'interaction, (ii) le profil du champ électrostatique (plus particulièrement les tensions appliquées sur l'extracteur (V_2) l'électrode de focus (V_4) dans le cas d'un VMI à lentille épaisse), (iii) les perturbations apportées à ce profil qui peuvent venir du système d'injection de gaz et de champs parasites, et (iv) la résolution spatiale de l'ensemble du système de détecteur. Je montre ci-dessous, quelques études que j'ai réalisées afin d'étudier l'effet de ces paramètres sur la résolution instrumentale du VMI.

VI.1. Effet de la dimension de la source

La dimension de la zone d'interaction dans les expériences dépend de la géométrie du faisceau ionisant et de celle du jet de gaz atomique. Afin d'étudier l'influence de cette dimension du volume source sur la résolution du spectromètre VMI, une étude numérique via le logiciel SIMION est présentée dans cette partie. Elle permet de quantifier l'effet de la taille de la zone d'interaction sur la largeur des raies de photoélectrons. Durant cette simulation, la zone d'interaction est représentée par un cylindre du rayon R et de longueur L_{cyl} , dont 10^4 électrons de 20 eV d'énergie cinétique sont émis. Le cylindre est placé dans le plan (X, Y) suivant l'axe Y , et X est défini comme étant l'axe de symétrie du spectromètre. Comme précédemment, afin d'éviter d'avoir à réaliser une inversion d'Abel pour calculer les valeurs de la résolution, les photoélectrons sont émis dans toutes les directions, mais avec un vecteur vitesse parallèle au plan du détecteur (angle azimutal de 90° dans SIMION). Dans ces simulations, l'aiguille est positionnée à 2mm au-dessus du répulseur dont le potentiel est fixé à -3kV, et les tensions négatives appliquées sur les 10 autres électrodes découlent de cette valeur comme expliqué au paragraphe 4.2, avec un rapport $V_2/V_1 = 0.943$. Comme la zone d'interaction est une distribution cylindrique, la variation de sa dimension peut se faire en changeant la longueur du cylindre tout en conservant le rayon

fixe, ce qui revient physiquement à éloigner l'aiguille du volume source, ou inversement modifier le rayon à longueur constante, ce qui correspond à changer la focale du rayonnement incident. Ces deux effets sont maintenant étudiés.

VI.1.1. Variation de la longueur de la source

Dans cette partie, le rayon du cylindre est fixé à $R=0,5\text{mm}$ et l'on fait varier sa longueur L_{cyl} . Les valeurs échantillonnées de la longueur du cylindre dans SIMION sont $L_{\text{cyl}} = 1, 2, 4, 10, 15$ et 20 mm.

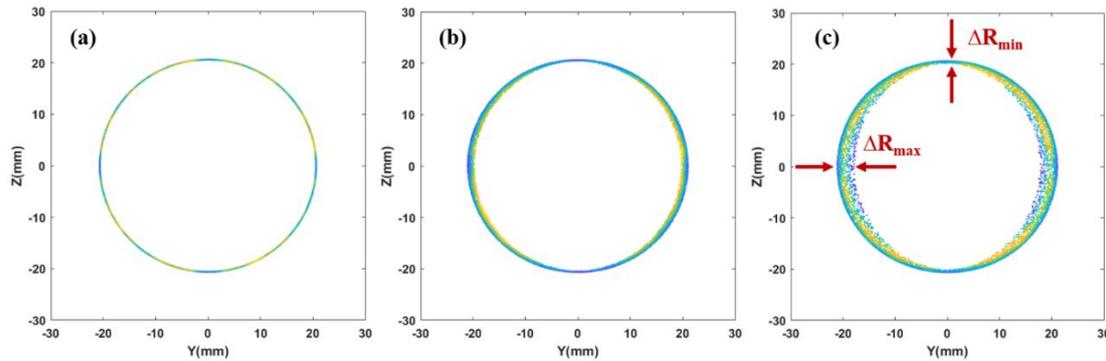


Figure II-33: Distributions spatiales des photoélectrons sur les détecteurs données par les simulations SIMION, pour trois valeurs distinctes de la longueur de la source : $L=1$ mm (a), $L=10$ mm (b) et $L=20$ mm (c).

Un exemple de résultats obtenus dans cette étude pour 3 valeurs différentes de la longueur de cylindre $L_{\text{cyl}} = 1, 10$ et 20 mm est montré dans la Figure II-33 qui illustre l'influence de la longueur du volume source sur le profil de la raie d'électrons. Pour une zone d'interaction courte, de longueur $L_{\text{cyl}}=1\text{mm}$ et de rayon $= 0.5$ mm, la largeur de la raie est la même dans toutes les directions d'émission des électrons et les bords de la structure circulaire apparaissent fins. Lorsque la longueur de la zone d'émission augmente et devient nettement plus importante que son rayon, la focalisation de la raie de photoélectrons se dégrade : la valeur de ΔR sur le détecteur n'est plus identique pour les différents angles d'émission. Il est visible dans la Figure II-33-(b) et (c) que la valeur de ΔR est minimale lorsque $Y = 0$ (suivant l'axe vertical de l'image) et est maximale lorsque $Z=0$ (suivant l'axe horizontal). Cette asymétrie entre l'axe horizontal et vertical est due à l'extension spatiale de la zone d'interaction simulée qui brise la symétrie cylindrique du VMI. Par suite, cette asymétrie qui apparaît sur les images ci-dessus suivant les deux directions devient plus importante lorsque la longueur de la zone d'interaction augmente.

Afin de quantifier l'influence de la dimension longitudinale de la zone d'interaction sur la résolution du VMI, pour chaque image obtenue correspondant à une longueur donnée du volume source, deux largeurs à mi-hauteur sont mesurées à l'aide du logiciel ImageJ : ΔR_{max} suivant l'axe du cylindre test, et ΔR_{min} selon l'axe perpendiculaire. On déduit de ces deux largeurs les résolutions radiales $\Delta R/R$ et donc les résolutions en énergie $\Delta E/E = 2\Delta R/R$, minimum et maximum du VMI suivant ces deux directions perpendiculaires pour chaque longueur de la zone d'émission des électrons. Les résultats sont présentés dans les courbes de la Figure II-34 où l'évolution de la résolution en énergie en fonction de la longueur du cylindre : $(\Delta E/E \text{ max})$ suivant Y , la direction de l'axe du cylindre et $(\Delta E/E \text{ min})$ suivant Z , la direction perpendiculaire est montrée. Comme nous l'avons déjà souligné, la variation de la résolution en énergie du spectromètre est logiquement assez significative dans la direction Y (les valeurs de $\Delta E/E \text{ max}$ varient de 2.2 à 14.5% lorsqu'on augmente la longueur du cylindre de 1 mm à 20 mm). Par contre, selon la

direction Z, les valeurs de la résolution augmentent d'une manière très peu prononcée ($\Delta E/E$ varie de 2.1 à 3.1% avec l'augmentation de L_{cyl}). Pour une longueur $L_{cyl} = 1\text{mm}$, la valeur de la résolution déterminée dans les deux directions est la même, car la source peut être considérée comme étant ponctuelle ($L_{cyl}=1\text{mm}$ et diamètre = 1mm) et donc identique dans les deux directions : on retrouve la symétrie cylindrique du VMI. Notons que les valeurs de la grandeur $\Delta E/E$ représentées sur ces courbes (et dans toute la suite de ce chapitre) sont calculées suivant l'écart-type de la fonction gaussienne, ce qui introduit un facteur $2\sqrt{2 \ln 2} = 2.35$ sur la valeur de la largeur à mi-hauteur du pic (à multiplier la valeur de la résolution par le facteur 2.35).

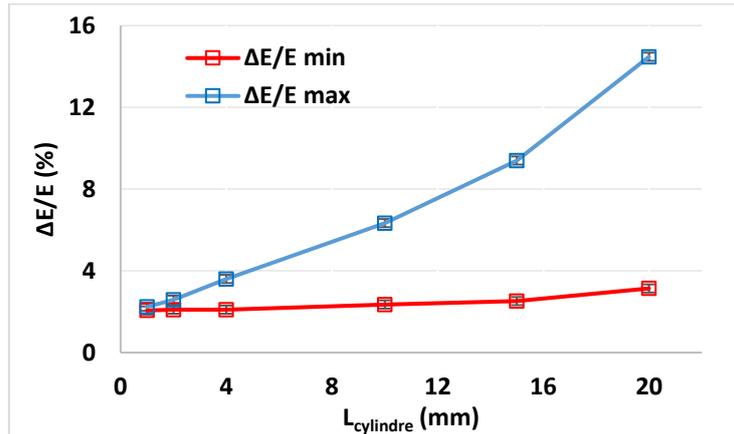


Figure II-34: Évolution des valeurs $\Delta E/E$ min et $\Delta E/E$ max en fonction de la longueur du cylindre, pour une valeur d'énergie cinétique des électrons de 20 eV.

VI.1.2. Variation du rayon de la source

Pour étudier cette fois ci l'influence de la taille focale du faisceau ionisant sur la résolution en énergie du spectromètre VMI, on simule la zone d'interaction par un cylindre de longueur fixe dont on modifie progressivement le rayon. Les paramètres de cette étude sont exactement les mêmes que lors de la simulation précédente. La seule différence est la longueur du cylindre fixée à 4mm et dont on varie le rayon progressivement suivant les valeurs $R=0.2, 0.5, 1, 1.5, 2$ et 2.5 mm. Quelques résultats pour cette étude sont montrés dans la figure suivante pour différents rayons.

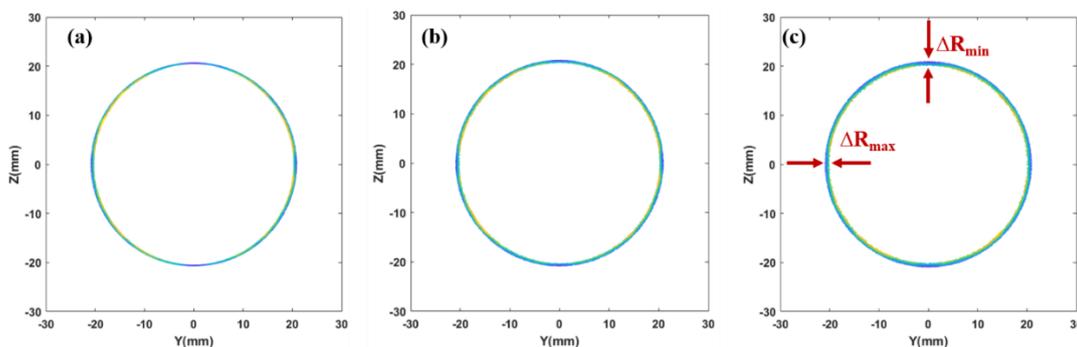


Figure II-35: Distributions spatiales des photoélectrons sur le détecteur données par les simulations SIMION, pour trois valeurs distinctes du rayon de la source : $R=0.2$ mm (a), $L=1.5$ mm (b) et $L=2.5$ mm (c).

Sur les images de la Figure II-35, on peut observer l'évolution des bords de la raie de photoélectrons. La dégradation de la résolution est maintenant, comme on pouvait s'y attendre, plus prononcée que dans la

simulation précédente dans la direction Z (à Y=0) qui correspond dans le plan de la source à une direction portée par le rayon du cylindre. Pour évaluer quantitativement les valeurs de la résolution dans les deux directions, la même démarche a été effectuée que précédemment pour les images qui correspondent à des rayons distincts de la zone d'interaction. Les résultats sont regroupés dans la figure ci-dessous.

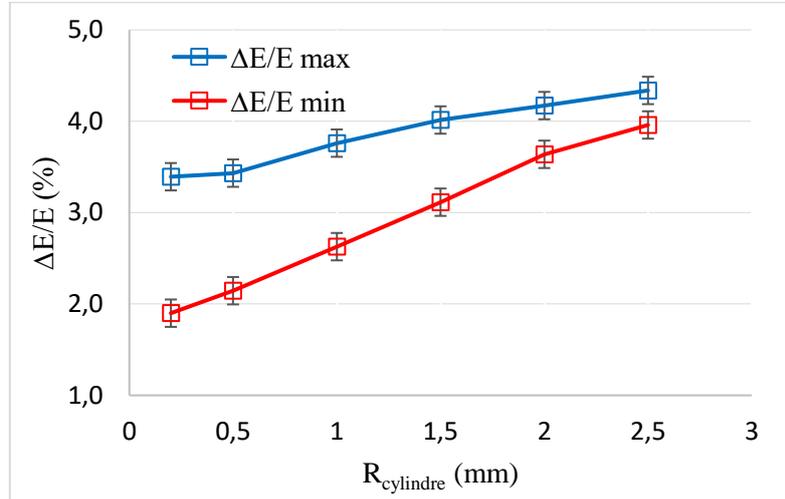


Figure II-36:Évolution des valeurs $\Delta E/E$ min et $\Delta E/E$ max en fonction du rayon du cylindre, pour une longueur $L_{cyl} = 4\text{mm}$, pour une valeur d'énergie cinétique $E_c = 20\text{ eV}$. Bleu : axe Y ; rouge : axe Z.

La Figure II-36 montre la variation de la résolution en énergie ($\Delta E/E$) en fonction du rayon du cylindre, calculée dans la direction portant l'axe du cylindre (Y) et représentée par les points bleus ($\Delta E/E$ max) et dans la direction perpendiculaire (Z) représentée par les points rouges ($\Delta E/E$ min). Dans les deux directions, on remarque que les valeurs de la résolution en énergie augmentent progressivement lorsqu'on passe d'un rayon du cylindre de 0.2 mm à 2.5 mm. Cette évolution est plus importante dans la direction Z que Y. Les valeurs de $\Delta E/E$ min doublent en passant de 2% à 4% lorsque le rayon du volume source varie de $R=0.2\text{mm}$ à $R=2.5\text{mm}$. Dans la direction Y, les valeurs de $\Delta E/E$ max présentent une variation plus faible, mais atteignant cependant une amplitude de 30% dans cet intervalle des rayons simulés. Cette variation notable de la résolution dans la direction de propagation des photons, alors que le volume source n'est pas modifié dans cette direction, contrairement à ce que l'on a observé dans l'étude précédente où l'effet de la longueur de la zone d'interaction sur la résolution dans la direction perpendiculaire était très faible, est due au choix cylindrique de cette zone d'interaction. Augmenter son rayon revient également à détecter des électrons émis à des positions différentes sur l'axe X, et donc soumis à un gradient plus important du champ accélérateur. Cet effet sera étudié plus loin dans ce chapitre.

D'après ces deux études concernant l'influence de la dimension de la zone d'interaction sur la résolution en énergie du spectromètre VMI, on constate que les deux paramètres, la longueur et le rayon du volume source influent sur les largeurs de raie d'électrons, l'un seulement suivant l'axe de propagation du rayonnement, et l'autre simultanément dans les deux directions. D'autre part, lorsque la longueur du cylindre est égale à son rayon, on obtiendra la même résolution en énergie dans toutes les directions. Les valeurs extrêmes de la longueur du cylindre et de son rayon, choisies durant cette simulation numérique sont beaucoup plus importantes que la zone d'interaction expérimentale. Ces valeurs sont

choisies à dessein pour montrer d'une façon pertinente l'influence de chaque paramètre sur la résolution. Dans nos expériences, avec la hauteur de l'aiguille (Zaig) usuellement employée, la longueur maximale de la source suivant l'axe de propagation des faisceaux ionisants peut être de l'ordre de 1.5 mm. Pour les 2 sources sur l'installation Laserix et à UHI100, les diamètres de focalisation des faisceaux de photons sont respectivement, de l'ordre de 500 μm et 10-20 μm . Nous avons montré que la résolution sera optimum dans la direction de la polarisation des rayonnements incidents, ce qui est heureux, car c'est dans cette direction que dans les expériences de photoionisation habillée, l'effet du faisceau IR est le plus intense.

VI.2. Effet de la position de la source

J'ai montré précédemment dans la partie 4 de ce chapitre qu'il était possible de centrer précisément la zone d'interaction sur l'axe de symétrie cylindrique du VMI en superposant les structures issues de l'imagerie de vitesse et de l'imagerie spatiale des ions. Par contre, l'alignement en hauteur suivant cet axe est plus délicat, car on ne dispose pas de point de repère très précis, à $\pm 500\mu\text{m}$ près, pour effectuer un réglage. Il est donc nécessaire d'étudier l'effet du décentrage de la position de la source de photoélectrons selon l'axe du VMI sur la résolution en énergie du spectromètre, ce qui correspond expérimentalement à un désalignement vertical du faisceau. Comme précédemment, la zone d'interaction est simulée par un cylindre de rayon 0.5mm et de longueur $L_{\text{cyl}}=4\text{mm}$. La position de cette source est variée perpendiculairement au plan du détecteur par rapport à la position optimale trouvée lors de l'optimisation de la géométrie du VMI, suivant X défini comme l'axe de symétrie du spectromètre. Cette simulation est réalisée avec la même géométrie du VMI que précédemment : l'aiguille est toujours placée à 2mm au-dessus du répulseur et est polarisée à une tension intermédiaire entre celles appliquées au répulseur et à l'extracteur, ajustée de façon à minimiser à son extrémité les perturbations qu'elle introduit sur les lignes de champ électrostatique. Les électrons détectés ont une énergie cinétique de 5.45 eV ce qui correspond à l'ionisation d'atomes d'argon par des photons de 21,21eV d'énergie. Un schéma explicatif montrant le décalage de la source par rapport à sa position initiale au centre du VMI entre le répulseur et l'extracteur est présenté dans la Figure II-37. Rappelons que la distance entre le répulseur et l'extracteur est de 15.5 mm, la source d'électrons se trouvant initialement à 7.5 mm du répulseur (au centre du VMI). Sa position est représentée sur la figure par le point foncé. Le faisceau ionisant peut-être décalé expérimentalement vers l'extracteur (pas positifs) ou vers le répulseur (pas négatifs). Pour quantifier un tel effet, des décalages allant jusqu'à $\pm 3\text{mm}$ ont été appliqués au volume source (points clairs). Une étude quantitative mène aux résultats montrés dans la Figure II-38. De la même manière que l'étude précédente, la largeur de la raie dans le plan du détecteur suivant les deux axes Y et Z est mesurée, ce qui permet de déterminer par la suite les valeurs correspondantes de la résolution en énergie.

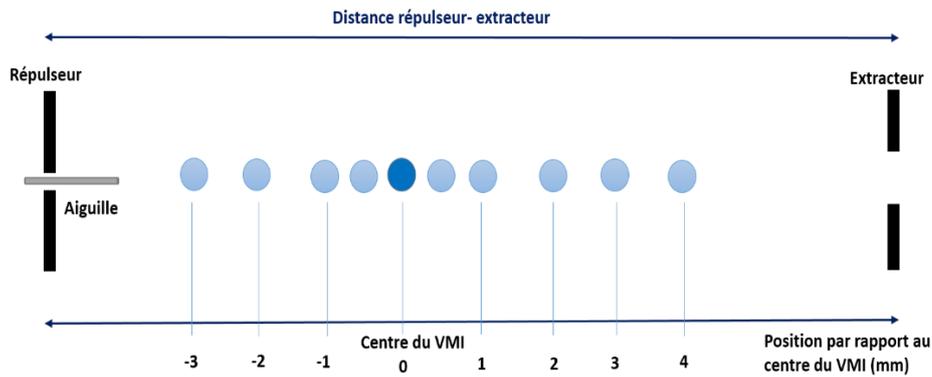


Figure II-37: Schéma explicatif montrant le décalage de la source par rapport à sa position initiale au centre du VMI entre le répulseur et l'extracteur.

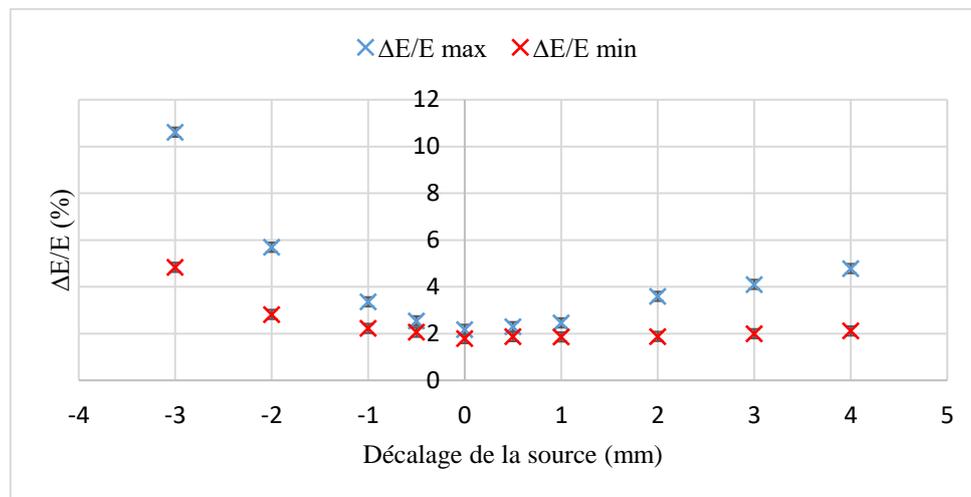


Figure II-38: Variation de la résolution en énergie en fonction du décalage de la position de la zone d'interaction par rapport à la position initiale.

La Figure II-38 montre la variation de la résolution en énergie du spectromètre VMI en fonction du décalage de la source par rapport à sa position initiale au centre du VMI. Comme précédemment, $\Delta E/E$ max représentent les valeurs de la résolution dans la direction de propagation du faisceau ionisant (l'axe du cylindre dans le plan de la source) et $\Delta E/E$ min représente celles dans la direction perpendiculaire. Comme déjà discuté, les valeurs de $\Delta E/E$ max sont plus importantes que $\Delta E/E$ min car la simulation de la zone d'interaction se fait par un cylindre plus long que large. A longue distance de l'axe du VMI, les variations du champ électrostatique en fonction de la hauteur sont relativement plus importantes, ce qui rend plus critique l'effet de défocalisation sur des électrons. Suivant les deux directions, on confirme que la valeur de la résolution est optimale lorsque la zone d'interaction est placée à équidistance du repelleur et de l'extracteur. Cette courbe présente au voisinage de l'optimum une faible variation relative. Pour un décalage de la source de ± 500 micromètres, une légère différence de la valeur de la résolution est observée : suivant l'axe de propagation des photons qui est la direction la plus sensible, elle atteint respectivement une valeur de 2,3% et 2,5% pour une valeur optimale de 2,2%. A courte distance, l'ajustement suivant cet axe perpendiculaire au plan du répulseur est donc peu critique, ce qui est heureux, car on ne dispose que de peu de critères de réglages précis suivant cette direction. Plus on s'éloigne de la position médiane entre les deux électrodes, plus la dégradation de la résolution devient significative, celle-ci pouvant atteindre une valeur de 5,7% pour un décalage de 3mm vers le répulseur. La comparaison entre les valeurs trouvées pour un même pas de décalage dans les deux directions

suivant l'axe X, montre que la défocalisation de la structure de la raie des photoélectrons et donc la dégradation de la résolution est plus significative lorsque la zone d'interaction se rapproche du répulseur que de l'extracteur. Cette différence est due à la présence de l'aiguille qui dépasse de 2 mm du répulseur et donc n'est qu'à 5mm de l'axe des photons : Les lignes de champ électrostatique sont plus perturbées par la présence de l'aiguille dans la direction du répulseur que dans celle de l'extracteur, et par suite la focalisation des photoélectrons sur le détecteur est plus dégradée par un décentrage du faisceau vers l'aiguille. Pour être plus proche des conditions expérimentales où la zone d'interaction est plus petite que celle utilisée dans cette simulation, j'ai répété la même étude en partant des mêmes paramètres mais pour une longueur de la zone d'interaction plus courte. On simule cette fois-ci la source par un cylindre du rayon $R=0.5\text{mm}$ et de longueur $L_{\text{cyl}}=1\text{mm}$. Les résultats sont représentés dans la figure suivante.

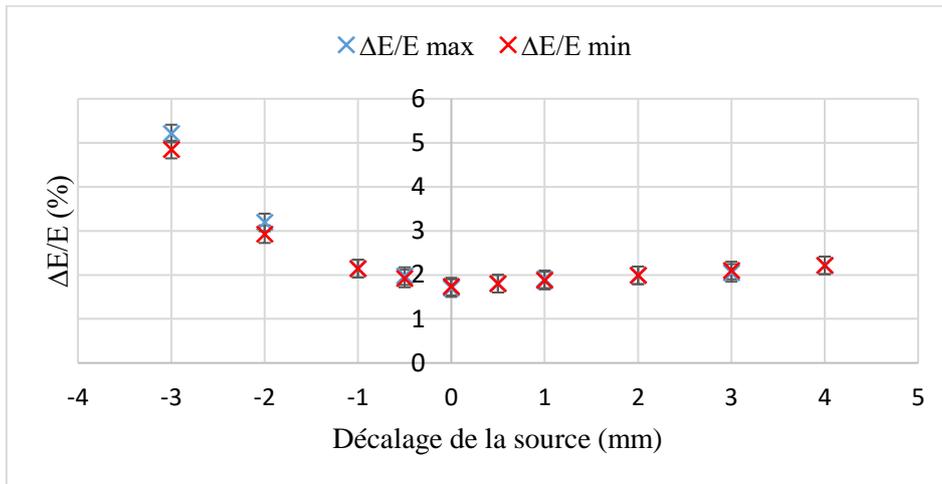


Figure II-39: Variation de la résolution en énergie en fonction du décalage de la position de la zone d'interaction par rapport à la position initiale (centre du VMI). La source est cylindrique de longueur $L=1\text{mm}$ et du rayon $R=0.5\text{mm}$.

En partant d'une source quasi isotrope ($R = 0.5\text{mm}$ et $L = 1\text{mm}$), compte tenu de la symétrie cylindrique du VMI, les valeurs de la résolution trouvées doivent être identiques dans toutes les directions, ce que confirme les courbes de la figure ci-dessus. Les mêmes tendances que les courbes trouvées pour une longueur de la source de 4mm sont remarquées dans cette étude. La dégradation de la résolution est plus significative lorsque la source est décalée vers le répulseur que vers l'extracteur. De même, pour cette dimension de la zone d'interaction, un désalignement du faisceau de l'ordre de $\pm 500\mu\text{m}$, ce qui est l'ordre de grandeur de la précision de réglage que l'on peut atteindre dans cette direction, affecte peu les valeurs de la résolution. Cette dernière est dégradée au-delà d'un désalignement de faisceau de l'ordre de 1mm.

VI.3. Effet des tensions appliquées sur V2 et V4

L'optimisation du rapport $V2/V1$ dépend de l'énergie des électrons analysés. Je montre à titre d'exemple dans la Figure II-40, les résultats d'une simulation effectuée pour une tension de répulsion de -7kV pour deux énergies cinétiques différentes. La Figure II-40 représente la variation de la résolution relative en énergie du spectromètre VMI en fonction de la tension d'extraction (V_2) pour une tension de V_1 fixe pour une énergie cinétique de photoélectrons de 10 eV en bleu et de 40 eV en rouge. Nous remarquons que la résolution se dégrade significativement de chaque côté de la valeur optimum, dont la position

change d'une énergie à l'autre. Un décalage de la position de l'optimum de 30V soit une variation de 0.5% du rapport V_2/V_1 est observée. L'optimisation de ce paramètre doit donc être réalisée en fonction du domaine spectral des électrons analysés. D'après Kling et al [124], dans le cas d'un spectromètre VMI à lentille épaisse, le paramètre V_{focus} aussi nommé V_4 est un élément critique pour la résolution. J'ai donc réalisé une étude numérique de l'effet de ce paramètre sur la résolution de l'analyseur pour un voltage de répulseur de 3 kV que nous avons utilisé expérimentalement, et ce, sur un domaine spectral de 50 eV.

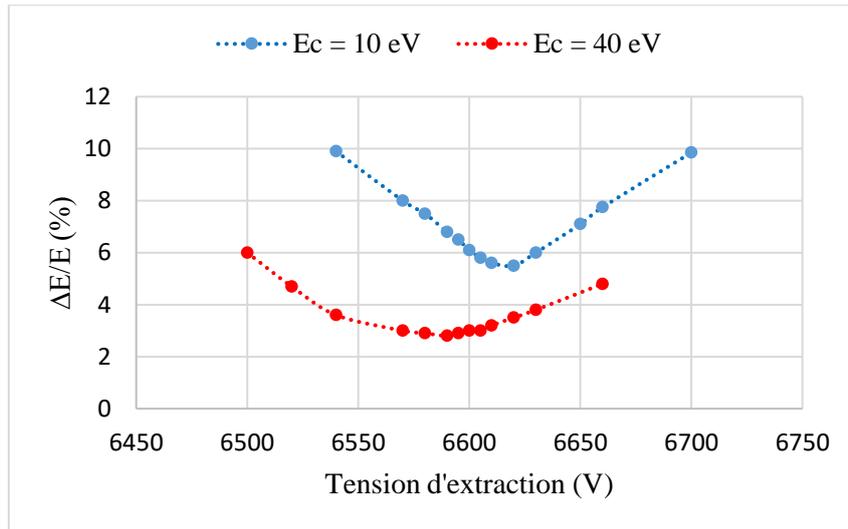


Figure II-40 : Variation de la résolution énergétique du spectromètre VMI en fonction de l'énergie cinétique des photoélectrons et de la tension appliquée sur l'extracteur pour une tension de répulsion (V_1) de -7kV.

Dans cette simulation, la zone d'interaction est représentée par un cylindre du rayon $R = 0.5$ mm et de longueur $L_{\text{cyl}} = 4$ mm, dont 10^4 électrons pour chaque énergie cinétique sont émis. Pour étudier uniquement l'effet du potentiel appliqué sur V_4 sur la résolution du VMI, pour chaque valeur de celui-ci, la tension des différentes électrodes a été optimisée. Ceci est indispensable, puisque comme déjà mentionné dans la partie 4.2, les tensions à appliquer sur ces électrodes (V_3 et de V_5 à V_{10}) dépendent fortement de la tension à laquelle est portée V_4 .

La Figure II-41, représente la variation de la résolution $\Delta E/E$ (%) du VMI pour différentes énergies cinétiques allant de 2 eV à 50 eV avec un pas de 5 eV pour différentes valeurs du rapport V_4/V_1 . Pour toutes les valeurs de V_4 appliquées, une forte variation de cette résolution, de $\sim 7\%$ à 1.2% , est clairement visible entre les deux extrémités du domaine spectral étudié. Elle diminue fortement dans la gamme des faibles énergies (de 2 eV à 15 eV), pour devenir quasi constante dans le domaine spectral de 15 eV à 50 eV. D'autre part, la valeur optimale de la tension sur l'électrode V_4 varie suivant la gamme d'énergie des électrons que l'on va analyser. Par exemple, l'utilisation d'un rapport $V_4/V_1 = 0.81$ (courbe violette) fournit la meilleure résolution autour de la plage d'énergie de 2 eV à 10 eV, contrairement à la gamme entre 15 eV et 50 eV, où une valeur de $V_4/V_1 = 0.79$ (courbe rouge) est préférable. Suivant l'expérience à réaliser, il est donc nécessaire d'ajuster la valeur du potentiel V_4 en se basant sur les courbes déterminées par cette simulation.

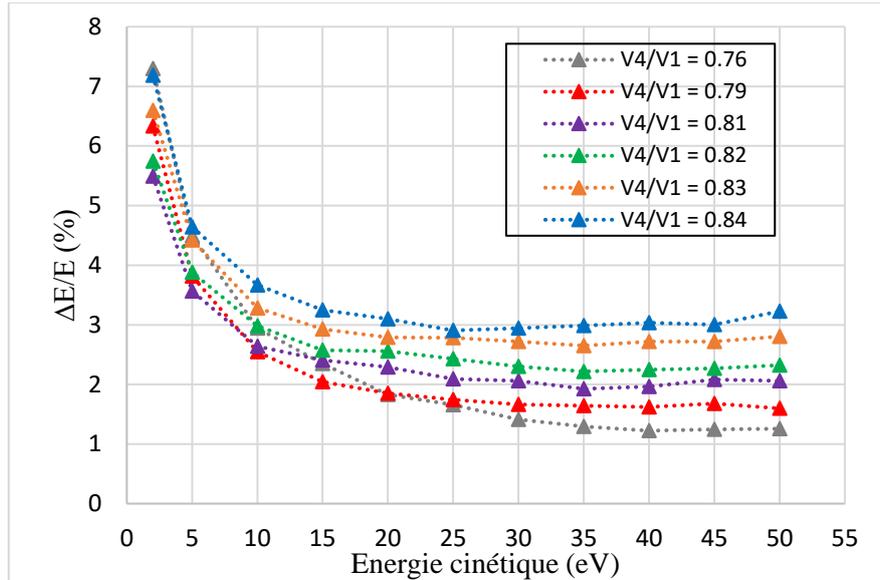


Figure II-41: Variation de la résolution relative en énergie du VMI sur une gamme d'énergie cinétique allant de 0 à 50 eV pour différents rapports $V4/V1$ pour une tension de répulsion de -3kV.

VI.4. Effet de la tension appliquée sur l'aiguille

Une fois que la tension sur l'extracteur et la 4ème électrode est optimisée, il est indispensable d'optimiser la tension à appliquer à l'aiguille utilisée pour injecter du gaz dans la zone d'interaction du VMI. Suivant la position verticale de l'aiguille par rapport à la face interne du répulseur (z_{aig}), la tension à appliquer est à ajuster, afin d'avoir la meilleure résolution du VMI.

Dans cette section, l'effet de la tension appliquée sur l'aiguille sur la résolution du VMI à partir de modélisation et expérimentalement est étudié. Pour une tension de répulsion de -3kV et une aiguille qui se termine à 2 mm au-dessus de répulseur, le spectre de photoélectrons induit lors de l'ionisation du Krypton par des photons à 21.21 eV est simulé. Les lignes du champ électrique dans le VMI particulièrement au niveau du volume source près de l'aiguille ont été déterminées par modélisation. La Figure II-42 illustre comment se modifie la forme des lignes de champ électrique au niveau de l'aiguille lorsqu'on applique une tension $V_{aig} = -2970$ V, -2980 V et -2990 V respectivement en a, b et c. L'effet de la perturbation qu'elle introduit sur les lignes de champ proches de la zone d'interaction est clairement visible. La tension V_{aig} optimale est choisie d'une façon à minimiser cette perturbation, ce qui est le cas dans la partie (b) de la Figure II-42 pour une tension $V_{aig} = -2980$ V lorsque $z_{aig} = 2$ mm. La Figure II-42 montre les spectres photoélectroniques du krypton issus de l'ionisation avec la lampe à Hélium à 21.21 eV obtenus à ces différentes tensions V_{aig} . Pour ces mesures, la tension appliquée au répulseur est de -3000 V, le rapport $V2/V1$ ainsi que celui de $V4/V1$ sont optimisés pour une valeur de 0.94 et 0.82 respectivement aux énergies cinétiques $E_{c_{3/2}} = 7.21$ eV et $E_{c_{1/2}} = 6.54$ eV. L'aiguille a été placée à 2mm de hauteur par rapport au répulseur et la pression du Krypton dans l'enceinte était de l'ordre de $7 \cdot 10^{-6}$ mbar. Les valeurs V_{aig} testées dans SIMION sont les mêmes que celles utilisées expérimentalement, d'où une tension $V_{aig} = -2970$ V en (d), -2980 V en (e) et -2990 V en (f). Nous remarquons directement sur les images brutes comment varie la résolution du VMI : le doublet de krypton bien résolu pour une valeur de $V_{aig} = -2980$ V, devient plus difficile à discerner surtout dans la partie moins intense des

spectres, lorsqu'on applique des tensions $V_{\text{aig}} = -2970 \text{ V}$ et -2990 V . Cela démontre qu'il est essentiel d'optimiser la tension appliquée sur l'aiguille pour chaque hauteur de celle-ci et pour chaque tension appliquée au repeller afin d'obtenir une résolution optimale du spectromètre.

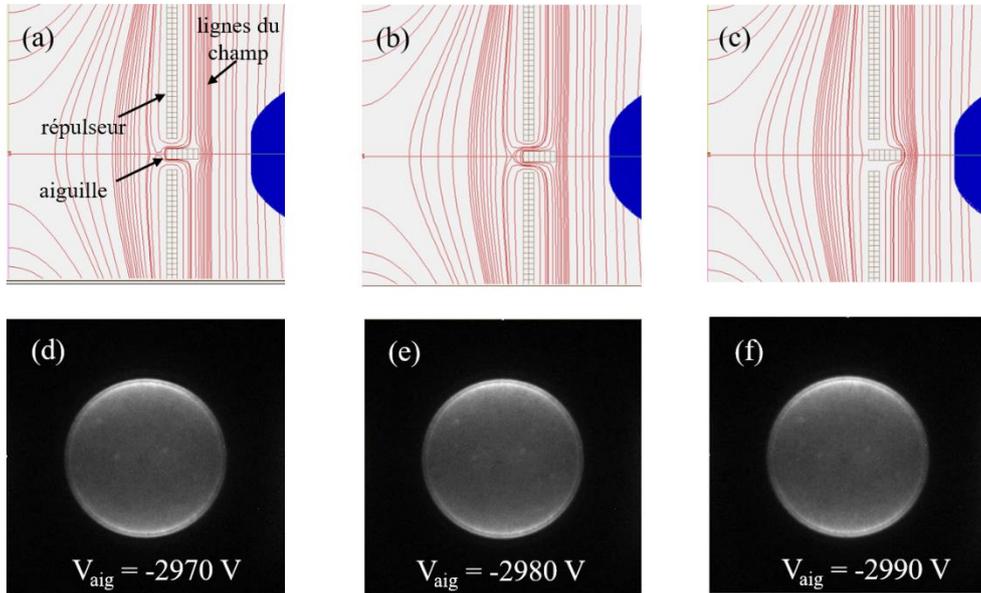


Figure II-42 : images agrandies de la zone d'interaction du spectromètre VMI conçu dans SIMION montrant la forme des lignes du champ électrique au niveau de l'aiguille placée à 2 mm au-dessus du répulseur ($V_1 = -3000 \text{ V}$) pour une tension $V_{\text{aig}} = -2970 \text{ V}$, -2980 V et -2990 V respectivement en a, b et c. Spectres de photoélectrons expérimentaux, obtenus lors de ionisation du krypton par des photons de 21.21 eV issus d'une lampe à Hélium pour les tensions V_{aig} mentionnées en d, e et f.

VI.5. Effet de la résolution spatiale de la galette de microcanaux (MCP)

Le système de détection des électrons contribue également à la résolution des images obtenues. Pour des électrons de forte énergie, la contribution de l'optique électronique est de loin prépondérante. Par contre, à basse énergie cinétique, la résolution du détecteur peut devenir non négligeable par rapport à celle du spectromètre VMI.

Nous avons vu que le détecteur est constitué d'un ensemble composé d'un multiplicateur d'électrons : une galette de microcanaux, d'un convertisseur : un écran phosphore, et d'une caméra. Les galettes Photonis que nous utilisons sont constituées de canaux de $10 \mu\text{m}$ de diamètre ($25 \mu\text{m}$ pour celles de marque Hamamatsu de même diamètre) qui émettent une gerbe faiblement divergente d'électrons. Le grain d'un phosphore P43 est de $2/3 \mu\text{m}$, et le côté d'un pixel de la caméra est de $7,4 \mu\text{m}$. Nous voyons donc que le système amplificateur est l'élément prépondérant pour définir la taille d'un point lumineux dans l'image.

D'autre part, en cas de signal faible, on peut être tenté de compenser cette insuffisance en augmentant le gain du multiplicateur d'électrons. Cela peut se faire par l'emploi de deux galettes montées en chevron. Dans ce cas, le diamètre d'émission des électrons sur la seconde galette correspond au minimum à 3 canaux soit $34 \mu\text{m}$. Afin de mesurer l'effet de l'emploi de 2 galettes sur la résolution expérimentale, des images issues de la photoionisation d'atomes de Xénon par des photons de 21,21 eV produits par la lampe à hélium ont été enregistrées avec les deux montages possibles : galettes de

microcanaux simple, et deux galettes en chevron. Ces images sont montrées dans la Figure II-43 respectivement en (a) dans le cas de 1 MCP ($V_{MCP} = 1 \text{ kV}$, $V_{ph} = 4 \text{ kV}$) et (b) pour deux MCP ($V_{MCP} = 1.80 \text{ kV}$, $V_{ph} = 4.500 \text{ kV}$).

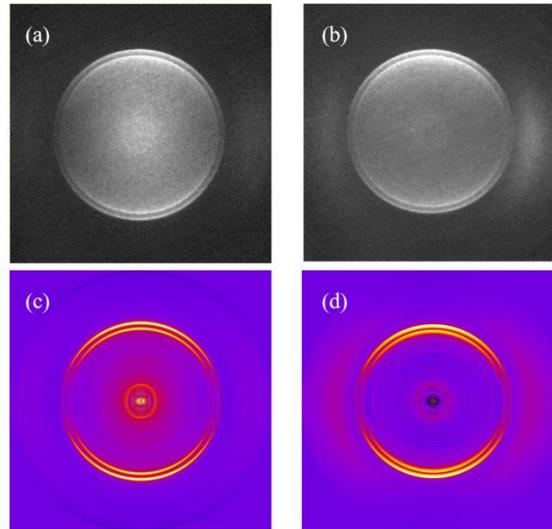


Figure II-43 : spectres expérimentaux bruts (a et b) et inversés (c et d) issus de la photoionisation de Xénon par des photons de 21.21 eV. Les images brutes sont obtenues lorsque le système de détection est constitué d'une seule galette MCP (a) ou d'une paire des galettes (b). Elles sont réalisées en appliquant une tension de répulsion de -1.5 kV, une aiguille à 3mm au-dessus du répulseur, une pression de gaz de l'ordre de $7.5 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$, pendant un temps d'acquisition de 2s et pour la même ouverture du diaphragme CCD.

Après inversion, les spectres correspondants aux images brutes (a) et (b) sont montrés sur la Figure II-43 respectivement en (c) et (d). Il est visible que la largeur du doublet de xénon est plus important dans le cas de l'utilisation de 2 MCP (d) que lors de l'emploi d'une seule galette. La résolution mesurée est de 5.7 % (FWHM) dans le cas à un amplificateur, et 7.2 % avec le montage en chevron. La perte de résolution est donc notable dans le cas du système à deux galettes. Il sera donc préférable d'utiliser tant que ce peut un système de détection à un seul étage d'amplification, ce qui a été le cas dans les expériences réalisées sur l'installation LASERIX. Par contre, dans le cas des mesures effectuées au LIDYL présentées dans le chapitre III, l'obligation de fonctionner en mode mono-tir nous a cependant amenés à utiliser un système à deux étages.

VII. Conclusion

Dans ce chapitre, les raisons qui ont motivé le choix d'un analyseur de type VMI pour étudier la structure temporelle des impulsions brèves délivrées par les sources XUV ont été exposées. Son principe de fonctionnement ainsi que le traitement des données obtenues ont été décrits. L'appareil en lui-même, conçu et réalisé au laboratoire, a été présenté et des simulations, comparées à des résultats expérimentaux ont permis de caractériser son mode de fonctionnement, d'étudier l'influence et les limitations introduites par les différents éléments qui le composent, et de le calibrer.

Nous allons voir dans les chapitres suivants les résultats expérimentaux que nous avons réussi à obtenir grâce à cet instrument couplé à la source UHI100 du CEA Saclay, et LASERIX du IJC-Lab d'Orsay.

Chapitre III

Application de la photoionisation habillée par laser à la caractérisation temporelle des harmoniques générées sur une cible solide.

I. Introduction

Dans ce chapitre, je présente les résultats d'une expérience réalisée sur l'installation UHI100 du CEA-Saclay, où la technique de la photoionisation en présence d'un champ d'habillage a été employée dans le but de caractériser temporellement, à l'échelle attoseconde, les harmoniques d'ordre élevé générées sur une cible solide. Le principe de génération de ces sources, ainsi que leurs principales caractéristiques, ont été introduits dans le chapitre I. Rappelons que sous l'effet d'une impulsion laser infrarouge focalisée à très haute intensité sur une cible solide (en fait un pré-plasma de densité surcritique à gradient très raide), une partie du faisceau laser réfléchi est converti en rayonnement XUV sous la forme d'un peigne d'harmoniques d'ordres élevés, pairs et impairs. A ce peigne de fréquence devrait correspondre, dans le domaine temporel, un train d'impulsions attosecondes, dont la caractérisation temporelle est l'objet de la présente étude.

Afin de préciser la méthode et les résultats attendus je présente tout d'abord les prédictions de simulations numériques de l'effet du champ d'habillage sur les spectres de photoélectrons obtenus. Je décris par la suite le dispositif expérimental développé sur l'installation UHI100 pour la génération et la focalisation des harmoniques XUV et du champ d'habillage dans le spectromètre VMI. Les résultats expérimentaux obtenus sont finalement détaillés et discutés en les comparant avec les simulations.

II. Simulations numériques des spectres des photoélectrons en présence d'habillage

Dans cette partie, je décris les résultats attendus dans les spectres des photoélectrons produits suite à l'ionisation des atomes d'un gaz par les harmoniques XUV en présence d'un champ d'habillage infrarouge. Ces simulations numériques ont été effectuées à l'aide d'un code Matlab développé au début du projet PIFOMETRIX par notre collaborateur Charles Bourassin-Bouchet de l'Institut d'Optique-Palaiseau. Ce code permet de simuler les spectres des photoélectrons et de prédire leur évolution en fonction des différents paramètres du champ laser d'habillage utilisé.

Le code est basé sur le modèle l'approximation du champ fort (SFA), déjà discuté dans le chapitre 1, ainsi que par exemple dans l'article de Varjù et al. [138]. Dans cette approximation, sous l'effet d'un champ laser d'habillage, le spectre de photoélectrons est déterminé à partir de l'expression suivante, équivalente à l'équation I-15 :

$$S(\vec{p}) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{d}_{\vec{p}+\vec{A}(t)} \cdot \vec{E}_{XUV}(t - \tau) e^{i\phi(t)} dt \right|^2 \quad (\text{équation III-1})$$

Rappelons que \mathbf{p} est la quantité du mouvement des photoélectrons, \mathbf{d} l'élément de matrice dipolaire pour

la transition atomique de l'état fondamental vers un état dans le continuum (cet état est approximé par une onde plane dans l'approximation SFA), E_{XUV} le champ électrique de l'impulsion XUV, $A(t)$ le potentiel vecteur du champ d'habillage et τ le délai relatif entre l'impulsion XUV et le champ d'habillage. La phase $\phi(t)$ accumulée par l'électron libéré à l'instant t dans le champ laser est donnée par :

$$\phi(t) = \left[\frac{|\vec{p}|^2}{2} + I_p \right] t - \int_t^{+\infty} \frac{2|\vec{p}| \cdot |\vec{A}(t')| \cos\theta + |\vec{A}(t')|^2}{2} dt' \quad (\text{équation III-2})$$

θ étant l'angle entre le vecteur vitesse des photoélectrons et la direction de polarisation du champ d'habillage.

Comme on peut le voir sur l'équation III-2, l'influence du champ d'habillage est présente dans deux contributions : (i) un terme pondérateur en A^2 qui induit un petit décalage négatif de l'énergie des photoélectrons, indépendant de leur direction d'émission, (ii) un terme en $p.A.\cos\theta$, qui lui dépend de cette direction. Ainsi ce second terme est maximum dans la direction de polarisation du laser d'habillage ($\theta = 0$) et décroît vers zéro en se rapprochant de la direction perpendiculaire ($\theta = \pm\pi/2$). On voit donc que mesurer le spectre d'énergie cinétique des photoélectrons dans différentes directions revient à mesurer l'effet de l'habillage pour différentes intensités laser, et donc la phase spectrale XUV encodée pour ces différentes intensités. L'idée, proposée par Charles-Bourassin Bouchet au départ du projet PIFOMETRIX (PALM 2018), était d'utiliser l'information angulaire des spectres obtenus pour remonter, par un algorithme de « phase retrieval » à la phase spectrale de l'impulsion XUV, et donc à son profil temporel. Une telle analyse angulaire pourrait donc être effectuée en un seul tir en utilisant un spectromètre à électrons de type VMI, comme cela sera illustré à partir des simulations numériques présentées ci-dessous. Dans un premier temps nous allons présenter l'effet de l'habillage infrarouge lorsqu'on fait varier le délai XUV/IR.

II.1. Paramètres de simulations

Pour pouvoir calculer le spectre des photoélectrons, le profil spectral du champ XUV ionisant est défini par la somme du champ des différentes harmoniques d'ordre élevé. Les harmoniques d'ordre 11 à 16 (HH11 à HH16) du champ IR fondamental ($E = 1.55$ eV), sont simulées avec une phase spectrale nulle. L'énergie des photons de l'harmonique d'ordre q étant donnée par $E(q) = q \cdot 1.55$, on obtient un spectre XUV formé de raies de photons d'énergie comprises entre 17 et 25 eV. Le fait de choisir les harmoniques HH11 à HH16 permet dans un second temps, de comparer les prédictions aux résultats obtenus expérimentalement. Le profil temporel XUV est par suite obtenu via une transformée de Fourier du spectre. Le gaz cible choisi est l'argon ($I_p = 15,76$ eV). Une valeur typique de 0,5 a été utilisée pour le paramètre d'asymétrie de distribution angulaire β , obtenue à partir d'une moyenne des données publiées sur la plage d'énergie photonique considérée (17 - 25 eV) [139].

Le champ d'habillage IR est décrit par une impulsion gaussienne, définie par : $E_L(t) = E_{0L}(t) \cdot \cos(\omega_L t) = E_0 \cdot \exp\left(-\frac{t^2}{2\sigma^2}\right) \cos\left(\frac{2\pi}{T_{IR}} t\right)$, où $T_{IR} = 2.67$ fs est la période du laser et σ est l'écart type relié à la largeur à mi-hauteur (FWHM) par la relation $FWHM = 2\sqrt{2 \ln 2} \sigma = 2.35 \sigma$.

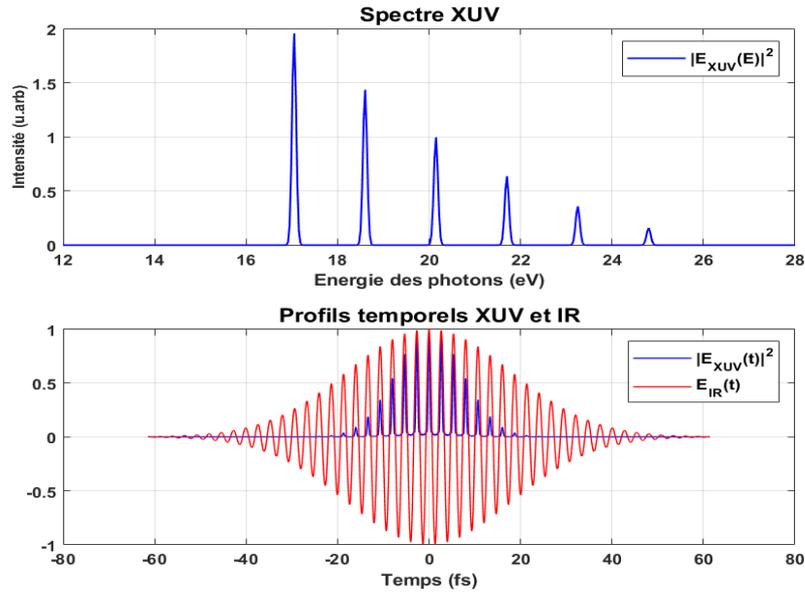


Figure III-1 : (a) Spectre XUV utilisé en entrée du calcul, contenant les harmoniques HH11 à HH16 respectivement, (b) les profils temporels de l'intensité de l'impulsion XUV (en bleu) et du champ de l'habillage IR (en rouge).

Dans les simulations présentées ici, l'impulsion IR a une durée à mi-hauteur (en intensité) de 30 fs, une phase spectrale nulle et une intensité (I_{IR}) de l'ordre de 4 TW/cm^2 . Les deux impulsions XUV et IR sont polarisées linéairement suivant la même direction. Le spectre XUV considéré pour le calcul, ainsi que les profils temporels du champ d'habillage IR et de l'intensité XUV, sont représentés sur la Figure III-1. Avec ces conditions, les calculs des spectres de photoélectrons ont été effectués pour différents retards XUV/IR. Le code calcule ensuite la projection 2D du spectre 3D de photoélectrons obtenu, pour simuler l'image qui serait obtenue sur le détecteur d'un spectromètre VMI.

II.2. Résultats des simulations numériques : asymétrie angulaire

Le premier calcul est réalisé avec seulement l'impulsion XUV présente pour ioniser les atomes d'argon. La projection 2D du spectre des photoélectrons « sans habillage » correspondant est montrée dans la Figure III-2-(a). Comme attendu, ce spectre est constitué de 6 anneaux concentriques, dont le rayon est donné par la racine carrée de l'énergie cinétique des photoélectrons (E_c) pour chaque harmonique d'ordre q considérée dans le calcul : $E_c(q) = q * 1,55 - I_p$ pour $q \in [11,16]$.

Le calcul est ensuite effectué en ajoutant le champ d'habillage IR, avec les caractéristiques données plus haut, pour 5 retards différents à l'intérieur d'une période du champ IR de 2.67 fs : $D_1 = 0 \text{ T}_{IR}$, $D_2 = 0.2 \text{ T}_{IR}$, $D_3 = 0.4 \text{ T}_{IR}$, $D_4 = 0.6 \text{ T}_{IR}$, $D_5 = 0.8 \text{ T}_{IR}$ (représentés sur la Figure III-2-(b)). Les projections 2D des spectres de photoélectrons calculés pour $D_2 = 0.2 \text{ T}_{IR}$ et $D_5 = 0.8 \text{ T}_{IR}$ sont montrés sur les Figure III-2-(c) et (d) respectivement. Dans les deux cas, une asymétrie est clairement visible entre les parties supérieure et inférieure de l'image, bien qu'avec des sens opposés, le long de la direction de polarisation du rayonnement (indiquée par la flèche rouge sur la Figure III-2-(c)). Plus précisément, comparé au spectre sans habillage (Figure III-2-(a)), pour $D_2 = 0.2 \text{ T}_{IR}$ (Figure III-2-(c)) il y a plus de raies dans la partie inférieure ($\theta = 180^\circ$) et moins de raies dans la partie supérieure ($\theta = 0^\circ$). Pour $D_2 = 0.4 \text{ T}_{IR}$ (Figure III-2-(d)) l'image est inversée. On verra plus loin que cette asymétrie oscille avec une période égale à la

période IR. L'asymétrie varie suivant le moment de synchronisation de chaque impulsion du train d'impulsions XUV avec l'amplitude du champ d'habillage IR, plus particulièrement suivant le signe du potentiel vecteur de ce champ.

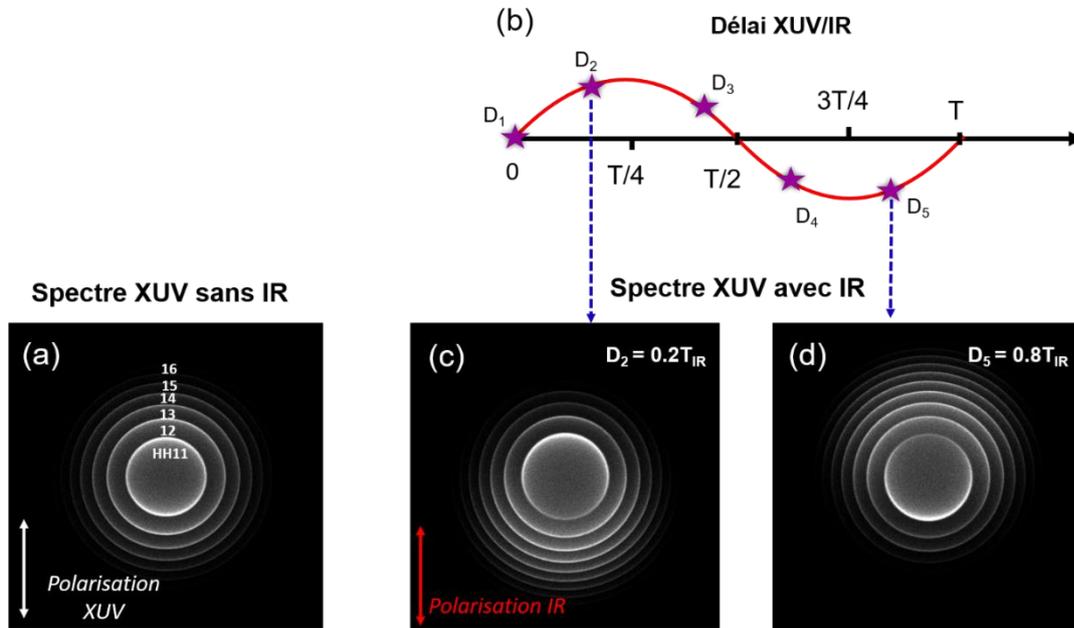


Figure III-2 : simulation numérique des spectres des photoélectrons en absence (a) et en présence (c et d) du champ d'habillage IR pour deux délais XUV/IR différents. Le scan de délai suivant une période de l'impulsion IR est illustré dans (b).

Comme évoqué plus haut, la modulation du spectre des photoélectrons pour les différents délais provient du terme $P.A.\cos\theta$ de l'équation III-2 présentée ci-dessus. Ce terme explique le fait que l'asymétrie observée est maximale suivant la direction de polarisation du faisceau d'habillage, i.e. $\theta = 0^\circ$ et 180° , tandis qu'elle est minimale ou presque nulle dans la direction perpendiculaire $\theta = \pm 90^\circ$.

Ici, il est très important de souligner la différence entre les harmoniques solides et celles générées dans un gaz. Dans ce dernier cas sur le spectre de photoélectrons, seules les raies correspondant à la photoionisation par les harmoniques d'ordre impair sont présentes dans le spectre. Lorsque le champ d'habillage est ajouté, des sidebands apparaissent entre les raies des différents harmoniques, séparées d'une énergie de 1.55 eV de ces dernières. Dans le cas des harmoniques générées sur cible solide les harmoniques paires et impaires sont générées et conduisent à des raies séparées de 1.55 eV dans le spectre de photoélectrons. En présence du champ d'habillage IR, les sidebands se trouvent donc superposées aux raies correspondant aux harmoniques. L'effet du champ d'habillage IR se manifeste alors comme une asymétrie dans la distribution angulaire du spectre photoélectronique, qui dépend de la synchronisation XUV/IR à l'échelle sub-longueur d'onde, i.e. quelques centaines d'attoseconde. L'observation des sidebands et de leur variation avec le retard temporel est donc plus complexe et plus difficile à réaliser.

Il faut mentionner toutefois qu'un effet d'asymétrie haut-bas similaire dans la distribution angulaire des photoélectrons a été observé et discuté par Loriot et al. [140], en utilisant une source harmoniques d'ordre élevé XUV générée à partir d'un gaz rare comme impulsion ionisante et la deuxième harmonique

du laser de génération comme impulsion d’habillage. Une telle configuration se traduit là aussi par la superposition des side-bands induites par le champ d’habillage à 2ω avec les raies correspondant aux harmoniques impaires du laser de génération à 1ω .

Revenant à nos simulations, les spectres présentés dans la Figure III-3 correspondent aux tranches centrales, obtenues après inversion d’Abel, des sphères de photoélectrons présentées dans la Figure III-2: (a) sans champ d’habillage, (b) et (c) avec champ d’habillage pour les mêmes retards que précédemment. L’asymétrie, qui se manifeste clairement et qualitativement sur ces spectres résolus angulairement, peut également être mise en évidence en intégrant angulairement et séparément la partie supérieure et inférieure de chaque image, comme illustré par les flèches bleues et rouges sur la Figure III-3-(a). On verra plus loin que c’est la méthode que nous avons utilisée pour traiter nos spectres expérimentaux.

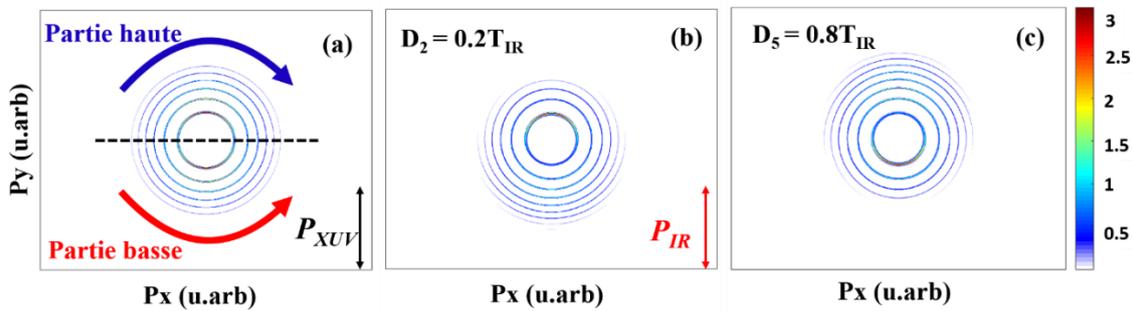


Figure III-3 : Tranches centrales correspondantes de la sphère de photoélectrons obtenues après l’inversion des images de la figure -2, (a) sans champ d’habillage et avec champ d’habillage d’intensité $4\text{TW}/\text{cm}^2$ pour un délai $XUV/IR = 0.2T_{IR}$ et $0.8 T_{IR}$ respectivement en (b) et (c).

Les résultats de cette demi-intégration angulaire sont présentés dans la Figure III-4. Les spectres (symétriques) correspondant au cas sans habillage (en vert) sont comparés aux spectres avec habillage pour les deux délais XUV/IR considérés : $D_2 = 0.2 T_{IR}$ (au-dessus) et $D_5 = 0.8T_{IR}$ (au-dessous). Dans chaque cas le spectre bleu (resp. rouge) correspond à l’intégration angulaire de la partie haute (resp. basse) de chaque image avec habillage. On retrouve bien sûr les asymétries observées sur les images résolues angulairement. Pour un délai $D_2 = 0.2 T_{IR}$, le spectre intégré provenant de la partie haute (en bleu) présente des structures s’étendant sur un plus faible domaine d’énergie qu’en l’absence de champ d’habillage. Pour son homologue inférieur (en rouge), l’effet inverse est observé, le spectre s’étend vers des ordres d’harmoniques plus élevés. Pour le retard $D_5 = 0.8T_{IR}$ on observe la même tendance, mais inversée entre bleu et rouge.

Un autre effet peut visiblement être remarqué sur la Figure III-4. Pour les deux délais montrés, les raies avec habillage sont légèrement décalées vers des rayons plus faibles (et donc des énergies cinétiques plus faibles) par rapport au spectre obtenu en absence de l’impulsion d’habillage (en vert). Ce décalage est dû à l’effet pondéromoteur induit par le champ d’habillage intense sur les atomes et provient du terme A^2 présent dans l’équation III-2 qui ne dépend pas de la direction d’émission des photoélectrons. Le décalage pondéromoteur en énergie, pour les conditions de cette simulation, est égal à 0.24 eV . Il est déterminé en comparant les différents spectres simulés, mais peut être aussi directement calculé par l’expression I-16 décrite dans le chapitre I, pour un champ d’habillage IR à 800 nm et une intensité de $4 \text{ TW}/\text{cm}^2$.

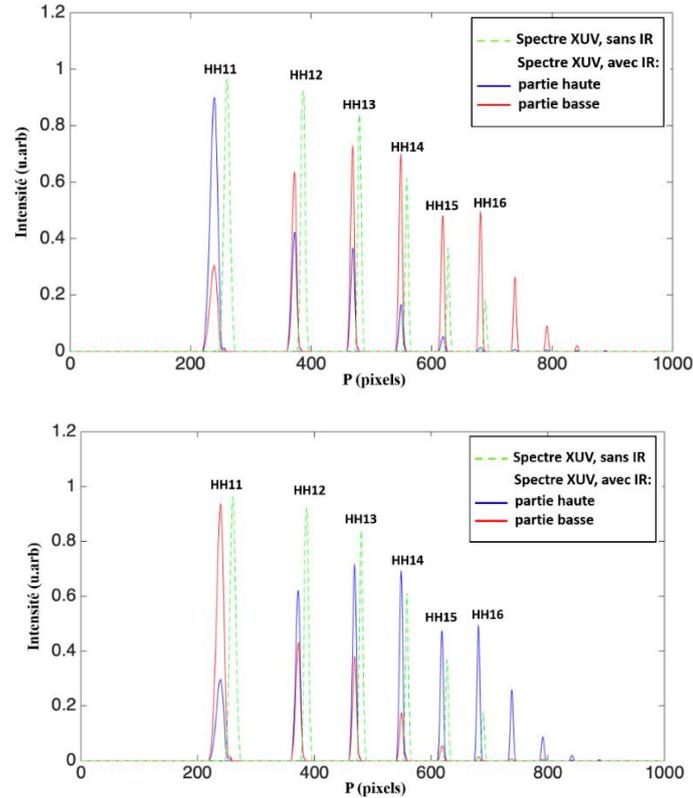


Figure III-4: Spectres intégrés angulairement pour les deux parties haute et basse des spectres avec habillage, pour un délai XUV/IR $D = 0.2 T_{IR}$ (au-dessus) et $D = 0.8 T_{IR}$ (au-dessous).

On voit donc que le spectre avec habillage est sensible au retard XUV-IR à l'intérieur d'une période IR = 2,68 fs. Dans la Figure III-5, je montre que ce spectre est également sensible à la phase spectrale de l'impulsion XUV ionisante. Dans la Figure III-5-(a), les paramètres d'impulsions XUV et IR étant inchangés, le spectre des photoélectrons a été calculé pour un retard particulier appelé $\tau_3 = T_{IR}/2 = 1,34$ fs, pour lequel les pics temporels du train d'impulsions XUV coïncident avec les maxima du champ d'habillage IR. Pour ce retard τ_3 on peut voir qu'aucune asymétrie haut-bas ne se manifeste dans le spectre (projection 2D à gauche, tranche centrale à droite).

Toutefois on voit sur la Figure III-5-(c) que cette asymétrie réapparaît, pour le même retard, lorsqu'on introduit un « chirp » attoseconde, qui correspond à une dispersion des retards de groupe (GDD) de l'ordre de 40 000 as^2/rad entre les harmoniques XUV. Ce chirp provoque une modification visible du profil temporel des impulsions attosecondes du train (voir profil temporel au-dessus du spectre), sans augmenter significativement leur durée. Cela conduit pourtant à une modulation tout à fait appréciable du spectre résolu angulairement, illustrant ainsi la sensibilité de la méthode à la structure attoseconde des impulsions XUV.

Finalement, la Figure III-5-(b) montre les spectrogrammes (p_y , τ), construits par juxtaposition des spectres calculés (tranche centrale) à $p_x=0$, sur un intervalle de retard XUV/IR de $2T_{IR}$. Le spectrogramme de gauche correspond à l'impulsion limitée par Fourier, celui de droite à l'impulsion « chirpée ». On peut voir que, dans les deux cas, l'asymétrie haut - bas oscille avec une période qui correspond à la période laser IR (T_{IR}). La présence du « chirp » déforme légèrement les tendances

oscillatoires dans le spectrogramme par rapport au cas d'impulsions limitées par Fourier, conduisant par exemple à une asymétrie haut-bas pour le retard τ_3 .

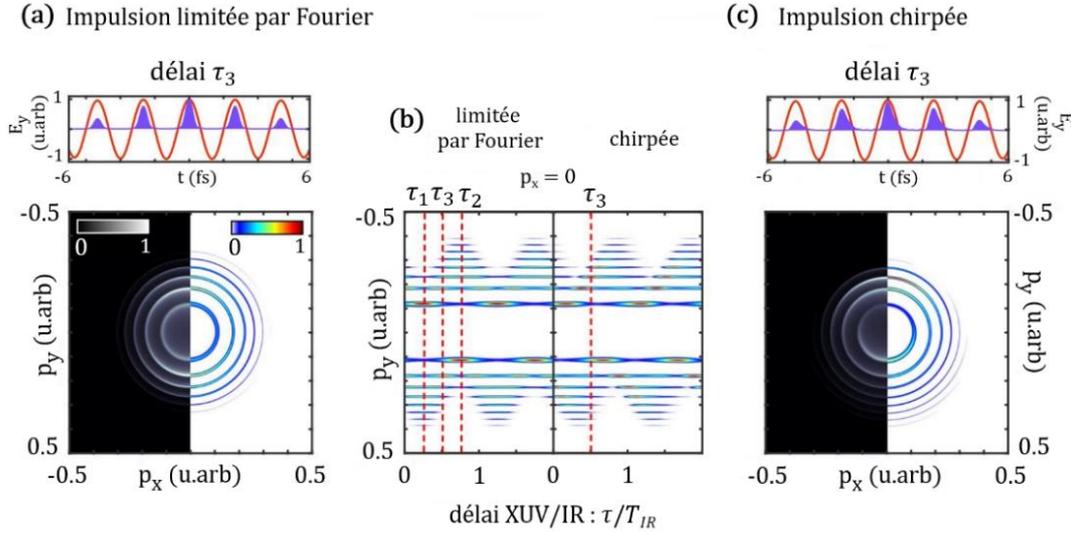


Figure III-5: Simulation de la distribution angulaire de la quantité du mouvement des photoélectrons pour un retard XUV/IR $\tau_3 = T_{IR}/2 = 1.34\text{fs}$. (a) pour une impulsion XUV limitée par Fourier et (c) pour une impulsion XUV faiblement chirpée. (b) spectrogrammes pris à $p_x = 0$ pour l'impulsion XUV limitée par Fourier (à gauche) et chirpée (à droite).

En résumé, les simulations présentées nous permettent de prédire l'influence du champ d'habillage IR sur les spectres photoélectroniques résolus angulairement, obtenus suite à l'ionisation des atomes d'argon par une impulsion XUV constituée d'un train d'harmoniques d'ordre élevé paires et impaires. Le déplacement pondérateur des pics harmoniques vers des énergies cinétiques plus faibles (dépendant de l'intensité d'habillage), et l'asymétrie haut-bas dans la distribution angulaire des photoélectrons (dépendant de la phase spectrale de l'impulsion XUV et du retard XUV/IR) sont donc les deux effets majeurs que nous cherchions à observer dans les spectres expérimentaux obtenus dans la campagne expérimentale décrite dans ce chapitre.

Avant de présenter en détail cette expérience, il faut rappeler que celle-ci constituait une première étape dans le projet PIFOMETRIX, qui avait pour ambition ultime d'utiliser le spectre de photoélectrons résolu angulairement, avec habillage, pour remonter en un seul tir au profil temporel de l'impulsion XUV, par un algorithme itératif d'extraction de la phase. Cette méthode, proposée par notre collaborateur Charles Bourassin-Bouchet au LCF de l'Institut d'Optique, devrait permettre de s'affranchir du balayage du retard XUV/IR, qui est à la base de la technique RABBITT par exemple, et qui nécessite un certain nombre de tirs successifs.

Comme nous allons le voir, les résultats obtenus dans la première expérience n'ont pas permis de mettre en évidence un effet de l'habillage laser sur le spectre de photoélectrons. Par ailleurs la source harmonique XUV utilisée est devenue indisponible juste après la fin de cette expérience, ce qui ne nous a pas permis de refaire l'expérience en l'améliorant. Nous n'avons donc pas personnellement développé la partie algorithme du projet au cours de la thèse. Toutefois, pour illustrer le potentiel de cette méthode et encourager de futures nouvelles expériences, nous présentons un exemple d'utilisation de l'algorithme

développé par Charles Bourassin-Bouchet pour reconstruire le profil temporel de l'impulsion XUV (en amplitude et en phase), ainsi que son retard relatif avec le champ d'habillage, à partir des spectres de la Figure III-5 (a) et (c).

Les résultats sont présentés sur la Figure III-6, où sont tracés (en haut) les profils temporels en intensité de l'impulsion XUV, dans le cas limité par Fourier (à gauche), et avec chirp (à droite). On constate que ces profils (points rouges), obtenus après 600 itérations, sont très proches des profils « exacts » (utilisés en entrée pour les simulations des spectres photoélectroniques). Par ailleurs l'algorithme itératif permet de reconstruire également la synchronisation relative entre le champ d'habillage et l'impulsion XUV, à travers la phase $\phi_{pA}(t)$ qui est tracée sur les panneaux du bas, pour les deux cas. On peut voir que l'algorithme itératif retrouve bien la synchronisation utilisée dans les simulations de la Figure III-5 (retard τ_3), pour laquelle les pics du train d'impulsion attoseconde coïncident avec les extrema du champ d'habillage.

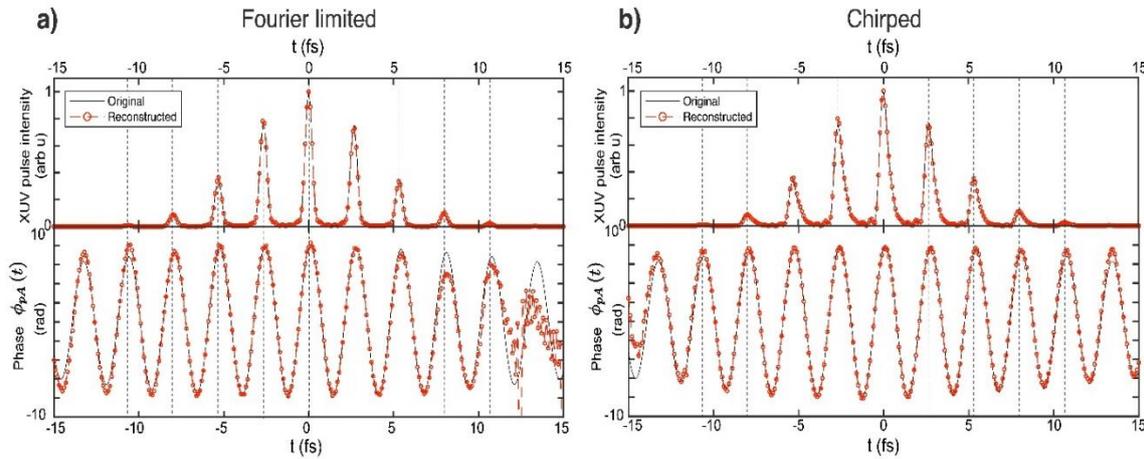


Figure III-6: Reconstruction de trains d'impulsions attosecondes à partir de la distribution angulaire des photoélectrons dans le cas a) d'impulsions XUV limitées par transformée de Fourier et b) d'impulsions XUV chirpées. Seule l'intensité (module au carré) des impulsions attosecondes est indiquée. Dans les panneaux inférieurs, la phase $\Phi_{pA}(t)$ est représentée. Dans chaque panneau, la courbe continue en noire et la ligne pointillée en rouge avec des cercles indiquent respectivement la quantité exacte et celle reconstruite. Les lignes pointillées verticales mettent en évidence la synchronisation relative entre le train d'impulsion attoseconde et le champ électrique de l'impulsion d'habillage au moment de l'interaction dans le jet de gaz.

III. Mise en œuvre expérimentale

L'expérience présentée dans ce chapitre a été réalisée en collaboration avec l'équipe de Fabien Quéré, sur l'installation laser UHI100 (pour Ultra High Intensity) localisée au LIDYL, CEA-Saclay. Nous rappelons les principales caractéristiques de ce laser, puis nous décrivons en détail le montage expérimental, comprenant le transport des faisceaux XUV et IR et les différents diagnostics mis en œuvre pour vérifier leur superposition spatiale et temporelle dans le spectromètre VMI, ainsi que l'intensité du champ d'habillage.

L'adaptation de la partie génération de la source harmonique XUV à la présence d'un laser d'habillage et à son transport vers notre spectromètre VMI a été réalisée en amont de l'expérience par l'équipe de Fabien Quéré. Nous avons plus particulièrement contribué à la mise en œuvre du VMI, à l'acquisition

des données pendant l'expérience, puis à leur traitement pour rechercher dans les spectres les traces de l'effet d'habillage. Cette dernière partie sera décrite dans la section IV.2.

III.1. Le laser UHI100

Le système UHI100 est un laser titane-saphir basé sur le principe d'amplification à dérive de fréquence (CPA). Les impulsions délivrées par l'oscillateur centrées autour de 800 nm, sont étirées jusqu'à ~ 300 ps avant d'être amplifiées à une énergie $E = 3$ J/impulsion. Elles sont finalement recomprimées temporellement pour atteindre une durée nominale (τ) de 25 fs. La puissance crête de ces impulsions est alors de l'ordre de $P_L = E/\tau = 100$ TW, et l'intensité de focalisation sur la cible peut atteindre une valeur de 10^{20} W/cm². Les impulsions générées par la technique CPA présentent un piédestal précédant l'impulsion principale. Afin d'améliorer le contraste temporel de l'impulsion pour éviter l'ionisation de la cible par ce piédestal et par suite dégrader les émissions harmoniques, un système de double-miroir plasma (DMP) [141] est utilisé, (voir chapitre I partie I.2.2). Dans le but d'optimiser l'intensité disponible sur la cible, les potentielles aberrations du front d'onde du faisceau laser, induites par les optiques de la ligne de transport, sont corrigées à l'aide d'un système d'optique adaptative (un miroir déformable couplé à un analyseur de front d'onde). Une tache focale proche de la limite de diffraction est ainsi obtenue avant la focalisation sur la cible [142].

III.2. Description du dispositif expérimental

Pour adapter la technique de photoionisation habillée par laser aux spécificités des harmoniques XUV générées par miroir plasma, une ligne de transport, entièrement co-propagative, du faisceau IR de génération de la source, du faisceau d'habillage, et de la source XUV, a été spécifiquement conçue. Elle est représentée sur la Figure III-7. Le choix d'un montage co-propagatif permet de s'affranchir le mieux possible des problèmes d'instabilité mécanique des optiques transportant les faisceaux, et d'assurer ainsi que les deux impulsions XUV et IR d'habillage arrivent, tir après tir, superposées spatialement et temporellement au centre du spectromètre VMI, avec la précision requise.

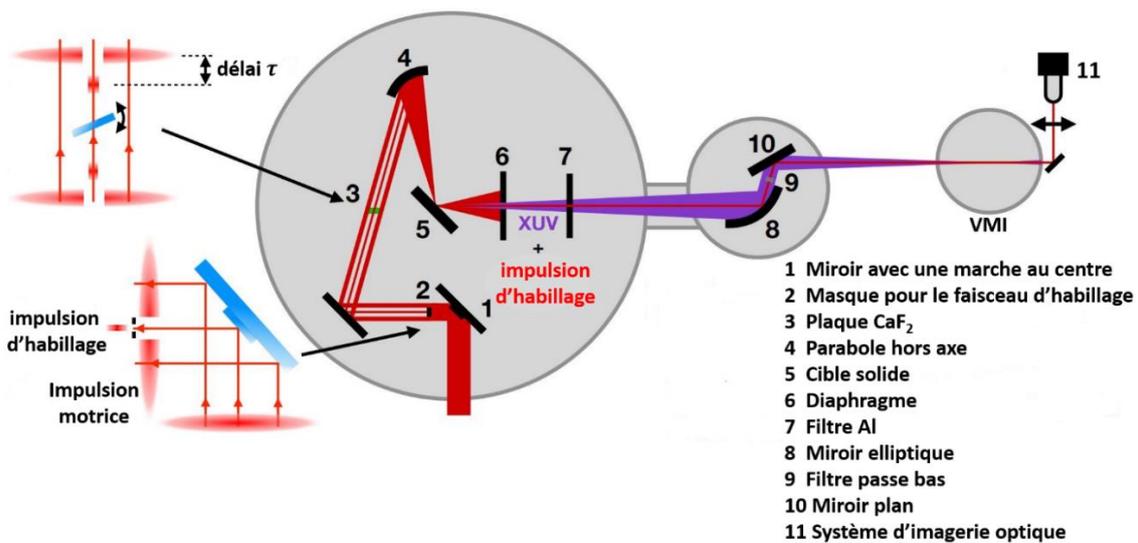


Figure III-7: Montage expérimental montrant les lignes de lumière IR (rouge) et XUV (violet). Les illustrations supplémentaires ajoutées à gauche du montage montrent la génération du faisceau laser annulaire et du faisceau d'habillage central (en bas) ; le contrôle du retard de l'impulsion d'habillage par rapport à l'impulsion motrice se fait en inclinant légèrement la plaque CaF₂ (en haut).

A l'entrée de la première chambre expérimentale, dans laquelle sont générées les harmoniques, le faisceau laser IR principal linéairement polarisé (diamètre $\Phi = 60$ mm, $\lambda = 800$ nm, $E = 3$ J/impulsion, $\tau = 25$ fs), est divisé en deux parties après réflexion sur le premier miroir (voir (1) sur la Fig. III-7), à l'aide d'un masque de 5 mm de diamètre (voir (2)) ayant un trou au centre de diamètre variable ($\Phi = 1.75, 2.75$ et 3.4 mm). Il en résulte un faisceau annulaire utilisé pour la génération des harmoniques d'ordre élevé et un faisceau central qui sert pour l'habillage. Le miroir (1) a été fabriqué avec une marche en son centre afin de retarder la partie extérieure (annulaire) du faisceau par rapport à la partie centrale, de manière à compenser le retard acquis par le faisceau central lors de la traversée d'une lame de CaF₂ (3). Une légère inclinaison de cette lame permet de varier et de régler d'une façon contrôlée à l'échelle attoseconde le retard entre l'impulsion de génération des harmoniques et l'impulsion d'habillage.

À l'aide d'une parabole hors-axe de focale 304 mm (4), les deux faisceaux sont ensuite focalisés avec un angle d'incidence de 45° sur une cible solide (5). Compte tenu de la différence de leur diamètre respectif, le faisceau principal de génération est focalisé sur une petite tâche focale de diamètre $\sim 10 \mu\text{m}$, alors que la tâche focale du laser d'habillage est plus grande, de l'ordre de $100 \mu\text{m}$, ce qui relaxe la précision nécessaire pour leur superposition spatiale. En aval de la cible, il faut ensuite supprimer autant que possible le faisceau annulaire de génération, réfléchi par la cible, tout en transmettant le faisceau des harmoniques XUV produit, ainsi que le faisceau d'habillage. Pour ce faire, on combine un iris (6) et un filtre d'aluminium (7). Ce dernier, de 100 nm d'épaisseur, bloque toute la lumière infrarouge diffusée restante, tout en transmettant le faisceau laser d'habillage grâce à un trou de 5 mm de diamètre en son centre.

Le faisceau XUV et le faisceau d'habillage IR sont focalisés au centre du spectromètre VMI à l'aide d'une combinaison d'un miroir elliptique (8) de focale 1 m et d'un miroir plan (10), utilisés sous une incidence rasante de 11,5°. Ces deux miroirs, placés dans la deuxième chambre à vide, sont en silice fondue avec un revêtement en or d'épaisseur 40 nm pour améliorer la réflectivité. Le miroir elliptique (longueur 200 mm, largeur 60 mm) image dans le VMI la position de la surface de la cible où les faisceaux IR (principal et d'habillage) sont focalisés et l'émission harmonique XUV est générée. Une configuration 2f-2f (avec un grandissement $G = 1$) est utilisée pour minimiser les aberrations.

Enfin, afin d'éviter la contribution indésirable potentielle des ordres harmoniques les plus bas ($q = 2, 3, 5$), un filtre RG780 passe-bas de 5 mm de diamètre (9) est positionné avec précision entre les deux miroirs sur le trajet du faisceau IR d'habillage, interceptant ainsi une petite partie du faisceau XUV.

Étant donné que le faisceau d'habillage IR et le faisceau d'harmoniques XUV générés proviennent de la même position au niveau de la cible, ils se superposent naturellement à la même position dans le VMI dans le plan image et ils sont synchronisés dans le temps (ou retardés d'une quantité contrôlée). Les deux tâches focales sont ensuite positionnées avec précision au centre de la zone d'interaction du spectromètre VMI, en ajustant l'inclinaison du miroir plan (10). Des contrôles supplémentaires de la position et de la synchronisation relative des points focaux des faisceaux dans la zone d'interaction ont été possibles grâce au système optique (11) placé à la sortie du VMI. Cette dernière partie sera décrite dans la section III.3.

III.2.1. Génération d'une pré-impulsion IR

Un miroir 1/2" (non représenté sur la Figure III-7), placé à une distance variable devant le miroir (1) et près de son bord extérieur comme montré dans la Figure III-8 (a), est utilisé pour générer une pré-impulsion de faible énergie avec un retard contrôlé avant l'arrivée de l'impulsion principale au niveau de la cible solide.

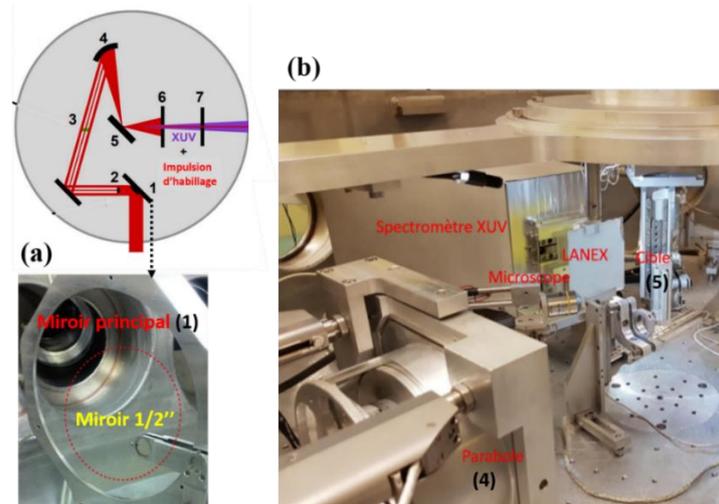


Figure III-8: Vues (a) du miroir 1/2" placé devant le premier miroir (1) pour générer une pré-impulsion, et de l'intérieur de l'enceinte de génération des harmoniques, avec la parabole hors-axe (4) au premier plan et la cible (5) au fond. Les numéros indiqués correspondent à ceux de la figure III-7.

Dans la Figure III-8 (b), on voit l'arrière de la parabole hors-axe, ainsi que la cible sur laquelle sont focalisés les faisceaux IR. Le spectromètre XUV à champ plan, visible sur la gauche, peut être inséré dans le trajet du faisceau XUV pour mesurer le spectre des harmoniques. Ceci permet d'optimiser le nombre et l'intensité des pics harmoniques, en ajustant les principaux paramètres de génération de la source, notamment le délai entre la pré-impulsion et l'impulsion principale.

III.2.2. Choix du filtre aluminium

Le choix du filtre (7) qui bloque la lumière infrarouge réfléchi sur la cible tout en laissant passer les harmoniques XUV dans la gamme [15-60 eV] s'est fait en comparant la transmission de différents filtres disponibles, à partir des données du site CXRO. Sur la Figure III-9 sont tracées les transmissions d'un filtre d'aluminium (courbe bleue), de silicium (courbe verte) et d'indium (courbe rouge) pour une épaisseur de 100nm, et dans la gamme d'énergie photonique entre 10 et 150 eV. On voit que le filtre d'aluminium est le mieux adapté pour couvrir la gamme [17 - 30 eV] correspondant aux harmoniques d'ordre q compris entre 11 et 19.

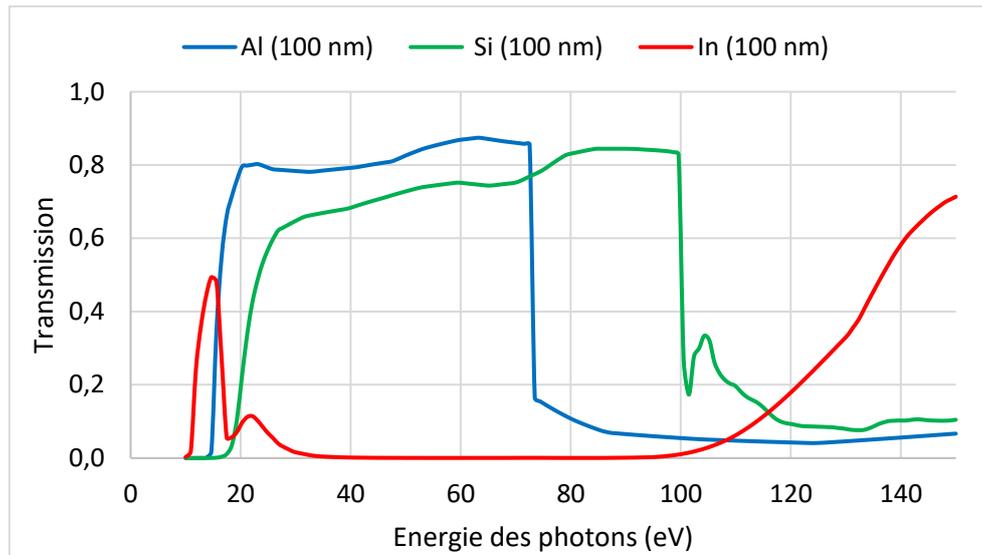


Figure III-9 : Comparaison de la transmission de différents filtres en Al, Si et In d'après le site CXRO (https://henke.lbl.gov/optical_constants/).

III.2.3. Choix du miroir elliptique pour la focalisation des faisceaux dans le VMI

Dans l'attente de la livraison du miroir elliptique en silice (fabriqué par Winlight Optics), le début de l'expérience a été effectué avec un miroir torique (de même focale) pour la focalisation de deux faisceaux XUV et IR d'habillage au centre du VMI (miroir noté 8 dans la Figure III-7). Ce miroir a ensuite été remplacé par le miroir elliptique, avec lequel toutes les données expérimentales qui seront présentées dans ce chapitre ont été obtenues. Toutefois pour illustrer qualitativement l'amélioration significative de la focalisation apportée par le miroir elliptique, nous présentons sur la Figure III-10 les images de la tâche focale IR obtenues avec (a) le miroir torique et (b) le miroir elliptique, en éclairant le miroir à pleine ouverture. On peut voir que le miroir elliptique permet de réduire considérablement les aberrations (visibles sur le pourtour de la tâche principale de l'image (a)), qui sont typiques de la focalisation par un miroir torique. Il faut noter que ces deux images ont été obtenues avec des systèmes d'imagerie différents : le diamètre des deux tâches focales est en fait similaire, de l'ordre de $7\mu\text{m}$. On verra plus loin que la qualité de la focalisation est un aspect très important pour assurer une bonne synchronisation temporelle du faisceau d'habillage IR avec l'impulsion XUV.

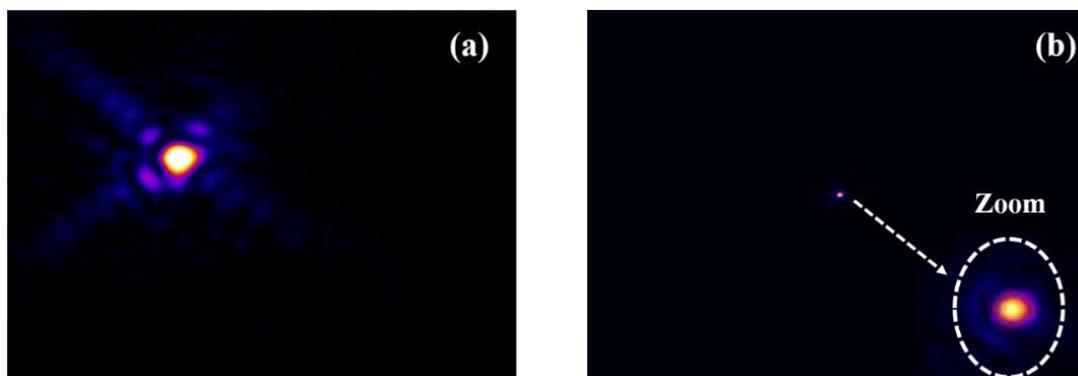


Figure III-10: Images de la tâche focale du faisceau IR éclairant à pleine ouverture (a) le miroir torique ou (b) le miroir elliptique. La dimension réelle des tâches focales est similaire (les deux images n'ont pas le même grandissement), mais les aberrations sont significativement réduites avec le miroir elliptique.

III.3. Contrôle des impulsions XUV et IR dans le VMI

Nous avons vu dans le premier chapitre que la mesure temporelle de l'impulsion XUV à l'aide de la technique de photoionisation habillée par laser nécessite de remplir trois conditions impératives : (i) la synchronisation temporelle des impulsions IR et XUV avec un contrôle précis de leur retard relatif, ici à l'échelle sub-cycle de l'impulsion IR, (ii) la superposition spatiale des points focaux correspondants, (iii) le contrôle de l'intensité de l'impulsion laser d'habillage dans la zone d'interaction du spectromètre VMI. Même si le transport co-propagatif des faisceaux, que nous avons choisi d'utiliser, permet de minimiser l'influence des instabilités mécaniques des optiques sur le maintien tir à tir de leur superposition spatiale et temporelle, il est nécessaire de la vérifier au début de chaque journée et avant chaque série de mesures.

Pour cela un système d'imagerie optique (élément (11) dans la Figure III-7) comprenant une lentille et un objectif de microscope est positionné derrière le hublot de sortie du VMI. Ce système permet d'obtenir sur un détecteur CCD une image agrandie de la tache focale du laser IR, à la position de la région d'interaction à l'intérieur du VMI. Il a été utilisé pour faire le réglage initial de la superposition temporelle des deux impulsions XUV et IR puis, pendant les mesures, pour surveiller tir à tir la taille et la position du faisceau d'habillage focalisé, ou pour vérifier qu'aucun faisceau IR n'arrive dans la zone d'interaction du VMI lorsque le faisceau d'habillage est bloqué.

III.3.1. Superposition spatiale et synchronisation temporelle des faisceaux XUV et IR

La synchronisation temporelle de l'impulsion d'habillage IR avec l'impulsion XUV au centre du VMI ne peut pas être réalisée directement. Cependant, puisque la génération du train d'impulsions XUV est synchrone avec l'impulsion principale IR à la surface de la cible, et que les deux impulsions (principale IR, et XUV) suivent ensuite le même trajet optique jusqu'au VMI, on peut utiliser l'impulsion principale IR comme référence temporelle de l'impulsion XUV. Cette hypothèse sera à nouveau discutée dans la section IV de ce chapitre.

En enlevant temporairement l'iris et le filtre d'aluminium, et en travaillant à énergie laser réduite pour ne pas endommager la cible, on envoie donc le faisceau d'habillage et une portion équivalente du faisceau principal, tous deux réfléchis par la cible, dans le spectromètre VMI. La Figure III-11 montre les franges d'interférence obtenues sur le détecteur du système d'imagerie placé derrière le hublot de sortie. La présence de ces franges confirme que la marche réalisée au centre du premier miroir de renvoi du faisceau IR (élément (1) sur Figure III-7) compense bien le retard introduit sur le faisceau d'habillage par la traversée de la lame de CaF₂ (élément (3) sur Figure III-7), c'est à dire que les deux impulsions sont synchronisées temporellement à mieux que ~10 fs. En inclinant légèrement la lame pour augmenter l'épaisseur traversée, et donc le retard relatif entre le faisceau d'habillage et le faisceau principal (et donc l'impulsion XUV), on induit un déplacement des franges, dont nous avons pu vérifier la reproductibilité. La précision correspondante est de l'ordre de 100 as.

Finalement avec le système d'imagerie nous avons estimé que la précision sur la superposition spatiale des deux faisceaux était de l'ordre de 10 μ m.

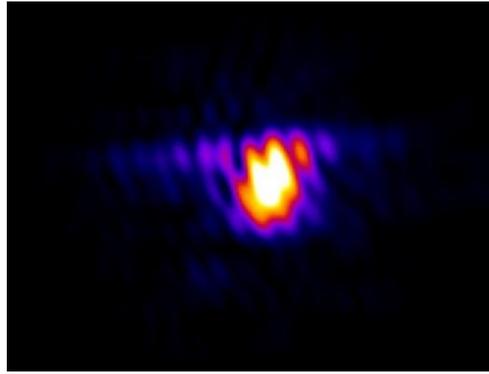


Figure III-11: Franges d'interférence observées entre les deux faisceaux IR principal et d'habillage détecté grâce au système d'imagerie optique placé à la sortie du VMI.

Enfin pour vérifier que les deux tâches focales XUV et IR, préalablement superposées, sont bien positionnées au centre du spectromètre VMI, nous avons utilisé ce spectromètre en mode imagerie spatiale des ions, décrit en détail dans le chapitre II. Rappelons que dans ce mode, l'image de la zone d'interaction est obtenue en projetant les photoions sur le détecteur avec un champ électrostatique positif. Ce faisant, la position transversale des foyers pour l'impulsion ionisante XUV et l'impulsion d'habillage IR, par rapport au jet de gaz dans la région d'interaction dans le VMI, a été ajustée en inclinant le miroir plan à incidence rasante (élément 10 de la Figure III-7).

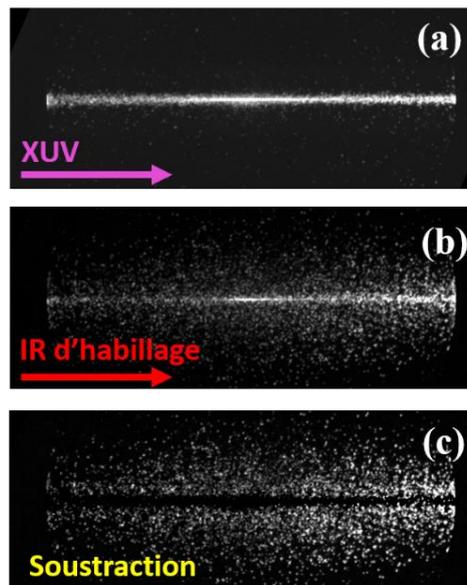


Figure III-12: Images en mode imagerie spatiale des ions obtenues en un seul tir dans le VMI en utilisant le faisceau XUV seul (a), le faisceau d'habillage IR seul (b). La soustraction des deux images est montrée en (c). Les flèches violet et rouge représentent la direction de propagation de l'impulsion XUV et IR respectivement.

La Figure III-12 (a) montre un exemple d'image obtenue en un seul tir lorsque uniquement le faisceau XUV a été envoyé dans le jet de gaz contenant des atomes d'argon. La zone centrale la plus intense du signal correspond à l'intersection du faisceau focalisé avec le jet de gaz, tandis que le signal plus faible de chaque côté est dû à l'ionisation du gaz résiduel de plus faible densité dans le spectromètre ($P_r(\text{Ar}) = 10^{-5}$ mbar). Le même comportement est observé pour le faisceau d'habillage IR représenté sur l'image de la Figure III-12 (b). La soustraction des deux images (a) et (b) est représentée sur la Figure III-12 (c) permet de vérifier que les deux faisceaux sont bien superposés.

III.3.2. Contrôle de l'intensité du faisceau d'habillage

D'après la littérature, une intensité de l'impulsion d'habillage de l'ordre de 10^{11} - 10^{12} W.cm⁻², dans la zone d'interaction du spectromètre, est nécessaire pour observer son effet sur les spectres photoélectroniques. L'intensité du champ d'habillage IR dans notre expérience a d'abord été évaluée, en mesurant l'énergie transmise à travers le hublot de sortie du spectromètre VMI, à l'aide d'un calorimètre, et le diamètre de la tache focale IR à partir du système d'imagerie optique. Nous avons ainsi estimé qu'en ajustant l'énergie du laser incident et le diamètre du trou dans le masque (2) (voir Figure III-7, diamètres 1.75, 2.75 et 3.4mm), nous pouvions faire varier l'intensité du faisceau laser d'habillage entre 2 TW.cm⁻² et 90 TW.cm⁻². Pour vérifier que ces valeurs d'intensité étaient bien atteintes dans le VMI, nous avons par ailleurs fait varier ces paramètres du faisceau d'habillage en détectant la trace d'ionisation induite dans le VMI en mode imagerie spatiale des ions. Les images, obtenues en un seul tir, sont montrées sur la Figure III-13. Sur chaque image, le diamètre du trou du masque (en mm), le diamètre de la tâche focale IR (en μm), l'énergie mesurée par le calorimètre (en μJ), ainsi que l'intensité correspondante en TW.cm⁻² sont respectivement indiqués. On peut voir sur la Figure III-13 la présence de traces d'ionisation de la cible gazeuse pour des intensités laser supérieures à ~20 TW.cm⁻². Ceci est cohérent avec l'intensité minimale typique (~ 10 TW.cm⁻²) requise pour obtenir des processus d'ionisation au-dessus du seuil (ATI) avec une impulsion laser de longueur d'onde 800 nm. Ce résultat confirme donc clairement qu'une intensité plus que suffisante était disponible pour induire des processus de photoionisation habillés par laser durant nos mesures.

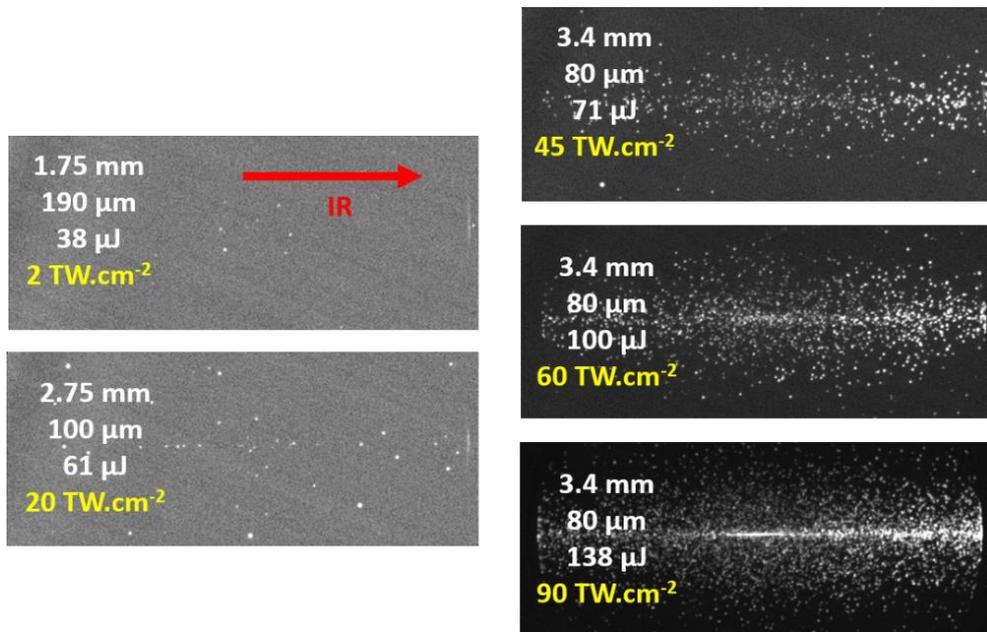


Figure III-13: Images mono-tir obtenues avec le VMI fonctionnant en mode imagerie spatiale des ions en présence du faisceau laser d'habillage IR (direction de propagation indiquée par la flèche rouge) dans la zone d'interaction, pour des valeurs croissantes d'intensité focalisée. Des traces de photoionisation commencent à être observées lorsque l'intensité IR est supérieure à 20 TW.cm⁻² (trace ATI).

IV. Résultats expérimentaux

Avant d'envoyer les harmoniques XUV dans le spectromètre VMI, il convient d'optimiser leur distribution spectrale, à l'aide du spectromètre à champ plan, afin de favoriser les harmoniques générées

dans le régime ROM (voir chapitre I). Le principal paramètre qui contrôle ce régime est la longueur de gradient de densité de plasma sur lequel est envoyée l'impulsion principale, longueur qu'on peut faire varier à l'aide du délai D_{pp} entre la pré-impulsion et cette impulsion [143]. Dans le régime CWE, la longueur de gradient typique est de l'ordre de $L_g \sim 800\text{nm}/40 \sim 20 \text{ nm}$. Dans le régime ROM, la longueur de gradient est un peu plus grande, de l'ordre de $L_g = 800 \text{ nm}/15 = 53 \text{ nm}$, ce qui correspond à un retard plus long entre la préimpulsion et l'impulsion principale.

La Figure III-14 (a) montre le spectre des harmoniques obtenu dans le régime ROM, pour une longueur de gradient correspondant à un délai $D_1 = D_{pp0} + 150 \mu\text{m}/c$, où c est la vitesse de la lumière dans le vide. On observe un peigne d'harmoniques d'ordre 9 jusqu'à 26 dont le profil angulaire (direction horizontale) est relativement lisse. La Figure III-14 (b) montre le spectre obtenu pour une longueur de gradient plus courte, correspondant à un délai $D_2 = D_{pp0} + 25 \mu\text{m}/c$. On observe dans ce cas un spectre typique du régime CWE, s'étendant jusqu'à l'ordre 16. Le profil angulaire est plus chahuté et l'intensité du signal est plus faible. Pour les mesures présentées au sein de ce chapitre les harmoniques ont été générées dans le régime ROM.

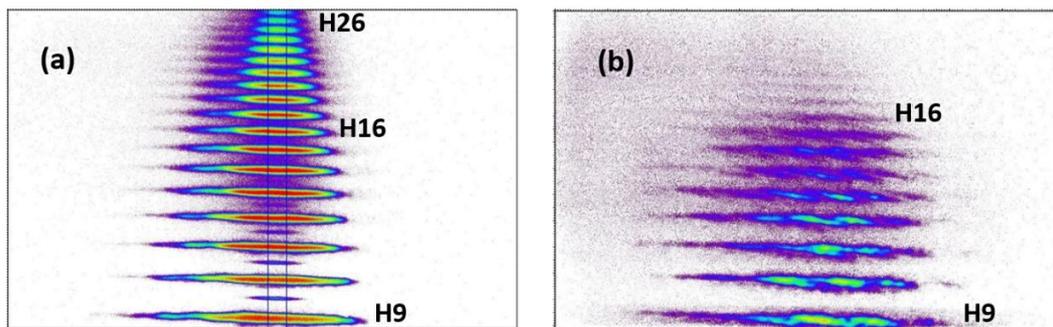


Figure III-14: spectres harmoniques obtenues à l'aide du spectromètre XUV à champ plat, dans le régime ROM (a) et CWE (b).

Je présente à présent les résultats expérimentaux obtenus durant la campagne d'expérience. Dans un premier temps, les spectres des photoélectrons obtenus sur le détecteur VMI lorsque seule l'impulsion XUV est focalisée dans la zone d'interaction du spectromètre, seront décrits. Je détaillerai la méthode du traitement des données, avant de présenter les résultats en présence du champ d'habillage. Une comparaison avec les prédictions de la simulation numérique est ensuite discutée.

IV.1. Impulsion XUV seule

Après l'optimisation de la génération des harmoniques, le faisceau XUV est focalisé dans la zone d'interaction du spectromètre VMI pour ioniser la cible gazeuse. Durant cette expérience, à l'aide d'une aiguille utilisée comme un système d'injection du gaz, nous avons utilisé deux gaz rares avec un potentiel d'ionisation (I_p) différent : l'argon ($I_p = 15,76 \text{ eV}$), et le néon ($I_p = 21,56 \text{ eV}$).

IV.1.1. Identification des ordres harmoniques présents

La Figure III-15 présente les images brutes obtenues en un seul tir par le VMI utilisé en mode d'imagerie de vitesse des électrons, et montrant la projection 2D de la distribution angulaire des photoélectrons générés à partir l'ionisation d'atomes d'argon (a) et de néon (b) par des harmoniques ROM. Le signal obtenu sur chacune de ces images peut être décomposé en trois parties : (i) des anneaux concentriques

correspondant aux harmoniques d'ordre élevé dont la présence confirme le transport efficace du faisceau XUV vers le VMI, (ii) une tâche centrale relativement intense provient des électrons secondaires suite à la collision des électrons émis et qui tapent sur le répulseur comme détaillé dans la partie III.3.1 du chapitre II, et (iii) deux tâches périphériques d'intensité différente présentes dans la direction de propagation du faisceau XUV (flèche violet), appelées par la suite signal parasite. La position de ce dernier reste inchangée lorsque la tension de répulsion varie. Autrement dit, Contrairement aux harmoniques, dont le rayon varie suite au passage d'une tension de répulsion à une autre, ce signal parasite reste toujours au même endroit sur le détecteur. Ceci a été vérifié pour différents voltages de répulsion (V_1) allant de -1 kV à -4.5 kV. Le diamètre des tâches est égal au diamètre de l'électrode 4 du VMI. Nous supposons alors que l'origine du signal parasite à l'extérieur des raies photoélectroniques est les électrons qui tapent sur les électrodes et se dirigent par la suite vers le détecteur. Toujours important de mentionner que ce signal parasite n'a pas un impact sur l'observation de l'effet d'habillage que nous souhaitons avoir durant cette expérience. Dans la suite de cette partie, on s'intéresse à discuter et détailler les harmoniques d'ordre élevée (partie (i) du signal observé).

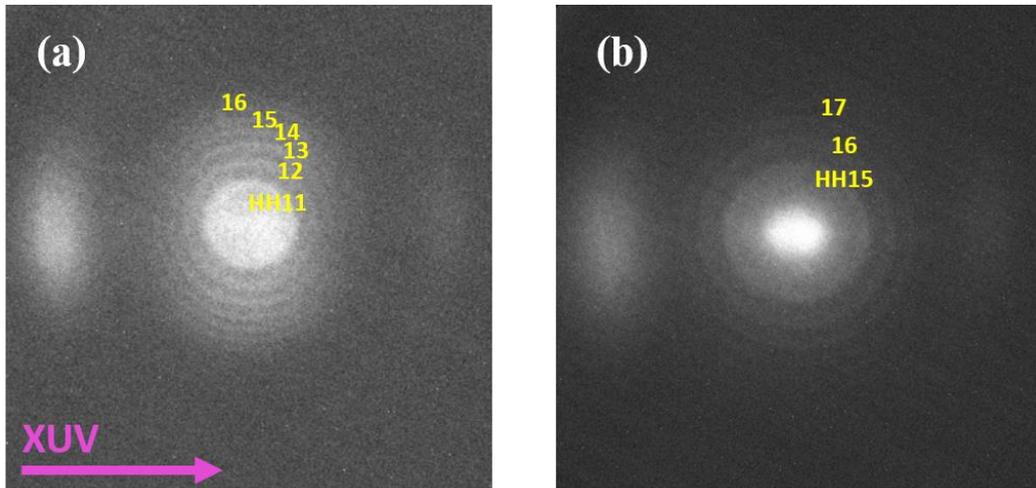


Figure III-15: Spectre des photoélectrons obtenus en un seul tir par le spectromètre VMI après l'ionisation d'un jet d'argon (a) et de néon (b) par les harmoniques XUV. La flèche violette représente la direction de propagation du faisceau XUV. Les images sont obtenues pour une tension de répulsion de -3 kV (a) et -1.5kV (b) respectivement, un rapport V_2/V_1 de 0.94, une pression dans l'enceinte VMI de l'ordre de $5 \cdot 10^{-6}$ mbar, et une aiguille pour l'injection de gaz placée à 3 mm au-dessus du répulseur. Les numéros affichés sur les images correspondent à l'ordre de l'harmonique observée.

Pour chaque valeur du potentiel d'ionisation, nous pouvons prédire les valeurs de l'énergie cinétique des photoélectrons détectés d'après la formule : E_c (eV) = E_{photons} (eV) - I_p , avec $E_{\text{photons}} = E_{h\nu} = n_{\text{HH}} * 1.55$ eV, où n est un nombre entier qui représente l'ordre harmonique. Dans le cas de l'interaction avec des atomes d'argon, une énergie de photons supérieure à 15.76 eV est nécessaire pour ioniser ces atomes. L'harmonique d'ordre inférieur qui peut être détectée est d'ordre $n = 11$ (HH11), ce qui correspond à une énergie $E_{h\nu} = 17.05$ eV et qui produit des électrons de $E_c = 1.29$ eV. Dans le cas d'atomes de néon, de potentiel d'ionisation plus élevé, l'harmonique d'ordre le plus bas pouvant ioniser l'atome sera la 14ème, associée à une énergie de photons $E_{h\nu} = 21.7$ eV et permettant d'observer des électrons de 0.14 eV d'énergie cinétique. Cette différence d'énergie de liaison explique le moins grand nombre de structures observées Figure III-15 dans le cas du néon par rapport à celui de l'argon.

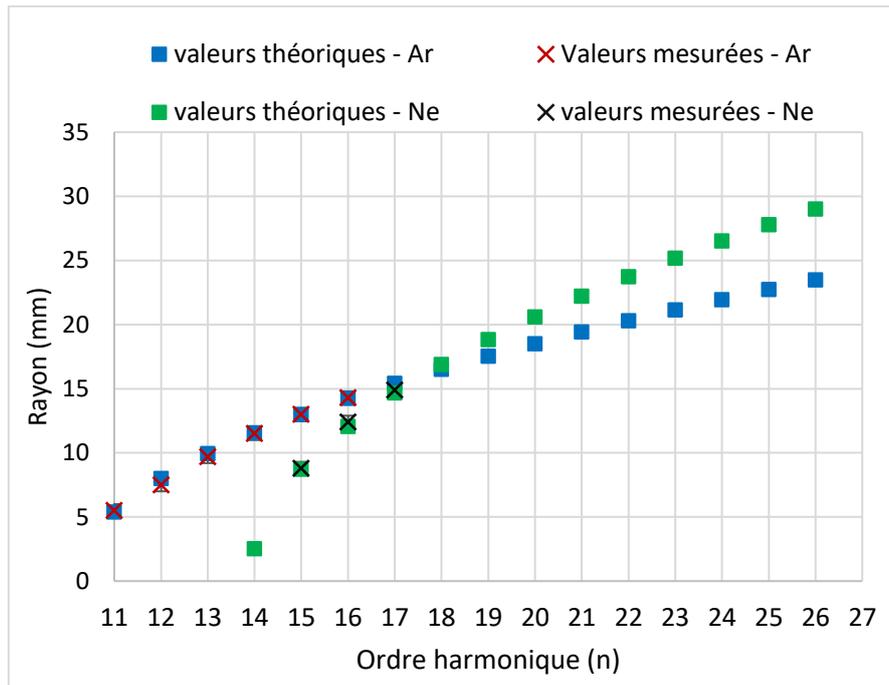


Figure III-16: Valeurs calculées des rayons des sphères de photoélectrons sur le détecteur en fonction de l'ordre harmonique n , pour un gaz cible d'argon (avec $V_1 = -3$ kV) et de néon (avec $V_1 = -1,5$ kV). Les croix représentent les valeurs mesurées sur les spectres de la Figure III-15. Une barre d'erreur de l'ordre de ± 0.3 mm est estimée pour ces mesures.

Afin de vérifier l'identification des ordres harmoniques n présents dans les spectres, on utilise l'expression de calibration du VMI (équation II-3), pour calculer le rayon de la sphère des photoélectrons projetée sur le détecteur, pour une énergie cinétique $E_c(n)$ et un potentiel de répulsion V_1 donnés. Les valeurs de rayon calculées dans le cas de l'argon (avec $V_1 = -3$ kV) et le néon (avec $V_1 = -1,5$ kV) sont reportées sur la Figure III-15. Les rayons mesurés sur les spectres expérimentaux de la Figure III-15 sont également montrés (croix). Ces points expérimentaux coïncident bien avec les valeurs calculées, ce qui confirme l'identification des harmoniques montrée sur les spectres de la Figure III-16. A noter que la structure correspondant à la photoionisation du néon par l'harmonique HH14 ($E_c = 0.4$ eV) se trouve dans la tâche centrale, et ne peut donc pas être observée.

IV.1.2. Inversion des images brutes

Comme discuté dans le chapitre II, les images brutes du VMI correspondent à la projection de sphères de photoélectrons sur un détecteur 2D. Pour obtenir les informations physiques qu'elles contiennent, notamment celles sur la distribution angulaire des vitesses, il faut extraire la tranche centrale correspondante des sphères photoélectroniques, à l'aide d'une transformation d'Abel inverse.

Dans ce travail, nous avons utilisé l'algorithme pBasex [133] décrit précédemment, où les images sont orientées suivant un axe de référence (axe de symétrie) défini dans ce code, pris suivant la direction de polarisation du rayonnement XUV. Pour le passage du rayon (pixels) en énergie (eV), j'introduis dans l'algorithme les paramètres expérimentaux essentiels de la calibration pour les images à traiter, notamment la tension de répulsion et la constante de calibration du VMI déjà estimée dans le chapitre II est qui est de l'ordre de 25.7 cm. Le centre de l'image est défini soigneusement pour minimiser les

incertitudes de la mesure durant le traitement. Je peux également choisir un rayon maximal qui définit la partie de l'image prise en compte durant l'inversion, ceci permet de ne prendre que les harmoniques, sans prendre en compte le signal parasite présent autour des raies de photoélectrons auxquelles nous intéressons, ou de prendre l'image complète.

Sur la Figure III-17, les images brutes, déjà présentées sur la Figure III-16, sont rappelées à gauche, tandis que les images inversées correspondantes sont montrées à droite, pour l'argon (a) et le néon (b). Une caractéristique intéressante est clairement visible sur les spectres inversés : la distribution angulaire des photoélectrons varie avec l'ordre HH (n) et avec le gaz cible utilisé. La variation observée est qualitativement cohérente avec les valeurs correspondantes du paramètre d'asymétrie β , telles que disponibles dans la littérature, pour une ionisation à un photon par un rayonnement XUV polarisé linéairement. Ainsi dans le cas de l'argon comme gaz cible, les valeurs de β publiées dans [2] varient entre 0,1 et 1,16 dans la gamme d'énergie photonique [17 -25] eV. Nous remarquons dans la Figure III-17 (a), que la distribution angulaire est quasi-uniforme pour HH11 ($E_{h\nu} = 17$ eV, $\beta = 0,1$), alors que pour HH16 ($E_{h\nu} = 24.8$ eV, $\beta = 1,16$) elle présente une forte asymétrie, en étant plus intense dans la direction de la polarisation du rayonnement XUV (indiquée par la flèche violette). De même, dans le cas de néon, les valeurs du paramètre d'asymétrie β publiées dans [144] varient de -0.5 à +0.3 dans la gamme d'énergie des photons [23-30] eV. Dans la Figure III-17 (b), on peut voir que la distribution angulaire est plus uniforme pour les différentes harmoniques observées que dans le cas de l'argon. Pour l'harmonique HH15 ($E_{h\nu} = 23,3$ eV, $\beta = -0,3$) on remarque toutefois que le signal est légèrement plus intense dans la direction perpendiculaire à la polarisation, ce qui correspond bien à une valeur du paramètre d'asymétrie β légèrement négative.

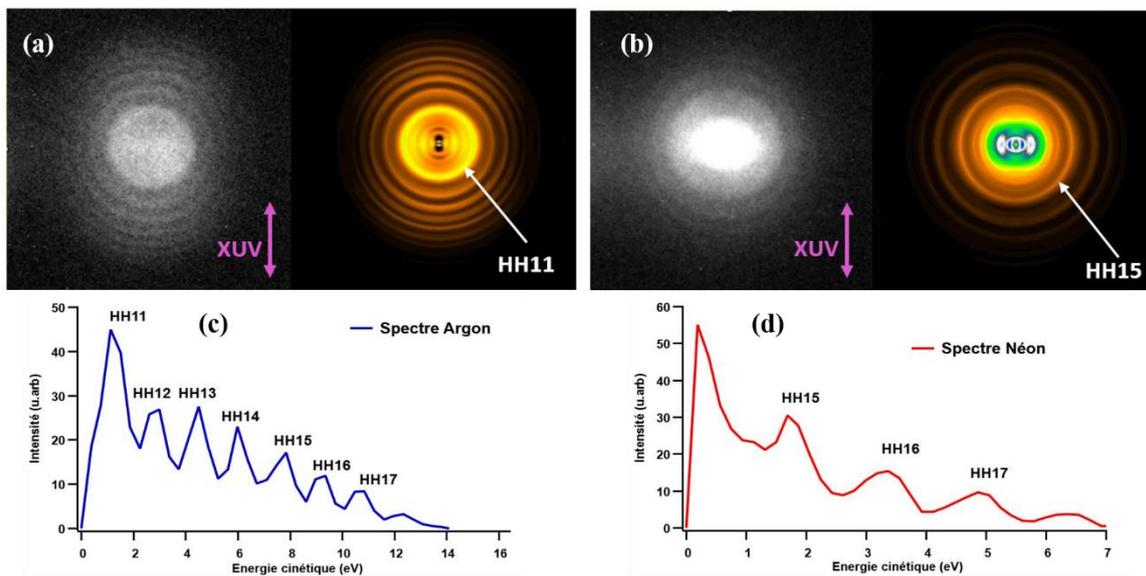


Figure III-17: A gauche, rappel des spectres bruts (idem Figure III-15) obtenus dans l'argon (a) et le néon (b). A droite, spectres inversés correspondants. La direction de polarisation du rayonnement XUV, qui est l'axe de symétrie pour l'inversion d'Abel, est indiquée par la flèche violette. En bas, spectres intégrés angulairement, correspondant aux images inversées.

Il faut souligner à nouveau que les images expérimentales présentées dans la Figure III-17 ont été obtenues en un seul tir laser, c'est à dire avec un seul train d'impulsions attosecondes XUV. Des spectres

de photoélectrons avaient déjà été obtenus en un seul tir, à partir du même type de source harmonique générée par plasma relativiste, par Heissler et al. en 2012 [145]. Dans cette expérience le spectromètre à électrons utilisé était de type bouteille magnétique, c'est à dire sans résolution angulaire. Nos résultats montrent que les distributions angulaires des photoélectrons émis peuvent également être obtenues en un seul tir, à l'aide d'un spectromètre VMI, ce qui ouvre de nouvelles possibilités d'exploration, parmi lesquelles la caractérisation temporelle en un seul tir, telle que discutée dans la section I de ce chapitre.

Enfin l'intégration angulaire des images inversées donne les spectres d'énergie cinétique des photoélectrons montrés sur la Figure III-17 (c) et (d) pour l'argon et le néon respectivement. Dans les deux spectres, nous pouvons remarquer la présence de signal entre les pics correspondant aux harmoniques. Plusieurs origines peuvent y contribuer :

- (i) Le fond généré par la caméra CCD sur les images brutes. Pour minimiser cette contribution, j'ai soustrait avant inversion la valeur du fond mesurée sur l'image dans la partie extérieure au détecteur.
- (ii) La résolution en énergie du spectromètre VMI insuffisante pour résoudre parfaitement les différents pics harmoniques. La résolution relative ($\Delta E/E$ FWHM) estimée pour ces images est de l'ordre de 6%.
- (iii) La contribution de l'émission incohérente du plasma. Cet effet sera discuté dans la section IV.3.

IV.1.3. Fluctuations tir à tir de la source XUV

Un des problèmes auxquels nous avons été confrontés durant cette expérience provient de la fluctuation tir à tir (mais aussi d'un jour à l'autre) de l'intensité de l'impulsion harmonique à caractériser. Ceci est illustré à travers les spectres de photoélectrons générés dans l'argon par cette impulsion XUV, qui sont présentés dans la Figure III-18. Les 10 spectres présentés ont été obtenus au cours de dix tirs successifs, réalisés avec des conditions nominales supposément identiques, aussi bien pour la génération de la source XUV au niveau de la cible, que pour la focalisation du faisceau XUV au centre du VMI, ou pour les paramètres d'enregistrement des images avec le spectromètre VMI. Il est important de mentionner à ce stade que d'un tir laser à l'autre, la cible est décalée verticalement de quelques centaines de microns pour exposer à chaque tir une surface de cible intacte. Ce déplacement étant parallèle au plan de la cible, il ne change pas la position de focalisation du faisceau IR sur la cible où est générée la source harmonique XUV.

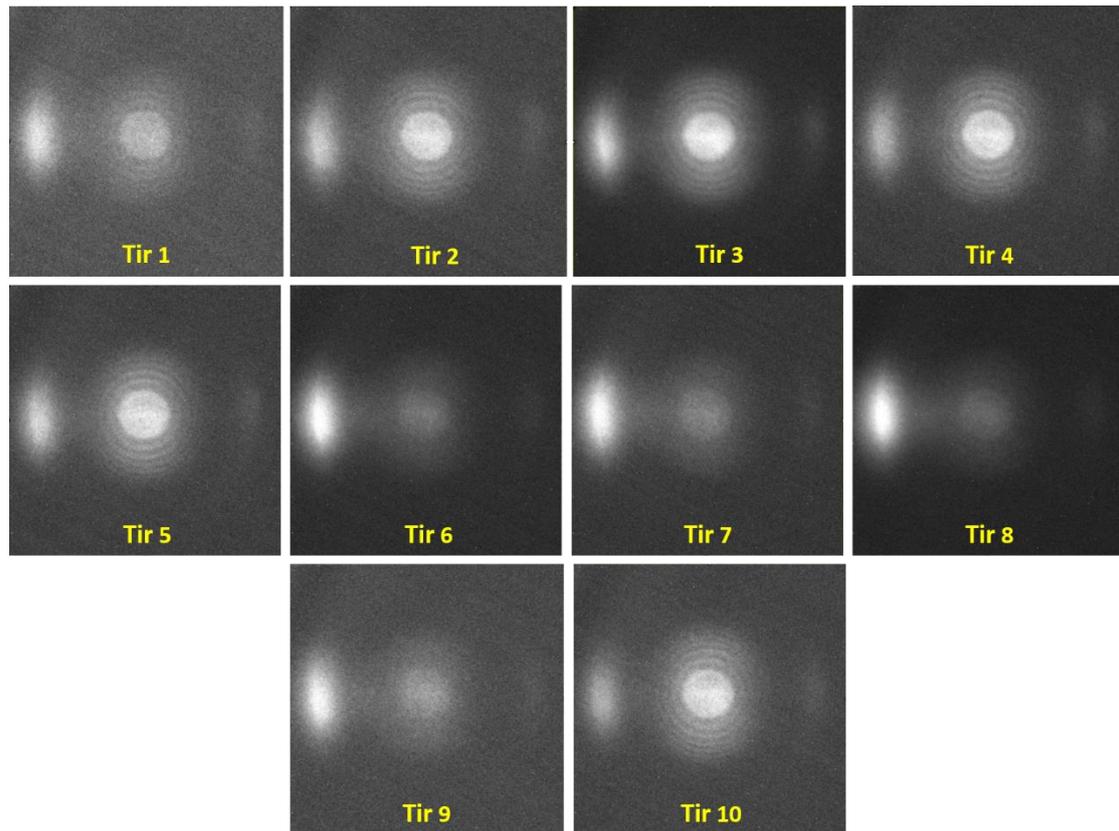


Figure III-18: Spectres photoélectroniques obtenus au cours de tirs successifs, dans les mêmes conditions expérimentales, illustrant les fluctuations tir à tir de l'intensité de la source harmonique d'ordre élevé générée par miroir plasma. $P_{Ar} = 3.6 * 10^{-6}$ mbar, $V_1 = -3kV$, $V_2/V_1 = 0.94$, $h_{aiguille} = 4$ mmm, $V_{MCP} = +1.1kV$, $V_{ph} = +5$ kV.

Qualitativement, nous observons sur la Figure III-18 que l'intensité des pics harmoniques varie d'un tir à l'autre, jusqu'à être totalement absents sur certains tirs (Tirs 6, 7, 8, 9). Quantitativement, pour cette série d'images on peut donner un ordre de grandeur de la variation du signal en mesurant l'intensité contenue dans les pics harmoniques (pour les tirs où ils sont visibles), c'est à dire le signal contenu entre les deux disques limitant la bande où sont observées les harmoniques HH11 à HH16.

Le résultat est présenté sur la Figure III-19 qui montre la variation du signal incluant les pics harmoniques 11 à 16 par rapport à la valeur moyenne de ce signal. Cette valeur moyenne est calculée en excluant les tirs 8 à 11, pour lesquels les pics harmoniques sont absents. On voit que la fluctuation tir à tir est significative, jusqu'à +50% pour le tir #5. La fluctuation en terme de déviation standard est de l'ordre de 30%. Nous avons mesuré des valeurs de fluctuation similaires dans des séries de tirs effectuées d'autres jours. De plus la proportion de tirs « sans harmoniques » pouvait varier d'un jour à l'autre. Ces fluctuations des spectres de photoélectrons sont attribuées à celles de la source harmonique XUV. Les fluctuations de la source harmonique pourraient avoir été renforcées, par rapport à d'autres expériences réalisées par l'équipe de F. Quéré, à cause de la configuration particulière de génération (faisceau principal annulaire) utilisée pour introduire le faisceau d'habillage. En présence de ces fluctuations, il est en tous cas essentiel de pouvoir réaliser les mesures en un seul tir, sans accumulation qui risquerait de masquer l'effet recherché.

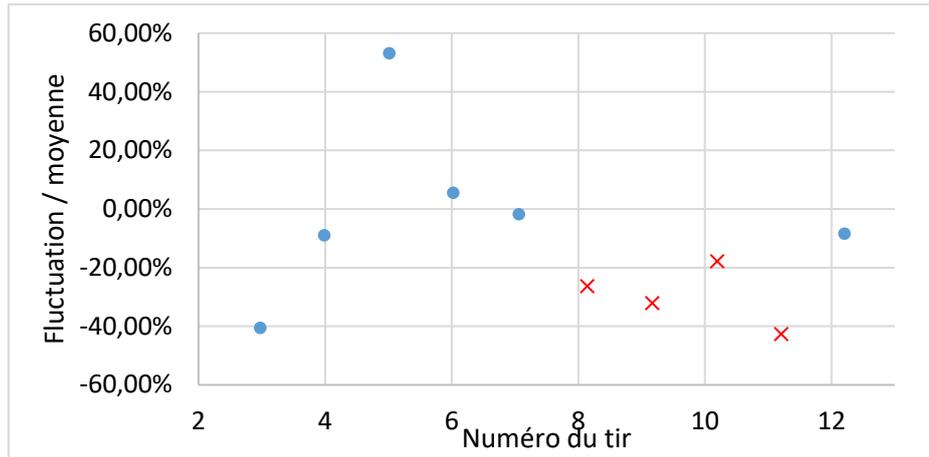


Figure III-19: Variation tir à tir du signal contenant les pics correspondant aux harmoniques 11 à 16, pour les images présentées sur la figure III-18. L'écart est calculé par rapport au signal moyen, en excluant les tirs 8 à 11 pour lesquels les pics harmoniques sont absents.

IV.1.4. Passage d'un MCP à 2 MCP

La Figure III-20, montre deux images brutes du VMI obtenues en utilisant une galette MCP en (a), ou 2 MCP en (b). Qualitativement le spectre obtenu avec 2 MCPs apparaît plus granuleux, notamment à cause de la présence d'un signal « continu » qui est visible jusqu'au bord du détecteur et que nous attribuons à l'émission thermique du plasma créé lors de la génération des harmoniques (voir la discussion dans la section IV-3). Ce signal est renforcé, comme les autres composantes de l'image, par le passage de 1 MCP ($V_{MCP} = 1100$ V) à 2 MCPs ($V_{MCP} = 1720$ V). Quantitativement, en mesurant le signal moyen à la position de ces différentes composantes (pics harmoniques, tâche centrale, tâches latérales) nous évaluons que le signal enregistré par la CCD a été augmenté d'un facteur environ 12. C'est dans ces conditions qu'ont été effectuées les mesures en présence du faisceau d'habillage, que nous allons maintenant présenter.

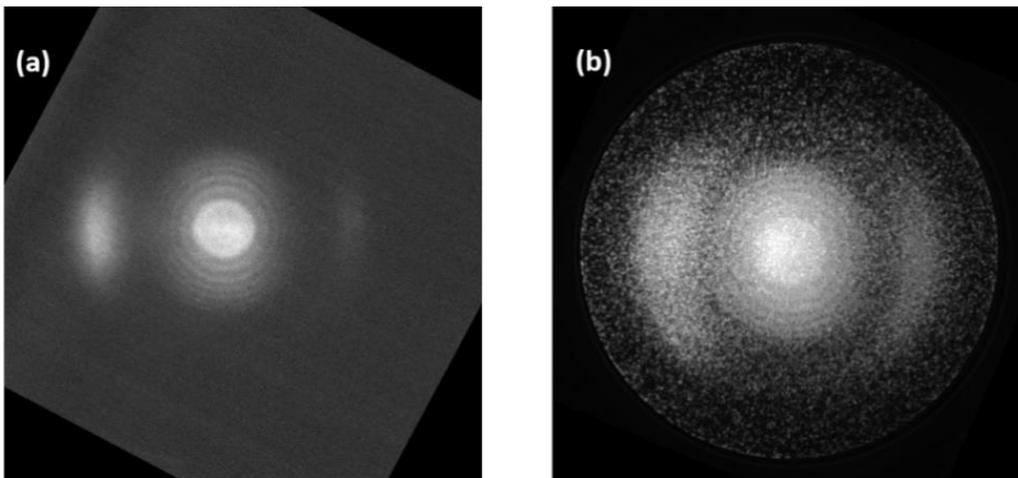


Figure III-20: spectres des photoélectrons dans l'argon pris avec (a) une seule MCP et (b) deux MCP.

IV.2. Photoionisation en présence du champ d'habillage IR

Finalement, le faisceau d'habillage IR est focalisé, simultanément avec l'impulsion XUV, dans le gaz cible à l'intérieur du VMI. Pour tenter d'observer l'effet d'asymétrie angulaire prévu par les simulations

numériques présentées dans la section I, nous avons fait varier le retard relatif entre les deux impulsions IR et XUV à l'intérieur d'une période IR ($T = 2.67$ fs), en jouant sur l'inclinaison de la lame de CaF₂. Au cours de l'expérience nous avons réussi à réaliser 3 scans temporels, à des intensités du laser d'habillage différentes ($I_{IR} = 9, 14$ et 20 TW.cm^{-2}). L'ensemble des images obtenues dans ces 3 scans a été analysée, à l'issue de la campagne expérimentale. Dans ce manuscrit je présente les résultats du scan réalisé avec l'intensité d'habillage IR la plus élevée, de l'ordre de 20 TW.cm^{-2} , c'est à dire ~ 5 fois plus forte que l'intensité utilisée pour les simulations numériques présentées sur les Figure III-2 et Figure III-3. Ces conditions devraient en principe induire une modification claire du spectre et de la distribution angulaire des photoélectrons.

La Figure III-21 montre les images VMI brutes obtenues sans habillage (a), et pour 5 retards différents en présence d'habillage IR : $\tau_{IR} = 0, 0.2, 0.4,$ et $0.8 T_{IR}$ (b-f). Chaque image de spectre brut est le résultat d'une moyenne sur 3 tirs. Pour mettre en évidence plus facilement l'effet de l'habillage IR sur le spectre, et plus particulièrement la présence d'une asymétrie, nous avons utilisé la méthode d'intégration angulaire représentée sur la Figure III-3 dans la section I consacrée aux simulations numériques. A partir de la tranche centrale du spectre obtenue après inversion d'Abel, nous effectuons une intégration angulaire sur la partie haute et la partie basse de l'image. Les panneaux de droite montrent ainsi les spectres obtenus après intégration angulaire de la demi-image supérieure (en bleu) et inférieure (en rouge).

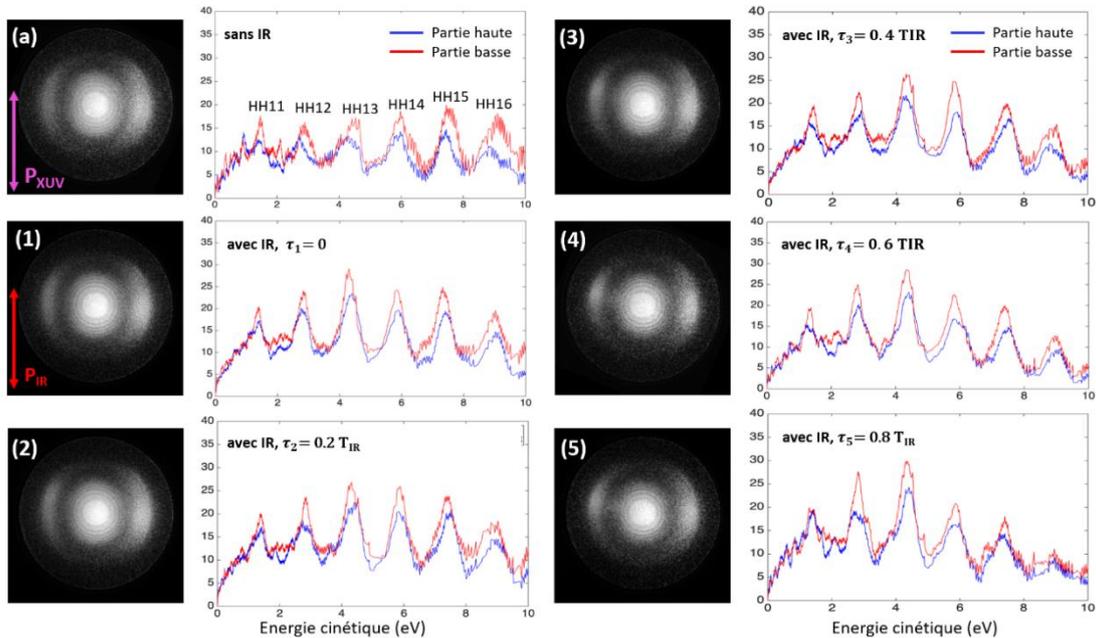


Figure III-21: Images des spectres bruts détectés par le VMI : (a) sans habillage, (1-5) avec un champ d'habillage d'intensité de 20 TW.cm^{-2} pour différents retards XUV/IR. Après inversion, chaque demi-image (partie haute et partie basse) est moyennée angulairement, ce qui donne les spectres bleu et rouge en fonction de l'énergie cinétique des photoélectrons. $V_1 = -2.5 \text{ kV}$; haiguille = 4mm ; $P_{Ar} \sim 6.10^{-6} \text{ mbar}$.

Dans la Figure III-21 (a), comme aucune impulsion laser d'habillage n'est utilisée, aucune asymétrie n'est attendue entre le spectre de la partie haute et celui de la partie basse. La légère différence de signal entre les deux spectres provient probablement d'un faible décalage latéral du jet de gaz par rapport au

centre du VMI. Aucune asymétrie haut-bas n'est visible non plus dans les spectres correspondant aux tirs avec habillage, pour aucun des retards considérés. Comme pour le cas sans habillage, la partie inférieure du spectre (en rouge) est toujours légèrement plus intense que la partie supérieure (en bleu).

De façon plus surprenante, nous n'observons pas non plus de décalage des pics sur les spectres avec habillage, alors que le déplacement pondéromoteur $\Delta E_{\text{pondéromoteur}}$ attendu pour une intensité du champ d'habillage IR de $20 \text{ TW}\cdot\text{cm}^{-2}$ à 800 nm est de $1,2 \text{ eV}$. Un tel décalage est pourtant significatif par rapport à la séparation entre deux harmoniques successives ($\Delta E=1,55 \text{ eV}$). De même, l'analyse des données expérimentales enregistrées pour les deux autres intensités d'habillage ($I = 9$ et $14 \text{ TW}\cdot\text{cm}^{-2}$) n'a révélé aucun effet visible du champ laser IR sur les spectres de photoélectrons.

Dans la section suivante, je passe en revue les raisons potentielles qui pourraient expliquer l'absence de tout impact observable du champ d'habillage dans les spectres de photoélectrons obtenus dans notre expérience.

V. Discussion des résultats expérimentaux

Comme précédemment souligné, la technique de photoionisation habillée par laser que nous avons essayé d'appliquer aux harmoniques plasma exige de remplir trois conditions essentielles : (i) les impulsions XUV et d'habillage IR doivent être synchronisées temporellement (précision $\sim 10 \text{ fs}$) ; (ii) les tâches focales des faisceaux XUV et d'habillage doivent être superposées spatialement dans la région d'interaction VMI (précision $\sim 10 \mu\text{m}$) ; (iii) l'intensité de l'impulsion d'habillage doit être suffisante ($> 10^{11} \text{ W}/\text{cm}^2$) dans la zone de recouvrement.

V.1. Analyse critique des conditions essentielles pour les impulsions XUV et IR

Concernant la condition (iii), on a vu que l'énergie de l'impulsion d'habillage, mesurée avec un calorimètre placé à la sortie du spectromètre VMI, était plus que suffisante pour induire un impact visible sur les spectres. Cela a été confirmé par l'observation de l'ionisation au-dessus du seuil (ATI) décrite dans la section II-3.2. La condition de superposition spatiale (ii) est en principe assurée par notre montage à faisceaux co-propagatifs. Même si nous n'avons pas pu vérifier directement la position de la tâche focale XUV avec un système d'imagerie à haute résolution, les images que nous avons obtenues par le système d'imagerie IR (Figure III-11), ainsi que par le VMI en mode imagerie spatiale des ions (Figure III-12), indiquent que la condition de superposition spatiale était satisfaite.

La condition (i) de synchronisation temporelle est de fait la plus critique à atteindre et à maintenir. Des interférences entre les faisceaux IR principal et d'habillage ont été observées (Figure III-11) en sortie du VMI pour un délai nul. Cela ne garantit cependant pas que l'impulsion XUV et l'impulsion IR d'habillage soient synchronisées sur tout leur parcours. Si les trajets de ces deux impulsions diffèrent d'une dizaine de microns, cela change leur retard relatif de quelques dizaines de femtosecondes ($1 \mu\text{m}$ correspond à 3 fs à la vitesse de la lumière). Une telle désynchronisation serait suffisante pour perdre le recouvrement temporel, et ainsi empêcher tout effet de modulation du spectre des photoélectrons par l'impulsion d'habillage.

De plus, les distorsions introduites par les optiques de focalisation peuvent également provoquer des

variations transverses du retard relatif entre l'impulsion XUV et celle d'habillage. En effet, étant donné la grande divergence des harmoniques générées par miroir plasma (typiquement $\sim 5^\circ$ pour les harmoniques ROM) [146], le faisceau XUV illuminait presque entièrement le miroir elliptique à incidence rasante dans notre expérience. Dans ces conditions, un léger désalignement du miroir, ou la présence de défauts de surface, pourrait provoquer un étirement spatio-temporel des impulsions attosecondes et femtosecondes après réflexion [147][148]. La variation du retard relatif XUV-IR dans la direction transverse entraîne un « mélange de retards » dans la zone d'interaction. Ce mélange conduirait à masquer tout effet d'asymétrie angulaire ainsi que sa dépendance avec le retard, rendant impossible l'observation du spectrogramme. Dans la section suivante je présente une étude destinée à étudier plus quantitativement la présence de distorsions optiques dans notre expérience.

V.2. Distorsions du chemin optique et synchronisation temporelle

Pour évaluer la présence de distorsions du chemin optique dans notre expérience, il faut travailler à pleine ouverture de l'éclairement du miroir elliptique. Pour cela, l'iris ($\Phi = 50$ mm) a été ouvert presque complètement et le filtre d'aluminium retiré (éléments 6 et 7 sur la Figure III-7) afin d'éclairer le miroir elliptique avec le faisceau laser IR principal. La Figure III-22 montre la tâche focale obtenue au centre du VMI, telle qu'elle est détectée par notre système d'imagerie IR placé derrière le hublot de sortie (élément 11 sur la Figure III-7). Le miroir elliptique étant utilisé dans une configuration 2f-2f, avec un grandissement de 1, cela devrait conduire à une tâche focale limitée par la diffraction, dans le cas d'un alignement parfait. Cependant, on peut voir sur la Figure III-22 que la tâche focale présente un léger rebond sur la partie inférieure, suggérant la présence d'aberration résiduelle de coma. Ce type d'aberration pourrait s'expliquer par un grandissement effectif légèrement différent de 1.

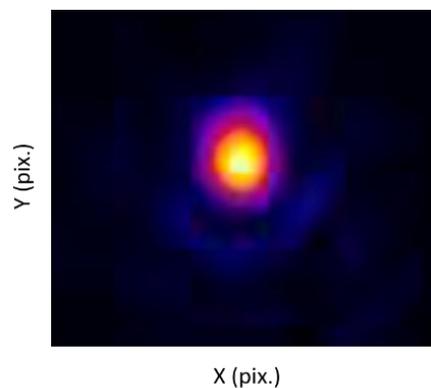


Figure III-22: Tâche focale expérimentale du faisceau IR principal focalisée dans le VMI via le miroir elliptique.

Pour étudier cette hypothèse, des simulations numériques ont été effectuées à l'aide d'un code de tracé de rayons développé par C. Bourassin-Bouchet à l'IOGS [148]. Ce code permet non seulement de reconstruire la forme de la tâche focale pour une géométrie donnée, mais aussi d'y ajouter l'information temporelle, en convertissant la longueur du chemin optique parcouru par chaque rayon en retard temporel des rayons les uns par rapport aux autres.

La géométrie expérimentale, utilisée pour les simulations, est représentée sur la Figure III-23. Le miroir elliptique (200 mm \times 60 mm), de longueur focale $f = 500$ mm, est illuminé sur toute sa surface sous angle rasant de $11,5^\circ$. La source, placée à une distance (frontale) $2f = 1$ m du centre du miroir, est imagée

sur le détecteur placé à une distance (tirage) $2f = 1\text{ m}$.

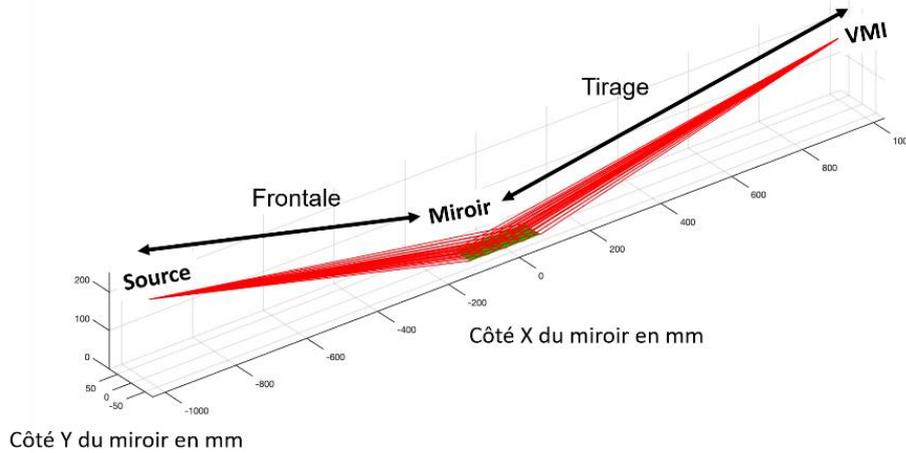


Figure III-23: Géométrie utilisée pour le code de tracés de rayons. Le miroir elliptique est placé à la même distance entre la source et le point focal. Les rayons réfléchis sur le miroir se recombinaient au point focal.

Dans ces conditions de parfait alignement, une tâche focale limitée par la diffraction est obtenue comme celle montrée dans la Figure III-24 (a). Les retards relatifs accumulés par les rayons optiques en fonction de leur point de réflexion sur le miroir sont représentés en fausses couleurs sur la partie (b) de la figure. En principe, dans les conditions de stigmatisme parfait, aucun retard ne se produit entre les rayons. En pratique, on observe un faible bruit numérique produisant un léger retard de l'ordre de 10^{-6} as.

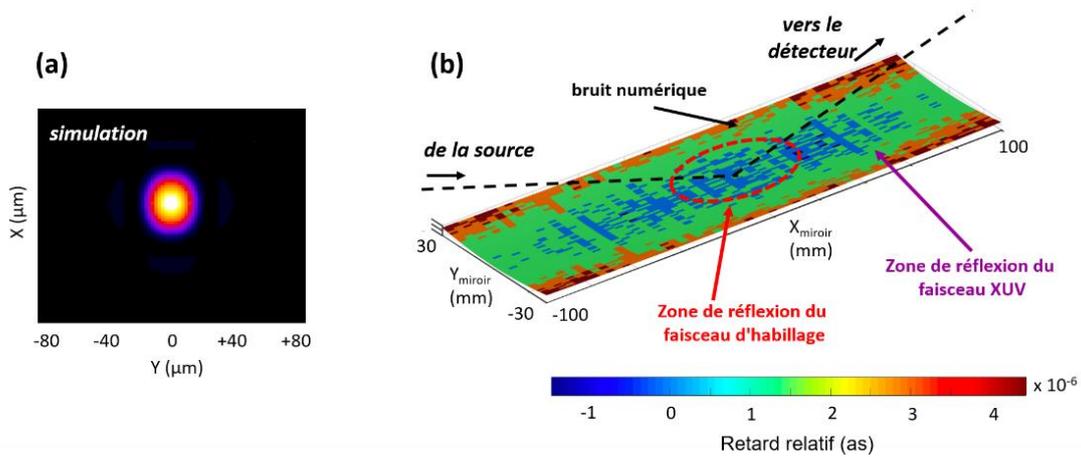


Figure III-24: (a) Point focal simulé pour le faisceau IR éclairant le miroir elliptique en configuration nominale $2f-2f$. (b) Retards relatifs accumulés par les rayons optiques en fonction de leur point de réflexion sur le miroir. La zone pointillée en rouge montre la zone de réflexion du faisceau d'habillage lorsque le filtre Al et la limite d'iris sont en place.

La Figure III-25 (a) montre que les simulations reproduisent bien le rebond observé dans la tâche focale expérimentale (image du haut) lorsqu'on diminue le grandissement jusqu'à 0,98. On voit sur la Figure III-25 (b) que les profils verticaux des deux tâches, simulée et expérimentale, coïncident parfaitement. Ce grandissement de 0,98 correspond à une frontale de 1010 mm et un tirage de 990 mm, soit à des écarts des distances source-miroir et miroir-foyer de 1 cm sur 1 m, écarts tout à fait compatibles avec la précision de notre alignement.

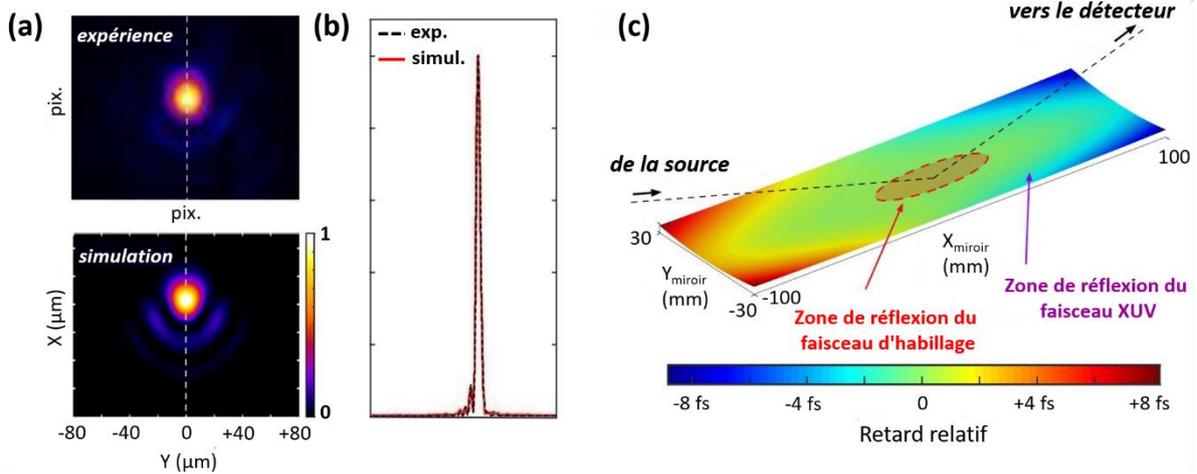


Figure III-25: (a) Point focal mesuré (en haut) et simulé (en bas) pour le faisceau IR éclairant le miroir elliptique. L'image expérimentale est bien reproduite en supposant un grossissement de 0,98 au lieu de 1. (b) Profils le long de la ligne pointillée en (a). (c) Retards relatifs accumulés par les rayons optiques en fonction de leur point de réflexion sur le miroir.

Bien qu'apparemment négligeables, les aberrations résiduelles induites par ce petit désalignement entraînent des retards non-négligeables à l'échelle de la femtoseconde, comme le montre la Figure III-25 (c). Dans la zone délimitée en gris représentant la zone de réflexion du faisceau d'habillage, l'intervalle de retard est limitée à ± 1 fs. Par contre, on voit que le retard accumulé peut atteindre ± 8 fs aux bords du miroir par rapport à son centre. Ces retards se retrouvent « mélangés » dans la tâche focale XUV au niveau de la zone d'interaction où se produit la photoionisation du gaz cible et l'habillage par le faisceau IR. De sorte que plusieurs retards correspondant à des asymétries angulaires différentes contribuent au spectre enregistré par le spectromètre VMI, conduisant en moyenne à une perte de l'asymétrie.

Le retard de ± 8 fs obtenu dans nos simulations constitue une valeur minimum idéale, car le calcul ne tient pas compte des défauts de surface pourtant présents à la fabrication du miroir. Ces défauts peuvent augmenter encore la gamme de retard, sans nécessairement avoir un fort impact sur l'aspect de la tâche focale IR. De plus, nous avons ici considéré l'une des plus « belles » tâches focales IR enregistrées. En pratique, nous avons observé dans notre expérience que la tâche focale IR pouvait varier significativement d'un tir à l'autre, de même que le profil et le pointé du faisceau XUV (voir section III-1.3).

Bien qu'étant indirecte, puisque les simulations ont été réalisées à la longueur d'onde de 800 nm, notre étude suggère que les distorsions du chemin optique présentes dans notre expérience étaient suffisamment fortes pour dégrader la synchronisation temporelle entre l'impulsion XUV et celle d'habillage IR. Par conséquent, elles pourraient expliquer que nous n'avons pas observé de déplacement pondéromoteur sur nos spectres. Ces effets de distorsion optique devront donc être pris en compte soigneusement dans les futures expériences, par exemple en combinant des procédures d'alignement optique minutieuses à une imagerie au foyer du faisceau XUV ou à la caractérisation de son front d'onde, pour éliminer les aberrations résiduelles.

Bien que moins critique que la condition de synchronisation temporelle, la présence d'émission

thermique du plasma, que je vais discuter dans la partie suivante, pourrait également avoir joué un rôle préjudiciable dans l'expérience. Cette émission plasma contribue probablement également à l'écart que nous avons observé entre les valeurs mesurées sur nos spectres du paramètre d'asymétrie β , et les valeurs tabulées de la littérature.

V.3. Emission thermique du plasma

L'impulsion principale, focalisée sur la cible pour générer les harmoniques XUV, produit également un plasma chaud à la surface de la cible, qui émet un rayonnement thermique dans le domaine XUV et X, sur une durée beaucoup plus longue que l'impulsion laser. Si elle n'est pas soigneusement filtrée spectralement en amont du VMI, cette émission thermique peut également perturber notre mesure en photoionisant le gaz cible et en produisant un fond parasite dans nos spectres.

Au cours de notre expérience, nous avons cherché à identifier l'existence d'un tel fond sur nos spectres. Pour cela, l'émission d'harmoniques plasma a été intentionnellement supprimée, en modifiant légèrement le retard entre la pré-impulsion et l'impulsion principale. Rappelons que ce retard contrôle la longueur de gradient de densité du plasma au moment de l'arrivée de l'impulsion principale, et que c'est un paramètre très sensible pour la génération d'harmoniques. Ce léger changement de la longueur de gradient n'influence que très peu les caractéristiques du plasma produit par l'impulsion principale, et donc le rayonnement thermique qu'il émet.

La Figure III-26 montre les spectres de photoélectrons enregistrés au cours de deux tirs successifs, dans les conditions qui optimisent l'émission du peigne d'harmoniques en (a), et dans les conditions qui les suppriment en (b). On voit que même en l'absence de rayonnement harmonique on observe un signal de photoélectrons qui s'étend au-delà de la gamme d'énergie couverte par les harmoniques observées dans le spectre (a). Nous attribuons ce fond à l'ionisation par l'émission thermique du plasma.

Bien qu'assez peu documentée dans les articles consacrés à la génération d'harmoniques dans les plasmas de surface, la présence d'émission plasma a déjà été signalée par certains auteurs, comme par exemple dans les spectres d'harmoniques de la Figure III-27, tirée de la référence [149] par F. Quéré et al. Dans cette figure on voit les spectres d'harmoniques d'ordres successifs générés sur des cibles composées d'éléments de plus en plus lourds. Les raies spectrales issues de l'émission thermique des plasmas correspondants y sont repérées par un astérisque.

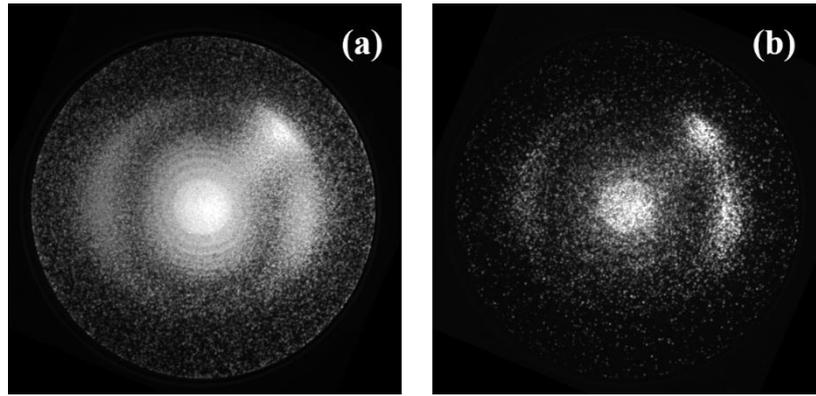


Figure III-26 : Spectres de photoélectrons émis par un gaz d'argon pris avec les mêmes paramètres du VMI : (a) dans les conditions optimales pour générer les harmoniques d'ordre élevé ; (b) hors des conditions optimales, sans émission d'harmoniques. Un fond continu est visible, attribué à l'émission thermique du plasma.

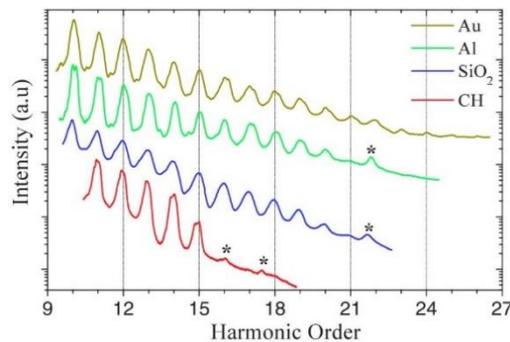


Figure III-27: Reproduction de la figure 2 de la référence [149]. Mise en évidence de raies issues de l'émission thermique du plasma (symbole *) dans les spectres d'harmoniques générés sur différentes cibles solides à une intensité laser $I=3 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2}$.

Par ailleurs, dans un autre article [150], par Waldecker et al., l'émission thermique du plasma est également mentionnée comme responsable du halo observé autour de la tâche focale produite par la focalisation des harmoniques XUV, comme le montre la Figure III-28 tirée de cet article. Dans l'image de droite, en remplaçant le filtre d'aluminium par un filtre d'indium, les auteurs ont significativement réduit la présence de l'émission plasma. On voit donc que le filtrage spectral de l'émission XUV est particulièrement important, nous discuterons cet aspect en détail dans la section IV.3.2.

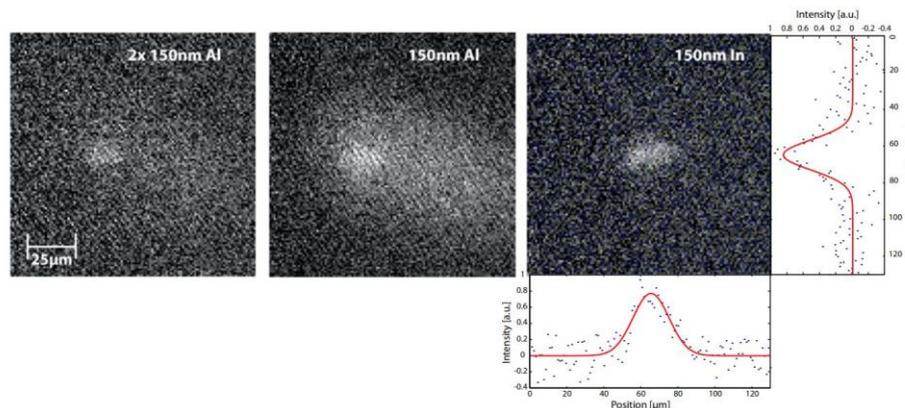


Figure III-28 : Reproduction de la figure 4 de la référence [150]. Images de la tâche focale XUV produite par la focalisation des harmoniques plasma traversant différents filtres. Avec le filtre de 150 nm d'Al, la petite tâche

focale est entourée d'un halo, attribué à l'émission thermique du plasma. Ce halo est supprimé par l'utilisation d'un filtre de 150 nm d'In.

V.3.1. Emission thermique du plasma : simulation numérique

Pour aller plus loin dans l'analyse de la contribution de l'émission plasma dans nos expériences, nous avons pu nous appuyer sur le résultat d'une simulation numérique effectuée à ma demande par Olivier Peyrusse du laboratoire LP3 (Université Aix-Marseille). Cette simulation est effectuée en trois temps. D'abord l'évolution hydrodynamique du plasma créé dans des conditions proches de nos conditions expérimentales est calculée par un code hydrodynamique eulérien monodimensionnel [151].

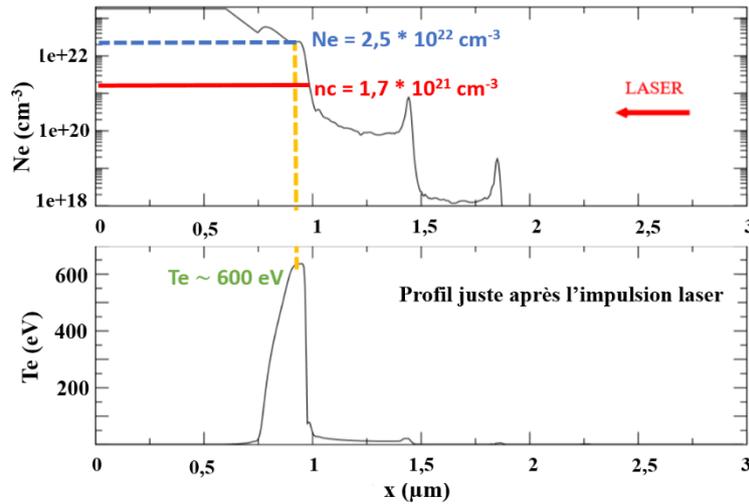


Figure III-29: Profils de densité électronique N_e (en haut) et de température électronique T_e (en bas) du plasma en fonction de la distance à la cible juste après l'impulsion laser. La direction de propagation de l'impulsion IR représentée par la flèche rouge à droite.

La Figure III-29 montre le profil spatial de densité électronique (N_e) et de la température (T_e) du plasma, juste après l'interaction avec l'impulsion principale. Le calcul a été réalisé pour une cible d'aluminium ($Z=13$, proche du silicium), irradiée par une impulsion intense ($I = 2.10^{19} \text{ W.cm}^{-2}$) de durée 25 fs et de longueur d'onde 800 nm. L'effet de la préimpulsion n'est pas calculé directement mais il est pris en compte en introduisant un gradient raide de longueur $L_g = 0.1 \mu\text{m}$ dans le profil de densité initial. Une partie du laser incident, qui vient de la droite (flèche rouge), est absorbée à la densité critique $n_c = 1,7 * 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ et juste au-dessus, provoquant un chauffage important du plasma, avec une température électronique maximum de l'ordre de 600 eV. Notons que les pics de densité qui sont observés à plus grande distance de la cible sont liés à la force pondéromotrice. Cette force, proportionnelle au carré du champ laser, augmente aux endroits où la superposition du faisceau incident et du faisceau réfléchi donne un champ maximum, et elle expulse les électrons des zones de plus forte intensité.

Dans un deuxième temps, les valeurs $N_e = 2,5 * 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ et $T_e = 600 \text{ eV}$ sont utilisées comme données d'entrée d'un modèle collisionnel-radiatif qui calcule l'état d'ionisation et la population des états excités des différents états de charge du silicium, ainsi que le spectre d'émission correspondant à ces conditions. Ce spectre est présenté sur la Figure III-30.

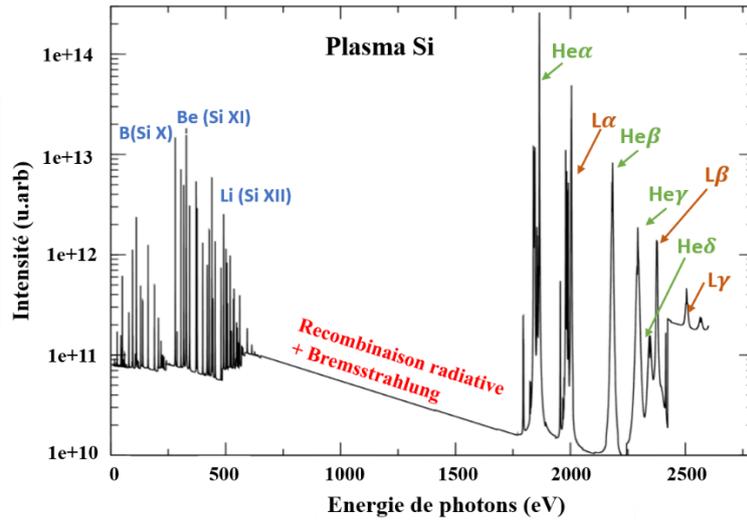


Figure III-30: Spectre d'émission dans la gamme d'énergie des photons de [0-2500 eV] calculé pour un plasma de silice à une densité $N_e = 2.5 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ et $T_e = 600 \text{ eV}$.

Le spectre, qui s'étend jusqu'à une énergie de photons de 2500 eV, est composé de deux groupes de raies spectrales, correspondant à des transitions entre états liés, et d'une partie continue entre 700 et 1700 eV qui provient de la recombinaison radiative et du rayonnement Bremsstrahlung. L'identification des différentes raies ou groupes de raies a été effectuée à l'aide la base de données du NIST [152]. Les raies appartiennent à différents degrés d'ionisation du silicium, de Si^{12+} à Si^{9+} . Dans la gamme d'énergie jusqu'à $\sim 600 \text{ eV}$, les raies émises appartiennent au séries iso-électroniques du bore (Si^{9+}), du béryllium (Si^{10+}) et du lithium (Si^{11+}). On peut s'attendre à ce que ces ions émettent non seulement au maximum de la température du plasma (i.e. pendant, ou juste après l'impulsion laser principale), mais aussi pendant la phase de refroidissement et de recombinaison du plasma, donc sur un temps beaucoup plus long. Enfin au-delà de $\sim 1750 \text{ eV}$, on observe les raies du silicium héliumoïde $\text{He}(\alpha\beta\gamma\delta)$ et la série hydrogénoïde de Lyman $L(\alpha\beta\gamma)$. On peut s'attendre à ce que ces raies, appartenant à des degrés d'ionisation élevés, soient principalement émises au maximum de température électronique, pendant ou juste après l'impulsion principale. Pour terminer, il faut noter que les simulations réalisées par O. Peyrusse n'incluent pas l'effet des électrons suprathermiques, responsables d'une émission $K\alpha$, qui n'est donc pas indiquée sur le spectre de la Figure III-30.

V.3.2. Transmission de la ligne de transport des photons XUV vers le VMI

Le spectre présenté dans la Figure III-30, confirme que l'émission des harmoniques d'ordre élevé entre 17 et 25 eV (H11-H16) est accompagnée d'une émission thermique du plasma créé sur la cible, et que cette émission s'étend sur une gamme spectrale plus large, allant jusqu'à plusieurs keV. Ces photons, s'ils sont également focalisés dans le VMI, vont pouvoir contribuer au signal des photoélectrons détectés. Pour évaluer plus précisément leur éventuel impact, il est donc nécessaire d'étudier la transmission spectrale globale de la ligne de lumière XUV que nous avons utilisée, incluant la réflexion par les deux miroirs sous incidence rasante et la transmission du filtre d'aluminium.

Pour calculer la transmission globale, nous nous sommes appuyés sur les valeurs tabulées de la base de données du CXRO [153], complétées par les données de l'IOGS pour la réflectivité des miroirs au-

dessous de 30 eV. Rappelons que les miroirs en SiO₂ sont revêtus d'une couche d'or d'épaisseur 40 nm, et éclairés sous incidence rasante de 11,5°. L'épaisseur du filtre d'aluminium était de 100 nm. La Figure III-31 montre, en échelle logarithmique, la réflectivité R du miroir (courbe bleue), la transmission T du filtre (courbe rouge) et la transmission globale T_g = T.R² (courbe noire), dans la gamme spectrale entre 0 et 2500 eV correspondant au spectre de la Figure III-31.

On voit sur la Figure III-31 que les photons d'énergie supérieure à ~ 200 eV sont efficacement atténués par la succession des deux miroirs et du filtre, la transmission globale étant au-dessous de 10⁻³. En particulier, la transmission dans la gamme spectrale 1700-2500 eV, où sont situées les raies intenses hydrogéoïdes et héliumoïdes du silicium, est négligeable (inférieure à 10⁻⁸). En zoomant sur la gamme 0-500 eV (voir Figure III-32), où sont situées les raies émises par les ions Si⁹⁺, Si¹⁰⁺ et Si¹¹⁺, on peut voir que le filtrage n'est plus aussi efficace. En particulier, au-delà de la gamme [17-25 eV] où sont émises les harmoniques H11 à H16 observées dans nos spectres, la transmission de notre ligne XUV reste relativement élevée. Une partie de l'émission plasma est donc transmise au spectromètre VMI, où elle peut contribuer significativement au signal photoélectronique.

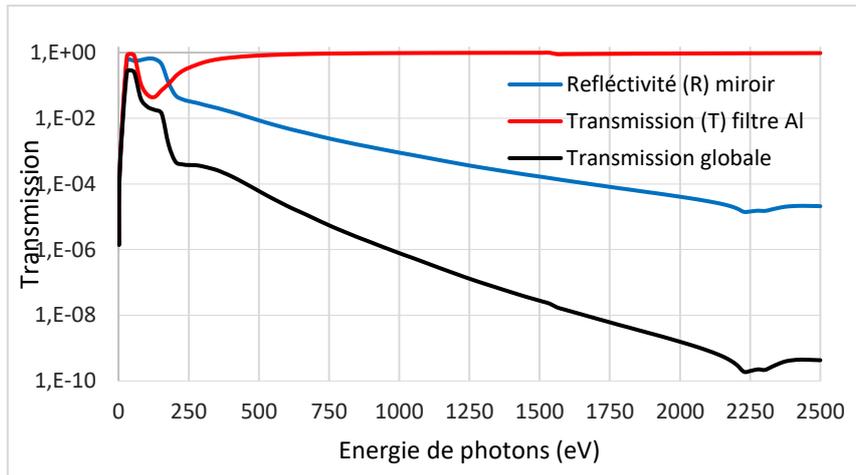


Figure III-31: Transmission globale (noir) de la ligne de transport du faisceau XUV, incluant la réflectivité (bleu) des deux miroirs elliptique et plan, et la transmission (rouge) du filtre Al (échelle logarithmique).

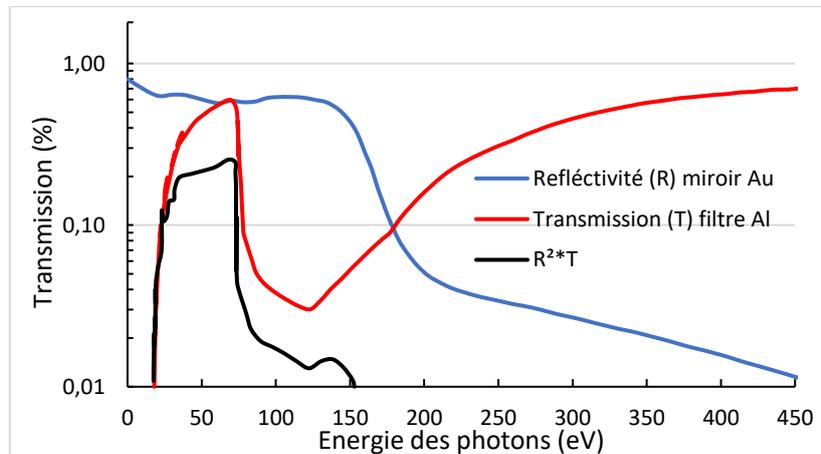


Figure III-32: Détail de la figure III-31 dans la région E= 0-500 eV. La gamme [17-35eV] contenant les harmoniques H11 à H16 est indiquée par la barre de couleur mauve.

Finalement l'étude semi-quantitative que nous venons de présenter nous permet de conclure qu'au-dessous de 200 eV, les photons émis par le plasma, non seulement au moment de l'interaction avec l'impulsion laser mais aussi dans sa phase de recombinaison, participent à l'ionisation du jet de gaz dans le VMI.

Partant d'un jet d'atomes d'argon ($Z=18$, $[\text{Ne}]3s^2 3p^6$), il est possible à ces énergies de photon d'ioniser cet atome en couche 3p ($I_p = 15,76$ eV) mais aussi 3s ($I_p = 29$ eV), ainsi que les satellites d'excitation/ionisation en couche 3p qui convergent vers le seuil de double ionisation Ar^+ ($I_p = 27,6$ eV). Dans ce cas deux électrons sont émis simultanément et partagent d'une façon continue l'excès d'énergie. Le processus le plus probable est toutefois la photoionisation directe d'un électron 3p, qui est de plus forte section efficace. L'intégration de tous ces photoélectrons, produits sur le temps long de l'évolution du plasma, contribue à un bruit de fond inhomogène, qui nous paraît expliquer celui montré sur la Figure III-26 (b). Son effet principal est de diminuer le contraste du signal détecté au niveau des pics harmoniques. Dans de futures expériences, une attention particulière devra donc être apportée à la conception de la ligne de lumière XUV pour filtrer au mieux les photons de haute énergie.

VI. Conclusion

En conclusion, j'ai présenté ce que nous pensons être la première tentative de mise en œuvre expérimentale de la méthode de photoionisation habillée par laser pour la caractérisation de la structure temporelle des harmoniques d'ordre élevé générées à partir du miroir plasma à l'échelle de l'attoseconde. Les simulations numériques que nous avons présentées au début du chapitre montrent que cette méthode a un grand potentiel par le fait qu'elle pourrait être étendue à une caractérisation en un seul tir, en exploitant les informations contenues dans la distribution angulaire des photoélectrons, dans laquelle est encodée la phase spectrale des impulsions XUV. Le but de la première expérience que nous avons réalisée était de mettre en évidence l'asymétrie angulaire induite par le champ d'habillage IR dans les spectres de photoélectrons ionisés par les harmoniques XUV, ainsi que sa dépendance en fonction du retard XUV-IR, telles que prédites par les simulations numériques.

Nous avons pu démontrer avec succès que des spectres de photoélectrons résolus angulairement de bonne qualité pouvaient être enregistrés en un seul tir avec notre spectromètre VMI, pour la première fois avec une source d'harmoniques générées par plasma de surface. La distribution angulaire que nous avons mesurée, à travers le paramètre d'asymétrie β diffère d'un facteur ~ 2 par rapport aux valeurs tabulées, aussi bien dans l'argon que dans le néon. La raison de cette différence n'est à ce jour pas complètement comprise. Nous avons proposé qu'elle pourrait être due, au moins en partie, à la contribution de l'émission thermique et incohérente (non polarisée) du plasma.

Cependant, malgré un montage expérimental spécifiquement conçu pour assurer la superposition précise, spatiale et temporelle, des impulsions XUV et IR au point de mesure dans le spectromètre VMI, l'influence de l'impulsion laser d'habillage n'a pu être observée dans les spectres de photoélectrons.

Dans la dernière partie de ce chapitre, j'ai discuté en détail les deux points principaux qui nous paraissent avoir pu empêcher l'observation de l'effet d'habillage sur les spectres de photoélectrons : d'une part, (i) l'effet des aberrations résiduelles dans la focalisation du faisceau XUV, et d'autre part, (ii) la

contribution au spectre des photoélectrons du rayonnement thermique du plasma généré sur la cible, insuffisamment filtré en amont du spectromètre VMI. Il est regrettable qu'une seconde campagne de mesures tirant parti de ces enseignements n'ait pu être planifiée pendant ma thèse, mais la mise en évidence de ces points critiques pourra être utile à la communauté pour de futures expériences.

Notre analyse de ces points critiques nous permet de suggérer plusieurs améliorations expérimentales pour ces futures expériences :

- La contribution de l'émission thermique du plasma de forte énergie est difficile à éliminer complètement, mais elle devra être d'une part évaluée soigneusement, et d'autre part réduite au maximum. Pour évaluer et contrôler sa contribution relative au rayonnement focalisé dans la zone d'interaction, il faudrait mettre en place un système d'imagerie de la tâche focale directement dans le domaine XUV. Un tel système serait inséré en amont du spectromètre VMI et translatable, de façon similaire au système que nous avons utilisé sur l'installation LASERIX et qui sera décrit dans le prochain chapitre. Pour réduire la contribution de l'émission plasma on pourrait utiliser un filtre de germanium, qui possède une fenêtre de transmission entre 20 et 35 eV, mieux adaptée que le filtre d'aluminium.
- Le miroir elliptique utilisé dans ces expériences a déjà permis d'améliorer considérablement la qualité de la tâche focale XUV dans la zone d'interaction, par rapport à un miroir torique. On a vu toutefois que les conditions pour observer les effets d'asymétrie angulaire induits par le faisceau d'habillage sont particulièrement drastiques. Une méthode particulièrement sensible pour contrôler finement la qualité de la focalisation XUV serait d'utiliser un senseur de front d'onde de type Shack-Hartmann, tel qu'utilisé sur les lignes de lumière du LEL de Hambourg [154].

Chapitre IV

Vers la caractérisation temporelle du laser XUV injecté par la technique de photoionisation habillée par laser.

I. Introduction

Dans ce chapitre, je présente les résultats d'une expérience réalisée sur l'installation LASERIX au IJC-Lab, Orsay, dans laquelle nous avons mis en œuvre l'habillage par une impulsion laser infrarouge de la source laser XUV fonctionnant en mode injecté. L'objectif de cette expérience était de faire avec ce type de source une première démonstration de photoionisation habillée par laser IR dans le régime sidebands. Elle devait constituer une étape préliminaire vers la mise en œuvre, beaucoup plus complexe, d'un habillage par une impulsion THz dans le régime streaking. En effet comme discuté au chapitre I, la technique de THz streaking pourrait permettre, en principe, de remonter au profil temporel de l'impulsion XUV en un seul tir, avec une résolution femtoseconde.

Dans le régime sidebands considéré ici, la résolution temporelle de l'impulsion XUV est obtenue par corrélation croisée avec l'impulsion laser d'habillage, en faisant varier le retard entre les deux impulsions. L'intensité des sidebands est maximale lorsque les deux impulsions XUV et IR sont synchrones et elle diminue de part et d'autre de ce recouvrement temporel optimal. La résolution temporelle qu'on peut atteindre par cette méthode dépend notamment de la durée de l'impulsion d'habillage, par rapport à la durée de l'impulsion qu'on cherche à caractériser. La durée d'impulsion d'habillage IR de 50 fs disponible sur l'installation LASERIX devait permettre de donner un ordre de grandeur de la durée de l'impulsion laser XUV injecté, de quelques centaines de fs à 1 ps selon les prédictions des simulations numériques.

Avant de présenter le travail expérimental, nous allons d'abord décrire les simulations numériques que nous avons réalisées pour illustrer le principe de notre expérience, à l'aide du code Matlab déjà utilisé pour les simulations du chapitre III (section I). Nous décrirons ensuite le montage expérimental développé sur l'installation LASERIX pour la mise en œuvre de cette méthode, en particulier le transport et la focalisation des deux faisceaux IR et XUV jusqu'au spectromètre VMI, ainsi que leur superposition spatiale et temporelle. Nous présenterons les résultats expérimentaux obtenus, ainsi que la méthode de traitement des spectres de photoélectrons que nous avons utilisée pour mettre en évidence un faible effet du laser d'habillage. Enfin à la fin de ce chapitre nous proposerons quelques pistes d'améliorations à appliquer pour de futures expériences.

II. Simulations numériques des spectres des photoélectrons en présence d'habillage

Rappelons que le code Matlab, développé par C. Bourassin-Bouchet, que nous avons utilisé pour calculer les spectres photoélectroniques issus de l'ionisation d'un gaz rare par une impulsion XUV, seule ou en présence d'un champ d'habillage, est basé sur l'approximation du champ fort (SFA). L'effet du champ d'habillage, décrit au chapitre III par les équations III-1 et III-2, est contenu dans la phase $\phi(t)$

accumulée par le photoélectron libéré dans le champ laser. Cette phase dépend du potentiel vecteur $\mathbf{A}(t)$ au travers de deux contributions : le terme pondérateur en A^2 et un terme en $p.A.\cos(\theta)$, où p est le module de la quantité de mouvement du photoélectron et θ est l'angle entre le vecteur vitesse et la direction de polarisation du laser d'habillage. Le premier terme induit un petit décalage vers les énergies cinétiques plus faibles, le deuxième terme est à l'origine de l'apparition des pics satellites appelés sidebands. Dans nos simulations nous allons nous intéresser plus particulièrement à l'effet de la variation du retard relatif XUV/IR entre l'impulsion ionisante XUV et l'impulsion d'habillage IR sur le nombre et l'intensité des sidebands.

II.1. Paramètres d'entrée des simulations

Nous considérons une impulsion XUV ionisante à une énergie de 38 eV, correspondant à celle du laser XUV utilisé dans notre expérience. Le profil temporel de l'impulsion laser XUV en mode injecté a été modélisé par la superposition de deux impulsions gaussiennes : une première, représentant le fond ASE, de durée FWHM $\tau_{ASE} = 120$ fs, au centre de laquelle est superposée une impulsion plus courte (durée FWHM $\tau_{inj} = 11$ fs) et ~ 10 fois plus intense, représentant la partie injectée cohérente. Les durées utilisées sont donc une dizaine de fois plus courtes que les durées prédites par les simulations, afin de rendre raisonnable le temps de calcul. Le profil temporel en intensité de l'impulsion XUV, ainsi que le profil spectral correspondant, sont représentés respectivement dans les Figure IV-1 (a) et Figure IV-1 (b). Le profil temporel et le profil spectral du champ XUV sont liés par une transformée de Fourier (la phase spectrale est plate).

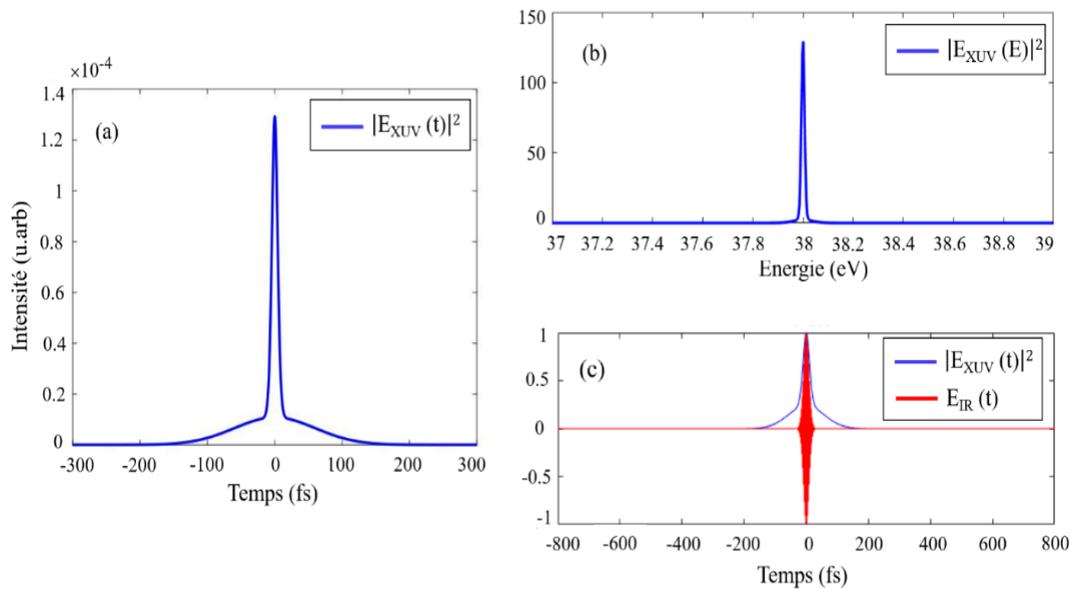


Figure IV-1: Profils utilisés en entrée du calcul: profil de l'intensité (a) temporel et (b) spectral de l'impulsion XUV ; (c) profil temporel de l'amplitude du champ d'habillage (rouge) et de l'intensité de l'impulsion XUV (bleu), pour un retard XUV/IR de 0 fs.

Le champ d'habillage infrarouge de longueur d'onde $\lambda = 800$ nm (période $T = 2.67$ fs) est modélisé par une impulsion gaussienne de durée à mi-hauteur (en intensité) $\tau_{IR} = 15$ fs et d'intensité au pic $I_{IR} = 2$ TW/cm². Cette valeur d'intensité correspond à celle que nous avons évaluée dans les expériences que nous présenterons plus loin. La durée de 15 fs est par contre inférieure à la valeur nominale (50 fs) du laser IR utilisé dans les expériences, tout en restant suffisamment longue pour inclure un nombre

suffisant de périodes du champ. Il est important de noter qu'en raison de la durée plus courte de l'impulsion d'habillage IR que de celle de l'impulsion XUV, tous les photoélectrons créés par l'impulsion XUV ne seront pas affectés par le champ IR. Augmenter la durée de l'impulsion IR permettrait d'augmenter le nombre de photoélectrons affectés par le champ d'habillage, en diminuant toutefois la résolution temporelle de la mesure. C'est pourquoi la durée de l'impulsion IR est un paramètre essentiel des simulations, et de l'expérience. Enfin les deux impulsions XUV et IR sont polarisées linéairement suivant la même direction. Les profils temporels du champ d'habillage IR et de l'intensité XUV considérés pour ce calcul, sont représentés sur la Figure IV-1 (c) pour un retard XUV/IR égal à 0 fs, qui correspond à la synchronisation des pics des deux impulsions XUV et IR. Compte tenu des durées d'impulsion plus courtes utilisées en entrée de nos simulations, les résultats que nous allons présenter doivent être considérés comme un support à une discussion qualitative.

II.2. Balayage temporel et intensité des sidebands

Les calculs ont été effectués pour l'ionisation d'atomes d'argon ($I_p = 15.76$ eV, $\beta = 1.85$) par les photons de 38 eV. Comme expliqué au chapitre III, le code calcule la distribution de moment cinétique \mathbf{p} des photoélectrons, puis la projection de la distribution 3D (p_x, p_y, p_z) sur un plan, pour simuler l'image obtenue sur le détecteur du spectromètre VMI, et la coupe de cette distribution dans le plan ($p_x, p_y, p_z = 0$). Cette coupe est représentée dans la Figure IV-2 (a) dans le cas où seule l'impulsion XUV irradie les atomes d'argon. Sur ce spectre la raie correspondant à l'ionisation simple de l'électron de valence

3p de l'argon apparaît comme un cercle de rayon $|\vec{p}| = \sqrt{p_x^2 + p_y^2} = \sqrt{2 m_e \cdot E_c}$, avec $E_c = 22,24$ eV.

La direction de polarisation est selon p_y , celle de propagation des photons selon l'axe p_x . Le même spectre est représenté en coordonnées polaires (R, θ) sur la Figure IV-2 (b), où R est le rayon mesuré par rapport au centre du cercle et l'angle θ est mesuré par rapport à la direction de polarisation du rayonnement XUV. Enfin la Figure IV-2 (c) montre le spectre intégré angulairement. La largeur spectrale de la raie apparaissant à $R = 900$ px est donnée par celle de l'impulsion XUV puisque nous n'avons pas introduit ici la résolution instrumentale finie du spectromètre.

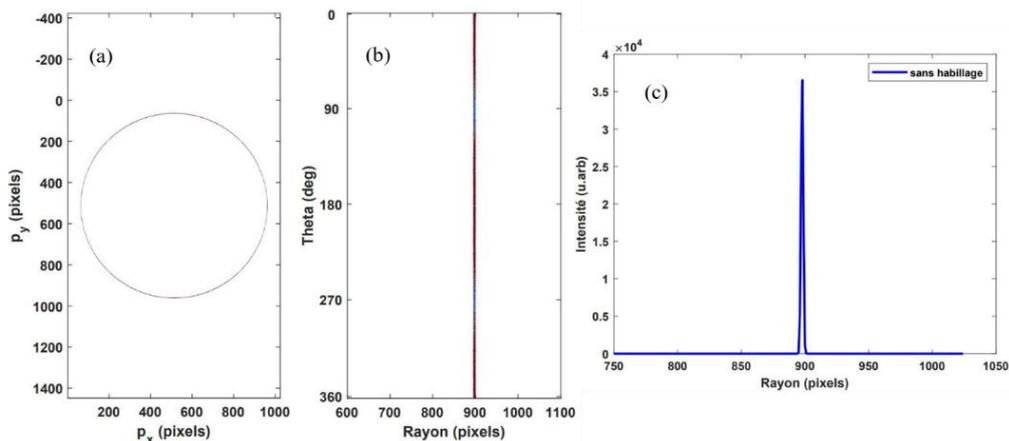
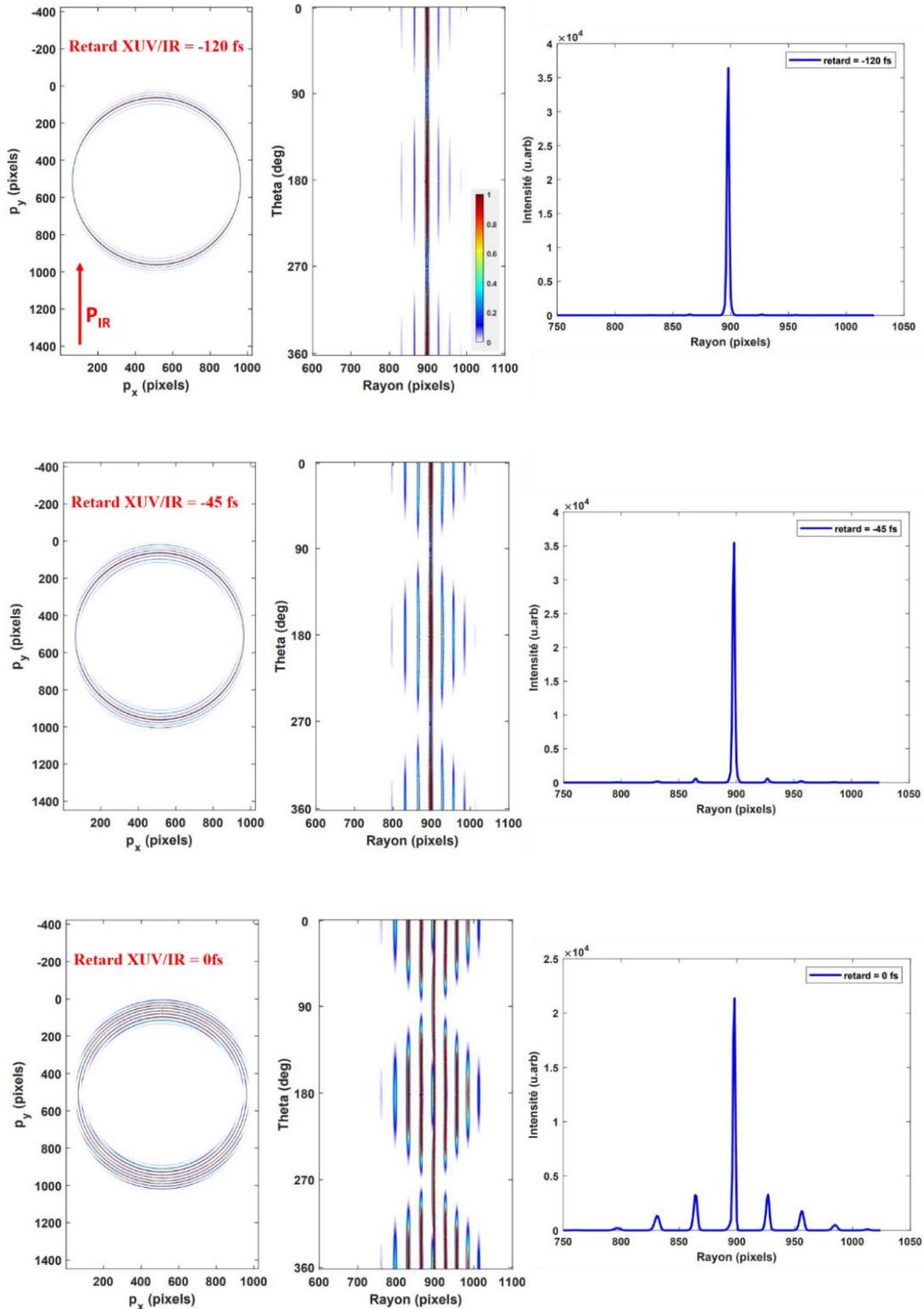


Figure IV-2 : Distribution angulaire calculée du spectre de photoélectrons, suite à l'ionisation 3p de l'argon par une impulsion XUV à 38 eV en absence du champ d'habillage. (a) représentation cartésienne (p_x, p_y); (b) représentation polaire (R, θ); (c) spectre intégré angulairement.

Nous allons maintenant présenter les simulations effectuées en présence du champ d'habillage IR, d'intensité $2 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$. La Figure IV-3 montre les spectres calculés pour plusieurs valeurs du retard XUV/IR de part et d'autre de 0 fs, la meilleure synchronisation : -120 fs, -45 fs, 0 fs, 15 fs et 90 fs. Comme dans la Figure IV-2, chaque spectre est présenté dans les 3 représentations : cartésienne, polaire et intégré angulairement. La polarisation du laser IR est dirigée selon p_y , comme le rayonnement XUV.



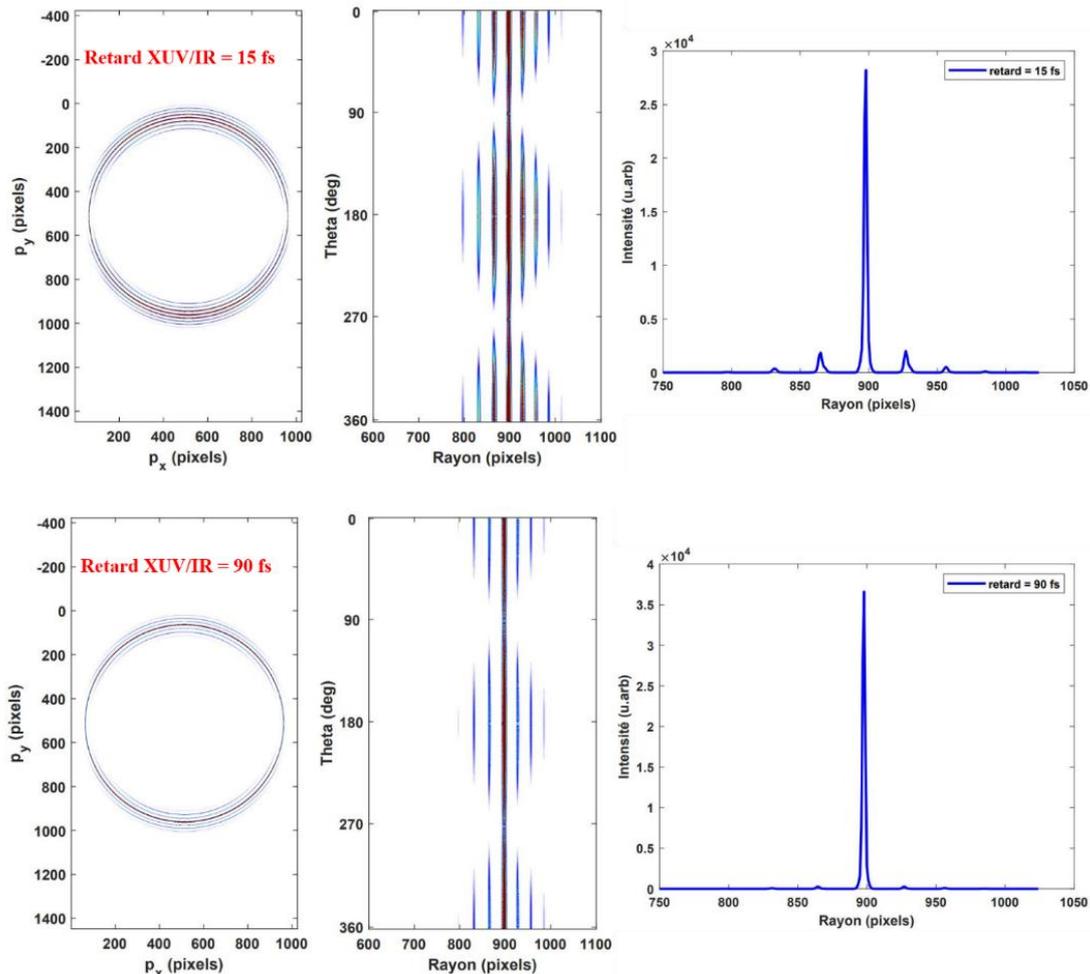


Figure IV-3 : Idem figure IV-2, mais en présence du champ d'habillage IR, pour plusieurs valeurs du retard XUV/IR : -120 fs, -45 fs, 0 fs, +15 fs et +90fs. L'intensité et le nombre des sidebands diminuent de part et d'autre du retard 0. Intensité IR de $2 \cdot 10^{12}$ W/cm², polarisation linéaire dans la direction verticale (p_y).

On peut voir qu'en présence du champ d'habillage IR la raie principale à 22,24 eV est maintenant entourée de part et d'autre de pics satellites, les sidebands (SB). Ces pics sont séparés de $\Delta E_c = 1,55$ eV, correspondant à l'énergie d'un photon IR. Sur les spectres en représentation polaire, pour tous les retards considérés, on voit clairement que, conformément au terme en $p.A.\cos\theta$, l'intensité des sidebands est maximum à $\theta = 0^\circ$ et 180° (direction de polarisation du champ IR), et nulle dans la direction perpendiculaire à $\theta = 90^\circ$ et 270° . Ce même terme est responsable de la légère différence en intensité entre les sidebands symétriques : la sideband SB-n est légèrement moins intense que la sideband SB+n, située à une valeur de p (ou E_c) plus élevée. Enfin, comme attendu, on voit sur les spectres intégrés angulairement que l'intensité des sidebands est maximale pour un retard XUV/IR de 0 fs, et qu'elle diminue de part et d'autre lorsque le retard augmente (en valeur absolue). Le nombre de sidebands visibles varie également, il est au maximum de 4 pour le retard XUV/IR de 0 fs et n'est plus que de 3 pour les deux retards extrêmes (-120 fs et +90 fs).

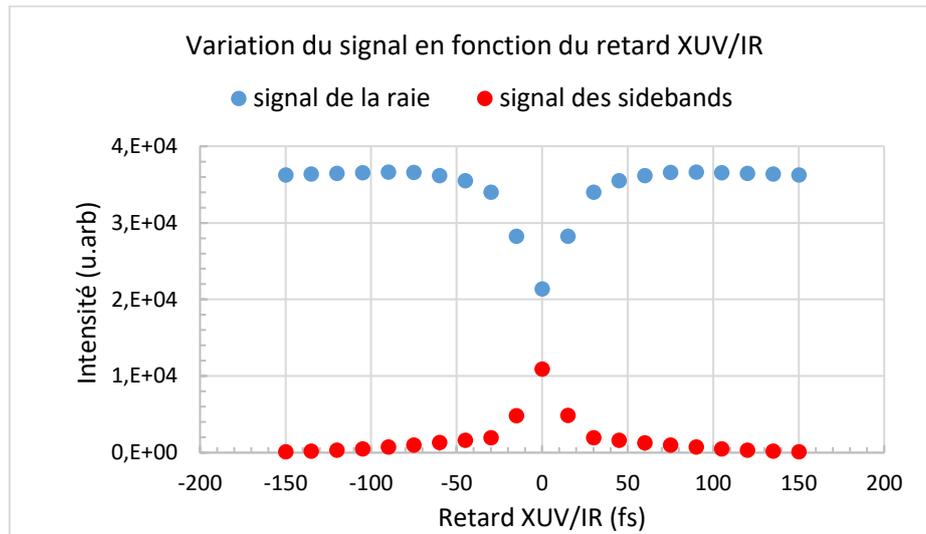


Figure IV-4: Variation du signal intégré angulairement de la raie de photoélectrons (en bleu) et du signal intégré sur toutes les sidebands, calculés pour chaque retard XUV/IR entre -150 fs à 150 fs.

Il est important de noter, en comparant les spectres intégrés angulairement avec habillage (Figure IV-3) et sans habillage (Figure IV-2), que la présence des sidebands conduit à une diminution correspondante de l'intensité de la raie principale, puisque le nombre de photoélectrons reste constant. Autrement dit, le signal de la raie de photoélectrons se redistribue sur les différentes bandes latérales lorsque le faisceau d'habillage est ajouté. C'est ce qu'on peut voir également sur la Figure IV-4 qui montre l'intensité du signal intégré angulairement en fonction du retard XUV/IR (de -150 fs à +150 fs) sur la raie centrale (en bleu) et sur les sidebands (en rouge, intégration sur les sidebands visibles de part et d'autre de la raie centrale). Pour le retard 0 fs, qui correspond au meilleur recouvrement temporel de l'impulsion IR avec le pic XUV, le signal des sidebands passe par un maximum, tandis que le signal de la raie passe par un minimum.

II.3. Corrélation croisée et impulsion XUV

La mesure de l'intensité intégrée sur toutes les sidebands, en fonction du retard XUV/IR, permet d'obtenir un signal de corrélation croisée, à partir duquel il est possible par déconvolution de remonter au profil temporel de l'impulsion XUV, le profil de l'impulsion IR étant connu. La Figure IV-5 compare l'évolution du signal des sidebands, calculée à partir de nos simulations, avec le profil temporel de l'impulsion XUV utilisé en entrée (courbe violette). Les différentes courbes en pointillés correspondent à plusieurs façons de sommer le signal des sidebands : soit en sommant le signal de deux sidebands symétriques (+1/-1, -2/-2 ou +3/-3), soit en sommant le signal de toutes les sidebands. Toutes les courbes sont normalisées à la même valeur pic pour pouvoir comparer plus facilement leur profil temporel.

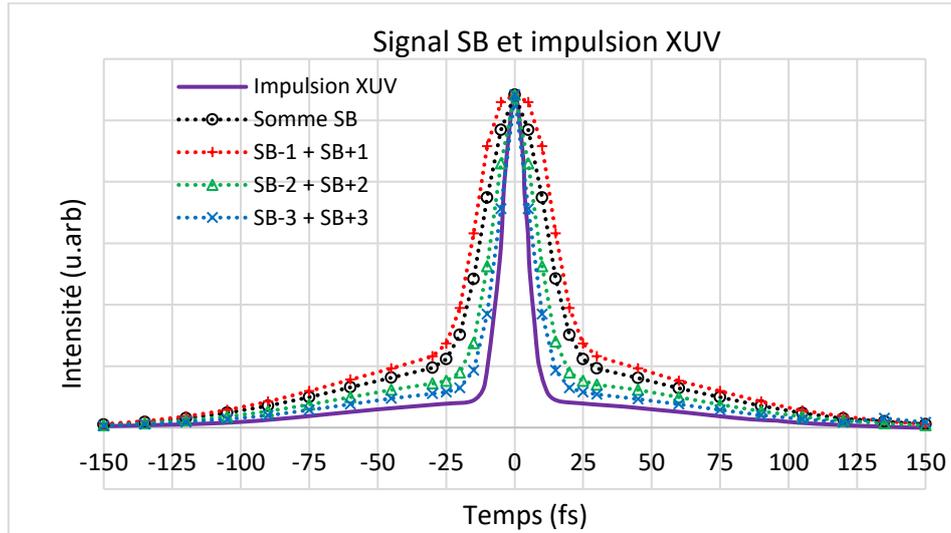


Figure IV-5 : Evolution en fonction du retard XUV/IR du signal de sidebands successives, ou sommé sur toutes les sidebands visibles. En violet, profil temporel de l'impulsion XUV utilisé pour ces simulations. Toutes les courbes sont normalisées à 1. Impulsion IR d'habillage : intensité 2 TW/cm², durée FWHM 15 fs.

On peut voir que le signal de corrélation est d'autant plus étroit, et plus proche de l'impulsion XUV, que l'on considère des sidebands d'ordre élevé. Ce comportement intéressant a été décrit et discuté précédemment dans plusieurs travaux, consacrés à la caractérisation temporelle d'impulsion d'harmoniques d'ordre élevé [106], ou de laser XUV à électrons libres [155] [156]. Il est dû à la forte non-linéarité du signal de sideband en fonction de l'intensité de l'impulsion d'habillage IR. Dans le régime perturbatif, à relativement faible intensité IR ($I_{IR} \sim 10^{10}$ - 10^{11} TW/cm²), le signal de la sideband d'ordre n augmente comme I_{IR}^n . Si on considère des impulsions gaussiennes, la largeur du signal de corrélation pour cette sideband est alors donnée par l'expression $\tau_c^n = \sqrt{\tau_{XUV}^2 + \frac{\tau_{IR}^2}{n}}$. Toutefois, dans ce domaine d'intensité IR modérée, le signal des sidebands d'ordre supérieur à 1 est très faible et donc difficile à mesurer. Pour l'intensité de 2 TW/cm² considérée dans nos simulations, la théorie prédit que le signal de la sideband d'ordre n varie comme $I_{IR}^{\alpha(n, I_{IR})}$, où le coefficient $\alpha(n, I_{IR})$ est généralement plus petit que n , et varie avec l'intensité de l'habillage [155]. En pratique ce coefficient peut être difficile à déterminer expérimentalement avec une précision suffisante pour atteindre la résolution temporelle souhaitée pour la déconvolution du signal. Dans ce cas, la déconvolution à partir du signal des sidebands d'ordre 1, ou de la somme de toutes les sidebands peut s'avérer plus fiable [106] [156].

En conclusion, les simulations numériques que nous avons effectuées permettent de visualiser l'effet du champ d'habillage IR sur les spectres de photoélectrons dans le cas d'une impulsion XUV ionisante avec un profil temporel modélisant celui du laser XUV injecté : un pic intense de durée courte entouré d'un piédestal de durée plus longue. Le signal de sidebands est proportionnel au nombre de photons XUV contenus dans la durée de l'impulsion d'habillage IR, pour un retard XUV/IR donné. Ce signal devrait donc augmenter fortement quand l'impulsion IR est synchronisée avec la partie cohérente (harmonique amplifiée) de l'impulsion du laser XUV injecté XUV envoyée dans le VMI, par rapport au signal obtenu lorsque l'impulsion IR est synchronisée avec la partie ASE de l'impulsion.

Dans les simulations que nous venons de présenter, nous avons considéré un piédestal ASE avec une

Le trajet du faisceau laser XUV (Ne-like Ti, $\lambda = 32,6$ nm) fonctionnant en mode ASE ou injecté, considéré dans ce travail, est représenté en rose dans la Figure IV-6. Ce laser XUV est généré dans le schéma de pompage transitoire à incidence rasante, en focalisant selon une petite ligne focale une séquence de 2 impulsions lasers [158][159] sur une cible plane en titane de largeur 3 ou 4 mm. Dans un premier temps, une pré-impulsion (durée FWHM 10 ns, énergie ~ 400 mJ) délivrée par un laser Nd :YAG doublé en fréquence ($\lambda = 532$ nm, en vert sur la Figure IV-6) est focalisée sur la cible par une lentille cylindrique ($f = 1$ m). Cette impulsion, focalisée avec une intensité de l'ordre de 10^{11} W/cm², transforme une fine couche de la cible métallique en un pré-plasma en expansion ayant un faible degré d'ionisation ($\langle Z \rangle \sim 5 - 6$) et une température électronique de ~ 20 eV [160]. Après un délai de 4 ns, cette pré-impulsion est suivie de l'impulsion de pompe principale plus intense ($I \sim 10^{14}$ W/cm²) et plus courte (durée FWHM ~ 4 ps, énergie $\sim 1,2$ J), délivrée après compression par le laser Ti :Sa ($\lambda = 815$ nm, en orange sur la Figure IV-6). Cette seconde impulsion est focalisée avec un angle de rasance de $\Phi = 22^\circ$ à la surface de la cible, à l'aide d'un miroir sphérique ($f = 500$ mm) utilisé en configuration hors-axe. Cette deuxième impulsion induit un chauffage rapide des électrons libres du plasma, qui conduit à une augmentation de l'état d'ionisation jusqu'aux ions néonoïdes, et au pompage d'une inversion de populations entre les niveaux 3p et 3s de ces ions, par excitation collisionnelle. On obtient ainsi un effet laser à la longueur d'onde de cette transition ($\lambda = 32,6$ nm, $h\nu = 38,04$ eV) par amplification du rayonnement le long de la colonne de plasma (mode ASE).

Pour un fonctionnement en mode injecté, on utilise l'harmonique d'ordre 25 d'une source harmonique d'ordre élevé, générée en focalisant à l'aide d'une lentille de distance focale de 2 m, un faisceau infrarouge auxiliaire (faisceau rouge à droite de la Figure IV-6) de faible énergie (~ 7 mJ), et de courte durée ($\tau = 40$ fs), dans une cellule de 10 mm de long remplie d'un gaz d'argon. L'iris de diamètre variable placé avant l'optique de focalisation sert à optimiser l'accord de phase nécessaire à une bonne efficacité du processus de génération. Une description plus détaillée des conditions expérimentales de la génération de la source est donnée dans la thèse de A. Pandey [161].

Le faisceau laser XUV est transporté et focalisé au centre du spectromètre VMI à l'aide d'un miroir sphérique multicouche (B₄C:Si) de 500 mm de distance focale, suivi d'un miroir plan multicouche pour l'orientation du faisceau, tous deux utilisés à une incidence quasi normale ($i = 2,4^\circ$). Ces miroirs XUV fournis par « UltraFast Innovations » ont une réflectivité de ~ 23 % à 32,6 nm pour une bande passante à la largeur à mi-hauteur de $\sim 1,7$ nm. Ce système d'imagerie XUV monochromatique et de haute résolution spatiale est utilisé pour caractériser le profil d'intensité en champ proche du faisceau laser XUV dans le plan de sortie du plasma amplificateur. Dans cette expérience, la position du miroir sphérique a été légèrement ajustée de manière à renvoyer l'image de ce plan à la position de la zone d'interaction du VMI, située à une distance de 5 m du miroir. La pupille d'émission du faisceau laser XUV à la sortie du plasma est donc imagée dans le VMI avec un grandissement 10. Notons qu'un filtre en aluminium d'épaisseur 300 nm placé avant les optiques de focalisation et d'alignement bloque la lumière infrarouge diffusée au niveau de la cible.

Enfin le faisceau infrarouge utilisé pour l'habillage (faisceau rouge au centre de la Figure IV-6) est prélevé en amont de la chaîne laser IR. Le montage expérimental détaillé de ce faisceau, que je présenterai dans le prochain paragraphe, est représenté dans le schéma de la Figure IV-7. Ce faisceau est focalisé au centre du VMI (à la même position que l'impulsion XUV) avec une lentille sphérique en

silice ($f = 3\text{m}$) suivie d'un miroir à 45° qui permet au faisceau IR de suivre la trajectoire du faisceau XUV avec un angle de $\sim 8\text{ mrad}$.

Plusieurs caméras CCD montrées dans la partie gauche de la Figure IV-6, sont utilisées pour contrôler le profil et la superposition des deux impulsions XUV et IR d'habillage. Un miroir rétractable dont la surface réfléchissante est recouverte d'or permet d'envoyer le faisceau XUV vers une caméra CCD à rayons X (ANDOR ikon-m BN, taille de pixel $13\mu\text{m}$), positionnée à la même distance de ce miroir que la zone d'interaction du VMI. On peut ainsi mesurer sur cette CCD la position, la taille et le profil spatial de la tâche focale XUV envoyée dans le VMI. Ce système nous permet également de vérifier la stabilité tir à tir du faisceau XUV, en terme de position et de niveau de signal. Enfin deux caméras CCD sensibles dans l'infrarouge sont placées à la sortie de l'enceinte du spectromètre VMI pour la caractérisation du faisceau d'habillage et l'optimisation des conditions expérimentales, comme je le montrerai dans la section II.4.

III.3. Ligne de transport et de contrôle du faisceau d'habillage infrarouge

La Figure IV-7 montre le trajet du faisceau d'habillage IR à partir de son prélèvement dans la chaîne laser jusqu'à sa focalisation au centre du VMI.

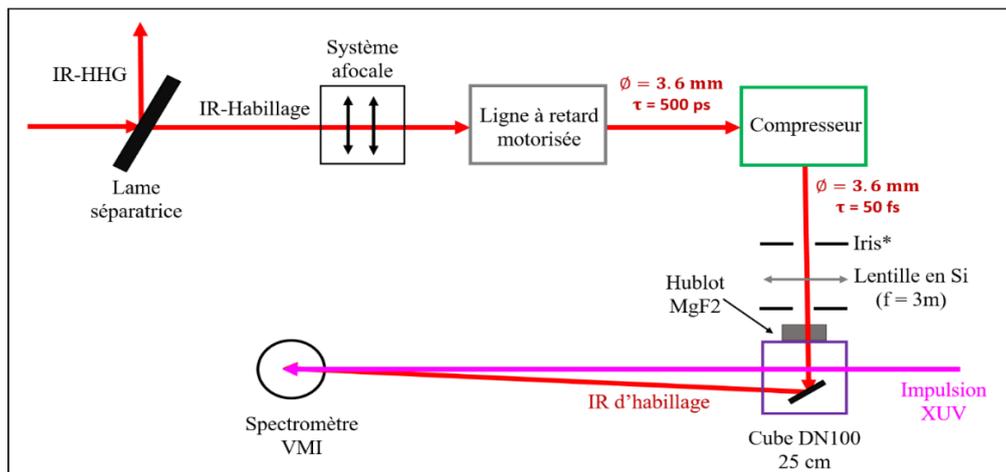


Figure IV-7: Ligne de transport et de focalisation du faisceau d'habillage infrarouge jusqu'au centre du VMI.

Une lame séparatrice en MgF_2 permet de diviser le faisceau IR en deux sous-faisceaux distincts : la partie transmise (10%) est utilisée pour le faisceau d'habillage, la partie réfléchie (90%) pour la génération des harmoniques d'ordre élevé (HHG). Un système de lentilles convergentes en configuration afocale est utilisé pour diminuer le diamètre du faisceau d'habillage, initialement de $\Phi = 12\text{mm}$ jusqu'à 3.6 mm . Ce système afocal permet également si nécessaire d'ajuster la divergence du faisceau en sortie. Le faisceau d'habillage traverse ensuite une ligne à retard motorisée afin de compenser sa différence de marche avec le faisceau qui génère les harmoniques. Cette ligne à retard est également utilisée pour varier finement le retard XUV/IR entre l'impulsion XUV et l'impulsion IR d'habillage au niveau de la zone d'interaction du spectromètre VMI. La méthode pour synchroniser temporellement les deux impulsions (retard XUV/IR = 0) sera décrite dans la partie suivante. En aval de la ligne à retard, un mini-compresseur à l'air, dimensionné pour quelque mJ d'énergie, nous permettra de varier la durée de l'impulsion IR entre 50 fs (compression optimale) et 1 ps, en réglant la distance

entre les réseaux du compresseur. Ce changement de la distance entre les réseaux doit bien sûr être compensé par la ligne à retard, pour maintenir un retard XUV/IR constant.

Le faisceau est focalisé au centre du VMI à l'aide d'une lentille sphérique en silice de longue focale ($f = 3\text{m}$), ce qui permet d'obtenir une tâche focale de diamètre suffisamment grand pour recouvrir entièrement la tâche focale XUV. Le faisceau d'habillage pénètre dans l'enceinte sous vide à travers un hublot en MgF_2 de 1 cm d'épaisseur. Le choix du MgF_2 est destiné à minimiser les effets non-linéaires sur l'impulsion comprimée à la traversée de la lentille et du hublot, qui pourraient entraîner un étirement significatif de sa durée. Enfin dans l'enceinte à vide le faisceau IR est réfléchi par un miroir, éclairé à un angle proche de 45° , pour l'envoyer à la même position que le faisceau XUV au centre de la zone d'interaction du VMI, les deux faisceaux faisant entre eux un angle de $\sim 8\text{ mrad}$. Dans la partie suivante, nous présentons les méthodes utilisées pour caractériser et faire varier les principaux paramètres du faisceau d'habillage obtenus avec cette configuration.

III.4. Contrôle des impulsions XUV et IR dans le VMI

Comme déjà discuté dans le chapitre III, la superposition précise dans l'espace, la synchronisation dans le temps de deux impulsions XUV et IR d'habillage, et le contrôle de l'intensité du faisceau d'habillage sont des exigences essentielles de l'expérience pour observer les sidebands induites par l'habillage laser de la photoionisation. Dans cette section, je présente les différentes méthodes utilisées pour s'assurer que ces trois conditions sont rigoureusement remplies.

III.4.1. Superposition spatiale et synchronisation temporelle des faisceaux XUV et IR

Pour ajuster la superposition spatiale des deux faisceaux XUV et IR dans la zone d'interaction du VMI, nous avons choisi d'utiliser l'extrémité de l'aiguille d'injection de gaz comme position de référence pour aligner les deux faisceaux XUV et IR sur le même point au centre de la zone d'interaction du VMI. Comme déjà mentionné dans la section 3.4 du chapitre II, cette aiguille peut être placée à cette position avec une précision de quelques dizaines de μm . A l'aide de la caméra CCD (Basler) placée derrière le hublot de sortie du VMI (Figure IV-6), le faisceau d'habillage IR, atténué par une densité optique de très bonne qualité, est aligné de façon à ce que la tâche focale soit centrée sur l'extrémité de l'aiguille, comme le montre la Figure IV-8 (a).

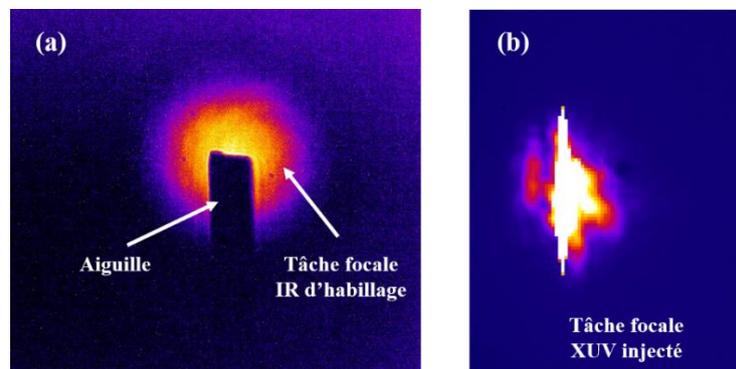


Figure IV-8 : (a) superposition de la tâche focale du faisceau d'habillage IR sur l'aiguille d'injection du gaz utilisée comme repère dans la zone d'interaction du VMI. (b) Image de la tâche focale du faisceau laser XUV injecté obtenue avec la caméra Andor placée à la même position par rapport au centre du VMI, sert à la mesure de la taille de la tâche focale XUV et la superposition spatiale de deux impulsions XUV et IR d'habillage.

Le faisceau IR est ensuite envoyé sur la caméra CCD XUV, au moyen du miroir amovible placé sur le trajet des faisceaux (Figure IV-6), et sa position devient alors la référence pour superposer la tâche focale du faisceau laser XUV. On peut ainsi s'assurer directement à la longueur d'onde du laser XUV du bon recouvrement spatial des deux faisceaux au centre de l'analyseur, ce avec une précision de l'ordre de 30 μm . Cette caméra nous permet également d'observer le profil et l'intensité de la tâche focale du faisceau XUV (voir Figure IV-8 (b)) envoyée dans la zone d'interaction du VMI, et de déterminer sa taille à partir de celle des pixels de la CCD (1 px = 13 μm). On trouve qu'elle est typiquement de 190 μm x 260 μm . On voit donc que l'erreur sur le positionnement du faisceau XUV est faible par rapport aux dimensions de celui-ci.

La synchronisation temporelle des impulsions XUV et IR d'habillage a été réglée avec une précision d'environ ~ 20 fs, en observant sur la caméra CCD placée en sortie de VMI les franges d'interférence entre l'impulsion d'habillage IR et l'impulsion IR utilisée pour la génération des harmoniques d'ordre élevé (HHG). Ces franges d'interférence, séparées d'environ 100 μm , sont montrées dans la Figure IV-9. L'impulsion du faisceau IR qui génère les harmoniques d'ordre élevé peut en effet être considérée comme synchronisée temporellement avec l'impulsion du laser XUV injecté, de sorte que cette procédure assure la synchronisation temporelle XUV/IR recherchée. A partir de cette position de recouvrement temporel, correspondant au retard $\Delta t = 0$, la ligne à retard du faisceau d'habillage IR, montrée dans la Figure IV-7, permet de balayer le temps d'arrivée de l'impulsion d'habillage dans la zone d'interaction du VMI par rapport à l'impulsion XUV. A noter que pour que l'interférence entre les deux faisceaux IR présente un fort contraste, il est indispensable que ces derniers soient d'intensité similaire, ce qui implique d'atténuer le faisceau d'habillage.

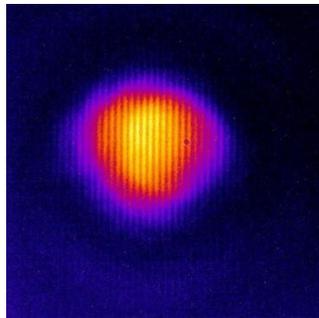


Figure IV-9: Franges d'interférences obtenues en sortie du spectromètre VMI, montrant la synchronisation temporelle entre l'impulsion IR d'habillage et le faisceau IR utilisé pour la génération des harmoniques d'ordre élevé.

III.4.2. Contrôle de l'intensité du faisceau d'habillage dans la zone de recouvrement

L'intensité du faisceau d'habillage focalisé dans la zone d'interaction du VMI est un paramètre critique pour la génération des sidebands. Dans notre expérience celle-ci pouvait être modifiée en faisant varier le diamètre d'ouverture de l'iris placé juste avant la lentille de focalisation (Figure IV-7). Cependant, réduire le diamètre de l'iris (et donc du faisceau IR) conduit à la fois à une diminution de l'énergie transmise et à une augmentation du diamètre de la tâche focale. Pour évaluer l'intensité focalisée en fonction du diamètre de l'iris il est donc primordial de mesurer ces deux grandeurs. La Figure IV-10 montre la partie du schéma expérimental utilisée pour la mesure du diamètre de la tâche focale.

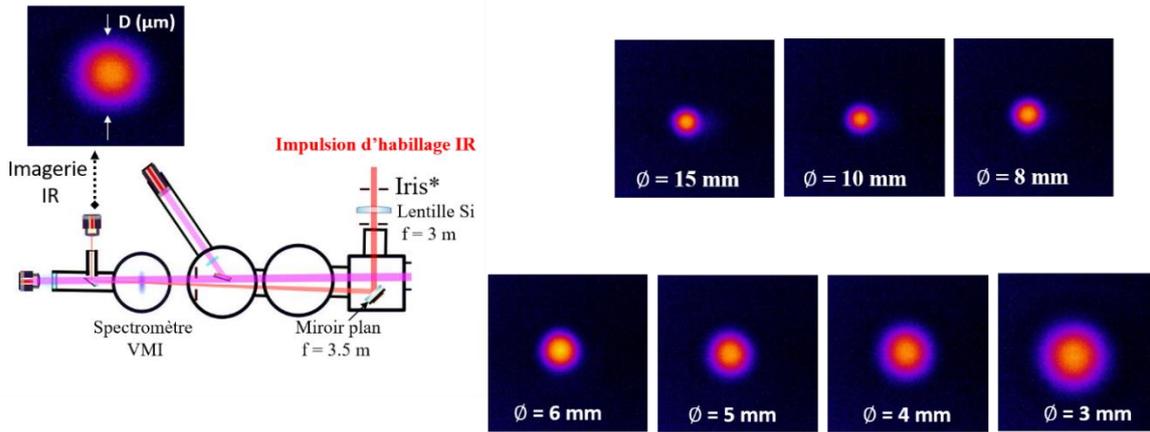


Figure IV-10 : L'iris est utilisé pour diaphragmer le faisceau IR d'habillage avant sa focalisation dans le VMI. La tâche focale obtenue est imagée en sortie de VMI sur une caméra CCD. A droite, images enregistrées pour différentes ouvertures de l'iris. Le diamètre de la tâche focale augmente quand on passe de l'iris à pleine ouverture ($\Phi_{\text{iris}} = 15 \text{ mm}$) à l'ouverture la plus petite ($\Phi_{\text{iris}} = 3 \text{ mm}$).

Une caméra CCD placée à la sortie du VMI, à 90° de la direction de propagation du faisceau d'habillage, était utilisée pour enregistrer via un miroir amovible les images de la tâche focale IR au centre de la zone d'interaction du VMI. Ces images sont montrées dans la partie droite de la Figure IV-10, pour différents diamètres de l'iris, de $\Phi_{\text{iris}} = 15 \text{ mm}$ (pleine ouverture), jusqu'à $\Phi_{\text{iris}} = 3 \text{ mm}$ (ouverture minimale). Les diamètres de la tâche focale mesurés dans chaque cas sont reportés dans le Tableau IV-1. Ils varient entre $330 \mu\text{m}$ (iris à pleine ouverture) et $\sim 770 \mu\text{m}$ ($\Phi_{\text{iris}} = 3 \text{ mm}$), ce qui correspond à près d'un facteur 5 en surface. Dans tous les cas, la tâche focale est donc suffisamment grande pour recouvrir complètement la tâche focale de l'impulsion XUV.

Diamètre iris Φ_{iris} (mm)	Energie (mJ)	Diamètre Tâche focale (μm)	Intensité (W/cm^2)
15	2.05	330	$4.8 * 10^{13}$
10	2.03	340	$4.5 * 10^{13}$
8	1.9	390	$3.2 * 10^{13}$
6	1.54	450	$1.9 * 10^{13}$
5	1.23	510	$1.2 * 10^{13}$
4	0.92	590	$6.7 * 10^{12}$
3	0.62	770	$2.7 * 10^{12}$

Tableau IV-1 : Energie et diamètre de tâche focale du faisceau d'habillage IR, mesurés pour différents diamètres de l'iris. Intensité calculée pour une durée d'impulsion $\tau = 50 \text{ fs}$.

Afin de vérifier l'absence de perte induite par les différents optiques utilisés, l'énergie contenue dans l'impulsion IR a été mesurée par un calorimètre à plusieurs endroits le long du trajet optique du faisceau IR (sortie du compresseur habillage, et à l'entrée du VMI). Puis nous avons mesuré l'énergie transmise

en fonction du diamètre Φ_{iris} , en plaçant le calorimètre derrière le hublot de sortie du VMI. Les valeurs mesurées sont reportées dans le Tableau IV-1, ainsi que la valeur d'intensité correspondante dans la tâche focale, pour une durée d'impulsion $\tau = 50$ fs. L'intensité étant proportionnelle à l'énergie contenue dans l'impulsion et inversement proportionnelle à la surface de la tâche focale, elle diminue d'un facteur ~ 18 lorsque le diamètre de l'iris passe de 15 mm à 3 mm. Pour la pleine ouverture elle est au maximum de $\sim 4.8 \cdot 10^{13}$ W/cm², et au minimum de $\sim 2.7 \cdot 10^{12}$ W/cm². On voit donc que la gamme d'intensité couverte est plus que suffisante pour la génération de sidebands. Au cours de l'expérience que nous allons décrire, nous avons été amenés à augmenter la durée de l'impulsion d'habillage de ~ 50 fs jusqu'à ~ 900 fs, ce qui a conduit à des intensités proportionnellement plus faibles. La mesure des durées a été effectuée à la sortie du compresseur (avant l'iris) à l'aide d'un autocorrélateur monocoup (TIPA, Light Conversion).

Afin de vérifier la cohérence de ces mesures, nous avons utilisé le VMI en mode imagerie spatiale des ions, ce qui permet d'obtenir une image des ions produits dans la zone d'interaction sur le détecteur. En faisant varier le diamètre de l'ouverture du faisceau IR, et en utilisant les valeurs d'intensité du Tableau IV-1, nous avons pu évaluer le niveau à partir duquel les ions étaient réellement produits par le faisceau IR seul, à la suite de processus d'ionisation multiphotonique au-dessus du seuil (ATI). De tels processus ATI nécessitent une intensité focalisée d'habillage de l'ordre de 10^{13} W/cm² [162]. La Figure IV-11 montre 3 images obtenues $\Phi_{\text{iris}} = 4$ mm, 6mm et 15 mm, et les intensités correspondantes. Nous pouvons voir que la trace des processus ATI apparaît à la position du jet d'argon lorsque l'intensité focalisée atteint $1.9 \cdot 10^{13}$ W/cm². Pour l'intensité la plus grande (image du bas), une trace plus faible de la présence d'ions également observée le long du trajet du faisceau, puisque l'intensité est suffisamment grande pour induire un effet ATI dans le gaz résiduel proche de la position de focalisation.

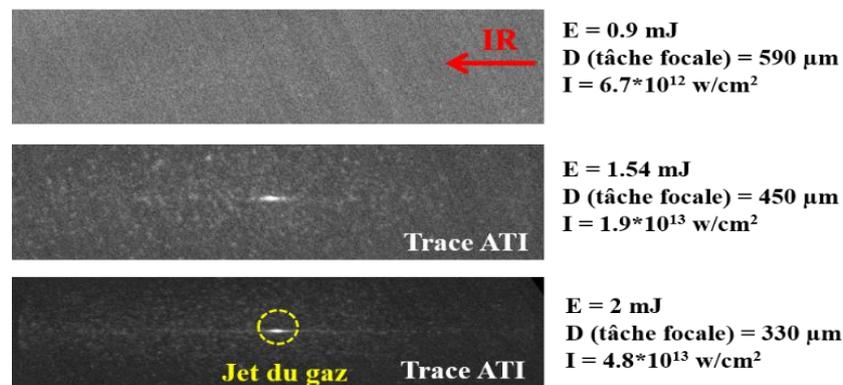


Figure IV-11: Images du détecteur VMI en mode imagerie spatiale des ions, correspondant à la photoionisation d'une cible gazeuse d'argon par le faisceau IR d'habillage seul, pour différents diamètres d'iris. Les valeurs d'énergie, diamètre de tâche focale et intensité indiquées à droite sont tirées du tableau IV-1. La flèche rouge indique la direction de propagation du faisceau IR, et le cercle jaune la position du jet de gaz d'argon.

L'observation des traces ATI confirme donc les mesures d'intensités présentées dans le Tableau IV-1. D'autre part, le processus d'ATI que nous observons nécessite une intensité environ 10 fois plus importante que celle nécessaire pour obtenir un effet d'atome habillé, de l'ordre de 10^{11} - 10^{12} W/cm², ce qui confirme à nouveau que l'intensité IR focalisée dans la zone d'interaction du spectromètre VMI est largement suffisante pour induire un effet visible du champ d'habillage dans les spectres de photoélectrons, tel que les sidebands. Comme on va le voir dans la suite de ce chapitre, les mesures que nous allons présenter ont été réalisées avec une durée d'impulsion plus longue, correspondant à intensité

IR focalisée de quelques 10^{12} W/cm².

IV. Résultats expérimentaux

IV.1. Photoionisation avec l'impulsion XUV seule

Dans une première étape, seule le faisceau XUV injecté fonctionnant à 32.6 nm ($E_{\text{photons}} = 38$ eV) est focalisé dans la zone d'interaction du VMI. L'impulsion ionisante est alors alignée avec un jet d'argon ($I_p = 15,76$ eV), dont ce dernier est injecté à l'aide d'une aiguille placée à 4 mm au-dessus du répulseur. La Figure IV-12 montre des spectres bruts de photoélectrons obtenus à partir du VMI, présentant une raie unique à une énergie cinétique $E_c = 22,24$ eV, qui correspond à l'ionisation (3p) de l'argon par les photons de l'impulsion XUV. L'image à gauche (a) est un spectre d'argon pris en un seul tir laser tandis que celle à droite (b) est une image moyenne de 3 images individuelles consécutives, chacune étant obtenue à partir de l'accumulation de 3 tirs laser, soit 9 tirs au total. Ces images sont prises pour une tension de répulsion (V_1) de -3.5 kV, un rapport $V_2/V_1 = 0.94$, $V_4/V_1 = 0.83$, une pression d'argon dans l'enceinte VMI de l'ordre de 6.10^{-6} mbar, une tension appliquée sur la face du phosphore de l'ordre de 4000 V, et en présence du pulseur ($V_{\text{bas}} = 700$ V et $V_{\text{haut}} = 1150$ V) afin de diminuer le signal de la tâche centrale comme j'ai décrit dans le chapitre II section 3.3.1). Dans ces spectres, le signal des photoélectrons est plus intense dans la direction de polarisation du laser XUV montrée par la flèche bleue sur la Figure IV-12-(a). Ceci revient physiquement au fait que le paramètre d'anisotropie (β) de la distribution angulaire des photoélectrons provenant de l'ionisation d'argon à une énergie de photons de 38 eV est de l'ordre de 1.85 [163]. Comme nous remarquons dans la Figure IV-12 -(a), et malgré l'optimisation du laser XUV injecté pour avoir un niveau de signal important, le signal de la raie des photoélectrons reste faible pour un seul tir laser. Il est donc assez difficile d'observer l'effet d'habillage et la présence des sidebands qui ont un signal beaucoup plus faible que celui de la raie principale. Il a donc été nécessaire d'effectuer des images moyennes de plusieurs tirs laser, afin de comparer les spectres sans et avec habillage et voir l'effet du champ d'habillage. Dans tout le reste de ce chapitre, nous utiliserons alors des spectres moyennés à partir de plusieurs images individuelles.

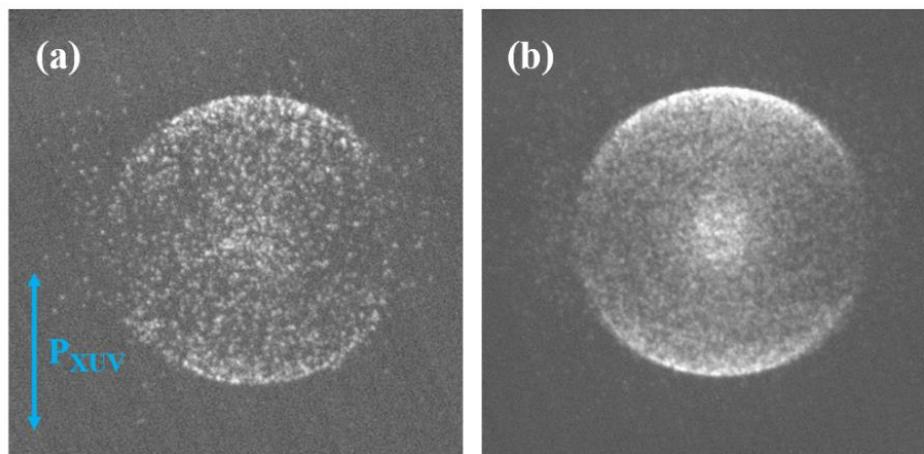


Figure IV-12 : Spectres bruts de photoélectrons obtenus via le spectromètre VMI correspondant à l'ionisation 3p de l'argon par des photons de 38 eV, en mono-tir (a) et image moyenne de 3 images, chacune obtenue en cumulant 3 tirs laser successifs. La flèche bleue indique la direction de polarisation de l'impulsion XUV.

Après inversion de différentes images moyennes en utilisant uniquement l'impulsion XUV injecté, on peut estimer la résolution instrumentale du spectromètre VMI. Une résolution en énergie ($\Delta E/E$) à la largeur à mi-hauteur de l'ordre de 8 % est trouvée. L'effet de ce facteur dans le cas d'une photoionisation en présence du champ d'habillage est discuté dans la partie suivante.

IV.2. Photoionisation en présence du champ d'habillage IR

Au cours de l'expérience, des séries d'images VMI ont été prises en faisant varier plusieurs paramètres de l'impulsion d'habillage IR, tels que l'intensité, la durée et le retard par rapport au moment de l'injection de l'harmonique d'ordre élevé. Dans cette section, nous présentons l'analyse des images obtenues pour deux durées de l'impulsion d'habillage : 50 fs et 900 fs. Avant de présenter l'analyse des images expérimentales, nous allons d'abord considérer l'effet de la résolution instrumentale de 8% qui vient d'être mesurée sur l'observation de l'effet d'habillage. Nous allons également préciser la définition du retard relatif entre l'impulsion XUV injecté et le faisceau d'habillage utilisé dans l'expérience.

IV.2.1. Spectre avec habillage pour une résolution instrumentale $\Delta E/E = 8\%$

Nous repartons des simulations numériques présentées dans la partie I, qui montraient qualitativement l'effet attendu du champ d'habillage sur le spectre de photoélectrons. Ces spectres utilisaient une largeur de raie $\Delta E/E = 1\%$ et ne prenaient pas en compte la largeur réelle mesurée dans notre expérience. Les courbes de la Figure IV-13 représentent les spectres photoélectroniques calculés par les simulations sans ou avec habillage. A gauche, la largeur $\Delta E/E$ de la raie est de 1%, à droite elle est de 8%. On voit que les sidebands, qui étaient bien résolues avec la résolution de 1%, se manifestent par un élargissement et un épaulement de part et d'autre de la raie pour une résolution de 8%. Par suite, dans notre expérience avec une résolution de 8%, il ne faut pas nous attendre à observer des sidebands bien résolues, mais nous allons rechercher la présence d'un épaulement induit par le champ d'habillage.

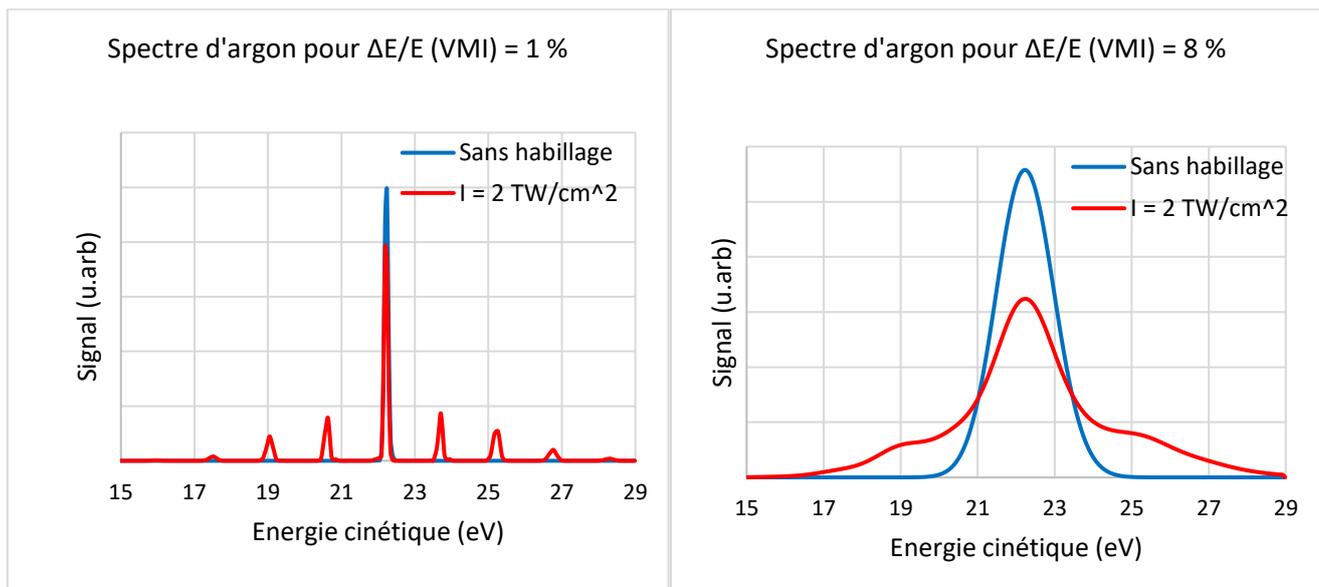


Figure IV-13 : Spectres de photoélectrons simulés sans habillage (courbes bleues) et en présence d'habillage d'intensité 2 TW/cm^2 (courbes rouges) pour une résolution en énergie du VMI $\Delta E/E = 1\%$ (à gauche) et 8% (à droite).

La mise en évidence de cet épaulement sur nos images expérimentales nécessite une méthode de traitement et d'analyse adaptée. Ainsi nous avons utilisé une technique d'analyse basée sur la soustraction des spectres obtenus avec (XUV+IR) et sans habillage (XUV). Une technique d'analyse de données proche de cette méthode est présentée dans l'article de Haber et al. [164], où les auteurs ont cherché à améliorer la précision des mesures de section efficace et de paramètres d'anisotropie dans une expérience de photoionisation à deux couleurs.

La Figure IV-14 montre le résultat de la soustraction des spectres calculés (XUV+IR) et (XUV) pour une résolution $\Delta E/E = 8\%$, ainsi que le spectre (XUV) pour comparaison. Après soustraction, on observe un creux d'intensité négative à la position de la raie principale ($E_c = 22.24$ eV) et deux « bosses » d'intensité faiblement positive de part et d'autre, aux positions où se trouvent les sidebands $SB_{\pm i}$. Cette méthode de soustraction sera donc utilisée pour traiter nos spectres expérimentaux, afin de pouvoir mettre en évidence l'effet du champ d'habillage sur le profil de la raie par la présence simultanée de ces deux structures (creux négatif et « bosses » positives).

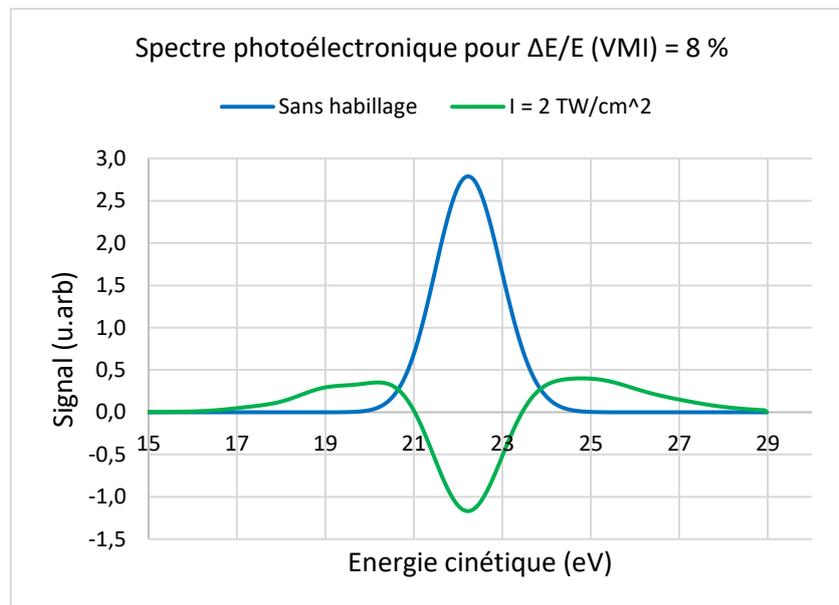


Figure IV-14: Spectre des photoélectrons d'argon avec l'impulsion XUV seule pour une résolution instrumentale du VMI de 8% (en bleu). La courbe qui correspond à la soustraction des spectres XUV+IR – XUV seul (en vert) où une intensité négative est obtenue au niveau de la raie 3p d'argon ($E_c = 22.24$ eV) et des intensités positives aux positions des sidebands de chaque côté de la raie.

IV.2.2. Retard relatif entre l'impulsion XUV injectée et le faisceau d'habillage IR dans l'expérience

Dans les simulations présentées dans la partie I, nous avons montré l'évolution des spectres de photoélectrons en fonction du retard relatif $\Delta t_{XUV/IR}$ entre le pic de l'impulsion XUV injectée cohérente et le maximum de l'impulsion d'habillage infrarouge. Le retard $\Delta t_{XUV/IR} = 0$ correspondait à la synchronisation de ces deux impulsions (voir Figure IV-1 (c)). Dans l'expérience, nous ne connaissons pas a priori la position temporelle de l'impulsion XUV cohérente dans le profil du laser XUV injecté qu'on cherche à caractériser. Nous utilisons donc comme référence temporelle $\Delta t_{XUV/IR}^{exp} = 0$ la synchronisation entre l'impulsion IR qui génère les harmoniques et l'impulsion IR d'habillage. Cette

synchronisation peut être mesurée à la sortie du VMI. L'impulsion IR qui génère les harmoniques est elle-même synchrone avec l'harmonique XUV qui est injectée à l'entrée du plasma amplificateur. Par contre, comme déjà discuté dans le chapitre I, les simulations numériques basées sur un formalisme Bloch-Maxwell [165] [166] [167] ont montré que l'harmonique injectée n'est pas amplifiée immédiatement mais qu'elle induit une polarisation des dipôles émetteurs et la formation d'un signal d'amplification cohérente décalé temporellement par rapport à l'harmonique. Ceci est illustré sur la Figure IV-15, tirée de [167], qui représente le profil temporel calculé de l'intensité du champ résonnant XUV, à différentes positions le long de son amplification dans le plasma.

L'harmonique incidente est injectée à l'instant $t=0$ ps, mais son intensité reste quasi-constante au cours de sa propagation, alors que se forme peu après l'impulsion l'amplification cohérente. Le décalage entre les deux impulsions est d'environ 1 ps. Même si la valeur de ce décalage dépend de plusieurs paramètres (densité du plasma, coefficient de gain, ...), ces simulations nous fournissent un ordre de grandeur du décalage attendu entre le retard $\Delta t_{XUV/IR}^{exp} = 0$ que nous fixons dans les expériences (calé sur l'harmonique injectée) et le retard $\Delta t_{XUV/IR} = 0$ de nos simulations (calé sur l'harmonique amplifiée). Finalement, le retard $\Delta t_{XUV/IR} = 0$ fs pour lequel l'effet d'habillage est maximum dans les simulations devrait correspondre à $\Delta t_{XUV/IR}^{exp} \sim 1$ ps dans l'expérience.

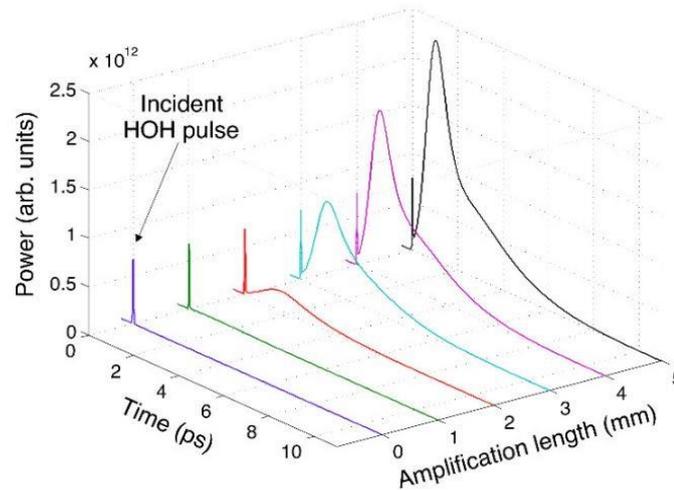


Figure IV-15: Calcul 3D du profil temporel du champ XUV résonnant à plusieurs positions le long de son amplification dans le plasma. L'harmonique incidente injectée à l'instant $t=0$ ps, produit derrière elle un signal d'amplification cohérente décalé de ~ 1 ps. Figure tirée de [167].

IV.2.3. Durée d'habillage 50 fs – Normalisation du signal

Nous commençons par présenter les résultats de la série de spectres de photoélectrons obtenus pour une durée de l'impulsion d'habillage IR $\tau_{IR} = 50$ fs. Pour cette série, l'énergie de l'impulsion IR était de 0.62 mJ. Le diamètre de l'iris utilisé pour modifier l'intensité de cette impulsion était de 3mm, correspondant à une tâche focale mesurée de 770 μm de diamètre au centre du VMI. L'intensité maximum du champ d'habillage était donc de l'ordre de 2.6 TW/cm². La durée IR de 50 fs nous permet d'avoir en principe une meilleure résolution pour « accrocher » et sonder le pic intense correspondant à l'harmonique amplifiée, ce qui est le but principal de cette expérience.

Dans ces conditions, nous avons fait varier le retard relatif $\Delta t_{XUV/IR}^{exp}$ entre 0 fs et 2 ps par pas de 330 fs. La Figure IV-16 montre une partie des spectres bruts obtenus par le spectromètre VMI, ainsi que les spectres inversés par pBASEX* correspondants, dans le cas sans habillage (a, b) et avec habillage pour trois retards $\Delta t_{XUV/IR}^{exp}$: 660 fs (c, d), 990 fs (e, f) et 1320 fs (g, h). Ces retards sont proches de la valeur de 1 ps où devrait se situer l'impulsion XUV cohérente et où l'effet d'habillage maximal est attendu. Les images des spectres bruts sont des moyennes de plusieurs images individuelles, chacune ayant été obtenue en accumulant 3 ou 5 tirs laser. Finalement chaque image correspond à la moyenne de 16 tirs laser. La direction de polarisation du laser XUV injecté et du faisceau IR d'habillage est indiquée par les flèches bleu et rouge respectivement. A première vue, en comparant les images expérimentales avec habillage à celle sans habillage, on n'observe pas de signal supplémentaire à l'extérieur de la raie principale, qui pourrait indiquer l'existence de sidebands.

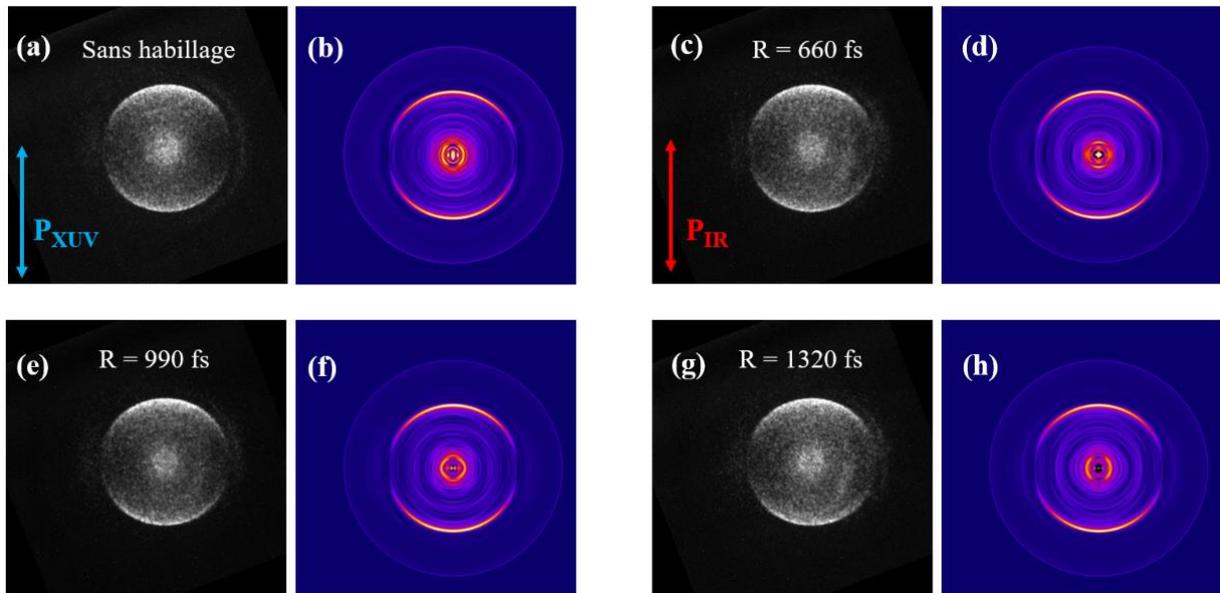


Figure IV-16 : Spectres bruts (à gauche en N&B) et inversés par pBASEX* (à droite en couleur) de photoélectrons issus de l'ionisation ($3p$) de l'argon à 38 eV par l'impulsion XUV seule (a et b) et en présence d'une impulsion d'habillage IR de durée 50 fs et d'intensité 2.6 TW/cm² pour différents retards $\Delta t_{XUV/IR}^{exp}$: 600 fs (c, d) ; 990 fs (e, f) et 1320 fs (g, h). La direction de polarisation des deux impulsions XUV et IR est indiquée par les flèches bleu et rouge respectivement. Paramètres VMI : $V_1 = 3.5$ kV ; $V_2/V_1 = 0.94$; $V_4/V_1 = 0.83$; $V_{MCP} = 1180$ V ; $V_{phosphore} = 4.3$ kV. Gaz cible : argon, $P = 6.8 \cdot 10^{-6}$ mbar ; $Z_{aig} = 4$ mm.

Afin de vérifier plus quantitativement l'existence éventuelle d'une trace de ces sidebands, on effectue une intégration angulaire du signal sur les quatre spectres inversés de la Figure IV-16. Les spectres intégrés angulairement obtenus sont présentés dans la Figure IV-17. Par rapport à la raie principale située à une énergie cinétique de 22,24 eV les sidebands sont attendues aux positions suivantes : SB_{+1} à 23.79 eV, SB_{+2} à 25.34 eV, SB_{-1} à 20.69 eV et SB_{-2} à 19.14 eV. En comparant les spectres de la Figure IV-16, on remarque que l'intensité du signal au maximum de la raie principale varie d'un spectre à l'autre, et que l'intensité la plus faible est obtenue pour le spectre sans habillage, ce qui est physiquement incohérent. Ceci est dû en fait à la fluctuation du nombre de photons du laser XUV d'un tir à l'autre, qui modifie le nombre total de photoélectrons détectés. Pour tenir compte de cette

variation il est donc essentiel de normaliser les spectres avant de les comparer, en s'appuyant sur le fait que le nombre total de photoélectrons doit rester constant lorsqu'on ajoute le champ d'habillage. Nous allons préciser la méthode que nous avons suivie.

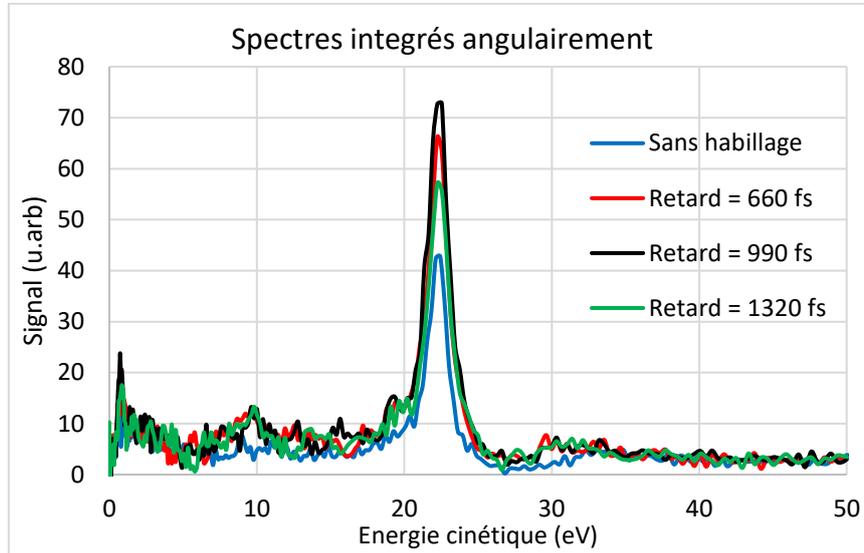


Figure IV-17 : Spectres inversés de la Figure IV-16 après intégration angulaire, montrant la raie de photoélectrons à 22,24 eV dans le cas sans habillage (bleu) et avec habillage pour les trois retards indiqués. L'intensité du signal pour le cas sans habillage est plus faible, illustrant la nécessité de normaliser les images.

Pour prendre en compte la fluctuation tir à tir du laser XUV, on veut normaliser les spectres de photoélectrons avec habillage au spectre sans habillage à partir du rapport du signal total intégré sur toute l'image. Pour éviter d'inclure du signal qui ne serait pas directement corrélé à l'intensité de l'impulsion XUV, on utilise les spectres inversés et on retire la contribution du centre du spectre, où peut se manifester l'effet de l'impulsion IR par des processus ATI. La méthode utilisée pour calculer le facteur de normalisation N est illustrée sur la Figure IV-18. Pour chacune des images moyennes de spectre inversé d'une série donnée, à l'aide du logiciel ImageJ, on mesure le signal de photoélectrons intégré dans chacune des deux zones délimitées par les cercles jaunes : soit S_a en (a) et S_b en (b). On calcule ensuite la différence $S_a - S_b$ qui nous donne le signal de la raie principale intégré sur un intervalle d'énergie qui englobe les sidebands. L'image « XUV » correspondant au cas sans habillage étant prise comme référence, on renormalise ensuite chaque image moyenne avec habillage, pour un retard Δt_i donné, en divisant le signal par le facteur $N(\Delta t_i) = \frac{(S_a - S_b)\Delta t_i}{(S_a - S_b)_{XUV}}$. Pour les retards $\Delta t = 660$ fs, 990 fs et 1320 fs, on trouve un coefficient de normalisation N égal à 1.6, 1.8 et 1.4 respectivement. Avec cette normalisation des images on assure donc que le signal total, correspondant aux photoélectrons libérés par l'impulsion XUV, reste inchangé, sans ou avec la présence de l'impulsion d'habillage IR, permettant ainsi leur comparaison quantitative.

Puisque l'effet du champ d'habillage doit être maximal dans la direction de polarisation de l'impulsion d'habillage IR ($\theta = 0^\circ$), on trace le profil des spectres normalisés dans cette direction, comme indiqué sur l'image de la Figure IV-18 (c). La Figure IV-19 montre les profils obtenus dans l'intervalle $E_c =$

[12-30 eV]. Comme prévu, après normalisation, les profils apparaissent très proches. Pour comparer de façon plus fine les différents spectres et en particulier rechercher la trace éventuelle d'un effet d'habillage sur le profil spectral, nous allons effectuer des soustractions, comme discuté dans la section III.2.1.

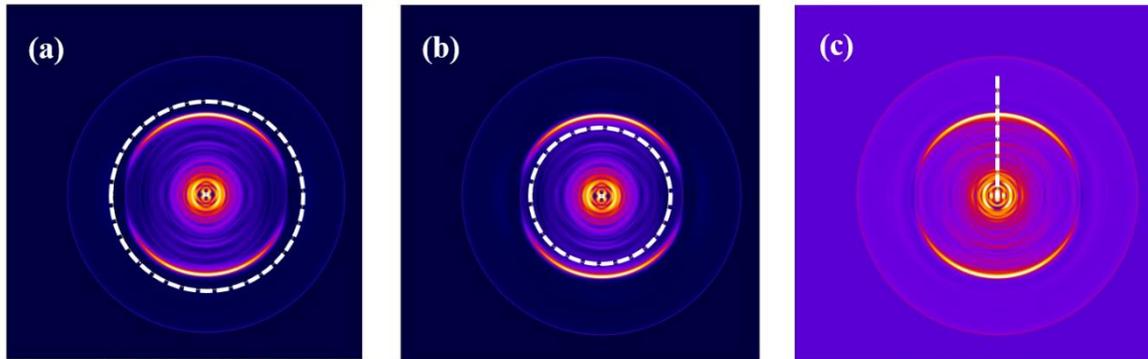


Figure IV-18: Zones d'intégration (cercles jaunes en (a) et (b)) utilisées pour mesurer le signal total dans la couronne englobant la raie principale et les sidebands, puis calculer le facteur de normalisation $N(\Delta t_i)$ des images avec habillage par rapport à l'image sans habillage. (c) le profil spectral est ensuite mesuré suivant la direction de polarisation du faisceau d'habillage ($\theta = 0^\circ$) selon la petite ligne en pointillés jaune de largeur 20 pixels.

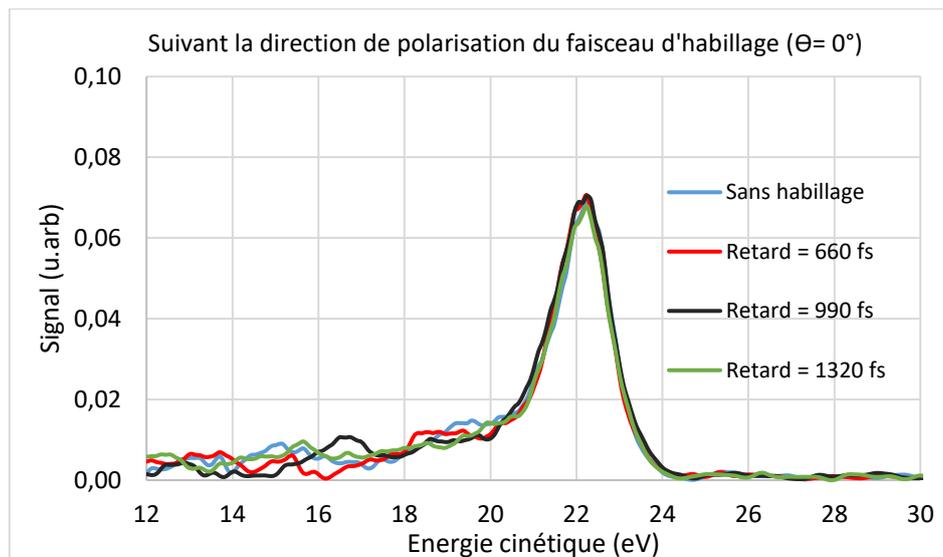


Figure IV-19 : Profil des spectres tracés à $\theta = 0^\circ$, suivant la direction de polarisation. Les spectres avec habillage ont été préalablement normalisés au spectre sans habillage (voir texte). Coefficient de normalisation : $N(660 \text{ fs}) = 1,6$; $N(990 \text{ fs}) = 1,8$; $N(1320 \text{ fs}) = 1,4$. La raie principale est maximum à $E_c = 22,24 \text{ eV}$, les positions des premières sidebands sont : SB+1 à $23,79 \text{ eV}$, SB+2 à $25,34 \text{ eV}$, SB-1 à $20,69 \text{ eV}$ et SB-2 à $19,14 \text{ eV}$.

Pour cela nous nous soustrayons à chaque image (normalisée) avec habillage à un retard donné l'image sans habillage, comme illustré sur la Figure IV-20. La Figure IV-21 montre les profils spectraux des images soustraites, comparés au profil du spectre sans habillage. On voit que pour les trois retards considérés, la différence des signaux est proche de zéro, avec des oscillations qui nous paraissent trop proches du bruit pour pouvoir conclure autre chose qu'en l'absence de trace de l'effet d'habillage.

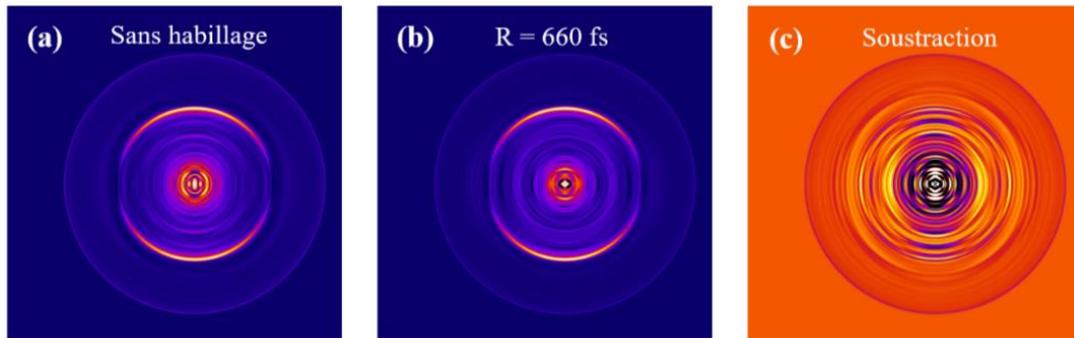


Figure IV-20 : Spectre inversé (a) sans habillage ; (b) avec habillage (normalisé) et (c) soustraction (b-a), pour une durée d'habillage IR 50 fs.

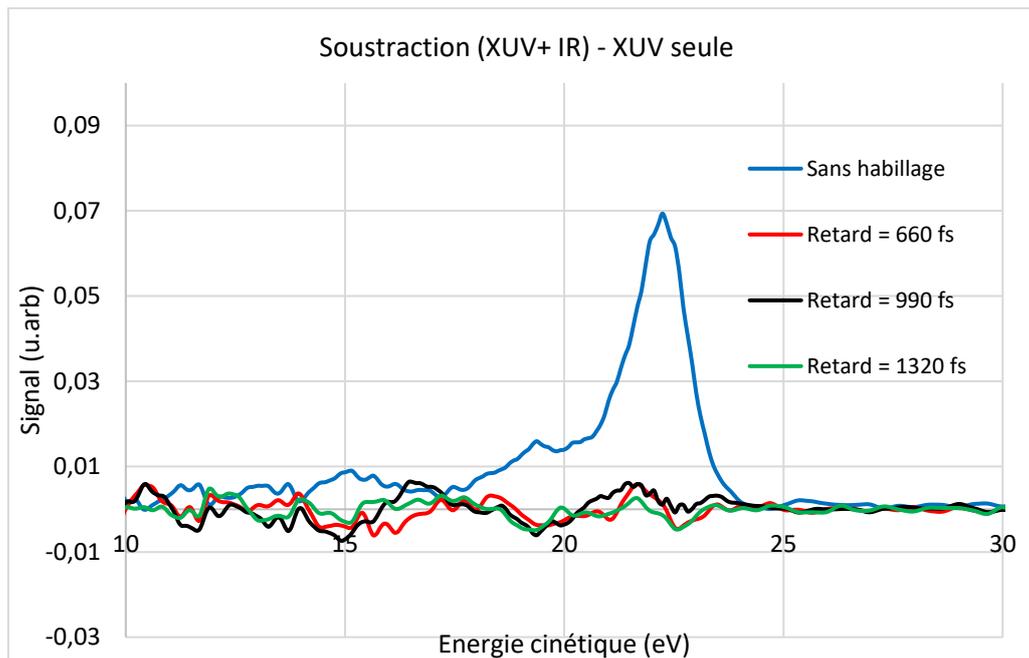


Figure IV-21 : Profil des spectres tracés à $\theta=0^\circ$, suivant la direction de polarisation sur l'image sans habillage, et sur les images avec habillage soustraites, comme indiqué dans la figure IV-21 (c). La raie principale est maximum à $E_c= 22,24$ eV, les positions des premières sidebands sont : SB+1 à 23.79 eV, SB+2 à 25.34 eV, SB-1 à 20.69 eV et SB-2 à 19.14 eV.

Devant la difficulté à mettre en évidence l'effet d'habillage pendant l'expérience, nous avons choisi d'augmenter la durée d'impulsion IR, pour augmenter le nombre de photoélectrons subissant son effet dans le signal total. Nous présentons dans la section suivante les résultats obtenus pour une durée de 900fs.

IV.2.4. Durée d'habillage 900 fs - Mise en évidence de sidebands

En passant de 50 fs à 900 fs, on cherche à augmenter la proportion de photoélectrons libérés par l'impulsion XUV en présence du champ d'habillage, par rapport à ceux libérés avant et après l'impulsion d'habillage. Cette durée d'habillage plus longue permet également de relaxer la contrainte de synchronisation entre l'impulsion IR et le pic d'amplification cohérente du laser XUV injecté qu'on cherche à « accrocher ». D'un autre côté, la durée d'habillage plus longue entraîne une diminution de la résolution temporelle ainsi qu'une perte de contraste dans les mesures. Notre but en augmentant la durée de l'impulsion d'habillage à 900 fs n'était donc pas de chercher de résoudre temporellement le pic

d'amplification cohérente, mais de maximiser l'effet d'habillage lorsque ces deux impulsions sont synchronisées. L'augmentation de 50 fs (meilleure compression) à 900 fs a été obtenue en changeant légèrement la distance entre les réseaux du compresseur, tout en contrôlant la durée obtenue avec un autocorrélateur, et en compensant avec la ligne à retard située en amont du compresseur (voir Figure IV-7) le changement de retard induit.

Pour cette durée d'impulsion d'habillage, nous avons effectué des mesures pour différentes intensités du faisceau IR, en variant son énergie à l'aide de l'iris positionné avant la lentille de focalisation du faisceau d'habillage au centre du spectromètre VMI (voir Figure IV-7). Pour les séries présentées dans cette section, l'énergie maximale du faisceau IR (iris en pleine ouverture) a été augmentée jusqu'à 2,7mJ. Le Tableau IV-2, regroupe les différents paramètres du faisceau d'habillage IR d'une durée de 900 fs mesurés pour les différentes ouvertures d'iris utilisées.

Ouverture d'iris (mm)	Diamètre tache focale (μm)	Energie mesurée (mJ)	Intensité (TW/cm^2)
3 mm	770	0.9	0.22
4 mm	620	1.4	0.5
8 mm	390	2.55	2.4

Tableau IV-2 : Paramètres du faisceau d'habillage IR d'une durée de 900 fs pour différentes ouvertures de l'iris.

IV.2.4.1. Intensité d'habillage 2,4 TW/cm^2

Nous présentons d'abord les résultats obtenus pour une ouverture d'iris à 8mm, correspondant à une intensité du champ d'habillage de 2.4 TW/cm^2 , similaire à la série que nous venons de présenter pour une durée de 50 fs. On peut ainsi comparer au moins qualitativement l'effet de l'augmentation de la durée du faisceau d'habillage sur la modification du spectre de photoélectrons. Pour cette intensité, seuls deux valeurs de retard $\Delta t_{\text{XUV/IR}}^{\text{exp}}$ ont pu être étudiées : 660 fs et 990 fs.

La Figure IV-22, montre les images des spectres bruts (à gauche) obtenus et les spectres inversés par pBASEX* correspondants (au centre), sans habillage (a et b) et avec habillage IR pour $\Delta t_{\text{XUV/IR}}^{\text{exp}} = 660$ fs (c et d) et $\Delta t_{\text{XUV/IR}}^{\text{exp}} = 990$ fs (e et f). Chaque image est une moyenne de 10 images individuelles, chacune étant obtenue à partir de l'accumulation de 10 tirs successifs. Une image est donc le résultat de 100 tirs effectués dans les mêmes conditions. A première vue, la présence des sidebands n'apparaît pas de façon évidente sur les images (c, d) ou (e, f). On observe par contre sur ces images l'apparition d'un signal intense au centre du spectre, très probablement dû à la présence de processus ATI. Ceci permet d'une certaine façon de distinguer clairement la présence de l'impulsion d'habillage IR dans les spectres de photoélectrons obtenus. Nous avons appliqué aux images de la Figure IV-22 (b, d et f) les mêmes traitements de normalisation et de soustraction que ceux décrits dans la précédente section pour l'impulsion d'habillage IR de 50 fs.

Pour les deux retards étudiés, les coefficients de normalisation suivants ont été mesurés et utilisés: $N(600 \text{ fs}) = 1,21$; $N(990 \text{ fs}) = 1,18$. Après normalisation, le spectre inversé sans habillage a été soustrait des spectres inversés avec habillage, donnant les images soustraites montrées sur la Figure IV-22 (g et h). Les profils spectraux, tracés le long de la direction de polarisation du faisceau d'habillage IR ($\theta = 0^\circ$) sur les images normalisées sont présentés dans la Figure IV-23 (a). La position des premières sidebands SB_{-1} ($E_c = 20,69 \text{ eV}$) et SB_{+1} ($E_c = 23,79 \text{ eV}$), de part et d'autre de la raie principale à $E_c = 22,24 \text{ eV}$, est indiquée par les flèches orange.

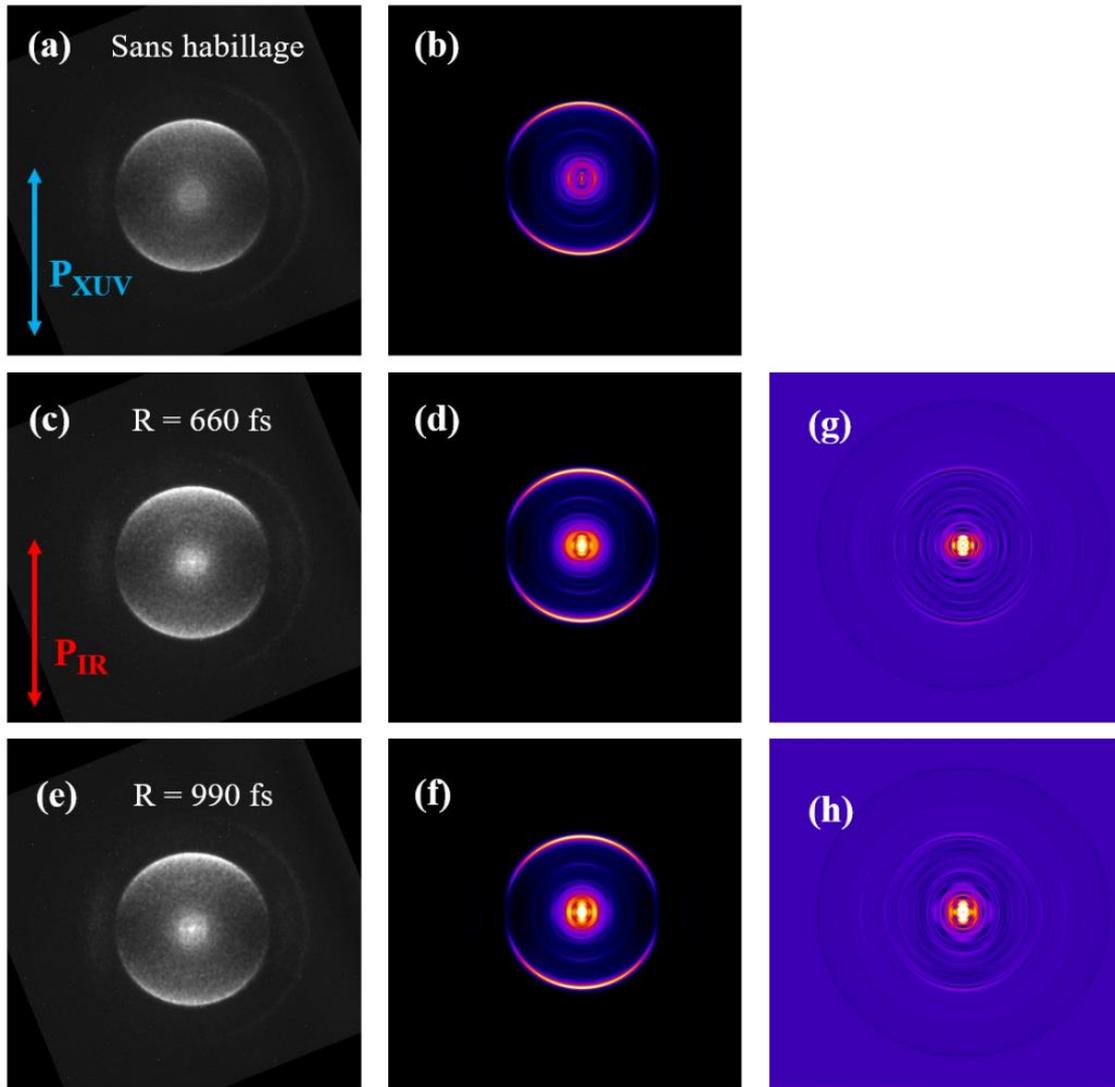


Figure IV-22: Spectres bruts (à gauche) et inversés (au centre) des photoélectrons obtenus lors de l'ionisation (3p) de l'argon à 38 eV par l'impulsion laser XUV seule (a et b) et en présence de l'impulsion d'habillage IR de durée 900 fs et d'intensité 2.4 TW/cm². (c et d) pour un retard relatif XUV/IR R = 660 fs et en (e et f) pour R = 990 fs. A droite, l'image soustraite avec et sans habillage des images inversées (après normalisation) pour R = 660 fs en (g) et R = 990 fs en (h). La direction de polarisation des faisceaux XUV et IR indiquée par les flèches bleu et rouge respectivement. Paramètres du spectromètre VMI : $V_1 = -4 \text{ kV}$, $V_2/V_1 = 0.94$ et $V_4/V_1 = 0.83$; $V_{MCP} = 1180 \text{ V}$ (avec pulseur) ; $V_{phosphore} = 4.5 \text{ kV}$. Gaz cible : argon, $P \sim 6 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$; $Z_{aig} = 4 \text{ mm}$.

Nous pouvons voir que, par rapport au signal du spectre sans habillage, le signal est légèrement plus fort à la position SB_{-1} et surtout SB_{+1} , et corrélativement plus légèrement plus faible au maximum de la raie principale, et ce pour les deux retards représentés. Ce comportement peut être également observé sur les

images soustraites de la Figure IV-22 (g) et (h) (représentées avec la même échelle de couleur). A la position de la raie principale on remarque, dans la direction de polarisation et sur un petit intervalle angulaire autour de cette direction, une zone plus sombre qui correspond à des valeurs négatives du signal soustrait, c'est à dire à une diminution de l'intensité de la raie principale pour le spectre avec habillage. De part et d'autre de cette zone sombre, et surtout à l'extérieur, on remarque une zone plus claire qui correspond à des valeurs positives, c'est à dire à une augmentation du signal à la position attendue des sidebands.

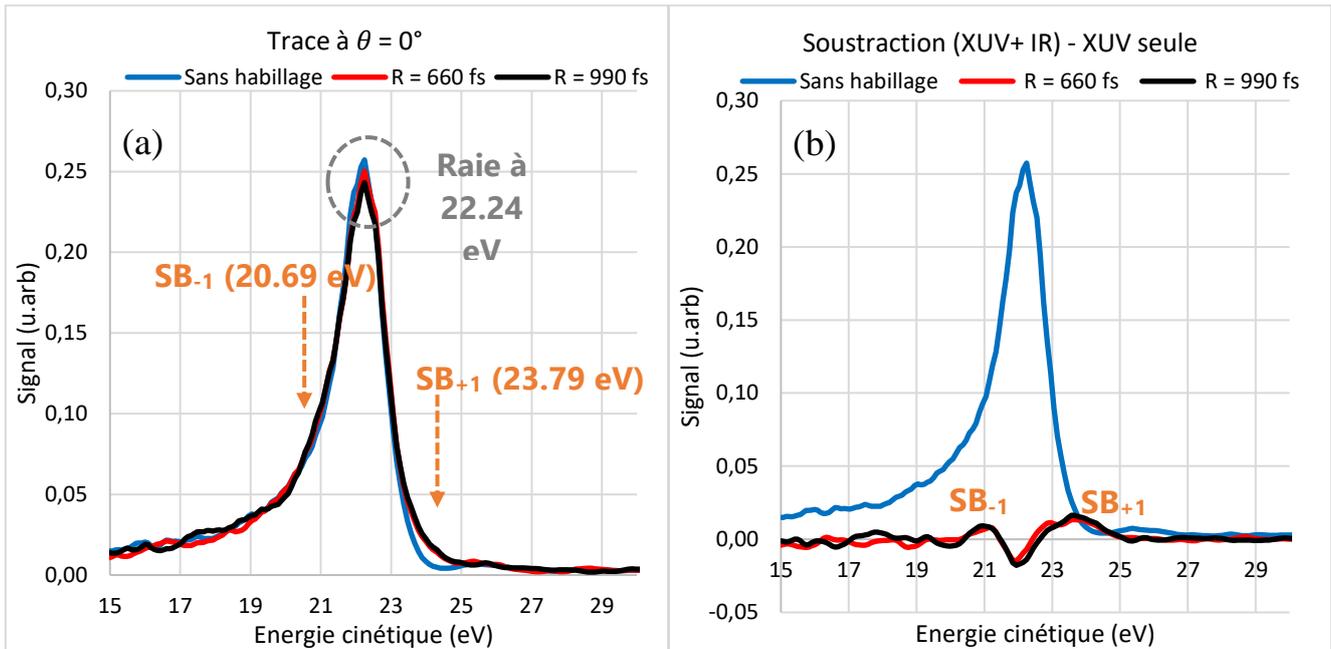


Figure IV-23: Profil des spectres (après normalisation) tracés à $\theta = 0^\circ$ (a) à partir des images sans habillage (Fig. IV-22 (b)) et avec habillage (Fig. IV-22 (d et f)); (b) à partir de l'image sans habillage et des images avec habillage soustraites (Fig. IV-22 (g et h)). La position des sidebands SB+1 et SB-1 est indiquée par les flèches orange.

Enfin sur la Figure IV-23 (b) on a représenté les profils spectraux des images soustraites pour les deux retards, ainsi que le profil spectral de l'image sans habillage, ici encore tracés dans la direction de polarisation ($\theta = 0^\circ$). On voit ici, beaucoup plus clairement que dans le cas 50 fs présenté précédemment, la présence du creux négatif entouré de deux « bosses » positives. Nous pensons que cette structure est la signature de la présence des sidebands induites par l'habillage IR, telle qu'on s'attendait à la voir apparaître compte tenu de la résolution spectrale limitée du VMI (voir les simulations présentées sur la Figure IV-14). Il faut souligner que la résolution angulaire des spectres de photoélectrons fournie par le VMI est ici un atout, qui renforce la fiabilité de notre interprétation, car il nous permet de vérifier que l'effet d'habillage par l'impulsion IR est concentré autour de l'axe de polarisation IR ($\theta = 0^\circ, 180^\circ$), sur un intervalle angulaire plus petit que la variation du signal dû au paramètre d'asymétrie (voir Figure IV-22).

Finalement, le fait que la signature de l'effet d'habillage soit observée pour les retards $\Delta t_{XUV/IR}^{exp} = 600$ fs et 900 fs semble indiquer que l'impulsion d'habillage IR est ici synchronisée avec l'impulsion XUV cohérente amplifiée induite par l'harmonique injectée, même s'il aurait été utile pour le confirmer de

disposer de données pour des retards largement positifs ou négatifs, pour lesquels aucune trace de l’habillage ne devrait être observé. Pour la même durée IR de 900 fs, nous avons par ailleurs fait plusieurs séries d’acquisition pour des intensités d’habillage différentes, pour lesquelles nous disposons de retards supplémentaires.

IV.2.4.2. Intensité d’habillage 0,5 TW/cm²

Nous présentons la série de tirs effectués pour une ouverture d’iris de 4mm, qui correspond à une intensité d’habillage de $\sim 0.5 \text{ TW/cm}^2$ (voir tableau IV-3), i.e. ~ 5 fois plus faible que précédemment. Nous avons appliqué aux images expérimentales les mêmes étapes de traitement que pour la série précédente, en terme de moyenne (100 tirs), d’inversion et de normalisation du signal (à la même image sans habillage que précédemment).

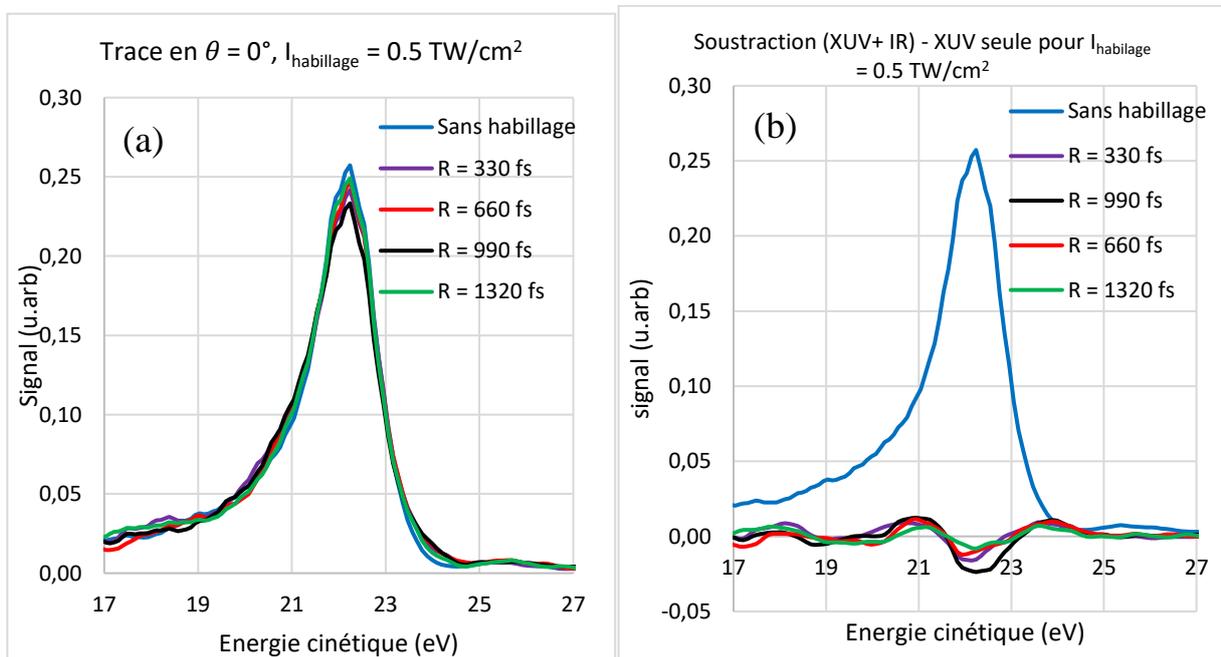


Figure IV-24 : Profil des spectres (après normalisation) tracés à $\theta = 0^\circ$ (a) à partir des images sans habillage et avec habillage; (b) à partir de l’image sans habillage et des images avec habillage soustraites pour 4 valeurs de retard $\Delta t_{\text{XUV/IR}}^{\text{exp}}$. L’intensité d’habillage IR est ici de $0,5 \text{ TW/cm}^2$ pour une durée de 900 fs.

La Figure IV-24 montre les profils spectraux tracés à $\theta = 0^\circ$ pour les spectres sans habillage et avec habillage pour 4 valeurs du retard $\Delta t_{\text{XUV/IR}}^{\text{exp}}$: 330, 660, 990 et 1320 fs. Sur la Figure IV-24 (a) on observe à nouveau que le signal au maximum de la raie principale diminue légèrement lorsqu’on applique le champ d’habillage, pour tous les retards considérés, alors que le signal est légèrement renforcé au pied de la raie. Sur la Figure IV-24 (b) on observe à nouveau la structure caractéristique du creux négatif entouré de deux « bosses » positives sur les profils des images soustraites. De façon intéressante, la structure apparaît la plus prononcée pour le retard $\Delta t_{\text{XUV/IR}}^{\text{exp}} = 990 \text{ fs}$, et la moins prononcée pour $\Delta t_{\text{XUV/IR}}^{\text{exp}} = 1320 \text{ fs}$, ce qui semble confirmer que l’impulsion XUV d’amplification cohérente que nous cherchions à « accrocher » serait synchronisée avec l’impulsion d’habillage pour $\Delta t_{\text{XUV/IR}}^{\text{exp}} = 990 \text{ fs}$. Ces interprétations doivent bien sûr être encore considérées comme préliminaires, mais elles sont une première étape encourageante pour aller plus loin.

IV.2.4.3. Effet de l'intensité d'habillage pour $\Delta t_{XUV/IR}^{exp} = 990$ fs

Pour terminer nous présentons dans la Figure IV-25 les profils spectraux tracés à 0° pour le cas sans habillage, et pour les 3 valeurs d'intensité d'habillage IR que nous avons explorées avec une durée IR de 900 fs, pour le même retard $\Delta t_{XUV/IR}^{exp} = 990$ fs. On peut remarquer que la courbe rouge, correspondant à l'intensité la plus élevée ($2,4 \text{ TW/cm}^2$), est celle pour laquelle l'effet de l'habillage (diminution du signal au sommet de la raie et augmentation sur les pieds) est le plus marqué, par rapport aux intensités plus faibles. Ce comportement est qualitativement cohérent avec ce qui est attendu puisqu'on a vu dans la section I de ce chapitre que le signal de la sideband d'ordre n varie comme $I_{IR}^{\alpha(n, I_{IR})}$.

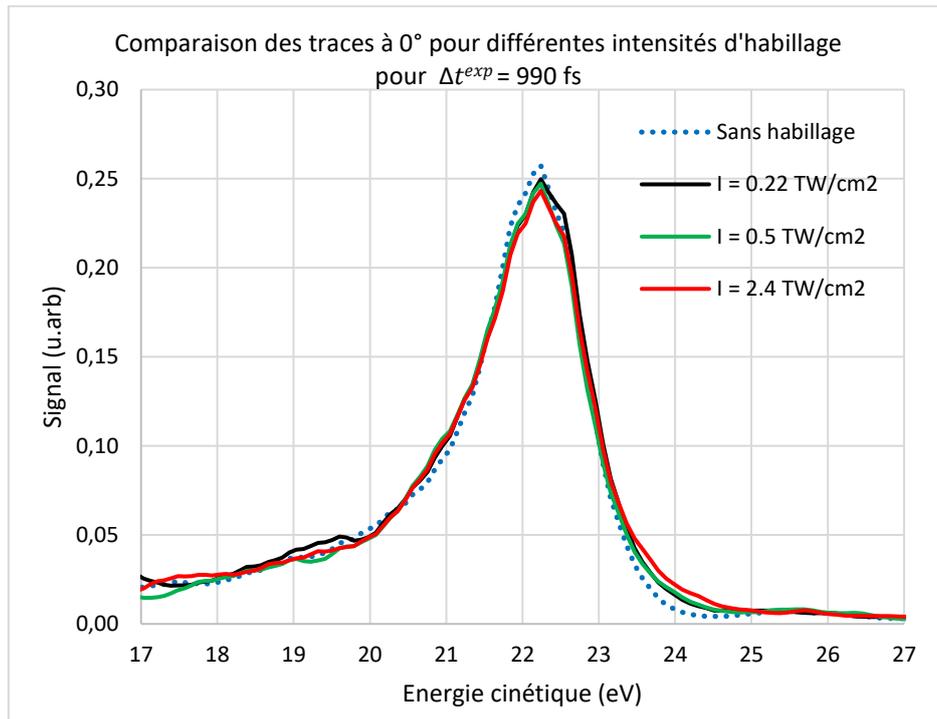


Figure IV-25 : Comparaison des traces à 0° faites sur les images inversées (2D) pour différentes intensités d'habillage d'une durée de 900 fs et pour le même retard $\Delta t_{XUV/IR}^{exp} = 990$ fs.

V. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté une première mise en œuvre expérimentale de la technique de photoionisation habillée par un laser IR, dans le régime sidebands, pour caractériser temporellement, à l'échelle femtoseconde, l'impulsion XUV émise par un plasma amplificateur injecté par une impulsion harmonique d'ordre élevé. Le principe de la méthode a été étudié à l'aide de simulations numériques dans l'approximation du champ fort, présentées dans la section II. D'après ces simulations, nous avons pu qualitativement étudier l'effet du champ d'habillage IR se manifestant par l'apparition des sidebands autour de la raie principale de photoélectrons d'argon. Nous avons également montré comment l'intensité de différents sidebands nous permettait de remonter au profil de l'impulsion XUV et en particulier, à celui de l'harmonique amplifiée dans le plasma du laser XUV injecté.

Dans l'expérience, nous avons réussi à obtenir à l'aide du spectromètre VMI, des spectres de photoélectrons par ionisation de l'argon avec l'impulsion XUV injecté en un seul tir laser ainsi qu'en

accumulant. Toutefois, en raison du signal faible observé en un seul tir, il est apparu nécessaire d'accumuler des tirs successifs pour obtenir des images utilisables pour l'analyse.

La prise en compte de la résolution instrumentale du VMI nous a permis de mettre en évidence l'effet du champ d'habillage dans les spectres photoélectroniques par l'apparition d'un signal faible dans les ailes de la raie principale, aux positions nominales des sidebands, ainsi que corrélativement une diminution du signal au sommet de la raie principale. Ceci a été observé lorsque la durée de l'impulsion IR d'habillage a été augmentée à 900 fs, à plusieurs intensités, et pour un retard XUV-IR proche de 1ps.

Deux points majeurs ont contribué à masquer l'observation de sidebands dans cette expérience et nécessiteront une attention particulière pour de futures expériences:

- La résolution instrumentale du spectromètre VMI, qui était de $\Delta E/E$ 8% (FWHM) pendant la campagne expérimentale, était insuffisante pour séparer les sidebands autour de la raie principale, située à 22,24eV. Des études postérieures à l'expérience ont montré qu'en ajustant plus finement le réglage du VMI, et en remplaçant l'aiguille d'injection du gaz par une vanne pulsée, on pouvait améliorer la résolution jusqu'à ~5-6%.
- La présence d'une impulsion plus longue d'émission ASE, qui accompagne l'impulsion de l'harmonique amplifiée que nous cherchons plus particulièrement à caractériser, est une difficulté supplémentaire. Ceci nous a conduit à augmenter la durée de l'impulsion d'habillage jusqu'à 900 fs pour augmenter la proportion de photoélectrons affectés par le champ d'habillage.

Dans le chapitre suivant nous étudions plus en détail l'effet de la présence de l'émission ASE sur les spectres de photoélectrons que nous avons obtenus et nous proposons une méthode pour quantifier cette contribution, dans le but de la minimiser.

Chapitre V

Effet de la polarisation du rayonnement ionisant sur la distribution angulaire des photoélectrons. Application à l'étude de la contribution du rayonnement non-polarisé sur nos mesures.

I. Introduction

Dans les chapitres III et IV nous avons présenté les campagnes expérimentales que nous avons réalisées pour mettre en œuvre la méthode de photoionisation habillée par laser sur deux sources XUV ultrabrèves différentes, les harmoniques d'ordre élevé générées sur des plasmas de surface, et les lasers XUV à plasma. Pour ces deux types de sources nous avons rencontré des difficultés pour observer l'effet attendu du champ d'habillage sur les spectres de photoélectrons, particulièrement dans le cas des harmoniques générées sur une cible solide. Dans le cas du laser XUV injecté, l'effet bien que faible a pu être mis en évidence. Dans les deux cas nous avons mis en avant le rôle néfaste que pouvait jouer sur nos mesures la contribution d'un rayonnement « de fond » non polarisé : émission thermique du plasma pour les harmoniques relativistes, émission ASE pour les lasers XUV.

Dans le présent chapitre, nous étudions comment la présence de rayonnement non-polarisé, à la même longueur d'onde qu'une source de rayonnement polarisé, modifie la distribution angulaire des photoélectrons émis, et comment cette modification peut être utilisée pour remonter à une estimation de la proportion de rayonnement non-polarisé dans l'impulsion qui ionise le gaz cible. Cette étude concerne plus particulièrement le laser XUV à plasma, mais nous verrons que les résultats que nous avons obtenus pourraient être appliqués à d'autres sources XUV cohérentes et polarisées, sous certaines conditions.

Dans la section II je rappelle d'abord les principales caractéristiques du laser XUV qui ont motivé notre étude. Dans la section III, l'effet de ce rayonnement non polarisé sur la distribution angulaire des photoélectrons, telle que détectée par un spectromètre VMI, est illustré par des simulations numériques. Ces simulations me permettent d'introduire la notion de paramètre d'asymétrie apparent « β_{apparent} » sur le spectre photoélectronique synthétique. Je décris ensuite le modèle simple que nous avons développé pour relier analytiquement le paramètre β_{apparent} au paramètre d'asymétrie atomique β et à la proportion de rayonnement non-polarisé. Dans la section IV je présente la mise en œuvre expérimentale de ce modèle, que nous avons réalisée avec le laser XUV injecté sur l'installation LASERIX. En introduisant un diaphragme sur le trajet du faisceau laser XUV, nous avons pu faire varier la contribution du rayonnement ASE non polarisé envoyé dans notre spectromètre VMI. Les valeurs du paramètre d'asymétrie apparent (β_{apparent}) que nous avons mesurées pour différents états de polarisation du rayonnement XUV sont finalement comparées avec celles calculées par notre modèle analytique.

II. Motivation de l'étude : contribution du rayonnement ASE et habillage

On a vu que les lasers XUV fonctionnant en mode injecté par des harmoniques d'ordre élevé ont des propriétés de cohérence fortement améliorées. Toutefois l'émission ASE qui l'accompagne s'est avérée loin d'être négligeable. On rappelle que l'ASE (amplification d'émission spontanée) est le mode « naturel » des lasers XUV à plasma, dans lequel l'émission spontanée sert de germe à l'amplification du rayonnement à la longueur d'onde de l'inversion de population. Même si l'émission ASE et l'harmonique amplifiée ont des caractéristiques spatiales et temporelles différentes, il reste à ce jour difficile en pratique de se débarrasser totalement de l'une au profit de l'autre. C'est donc dans ces conditions qu'a été réalisée la campagne expérimentale que nous avons décrite au chapitre précédent. Toutefois la difficulté à observer des pics satellites « sidebands » dans les spectres de photoélectrons nous a amené à étudier l'impact de l'ASE sur nos mesures de façon plus quantitative.

La Figure V-1, montre le profil spatial de la tâche focale du faisceau laser XUV à 32,6 nm envoyée dans notre spectromètre VMI, enregistrée par la caméra CCD XUV (voir chapitre IV, figure IV-6). Rappelons que la tâche focale est obtenue en imageant le plan de sortie de la colonne de plasma amplificateur à l'aide d'un miroir sphérique multicouche, en incidence quasi-normale, avec un grandissement de ~ 10 . Le rayonnement arrivant sur le détecteur CCD est filtré spectralement par la réflexion sur les deux miroirs multicouches (plan et sphérique), qui ne réfléchissent vers le VMI qu'une bande spectrale étroite $\Delta\lambda \sim 1\text{nm}$. En (a) le laser XUV fonctionne en mode ASE et en (b) en mode injecté. En insert dans la partie gauche de chacune des images, on voit les tâches focales lorsque le faisceau XUV est bien focalisé au centre du spectromètre VMI. Afin de visualiser la structure du laser XUV dans les deux modes de fonctionnement, ASE et injecté, tout en évitant de saturer le détecteur, le faisceau a été légèrement défocalisé pour enregistrer les deux images principales de la Figure V-1.

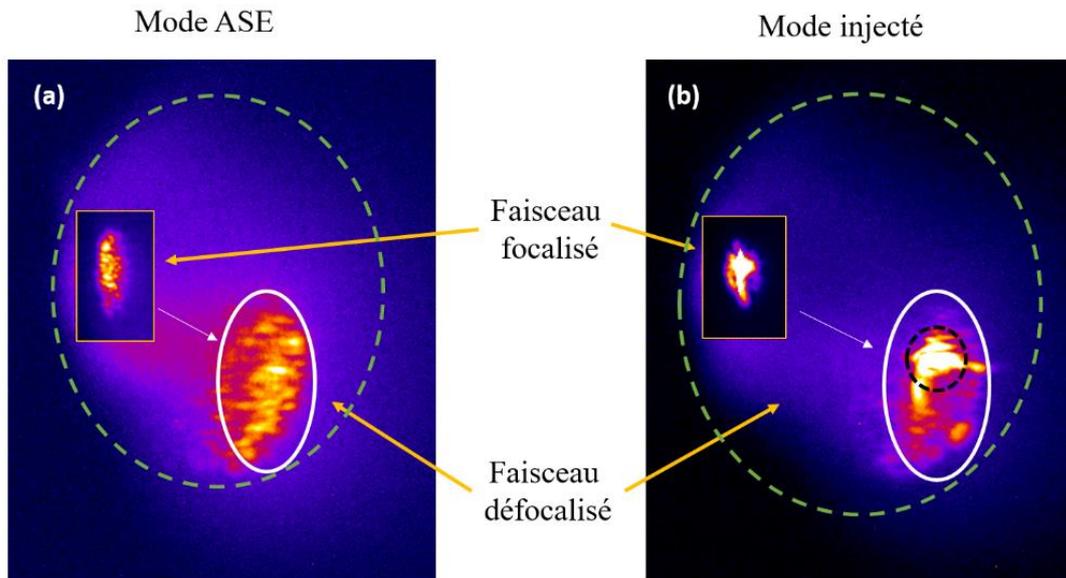


Figure V-1: Profil spatial de la tâche focale du laser XUV à base de plasma fonctionnant en mode ASE (a) et injecté (b). Les deux petites illustrations représentent la tâche focale lorsque le faisceau a été focalisé au centre du VMI. Les cercles sur la tâche défocalisée représentent les différentes contributions du signal provenant de la partie injectée (en noir), de l'émission ASE (en blanc) et de l'émission thermique du plasma (en vert).

Différentes zones peuvent être distinguées dans la tâche focale du laser XUV: dans l'image (b), la partie la plus intense, entourée par les pointillés noirs, n'est présente qu'en mode injecté et provient de l'harmonique amplifiée dans le plasma. Cette tâche est entourée par une zone plus large (soulignée par le cercle blanc), relativement intense et présente dans les deux images (a) et (b). Elle provient de l'amplification d'émission spontanée et a une structure caractéristique composée de structures intenses dues à la cohérence spatiale partielle de l'ASE. Enfin une troisième partie moins intense, plus uniforme mais beaucoup plus large (tirets verts) provient de l'émission thermique du plasma produit. Nous verrons un peu plus loin que ces images spatiales permettent de faire une première évaluation de la proportion de rayonnement non polarisé (ASE + émission plasma) envoyée dans le spectromètre VMI.

En ce qui concerne le profil temporel, nous nous appuyons sur les prédictions de simulations numériques précédemment réalisées avec le code COLAX [168]. Ce code, basé sur la résolution des équations de Bloch-Maxwell, calcule l'amplification d'une impulsion XUV femtoseconde, représentant l'harmonique injectée, dans un plasma amplificateur dans lequel une inversion de population a été générée. La Figure V-2 (a) montre le profil temporel de l'intensité du champ électrique associé à l'émission amplifiée XUV, à la sortie du plasma amplificateur. Comme déjà expliqué au chapitre I, l'harmonique induit une réponse du plasma (à travers la densité de polarisation du dipôle de la transition atomique) qui génère des oscillations de Rabi, correspondant à la succession de pics intenses, de durée typique ~ 10 - 100 fs qu'on voit à l'instant $t \sim -2,5$ ps. Ces oscillations sont ensuite suivies d'une émission décroissante, appelée sillage cohérent, dont la durée correspond au temps de dépolarisation du dipôle, de l'ordre d'une à quelques ps. Enfin cette émission, cohérente et polarisée, se superpose à un fond ASE moins intense, de durée beaucoup plus longue. Pour les lasers XUV collisionnels pompés dans le régime transitoire, cette durée ASE est de l'ordre de ~ 2 - 10 ps [47]. Notons que l'émission thermique du plasma n'est pas incluse dans la simulation de la Figure V-2 (a). Sa durée dépend des conditions de génération du plasma, elle est dans tous les cas plus longue que la durée du laser XUV et peut s'étendre sur une centaine de picosecondes.

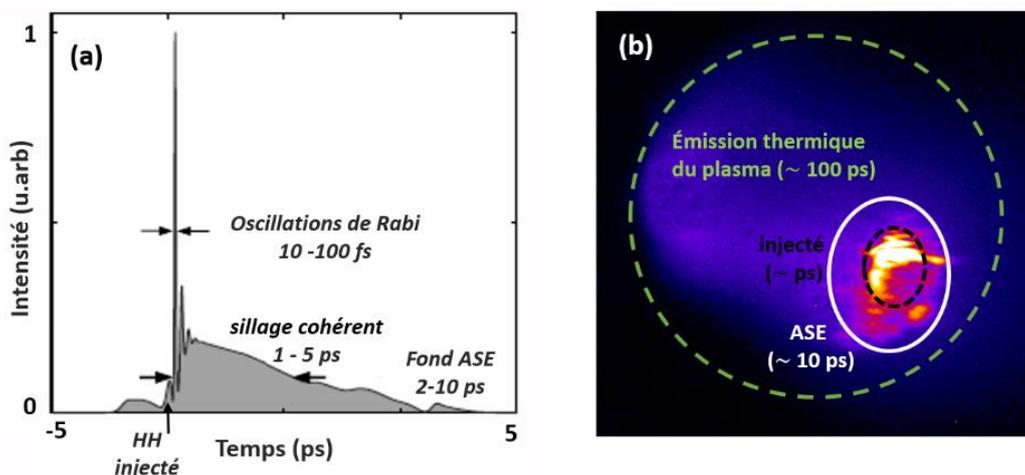


Figure V-2: (a) profil temporel du laser XUV fonctionnant en mode injecté prédit par des simulations numériques, (b) le profil spatial composé des différentes contributions du signal avec la durée typique de chacun.

En revenant au profil spatial de la tâche focale XUV, rappelé sur la Figure V-2 (b), on voit donc que la partie la plus intense est la plus brève, de l'ordre de la picoseconde. Le fond ASE qui l'entoure dure, lui, une dizaine de picosecondes, tandis que l'émission thermique du plasma dure une centaine de ps. Il est à noter que cette émission thermique est émise dans toutes les directions, et donc seule une petite partie est interceptée et réfléchi par le miroir sphérique multicouche utilisé pour focaliser le faisceau XUV dans le spectromètre VMI.

Pour illustrer l'effet de la présence de ce fond ASE sur l'observation des sidebands dans les spectres photoélectroniques, en présence d'un champ d'habillage IR, nous avons utilisé le code Matlab, déjà utilisé et décrit dans les chapitres III et IV. Avec le même principe des simulations montrées dans la partie II du chapitre IV, les spectres de photoélectrons résultant de l'ionisation d'un gaz cible par une impulsion XUV, en présence d'une impulsion laser d'habillage IR sont calculés.

Nous rappelons les paramètres d'entrée des simulations présentées dans le chapitre IV et celle décrite ci-dessous. Ces simulations ont été effectuées pour un rayonnement à $h\nu = 38$ eV (laser XUV à titane néonoïde) et un gaz cible d'argon caractérisé par un potentiel d'ionisation $I_p = 15.76$ eV et un paramètre d'asymétrie $\beta = 1.85$ pour une énergie de photon de 38 eV. Le profil temporel de l'impulsion laser XUV injecté, avec et sans fond ASE, a été modélisé de façon simplifiée par un pic (injecté) d'une durée de 30fs, superposé (ou non) à un piédestal (ASE) d'une durée 10 fois plus grande, soit 300 fs. Pour l'habillage, nous avons utilisé une impulsion IR de longueur d'onde 800 nm (période 2.67 fs), de durée 15fs et d'intensité égale à 2 TW/cm^2 . Les résultats sont présentés dans la Figure V-3, qui montre les spectres de photoélectrons (intégrés angulairement) pour trois conditions d'excitation différentes, représentées sur les panneaux du haut.

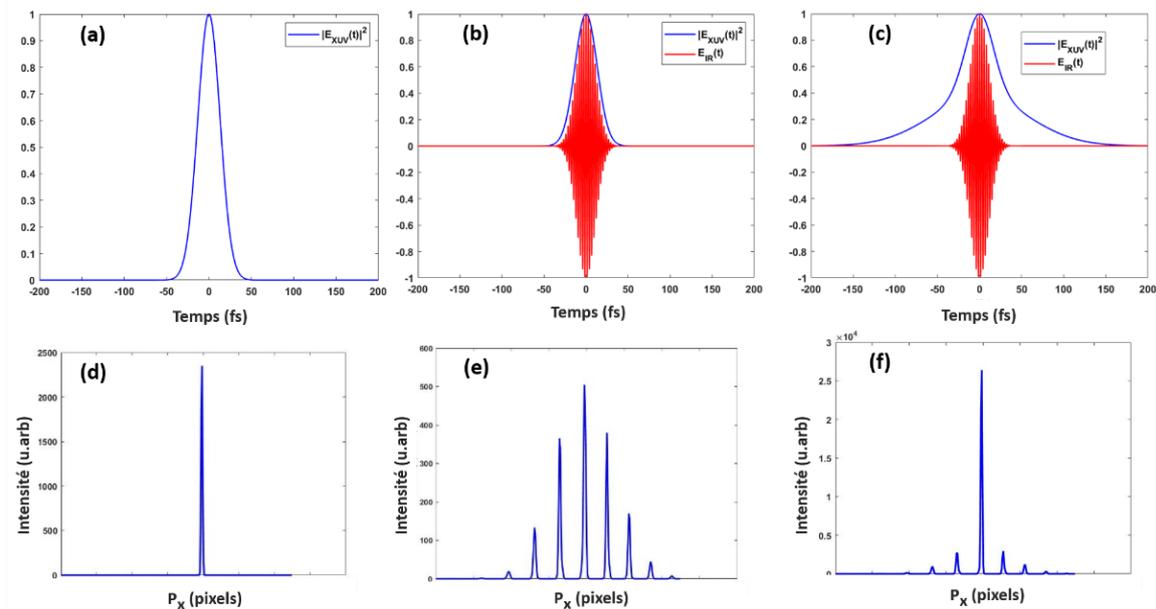


Figure V-3 : Simulations numériques montrant l'influence de la présence du fond ASE sur l'intensité relative des sidebands. En haut, les impulsions XUV (en bleu) et IR d'habillage (en rouge) et en bas les spectres des photoélectrons correspondants. L'impulsion XUV est constituée du pic injecté uniquement en absence du champ IR (en a), en présence de l'impulsion IR (b) et du pic injecté avec un fond d'ASE en (c).

En (a), l'impulsion XUV est constituée uniquement du pic de 30 fs (injecté), ce qui conduit au spectre (d) de photoélectrons, constitué d'une seule raie à une énergie cinétique de 22,24 eV. En (b) l'impulsion d'habillage IR est synchronisée avec l'impulsion XUV, ce qui conduit à l'apparition de sidebands de chaque côté de la raie dans le spectre (e). Le rapport entre l'intensité de la première sideband et celle de la raie principale est de l'ordre de 0,75. Enfin en (c) l'impulsion d'habillage est toujours présente au même instant, mais l'impulsion XUV est constituée de l'impulsion principale de 30 fs et du piédestal ASE de 300 fs. On voit sur le spectre (f) que les sidebands sont toujours présentes, mais que le rapport d'intensité avec le pic principal a diminué fortement pour atteindre une valeur de 0,11. Cette diminution de l'intensité relative des sidebands provient du fait que l'impulsion d'habillage utilisée est beaucoup plus courte que l'impulsion XUV ionisante. Ces résultats illustrent, au moins qualitativement, que dans nos expériences la présence du fond ASE dans le signal de l'impulsion du laser XUV injecté rend plus difficile l'observation des sidebands dans les spectres des photoélectrons. Il est donc particulièrement important de réduire au maximum la proportion du fond ASE dans le faisceau laser XUV injecté envoyé dans le spectromètre VMI.

Nous avons vu que l'émission ASE et l'harmonique amplifiée différaient par leur profil spatial et temporel. Elles diffèrent également par leur état de polarisation. En effet, plusieurs travaux expérimentaux [53] et théoriques [59] ont montré que la polarisation (linéaire ou circulaire) de l'harmonique injectée dans le plasma laser XUV était conservée au cours de son amplification. Comme on le verra plus loin, dans nos expériences sur l'installation LASERIX, la polarisation linéaire de l'impulsion harmonique pouvait être changée de p (parallèle au plan d'incidence des miroirs = direction horizontale dans notre montage) à s (perpendiculaire au plan d'incidence = direction verticale) en faisant tourner la polarisation du laser générateur à l'aide d'une lame demi-onde. La polarisation de l'harmonique amplifiée pouvait donc être changée de p à s.

Par contre, parce que provenant de l'émission spontanée par les ions du plasma, ni le rayonnement thermique, ni le rayonnement ASE ne sont polarisés. De sorte que l'impulsion laser XUV obtenue en mode injecté, qui est focalisée dans le spectromètre VMI pour ioniser le gaz cible, est un mélange de rayonnement polarisé et non polarisé, qui n'ont de plus pas la même évolution temporelle. Ceci nous a amené à étudier comment ces propriétés particulières de polarisation des impulsions laser XUV influaient sur nos mesures, et plus précisément sur la distribution angulaire des photoélectrons détectés par notre spectromètre VMI.

III. Influence de l'état de polarisation du rayonnement ionisant sur la DAP

III.1. Simulations numériques des spectres photoélectroniques

La simulation numérique décrite ci-dessous a été faite dans le but de visualiser l'effet de la polarisation de la lumière incidente sur la distribution angulaire des photoélectrons. Le code, développé par Gustavo Garcia du Synchrotron Soleil, permet en premier temps de simuler les trajectoires des photoélectrons émis de la zone d'interaction du VMI vers le détecteur. Afin d'obtenir des spectres simulés les plus proches possible des spectres expérimentaux, nous avons utilisé la même configuration que celle de notre spectromètre VMI décrit dans le chapitre II (nombre et l'épaisseur des électrodes, distance entre elles, longueur du vol des photoélectrons jusqu'au détecteur, distribution de tension sur les différentes

électrodes), ainsi que la taille de la zone d'interaction. La distribution angulaire des photoélectrons sur le détecteur a été simulée et étudiée pour divers états de polarisation du rayonnement ionisant. Ceci a été possible en exprimant l'expression de la section efficace différentielle de la photoionisation en fonction des paramètres de Stokes. Ces paramètres sont un des moyens permettant de spécifier l'état de polarisation d'un rayonnement, comme a été montré en 1980 par Huang [169], article sur lequel est basée cette étude. Nous rappelons tout d'abord la signification des paramètres de Stokes et l'expression de la distribution angulaire de photoélectrons « DAP » sur laquelle a été basée notre étude, puis nous discutons les résultats obtenus.

Il existe plusieurs manières pour spécifier la polarisation d'un faisceau de photons donné. Une description pratique de la polarisation de la lumière est la matrice de densité " ρ " ayant la forme:

$$\rho = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 + p \sin 2\alpha & -p \cos 2\alpha e^{-i2\gamma} \\ -p \cos 2\alpha e^{i2\gamma} & 1 - p \sin 2\alpha \end{pmatrix} \quad (\text{équation V-1})$$

Où le paramètre p signifie le degré de polarisation, α le type de polarisation et γ l'orientation azimutale de la polarisation. Selon Huang [169], l'expression de la section efficace différentielle des photoélectrons dans l'approximation de dipôle électrique est donnée par :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\theta, \Phi) = \frac{\sigma}{4\pi} I(\theta, \Phi) \quad (\text{équation V-2})$$

$$\text{Avec } I(\theta, \Phi) = 1 - \frac{1}{2} \beta [P_2(\cos\theta) - \frac{3}{2} p \cos 2\alpha \cos 2\Phi' \sin^2 \theta] \quad (\text{équation V-3})$$

Où $\Phi' = \Phi - \gamma$ est l'angle azimutal de la direction du photoélectron par rapport au vecteur de polarisation. Une description équivalente est donnée en fonction des paramètres de Stokes (S_1, S_2, S_3) qui sont reliés à p, α et γ par :

$$S_1 = -p \cos 2\alpha \cos 2\gamma \quad (\text{équation V-4})$$

$$S_2 = -p \cos 2\alpha \sin 2\gamma \quad (\text{équation V-5})$$

$$S_3 = -p \sin 2\alpha \quad (\text{équation V-6})$$

Physiquement, ces 3 paramètres définissent l'état de polarisation du rayonnement incident tel que S_1, S_2 et S_3 caractérisent les composantes polarisées linéairement et circulairement respectivement [170]. Par exemple, la valeur de $S_1=1$, caractérise un rayonnement totalement polarisé linéairement dans la direction horizontale, où l'axe de polarisation est dans le plan du détecteur. Ceci est nommé par la suite de ce chapitre une polarisation de type « p ». Par contre, lorsque le paramètre S_1 prend une valeur négative notamment $S_1 = -1$, le rayonnement dans ce cas est totalement polarisé linéairement dans la direction verticale, aussi nommé polarisation de type « s », où l'axe de polarisation cette fois ci est perpendiculaire au plan du détecteur. Toujours dans le cas d'une polarisation linéaire, la composante S_2 prend en compte l'angle relatif entre la direction horizontale et verticale de la polarisation. Autrement dit, si la valeur de S_2 est différente de 0 ($S_2 \neq 0$), cela signifie que la polarisation est linéaire mais elle n'est pas parfaitement horizontale ou verticale. Par exemple, lorsque $S_2 = 1$, la lumière est polarisée linéairement mais elle est à un angle $\theta = 45^\circ$ entre p et s. Concernant la composante S_3 , elle représente

le taux de la polarisation circulaire du rayonnement. Généralement, le taux de polarisation global est représenté par la quantité $\sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}$. Si la lumière n'était pas totalement polarisée, le taux de dépolarisation de la lumière noté par analogie S_4 et calculé par la relation $S_4 = 1 - \sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}$. Par suite lorsque le rayonnement est totalement non polarisé, les 3 paramètres S_1 , S_2 et S_3 sont égales à 0 et par suite S_4 sera égal à 1.

En remplaçant le système d'équations V-4, V-5 et V-6 dans l'expression V-3, la distribution angulaire des photoélectrons dans le cas d'une polarisation linéaire du rayonnement ionisant peut-être reformulée en fonction des paramètres de Stokes S_1 et S_2 comme suivant:

$$I(\theta, \Phi) = 1 - \frac{1}{2} \beta \{ P_2(\cos\theta) - \frac{3}{2} [S_1 \cos(2\Phi) + S_2 \sin(2\Phi)] \sin^2 \theta \} \quad (\text{équation V-7})$$

Les simulations numériques de la DAP ont été basées sur cette équation, où nous pouvons remarquer l'effet de polarisation du rayonnement sur la distribution angulaire du signal de photoélectrons en changeant les paramètres de stokes S_1 et S_2 . Dans tout le reste de cette section, nous avons considéré que la polarisation était soit horizontale, soit verticale (nous ne discutons pas le cas intermédiaire où $S_2 \neq 0$) et par suite le taux de la polarisation circulaire est nul ($S_3 = 0$).

Afin de visualiser simplement la dépendance de la distribution angulaire des photoélectrons avec l'état de polarisation du rayonnement, je présente tout d'abord dans la Figure V-4 (a, b et c) la distribution angulaire tridimensionnelle (3D) de photoélectrons calculée pour un paramètre d'anisotropie $\beta=1$ et pour trois états de polarisation du rayonnement différents. Ces distributions angulaires sont représentées dans un repère cartésien (X,Y,Z), où Z est la direction de propagation du rayonnement et XY est le plan de polarisation de la lumière. Lorsque la polarisation est linéaire et alignée suivant X (polarisation p dans notre cas) comme présenté dans (a), la distribution angulaire calculée apparaît comme deux lobes orientés suivant X, la distribution étant maximale dans la direction de polarisation. Si le rayonnement est polarisé linéairement suivant Y (ici polarisation s) comme dans la figure (b), la DAP est alors tournée de 90°, les maxima de la distribution étant toujours dans la direction de la polarisation Y. Enfin dans le cas d'un rayonnement non polarisé, toutes les directions de polarisation dans le plan XY sont présentes avec la même intensité moyenne. La distribution de photoélectrons calculée devient alors un tore (figure c) ayant un axe de symétrie autour de la direction de propagation de la lumière (Z).

Ces trois illustrations montrent que la polarisation de la lumière a un effet majeur sur la distribution 3D des photoélectrons, qu'on va retrouver dans le plan de détection du VMI, où la sphère de photoélectrons est projetée. C'est cette distribution 2D du signal observé sur le détecteur VMI qui nous intéresse pour la suite de ce chapitre.

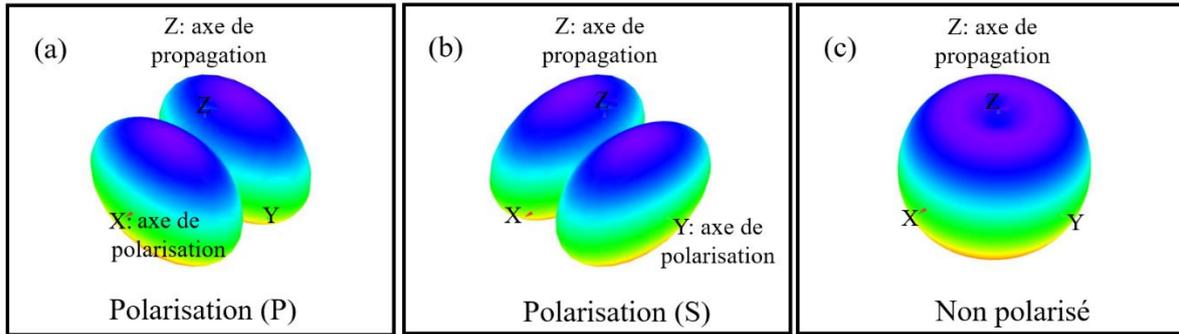


Figure V-4 : Effet de la polarisation du rayonnement ionisant sur la distribution angulaire 3D calculée des photoélectrons. Lorsque le rayonnement est polarisé linéairement suivant X en (a), suivant Y en (b) ou non polarisé en (c). Le détecteur VMI est placé dans le plan XOZ.

Afin de simuler le spectre de photoélectrons obtenu, pour différents états de polarisation du rayonnement, sur un détecteur du VMI placé dans le plan XZ, le code de simulation que nous avons utilisé considère 400000 trajectoires de photoélectrons, émis de la source avec une distribution angulaire calculée à l'aide de l'équation V-7. Pour notre simulation nous avons considéré des électrons d'énergie cinétique $E_c = 22,24$ eV, correspondant à l'ionisation d'atomes d'argon par des photons de 38 eV. Pour le paramètre d'asymétrie nous avons pris $\beta=1$ comme sur les DAP calculées de la Figure V-4, ce qui correspond à une situation intermédiaire entre une émission isotrope et une émission très axiale, avec une probabilité maximum dans la direction de polarisation de la lumière et minimum dans la direction perpendiculaire.

Les spectres synthétiques de photoélectrons calculés pour différentes valeurs du paramètre S_1 ainsi que les spectres inversés correspondants, en utilisant le code pBasex, sont présentés dans la Figure V-5.

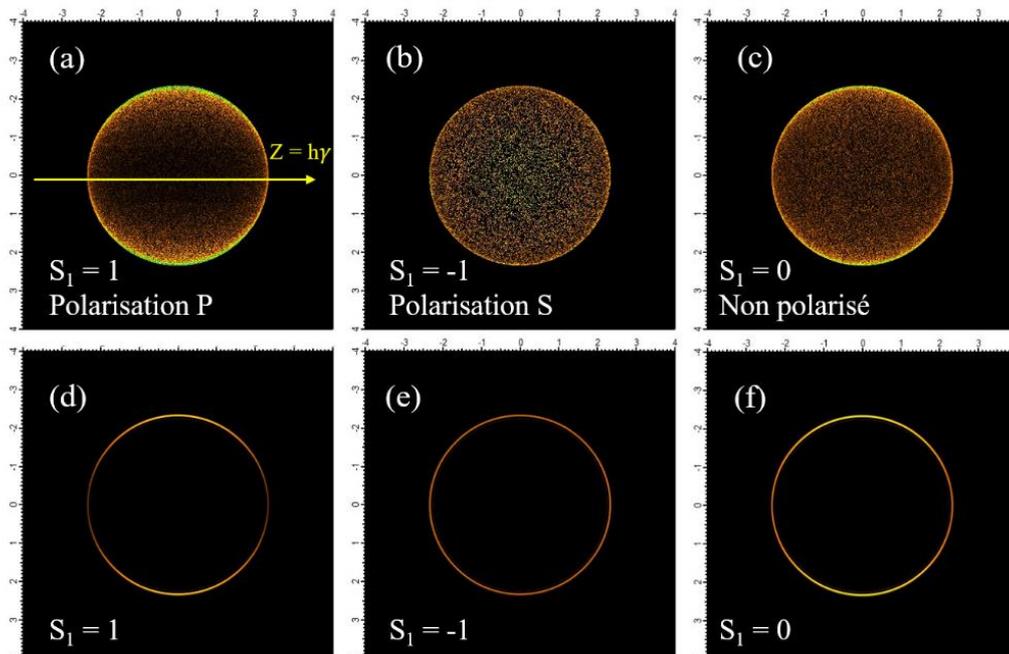


Figure V-5 : spectres simulés bruts (en haut) et inversés par pBasex (en bas), montrant la variation de la distribution angulaire apparente des photoélectrons pour $\beta=1$ lorsque la polarisation du rayonnement est linéaire en p (a et d), en s (b et e) ou lorsque le rayonnement est non polarisé (c et f).

Sur les sphères projetées en 2D de cette figure on observe une variation significative de la distribution angulaire apparente, lorsque l'on passe d'une polarisation linéaire selon x (polarisation p, $S_1 = 1$ et $S_4 = 0$, voir Figure V-5 a) à une polarisation linéaire selon y (polarisation s, $S_1 = -1$ et $S_4 = 0$, voir Figure V-5 b). Dans le premier cas, lorsque la direction de polarisation est dans le plan du détecteur, on retrouve bien un signal maximum suivant la direction de polarisation (direction verticale sur l'image (a)) et minimum la direction de propagation z. Par contre, pour une polarisation s, perpendiculaire au plan du détecteur (et donc perpendiculaire au plan de l'image (b)), la distribution angulaire du signal apparaît comme uniforme. Enfin, dans le cas du rayonnement non polarisé ($S_1 = 0$ et $S_4 = 1$, voir Figure V-5 c) on observe que la distribution angulaire apparente du signal est légèrement modifiée par rapport au cas de la polarisation p (Figure V-5 a).

Pour quantifier cette variation, les 3 spectres bruts simulés (a, b et c) ont été inversés à l'aide du logiciel pBasex. A chacun de ces spectres inversés, montrés sur les images (d, e et f) de la Figure V-5, est associé un paramètre d'anisotropie β_{apparent} qui est calculé par pBasex. A ce stade il convient de rappeler que l'inversion d'Abel n'est rigoureusement valable que lorsque l'axe de symétrie de l'image à inverser se situe dans le plan de cette image, c'est à dire lorsque la direction de polarisation du rayonnement ionisant est parallèle au plan du détecteur sur laquelle la sphère de photoélectrons est projetée. Ceci n'est vrai que dans l'image (a), correspondant à la polarisation linéaire p. Dans ce cas la valeur du paramètre β trouvée par pBasex coïncide avec la valeur « physique », correspondant à la transition atomique et à l'énergie de photon considérée ($\beta = 1$ ici). Dans les deux autres cas, la valeur du paramètre d'asymétrie calculée par pBasex est donc qualifiée de β_{apparent} . Nous présenterons dans la section suivante un modèle analytique simple permettant de calculer β_{apparent} pour différents états de polarisation du rayonnement.

Dans le cas d'une polarisation linéaire s, perpendiculaire au plan du détecteur, l'inversion de l'image (b) donne en (e) un spectre avec une distribution angulaire uniforme, correspondant donc à $\beta_{\text{apparent}} = 0$. Enfin dans le cas où le rayonnement est non-polarisé, l'inversion de l'image (c) donne le spectre (f) qui correspond à $\beta_{\text{apparent}} = 0.65$, plus petite que la valeur de départ ($\beta = 1$). Dans ce cas non-polarisé, il faut se souvenir (comme mentionné dans la partie III du chapitre I), que l'axe de symétrie de la distribution angulaire des photoélectrons est la direction de propagation des photons, qui se trouve, elle, dans le plan du détecteur. Il serait donc également possible d'inverser l'image (c) tournée de 90° , ce qui aboutirait à un spectre inversé avec $\beta_{\text{apparent}} = -1/2 \beta (= -0,5$ ici). Toutefois on verra que l'inversion de l'image initiale, sans rotation, est utile pour valider le modèle que nous allons présenter.

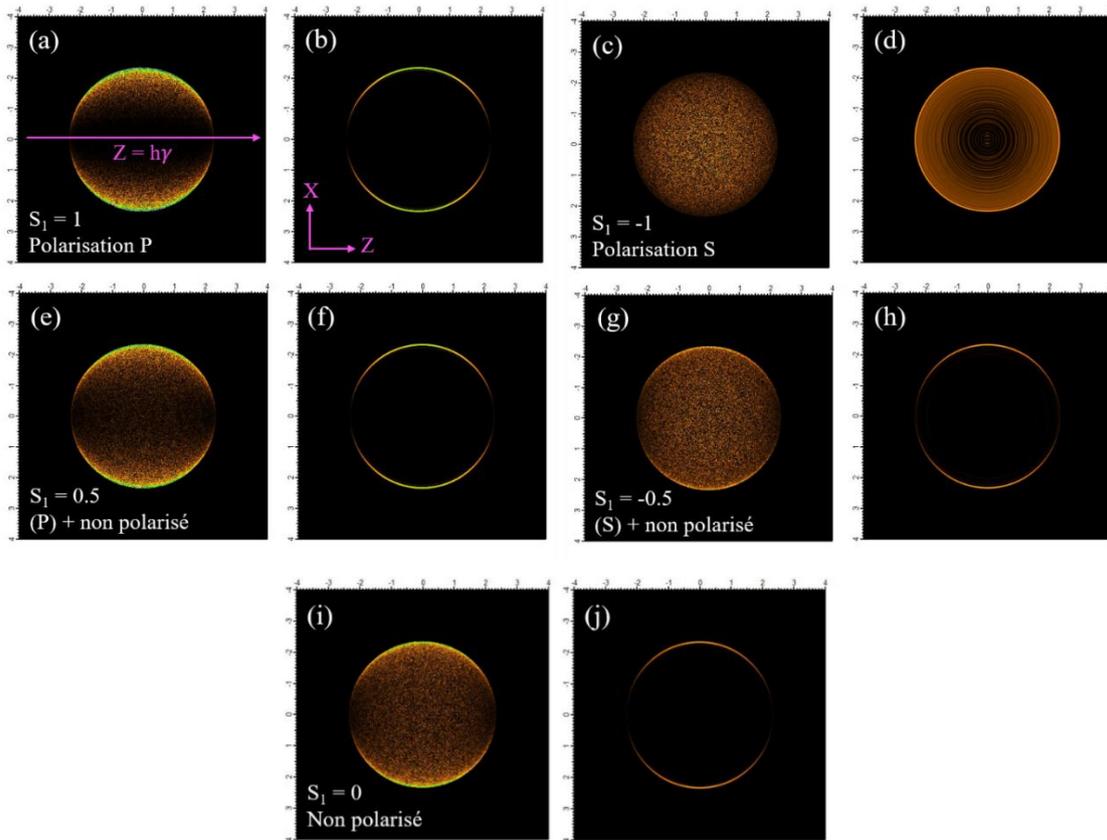


Figure V-6 : spectres simulés (à gauche) et spectres inversés par pBasex correspondants (à droite) montrant la variation de la distribution angulaire des photoélectrons pour un $\beta=1.85$ lorsque la polarisation du rayonnement est linéaire en p (a et b), en s (c et d) ou si le rayonnement était non polarisé (i et j) et dans le cas d'un mélange des rayonnements polarisés linéairement et non polarisé (e,f,g,h). Le détecteur est placé toujours dans le plan XZ où Z est l'axe de propagation de la lumière.

Nous allons nous intéresser maintenant au cas d'un mélange des différents états de polarisation considérés dans la Figure V-6. Pour nous rapprocher des conditions expérimentales utilisées sur LASERIX ($h\nu = 38\text{eV}$, gaz cible argon, ionisation à partir de la sous-couche 2p), nous avons effectué les simulations en prenant $\beta \sim 1,85$, valeur du paramètre d'anisotropie β à cette énergie de photons donnée par la littérature la plus récente [163]. En plus des trois cas présentés dans la Figure V-5, nous avons considéré deux situations intermédiaires, dans lesquelles le rayonnement ionisant est constitué en parts égales de rayonnement polarisé linéairement (respectivement p ou s) et de rayonnement non polarisé. Les paramètres de Stokes correspondants sont : $S_1 = 0,5$ et $S_4 = 0,5$ (polarisation p) ; $S_1 = -0,5$ et $S_4 = 0,5$ (polarisation s). Les spectres synthétiques obtenus pour les 5 états de polarisation sont présentés dans les images (a-e), en haut de la Figure V-6. Comme précédemment, chaque spectre brut est ensuite inversé par pBasex, les spectres inversés correspondants sont présentés dans les images (b, d, f, h, j), à droite de chaque image brut correspondant. Qualitativement, en comparant les images (c) et (g) (ou (d) et (h)), on remarque que la présence de rayonnement non-polarisé modifie de façon importante la distribution angulaire apparente dans le cas où la polarisation linéaire est orientée perpendiculairement au détecteur (polarisation s). Par contre, dans le cas de la polarisation p (dans le plan du détecteur), la présence du rayonnement non polarisé modifie peu la distribution angulaire apparente (images (a) et (b) comparées à (e) et (f)).

Quantitativement, à chaque spectre inversé correspond une valeur de β_{apparent} qui est fournie par pBasex. Ces valeurs, ainsi que celles calculées pour une proportion plus faible (10%) de rayonnement non polarisé, sont regroupées dans le Tableau V-1

Dans le cas d'un rayonnement polarisé linéairement en p ($S_1=1$), on retrouve naturellement pour β_{apparent} la valeur du $\beta_{\text{atomique}}=1,85$, puisque l'axe de polarisation de la lumière, pris comme un axe de symétrie pour l'inversion d'Abel, est dans le plan du détecteur. Pour cette valeur de β_{atomique} , le signal est beaucoup plus intense suivant la direction de polarisation que suivant la direction de propagation de la lumière. Par contre, lorsque la polarisation est linéaire en s, on retrouve comme précédemment $\beta_{\text{apparent}}=0$, qui correspond à une distribution angulaire uniforme sur le spectre inversé (Figure V-6, d). Lorsque le rayonnement est totalement non-polarisé, la valeur du β_{apparent} calculée par pBasex est de 1,71. Comme précédemment expliqué dans le chapitre I (partie III), le rayonnement non-polarisé peut être décrit comme une superposition incohérente de rayonnements d'intensités identiques polarisés respectivement en s et p.

Comme déjà remarqué plus haut, la distribution angulaire apparente est peu modifiée lorsqu'on introduit 50% de rayonnement non-polarisé à du rayonnement polarisé linéairement en p, puisque $\beta_{\text{apparent}}=1.81$ c'est à dire peu inférieur au $\beta_{\text{atomique}}=1,85$ considéré ici. Par contre, lorsque la polarisation est linéaire en s et qu'on ajoute 50% de rayonnement non-polarisé, la valeur de β_{apparent} n'est plus nulle mais égale à 1,52. Enfin lorsque la proportion de rayonnement non-polarisé est réduite à 10%, dans le cas d'une polarisation p, la valeur de $\beta_{\text{apparent}}=1,84$ se rapproche de la valeur de $\beta_{\text{atomique}}=1,85$. Par contre cette faible contribution de rayonnement non-polarisé suffit à induire une modification importante de la distribution angulaire apparente lorsqu'on passe en polarisation s, la valeur de β_{apparent} passant alors de 0 à 0,76.

Type de polarisation	Valeur de S_1	β_{apparent}
Totalement linéaire en (p)	$S_1 = 1$	1.85
Totalement linéaire en (s)	$S_1 = -1$	0
Totalement non polarisé	$S_1 = 0$	1.71
Mélange 50% (p) + non polarisé	$S_1 = 0.5$	1.81
Mélange 50% (s) + non polarisé	$S_1 = -0.5$	1.52
Mélange 90% (p) + non polarisé	$S_1 = 0.9$	1.84
Mélange 90% (s) + non polarisé	$S_1 = -0.9$	0.76

Tableau V-1: Valeurs de β_{apparent} calculées par pBasex après inversion des spectres synthétiques VMI de la Figure V-6 pour les différents états de polarisation.

En conclusion, ces simulations, effectuées pour deux valeurs différentes du paramètre d'anisotropie atomique ($\beta=1$ et $\beta=1.85$), permettent de visualiser l'effet de l'état de polarisation du rayonnement ionisant sur la distribution angulaire des photoélectrons, telle qu'elle apparaît sur le détecteur 2D où est projetée la sphère de photoélectrons. La modification de la distribution angulaire apparente est quantifiée

à travers celle du paramètre β_{apparent} calculé par pBasex. On a vu que la polarisation s (perpendiculaire au plan du détecteur) est particulièrement sensible à la présence de rayonnement non-polarisé. Ainsi la valeur du β_{apparent} mesuré sur les spectres expérimentaux, en particulier en polarisation s, pourrait constituer une sonde de la présence de rayonnement non-polarisé (rayonnement ASE et thermique dans notre cas). Pour étudier cette idée plus en détail, nous avons développé un modèle simple qui permet de relier analytiquement la valeur de β_{apparent} , mesurée sur un spectre, à la proportion de rayonnement non-polarisé présent dans l'impulsion ionisante. C'est ce modèle, ainsi que les résultats obtenus, que nous nous décrivons dans la partie suivante.

III.2. Expression analytique reliant β_{apparent} à la proportion de rayonnement non-polarisé

Nous allons montrer que le comportement mis en évidence par les simulations numériques que nous venons de présenter peut-être décrit de manière simple et analytique à partir des équations I-26 et I-28, donnant l'expression de la distribution angulaire de photoélectrons en fonction du polynôme de Legendre d'ordre 2 et du paramètre d'asymétrie β .

Le modèle analytique que nous allons décrire sera ensuite utilisé, à partir du paramètre d'anisotropie apparent (β_{apparent}) mesuré pour différentes polarisations du rayonnement possible, pour remonter à la proportion du rayonnement non polarisé dans le signal total de photons envoyé dans le spectromètre VMI. Nous allons examiner successivement les 5 états de polarisation différents que nous avons discutés plus haut : polarisation linéaire p ou s, non-polarisé, et mélange (polarisation linéaire p ou s + non-polarisé).

III.2.1. Cas d'une polarisation dans le plan du détecteur

En repartant d'un repère orthogonal (XYZ), on considère un rayonnement se propageant suivant l'axe Z, polarisé suivant l'axe X, tel que représenté sur la figure V.8. Le détecteur VMI étant placé dans le plan XOZ, cette direction de polarisation est dans le plan du détecteur et elle correspond dans notre expérience à une polarisation p.

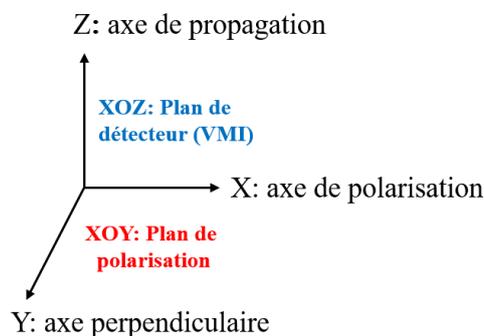


Figure V-7 : Repère expliquant la direction de propagation et de polarisation du rayonnement ionisant par rapport au plan de détecteur VMI (plan XOZ). L'axe de polarisation est suivant X, dans le plan du détecteur.

Étape1 : Lumière polarisée linéairement selon X

Dans le cas d'une ionisation à un photon par un rayonnement linéairement polarisé suivant l'axe X, le nombre de photoélectrons S_{pol} émis dans une direction θ_x mesurée par rapport à l'axe de polarisation, à l'intérieur d'un angle solide $d\Omega$, est donné par l'équation :

$$S_{Pol}(\theta_x) = N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{Pol} (1 + \beta P_2(\cos(\theta_x))) d\Omega \quad (\text{équation V-8})$$

Dans cette formule, N_{at} est le nombre des atomes du gaz cible ionisé, σ_{tot} la section efficace de photoionisation, ϕ_{Pol} le flux de photons polarisés incidents, β est le paramètre d'asymétrie pour la transition atomique et l'énergie de photons considérés, et $P_2(\cos\theta_x)$ est le polynôme de Legendre d'ordre 2 en $\cos(\theta_x)$. Sachant que $P_2(\cos(\theta_x)) = \frac{1}{2}(3\cos^2(\theta_x) - 1)$, on trouve que $P_2(\cos 0^\circ) = 1$ et $P_2(\cos 90^\circ) = -\frac{1}{2}$.

Si on considère la projection de l'équation V-8 sur les 3 directions de notre repère XYZ, on obtient :

- Selon X ($\theta_x = 0$): $S_{xPol} \propto N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{Pol} (1 + \beta)$
- Selon Y ($\theta_x = 90^\circ$): $S_{yPol} \propto N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{Pol} \left(1 - \frac{\beta}{2}\right)$ (équation V-9)
- Selon Z ($\theta_x = 90^\circ$): $S_{zPol} \propto N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{Pol} \left(1 - \frac{\beta}{2}\right)$

Il convient ici de remarquer que la valeur du paramètre d'asymétrie β (pour $\beta \neq 2$) peut-être extraite du rapport $\frac{S_{xPol}}{S_{zPol}}$ (ou $\frac{S_{xP}}{S_{yP}}$), qui permet de s'affranchir des 3 grandeurs N_{at} , ϕ_{Pol} et σ_{tot} .

Etape 2 : Lumière totalement non polarisée :

On a vu que la lumière incidente non-polarisée est équivalente à la superposition incohérente de deux faisceaux polarisés linéairement suivant deux axes orthogonaux (ici X et Y). En prenant toujours l'axe Z comme direction de propagation de la lumière, le nombre de photoélectrons $S_{NPOL}(\theta)$ émis dans un angle solide $d\Omega$, dans une direction θ donnée par les deux angles θ_x et θ_y , s'exprime en fonction du nombre de photons non polarisés (ϕ_{NPOL}) par :

$$S_{NPOL}(\theta_x, \theta_y) = N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{NPOL} \left[\frac{1}{2}(1 + \beta P_2(\cos\theta_x)) + \frac{1}{2}(1 + \beta P_2(\cos\theta_y)) \right] d\Omega \quad (\text{équation V-10})$$

La projection de l'équation V-10 sur les 3 directions de notre repère XYZ donne :

- Selon X ($\theta_x = 0, \theta_y = 90^\circ$):

$$S_{xNPOL} \propto N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{NPOL} \left[\frac{1}{2}(1 + \beta) + \frac{1}{2}\left(1 - \frac{\beta}{2}\right) \right] = N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{NPOL} \left(1 + \frac{\beta}{4}\right)$$

- Selon Y ($\theta_x = 90^\circ, \theta_y = 0^\circ$):

$$S_{yNPOL} \propto N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{NPOL} \left[\frac{1}{2}\left(1 - \frac{\beta}{2}\right) + \frac{1}{2}(1 + \beta) \right] = N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{NPOL} \left(1 + \frac{\beta}{4}\right) \quad (\text{équation V-11})$$

- Selon Z ($\theta_x = 90^\circ, \theta_y = 90^\circ$):

$$S_{zNPOL} \propto N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{NPOL} \left[\frac{1}{2} \left(1 - \frac{\beta}{2} \right) + \frac{1}{2} \left(1 - \frac{\beta}{2} \right) \right] = N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{NPOL} \left(1 - \frac{\beta}{2} \right)$$

A nouveau, nous pouvons remarquer que la valeur du paramètre d'asymétrie β (pour $\beta \neq 2$) peut-être extraite du rapport $\frac{S_{xNPOL}}{S_{zNPOL}}$ (ou $\frac{S_{yNPOL}}{S_{zNPOL}}$), en s'affranchissant des 3 grandeurs N_{at} , ϕ_{NPOL} et σ_{tot} .

Etape 3 : Mélange de lumière polarisée selon X et non-polarisée

On considère maintenant le cas d'un mélange de rayonnement polarisé (ϕ_{POL}), et non-polarisé (ϕ_{NPOL}). Le nombre total des photoélectrons est la somme des photoélectrons ionisés par chacune de ces deux contributions :

$$S_{tot}(\theta) = S_{POL}(\theta) + S_{NPOL}(\theta) \quad (\text{équation V-12})$$

En combinant les expressions V-9 et V-11, précédemment établies pour les projections sur les axes X, Y et Z dans les deux cas polarisé et non polarisé, il est possible d'écrire l'intensité du signal émis dans chaque direction :

- Selon X : $S_{x\ tot} = S_{xPOL} + S_{xNPOL} \propto N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \left[\phi_{POL}(1 + \beta) + \phi_{NPOL} \left(1 + \frac{\beta}{4} \right) \right]$
- Selon Y : $S_{y\ tot} = S_{yPOL} + S_{yNPOL} \propto N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \left[\phi_{POL} \left(1 - \frac{\beta}{2} \right) + \phi_{NPOL} \left(1 + \frac{\beta}{4} \right) \right]$ (équation V-13)
- Selon Z : $S_{z\ tot} = S_{zPOL} + S_{zNPOL} \propto N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \left[\phi_{POL} \left(1 - \frac{\beta}{2} \right) + \phi_{NPOL} \left(1 - \frac{\beta}{2} \right) \right]$

On s'intéresse particulièrement à la proportion relative du flux du rayonnement polarisé ϕ_{POL} et non-polarisé ϕ_{NPOL} . On introduit donc le coefficient α comme étant le rapport de ces deux contributions suivantes : $\alpha = \frac{\phi_{NPOL}}{\phi_{POL}}$.

On peut alors exprimer le rapport $S_{x\ tot} / S_{z\ tot}$ sous une forme qui ne dépend plus que de ce coefficient α et du paramètre d'asymétrie β (pour $\beta \neq 2$). En notant $R_{POLx+NPOL}$ ce rapport, on a :

$$R_{POLx+NPOL} = \frac{S_{x\ tot}}{S_{z\ tot}} = \frac{(1+\beta)+\alpha(1+\frac{\beta}{4})}{(1-\frac{\beta}{2})+\alpha(1-\frac{\beta}{2})} \quad (\text{équation V-14})$$

On peut aussi exprimer la proportion de flux de photons non-polarisés par rapport au flux total $\phi_{tot} = \phi_{POL} + \phi_{NPOL}$, en introduisant le coefficient $K = \frac{\phi_{POL}}{\phi_{tot}}$. Ce coefficient est relié au coefficient α par la relation : $K = \frac{1}{1+\alpha}$.

En repartant de l'équation V-14, on peut alors exprimer le rapport $R_{POLx+NPOL} = \frac{S_{x\ tot}}{S_{z\ tot}}$ en fonction du

coefficient K et du paramètre β (pour $\beta \neq 2$) :

$$R_{Polx+NPol} = \frac{S_{x\ tot}}{S_{z\ tot}} = \frac{\beta+4+3K\beta}{2(2-\beta)} \quad (\text{équation V-15})$$

III.2.2. Cas d'une polarisation perpendiculaire au plan du détecteur

Dans le repère orthogonal (XYZ), on considère maintenant un rayonnement se propageant suivant l'axe Z, polarisé suivant l'axe Y, tel que représenté sur la figure V.9. Le détecteur VMI étant toujours placé dans le plan XOZ, cette direction de polarisation est dans le plan perpendiculaire au détecteur, et elle correspond dans notre expérience à une polarisation s.

Nous reprenons les mêmes étapes de calcul que celles que nous venons de décrire dans le cas de la polarisation suivant X.

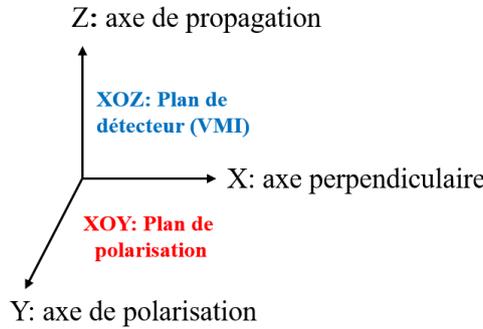


Figure V-8 : Repère expliquant la direction de propagation et de polarisation du rayonnement ionisant par rapport au plan de détecteur VMI (plan XOZ). L'axe de polarisation est suivant Y, perpendiculaire au plan du détecteur

Étape1 : Lumière polarisée linéairement selon Y

Ici la distribution angulaire du nombre de photoélectrons S_p est mesurée par rapport à l'axe Y de polarisation, par l'angle θ_y . On a donc :

$$S_{Pol}(\theta_y) = N_{at} \frac{\sigma_{tot}}{4\pi} \phi_{Pol} (1 + \beta P_2(\cos(\theta_y))) d\Omega \quad (\text{équation V-16})$$

La projection sur les 3 axes donne :

- Selon X ($\theta_y = 90^\circ$): $S_{xPol} \propto N_{at} \frac{\sigma}{4\pi} \phi_{Pol} \left(1 - \frac{\beta}{2}\right)$
 - Selon Y ($\theta_y = 0^\circ$): $S_{yPol} \propto N_{at} \frac{\sigma}{4\pi} \phi_{Pol} (1 + \beta)$
 - Selon Z ($\theta_y = 90^\circ$): $S_{zPol} \propto N_{at} \frac{\sigma}{4\pi} \phi_{Pol} \left(1 - \frac{\beta}{2}\right)$
- (équation V-17)

On peut remarquer que, à la différence du cas de la polarisation selon X (équations V-9), le rapport $\frac{S_{xPol}}{S_{zPol}}$ est ici égal à 1, ce qui coïncide avec le fait que l'axe de symétrie de la distribution angulaire est l'axe Y.

Étape 2 : Lumière totalement non-polarisée:

Ce cas est identique à celui traité plus haut. Les expressions V-10 et V-11 pour $S_{NPOL}(\theta)$ et pour les projections S_{xNPOL} , S_{yNP} et S_{zNPOL} sont donc inchangées.

Etape 3 : Mélange de lumière polarisée selon Y et non-polarisée

Comme précédemment dans le cas de la polarisation selon X, le nombre total de photoélectrons est la somme des photoélectrons ionisés par chacune des deux contributions :

$$S_{tot}(\theta) = S_{Pol}(\theta) + S_{NPOL}(\theta) \quad (\text{équation V-18})$$

On combine cette fois les équations V-11 et V-17 pour écrire l'intensité du signal émis dans les trois directions X, Y et Z:

- Selon X: $S_{x\ tot} = S_{xPol} + S_{xNPOL} \propto N_{at} \frac{\sigma}{4\pi} \left[\phi_{Pol} \left(1 - \frac{\beta}{2}\right) + \phi_{NPOL} \left(1 + \frac{\beta}{4}\right) \right]$
- Selon Y: $S_{y\ tot} = S_{yPol} + S_{yNPOL} \propto N_{at} \frac{\sigma}{4\pi} \left[\phi_{Pol}(1 + \beta) + \phi_{NPOL} \left(1 + \frac{\beta}{4}\right) \right]$ (équation V-19)
- Selon Z: $S_{z\ tot} = S_{zPol} + S_{zNPOL} \propto N_{at} \frac{\sigma}{4\pi} \left[\phi_{Pol} \left(1 - \frac{\beta}{2}\right) + \phi_{NPOL} \left(1 - \frac{\beta}{2}\right) \right]$

On introduit à nouveau le coefficient $\alpha = \frac{\phi_{NPOL}}{\phi_{Pol}}$, rapport entre le flux du rayonnement polarisé ϕ_{Pol} et non polarisé ϕ_{NPOL} , pour exprimer le rapport $S_{x\ tot} / S_{z\ tot}$ sous une forme qui ne dépend plus que du coefficient α et du paramètre d'asymétrie β (pour $\beta \neq 2$).

En notant $R_{PolY+NP}$ ce rapport, on a:

$$R_{PolY+NPOL} = \frac{S_{x\ tot}}{S_{z\ tot}} = \frac{\left(1 - \frac{\beta}{2}\right) + \alpha \left(1 + \frac{\beta}{4}\right)}{\left(1 - \frac{\beta}{2}\right) + \alpha \left(1 - \frac{\beta}{2}\right)} \quad (\text{équation V-20})$$

Ce rapport peut également s'exprimer en fonction du coefficient K, rapport du flux du rayonnement non-polarisé sur le flux total, $K = \frac{\phi_{NPOL}}{\phi_{tot}} = \frac{1}{1+\alpha}$. Il s'écrit :

$$R_{PolY+NPOL} = \frac{S_{x\ tot}}{S_{z\ tot}} = \frac{\beta + 4 - 3K\beta}{2(2 - \beta)} \quad (\text{équation V-21})$$

III.2.3. Relation avec $\beta_{apparent}$

En résumé nous avons établi ci-dessus les expressions du rapport du nombre de photoélectrons émis dans les directions X et Z respectivement, dans le cas d'un mélange de rayonnement non-polarisé (NPOL) et polarisé linéairement, pour deux directions de polarisation : polarisation suivant X (polarisation p, équations V-14 et V-15) et polarisation suivant Y (polarisation s, équations V-20 et V-21). Ces rapports ne dépendent que du paramètre d'asymétrie β et de la proportion de rayonnement non polarisé (coefficient α ou K).

Inversement on peut donc se demander s'il est possible, connaissant le paramètre d'asymétrie β , de remonter à la valeur de K (ou de α) dans nos expériences, en mesurant le rapport $R = \frac{S_{x\ tot}}{S_{z\ tot}}$ sur les spectres expérimentaux enregistrés par le détecteur du VMI.

A l'aide de simulations numériques, on a vu dans la section III.1 que le changement de l'état de polarisation du rayonnement (polarisé dans le plan du détecteur ou perpendiculaire, non polarisé et mélange des deux) conduisait à une modification de la distribution angulaire apparente, telle que projetée sur un détecteur 2D. Cette modification a été quantifiée à travers le paramètre β_{app} caractérisant le spectre après inversion par pBasex. La distribution angulaire 3D correspondant à la distribution 2D apparente peut alors être exprimée sous la forme :

$$S_{app}(\theta) = N_{at} \frac{\sigma}{4\pi} \Phi_{tot} (1 + \beta_{app} P_2(\cos\theta)) d\Omega \quad (\text{équation V-22})$$

L'angle θ est ici mesuré par rapport à l'axe de symétrie considéré pour l'inversion d'Abel, c'est à dire l'axe X du détecteur dans le plan XZ. De façon similaire à ce qui été fait plus haut, on peut alors écrire les projections de $S_{app}(\theta)$ dans les 3 directions :

- Selon X ($\theta = 0^\circ$): $S_{x\ app} \propto N_{at} \frac{\sigma}{4\pi} \Phi_{tot} (1 + \beta_{app})$
 - Selon Y ($\theta = 90^\circ$): $S_{y\ app} \propto N_{at} \frac{\sigma}{4\pi} \Phi_{tot} \left(1 - \frac{\beta_{app}}{2}\right)$
 - Selon Z ($\theta = 90^\circ$): $S_{z\ app} \propto N_{at} \frac{\sigma}{4\pi} \Phi_{tot} \left(1 - \frac{\beta_{app}}{2}\right)$
- (équation V-23)

Le rapport $S_{x\ app} / S_{z\ app}$ ne dépend que du paramètre d'asymétrie β_{app} . En notant $R_{apparent}$ ce rapport, on a :

$$R_{apparent} = \frac{S_{x\ app}}{S_{z\ app}} = \frac{1 + \beta_{app}}{1 - \frac{\beta_{app}}{2}} \quad (\text{équation V-24})$$

Il devient alors possible de trouver la relation entre le paramètre d'asymétrie apparent β_{app} , mesuré sur un spectre de photoélectrons produit par un mélange de rayonnement polarisé (selon X ou selon Y) et non-polarisé, et la proportion de rayonnement non-polarisé, quantifiée par le coefficient α (ou $K = \frac{1}{1+\alpha}$). Pour cela on identifie le rapport $R_{apparent}$ obtenu dans l'équation V-24 au rapport $R_{Polx+NPOL}$ (équations V-14 et V-15) dans le cas d'une polarisation orientée selon X, ou au rapport $R_{Poly+NPOL}$ (équations V-20 et V-21) dans le cas d'une polarisation orientée selon Y. On obtient donc deux équations pour $R_{apparent}^x$ et $R_{apparent}^y$, selon qu'on considère respectivement une polarisation selon X, qui sera associé à β_{app}^x , ou une polarisation selon y, qui sera associé à β_{app}^y .

Pour la polarisation selon X, on a d'après les équations V-14, V-15 et V-24 (pour $\beta \neq 2$):

$$R_{apparent}^x = \frac{1 + \beta_{app}^x}{1 - \frac{\beta_{app}^x}{2}} = R_{Polx+NPOL} = \frac{(1+\beta) + \alpha(1 + \frac{\beta}{4})}{(1 - \frac{\beta}{2}) + \alpha(1 - \frac{\beta}{2})} = \frac{\beta + 4 + 3K\beta}{2(2 - \beta)} \quad (\text{équation V-25})$$

Cette équation nous permet d'obtenir l'expression de β_{app}^x en fonction respectivement de α ou de K :

$$\beta_{app}^x = \beta \frac{1+\frac{\alpha}{2}}{1+\alpha(1-\frac{\beta}{4})} = \beta \frac{K+1}{2+\frac{\beta}{2}(K-1)} \quad (\text{équation V-26})$$

Pour la polarisation orientée selon Y, on a d'après les équations V-20, V-21 et V-24 (pour $\beta \neq 2$):

$$R_{apparent}^y = \frac{1+\beta_{app}^y}{1-\frac{\beta_{app}^y}{2}} = R_{Pol\ y+NPo} = \frac{(1-\frac{\beta}{2})+\alpha(1+\frac{\beta}{4})}{(1-\frac{\beta}{2})+\alpha(1-\frac{\beta}{2})} = \frac{\beta+4-3K\beta}{2(2-\beta)} \quad (\text{équation V-27})$$

Cette équation nous permet d'obtenir l'expression de β_{app}^y en fonction respectivement de α ou de K :

$$\beta_{app}^y = \beta \frac{\alpha}{2+2\alpha-\beta(1+\frac{\alpha}{2})} = \beta \frac{1-K}{2-\frac{\beta}{2}(K+1)} \quad (\text{équation V-28})$$

On vérifie que les équations V-26 et V-28 redonnent bien les valeurs attendues dans le cas d'un rayonnement totalement linéairement polarisé, qui correspond à $K=\phi_{Pol}/\phi_{tot}=1$, i.e. $\alpha = 0$. En polarisation selon X, (dans le plan du détecteur), l'équation V-26 conduit bien à $\beta_{app}^x = \beta$. En polarisation selon Y (perpendiculaire au détecteur), l'équation V-28 donne $\beta_{app}^y = 0$, quelle que soit la valeur de β ($\beta \neq 2$), conformément à ce que nous avons obtenu dans les simulations présentées dans la section III.1 (Figure V-5 (b) et Figure V-6 (c)).

Enfin dans le cas d'un rayonnement totalement non-polarisé, qui correspond à $K=\phi_{Pol}/\phi_{tot}=0$, i.e. $\alpha \rightarrow \infty$, les valeurs données par les équations V-26 et V-28 sont bien égales, et conduisent à :

$$\beta_{app}^{NPo} = \beta_{app}^x(K=0) = \beta_{app}^y(K=0) = \beta \frac{1}{2-\frac{\beta}{2}} \quad (\text{équation V-29})$$

On vérifie également que les valeurs calculées par l'équation V-29 coïncident avec celles que nous avons obtenues par les simulations numériques de la section III.1. Pour un paramètre d'asymétrie $\beta=1$, on trouve $\beta_{app}^{NPo}=0,67$, valeur proche de celle trouvée par pBasex ($\beta_{apparent} = 0,65$). Pour un paramètre d'asymétrie $\beta=1,85$, on trouve $\beta_{app}^{NPo}=1,72$, alors que la valeur trouvée par pBasex est $\beta_{apparent} = 1,71$ (voir Tableau V-1).

Examinons deux cas limites pour deux valeurs du paramètre β particulières. Pour un paramètre d'asymétrie $\beta=0$, qui correspond à une distribution angulaire uniforme de l'émission des photoélectrons, la valeur de β_{app} est toujours égale à zéro, quelles que soient la valeur du coefficient K ou la direction de polarisation selon X ou Y. Enfin les calculs que nous venons de décrire pour exprimer β_{app} en fonction de β et de K (ou α) ne sont pas valables pour $\beta=2$. Pour cette valeur du paramètre d'asymétrie, le nombre de photoélectrons émis dans la direction perpendiculaire à la polarisation du rayonnement est nul. Les rapports $R_{Pol\ x+NPo}$ (équation V-15) et $R_{Pol\ y+NPo}$ (équation V-21) ne sont donc pas définis.

Sur les Figure V-9 et Figure V-10, nous avons tracé la variation des paramètres d'anisotropie apparents β_{app}^x et β_{app}^y en fonction de la proportion de rayonnement polarisé dans le faisceau incident (coefficient K en pourcentage), pour des valeurs du paramètre d'asymétrie β égales à 1 (Figure V-9) et à 1,85 (Figure V-10) respectivement. Je rappelle que cette dernière valeur correspond à celle tabulée dans le cas de l'ionisation d'atomes d'argon par des photons de 38 eV d'énergie et qu'elle s'applique donc aux expériences réalisées sur LASERIX, que nous allons présenter dans la section suivante. Sur les graphes des Figure V-9 et Figure V-10, on a également reporté les valeurs de β_{app}^x et β_{app}^y obtenues avec les simulations numériques présentées dans la section III.1. On peut constater que notre modèle analytique reproduit presque parfaitement les valeurs prédites par ces simulations numériques.

On voit que, pour les deux valeurs de β considérées, les valeurs de β_{app}^x et de β_{app}^y évoluent en sens contraires lorsqu'on augmente la proportion K de rayonnement polarisé. Partant de la même valeur pour un rayonnement totalement non-polarisé (K=0), la valeur de β_{app}^x augmente pour rejoindre $\beta_{app}^x = \beta$ pour K=1, alors que la valeur de β_{app}^y diminue jusqu'à atteindre $\beta_{app}^y = 0$ pour K=100%. On voit aussi en comparant les Figure V-9 et Figure V-10, que la présence de rayonnement non-polarisé influe de façon assez différente selon la valeur considérée du paramètre d'asymétrie β . Ainsi pour $\beta = 1$ les valeurs de β_{app}^x et de β_{app}^y évoluent de façon quasi-linéaire lorsque K augmente. Pour $\beta = 1,85$, par contre, on voit que la pente de la courbe β_{app}^y augmente fortement (en valeur absolue) lorsque K devient supérieur à ~80%.

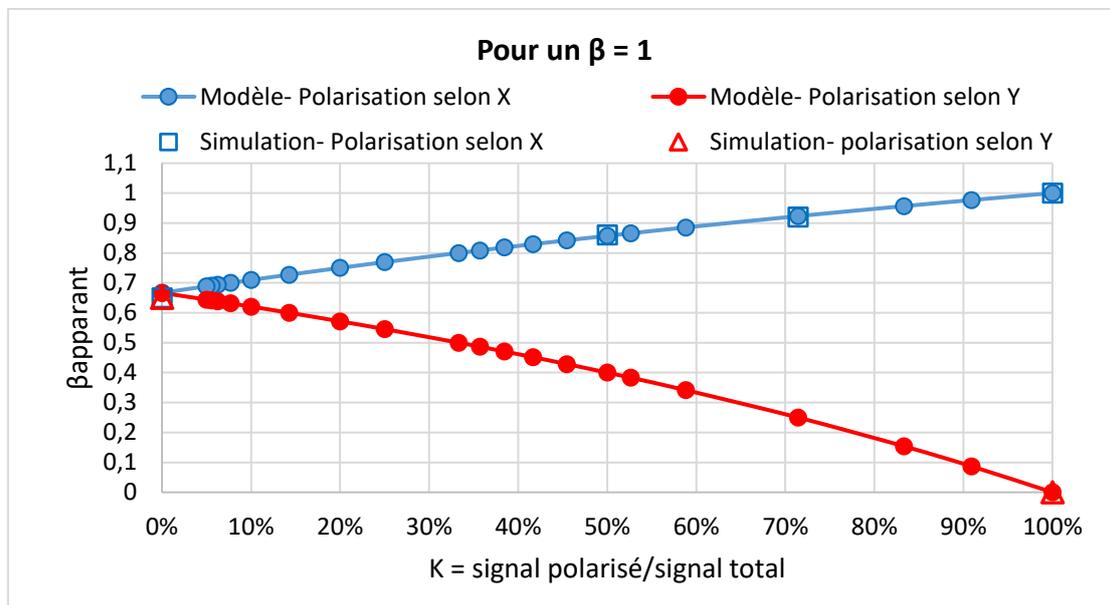


Figure V-9 : Variation des paramètres d'anisotropie apparents β_{app}^x et β_{app}^y en fonction de K : la proportion de rayonnement polarisé dans le faisceau incident pour un paramètre d'asymétrie $\beta = 1$

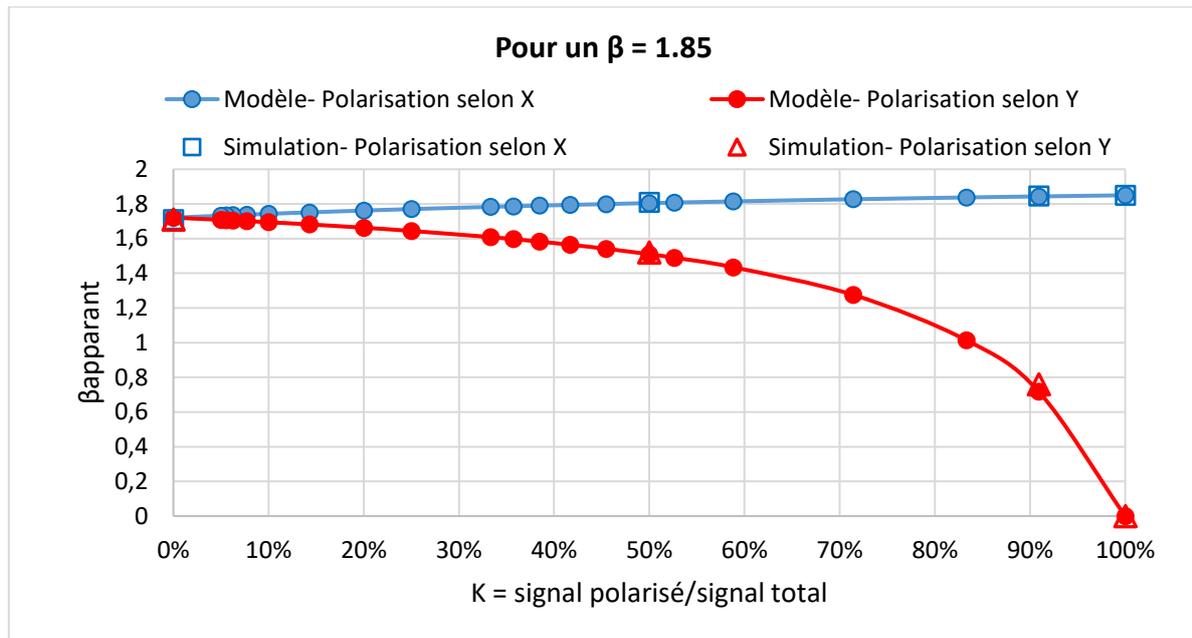


Figure V-10 : Variation des paramètres d'anisotropie apparents β_{app}^x et β_{app}^y en fonction de K : la proportion de rayonnement polarisé dans le faisceau incident pour un paramètre d'asymétrie $\beta = 1.85$

Du point de vue de la question qui sous-tend ce chapitre, c'est à dire l'influence du rayonnement non-polarisé, ce comportement est très intéressant. En effet, il signifie que dans les conditions où $\beta = 1,85$ et la polarisation est dans la direction perpendiculaire au plan du détecteur, les spectres de photoélectrons enregistrés par notre spectromètre VMI (plus précisément leur distribution angulaire apparente) devraient être très sensibles à la présence d'une faible contribution de rayonnement non-polarisé dans l'impulsion qui ionise le gaz cible (mais par contre très peu sensibles dans le cas d'un polarisation dans le plan du détecteur). Dans l'étude expérimentale que je vais présenter maintenant, nous avons cherché à évaluer si nous pouvions utiliser notre modèle analytique, et exploiter le comportement observé sur les courbes de la Figure V-10, pour remonter à la proportion de rayonnement ASE dans l'impulsion du laser XUV injecté que nous avons utilisé sur l'installation LASERIX.

IV. Mise en œuvre expérimentale

Pour tester expérimentalement le modèle analytique que nous venons de présenter, et son application à l'évaluation de la proportion de rayonnement non-polarisé, nous avons utilisé le laser XUV injecté à 32,6 nm de l'installation LASERIX, avec la même implantation expérimentale que celle décrite au chapitre IV, sans toutefois utiliser le faisceau d'habillage IR. Le but de cette expérience était d'obtenir des spectres de photoélectrons pour les deux directions de polarisation linéaire du laser XUV injecté (parallèle et perpendiculaire au plan du détecteur VMI), en faisant varier la proportion de rayonnement ASE dans la tâche focale XUV envoyée dans le VMI.

Nous décrivons d'abord le dispositif expérimental utilisé pour faire varier la direction de polarisation de l'harmonique amplifiée et la proportion d'ASE. Puis nous présentons les résultats obtenus, en particulier la méthode de traitement des spectres expérimentaux que nous avons utilisée pour nous comparer au modèle analytique reliant $\beta_{apparent}$ à la proportion de rayonnement non-polarisé K. Enfin nous

discuterons cette comparaison.

IV.1. Changement de direction de la polarisation linéaire du laser XUV injecté

La Figure V-11 rappelle le montage expérimental de l'installation LASERIX présenté dans un chapitre précédent. Le faisceau IR utilisé pour générer les harmoniques y est représenté en rouge. Comme nous l'avons rappelé au début de ce chapitre, l'harmonique d'ordre 25 générée dans l'argon, qui est injectée dans le plasma de titane amplificateur, est polarisée linéairement dans la même direction que le laser IR qui la génère. La polarisation de l'harmonique est ensuite conservée au cours de l'amplification. Dans les expériences décrites au chapitre IV, la polarisation linéaire du laser IR, et donc celle de l'harmonique amplifiée, était orientée dans la direction horizontale (i.e. dans le plan de la Figure V-11), afin d'être parallèle au plan du détecteur de notre spectromètre VMI. Cette direction de polarisation correspond à une polarisation p, car parallèle au plan d'incidence des optiques. Pour passer à une polarisation s, orientée dans la direction verticale, et donc perpendiculaire au détecteur VMI, une lame demi-onde ($\lambda/2$) est placée sur le trajet du faisceau IR, avant la cellule d'argon qui sert à générer les harmoniques (à droite sur le schéma de la Figure V-11). En tournant cette lame de $\theta = 45^\circ$, on passe ainsi de p à s, en faisant tourner l'axe de polarisation de la lumière entrante de $2\theta=90^\circ$.

Nous avons vérifié que le changement de polarisation de p à s, de l'harmonique 25 injectée, ne modifiait pas son intensité en sortie du plasma, après amplification. Ce résultat est en accord avec les prédictions théoriques [59], et cohérent avec d'autres observations expérimentales [171]. Après amplification le faisceau XUV (représenté en violet sur la Figure V-11), émis par le filament de plasma, est focalisé dans le spectromètre VMI à l'aide d'un miroir sphérique et d'un miroir plan (à l'intérieur du cercle rouge pointillés sur la Figure V-11), tous deux revêtus d'une multicouche en $B_4C:Si$, et utilisés en incidence quasi-normale ($i=2,4^\circ$). Le fait d'être en incidence quasi-normale assure que les deux polarisations p et s sont réfléchies avec la même efficacité par les deux miroirs, comme le confirment les courbes des Figure V-12 et Figure V-13. La réflectivité d'un miroir multicouches en $B_4C:Si$ pour des photons de 38 eV, calculée d'après la base de données du CXRO [153], est tracée en fonction de l'angle de rasance ($r=90^\circ-i$), pour les 3 états de polarisation qui nous intéressent : linéaire en p, en s ou non-polarisé (qui correspond à l'émission d'ASE).

On voit sur la Figure V-12 que pour un angle de rasance de $87,6^\circ$ ($i=2,4^\circ$) la réflectivité est de l'ordre de 23% et qu'elle varie en absolu de moins de 1% entre les 3 états de polarisation considérés.

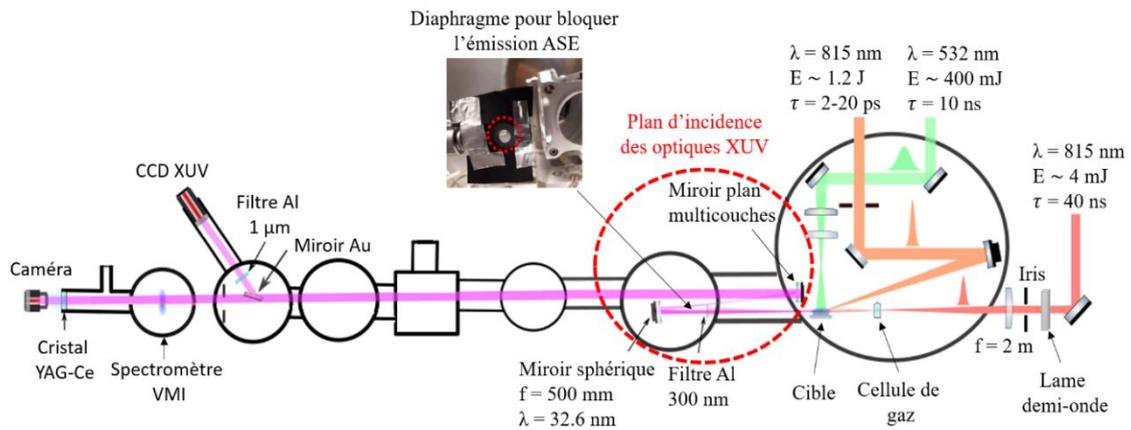


Figure V-11: Montage expérimental sur l'installation LASERIX identique à celui montré dans le chapitre IV (figure IV-6), sauf la lame $\lambda/2$ utilisée pour changer la polarisation du laser XUV injecté, et le diaphragme utilisé pour bloquer l'émission ASE

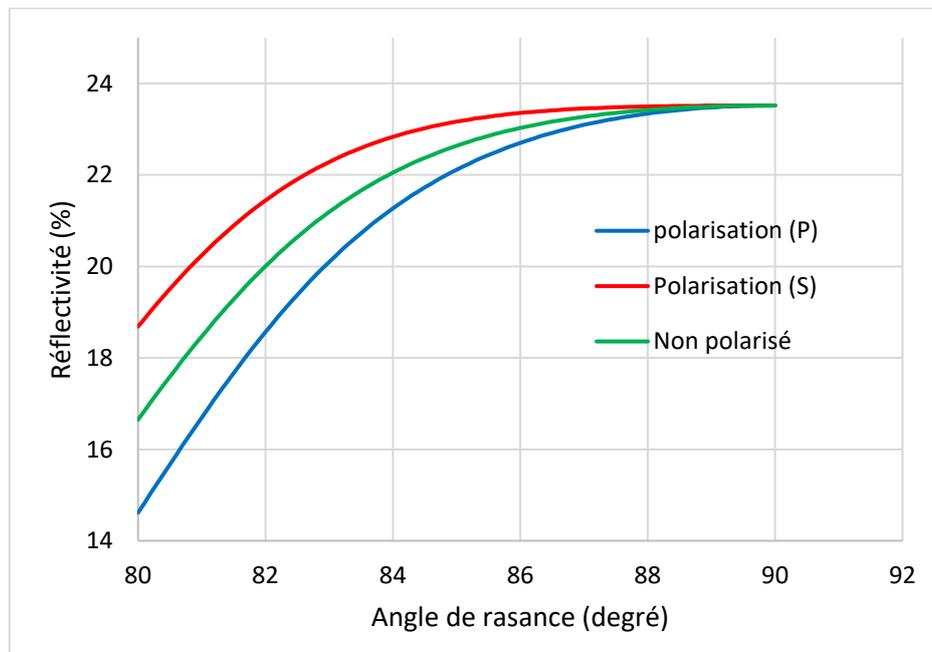


Figure V-12 : Réflectivité d'un miroir multicouches en B4C:Si pour des photons à 38eV, tracée en fonction de l'angle de rasance, pour différents états de polarisation. (Valeurs calculées par la base de données du CXRO [153])

Après réflexion par les deux miroirs, de même revêtement multicouche et à même angle d'incidence, la réflectivité totale est donnée par le carré de la réflectivité individuelle R. Dans la Figure V-13 nous avons tracé le rapport de réflectivité totale entre deux états de polarisation différents : non polarisé/ polarisation p (tirets bleus), non polarisé/ polarisation s (point-trait rouge) et polarisation p/ polarisation s (points noirs). Les différents rapports ne diffèrent de 1 que de $\sim \pm 2\%$ pour un angle de rasance de $87,6^\circ$.

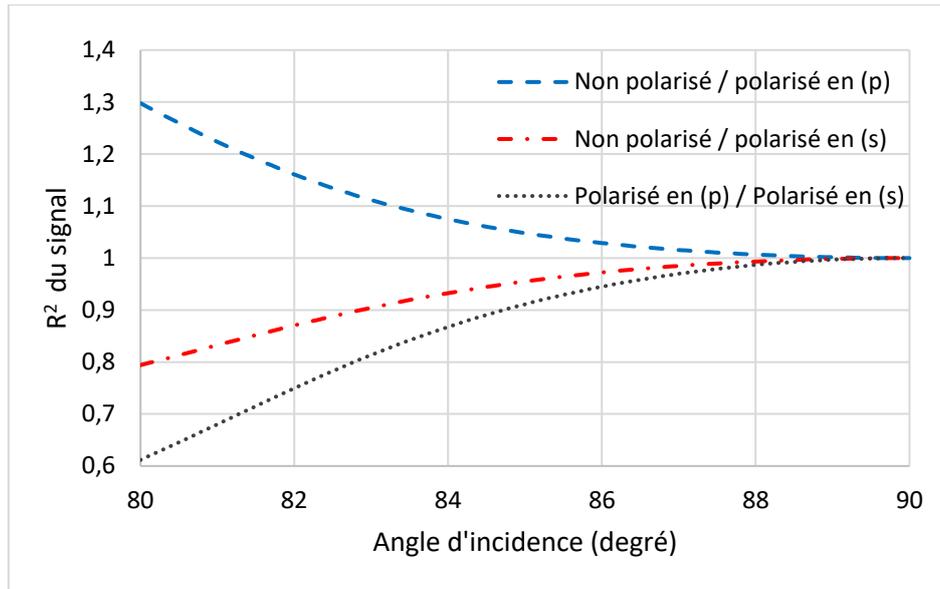


Figure V-13 : Courbes montrant le rapport des réflectivités totales de deux miroirs multicouches utilisées pour la focalisation du laser XUV dans le VMI en fonction de l'angle de rasance, pour une énergie de photons de 38 eV pour différents états de polarisation du laser XUV fonctionnant en mode injecté : pour une polarisation (p) en bleu, une polarisation (s) en rouge et le rapport de réflectivité pour les deux polarisations (p)/(s).

On en conclut donc que, dans nos conditions expérimentales, l'intensité du faisceau laser XUV, renvoyé et focalisé dans le spectromètre VMI par les deux miroirs multicouches, n'est pas modifiée par son état de polarisation. En d'autres termes, la proportion de rayonnement non-polarisé dans l'intensité totale du laser XUV injecté (que l'on va quantifier par le coefficient K introduit dans la section III.2) n'est pas modifiée par la réflexion sur les miroirs.

On va voir maintenant le dispositif utilisé dans notre expérience pour faire varier la proportion de rayonnement non-polarisé (ASE + émission thermique du plasma) envoyée dans le VMI.

IV.2. Filtrage spatial de la contribution d'ASE dans le signal du laser XUV injecté

Pour diminuer la proportion de rayonnement non-polarisé dans la tâche focale du laser XUV injecté, qui est envoyée dans le gaz cible du VMI, un diaphragme avec une ouverture de 4 mm de diamètre a été placé à quelques mm devant le miroir sphérique multicouches (voir insert sur Figure V-11). Le faisceau de l'harmonique H25 amplifiée est en effet très directif (de l'ordre de 1 mrad), alors que le faisceau ASE l'est beaucoup moins (~ 5 à 10 mrad), tandis que l'émission thermique du plasma est isotrope. Le miroir sphérique étant placé à 50 cm de la sortie du plasma, la taille du faisceau harmonique amplifiée est de l'ordre de 0,5 mm à cet endroit, alors que celle du faisceau ASE est 5 à 10 fois plus grande, soit 2 à 5 mm. La solution la plus simple consisterait donc à faire passer le faisceau par un diaphragme de diamètre petit, de l'ordre de 1 mm. Toutefois compte tenu des fluctuations tir à tir du pointé du faisceau harmonique amplifiée (de l'ordre de +/- 2 mrad), cette solution s'est avérée difficile à mettre en place. Nous avons donc choisi pour cette expérience de placer le faisceau harmonique amplifiée près du bord du faisceau ASE, en jouant sur l'angle d'injection. Il faut également rappeler que l'angle d'incidence sur le miroir étant de 2,4°, le faisceau réfléchi est très peu séparé du faisceau incident au niveau du diaphragme.

A l'aide de la caméra CCD XUV positionnée à la même distance que le centre du VMI par rapport au miroir focalisant, nous avons pu directement contrôler l'effet du diaphragme sur la structure spatiale de la tâche focale envoyée dans le spectromètre VMI, ainsi que sa capacité à intercepter la plus grande partie de l'émission ASE et de l'émission plasma, tout en laissant passer le faisceau de l'harmonique amplifiée. Les images obtenues pour les différents cas sont montrées sur la Figure V-14. Pour éviter la saturation du détecteur (et en l'absence de filtre Al supplémentaire au moment de cette expérience), ces images ont été obtenues en défocalisant très légèrement le miroir sphérique afin d'agrandir les images et ainsi diminuer le signal détecté par pixel. La Figure V-14 (a) a été enregistrée avec un laser XUV fonctionnant en mode ASE, en l'absence de diaphragme. On reconnaît les petites structures intenses à l'intérieur de la tâche, caractéristiques du mode ASE. La Figure V-14 (b) a été enregistrée avec le laser XUV opéré en mode injecté. On voit que sur la tâche ASE est superposée une zone plus petite et très intense, qui correspond à l'harmonique amplifiée. Enfin dans la Figure V-14 (c) le diaphragme est mis en place. On voit qu'une grande partie du signal ASE a été éliminée, notamment dans la partie basse de la tâche, alors que la tâche correspondant à l'harmonique amplifiée est inchangée.

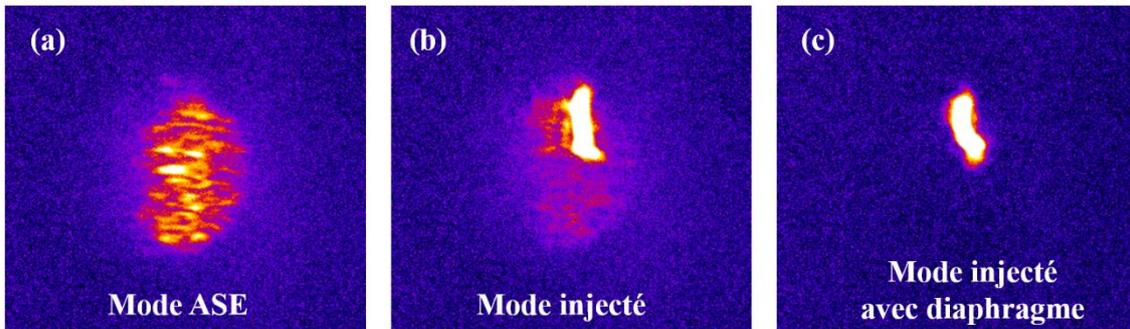


Figure V-14 : Images de la tâche focale du faisceau XUV obtenues à l'aide du caméra CCD XUV, lorsque le faisceau XUV est (a) en mode ASE, (b) en mode injecté sans diaphragme, (c) en mode injecté en présence du diaphragme qui élimine le signal ASE.

Les 3 images de la Figure V-14 correspondent à trois valeurs différentes du coefficient $K = \frac{\phi_P}{\phi_{tot}}$ que nous avons introduit dans la section III. Dans l'image (a), on a $K=0$ puisque l'émission ASE est totalement non-polarisée. Dans les images (b) et (c), on a $K>0$ grâce à la contribution de l'harmonique amplifiée, polarisée linéairement. Dans l'image (c), la valeur de K est plus grande que dans l'image (b), puisqu'on a réduit la contribution de l'ASE dans le signal XUV total (ϕ_{tot}) envoyé dans le VMI. Nous présenterons plus loin, à l'appui de nos résultats expérimentaux, l'évaluation quantitative du coefficient K que nous avons pu effectuer à partir de ces images CCD.

IV.3. Spectres de photoélectrons pour différents états de polarisation et mesure de β apparent

Nous avons donc mis en place expérimentalement la possibilité de changer de p à s la direction de polarisation de l'harmonique amplifiée, et celle de faire varier la proportion de rayonnement polarisé (et donc le coefficient K) dans le faisceau XUV ionisant envoyé dans la zone d'interaction du spectromètre VMI. Nous avons ensuite enregistré des spectres de photoélectrons, issus d'un gaz cible d'argon, pour les deux directions de polarisation p et s du laser XUV injecté, avec ou sans la présence du diaphragme. Les images brutes du VMI, obtenues pour une tension de répulsion de -3kV, sont montrées dans la

Figure V-15. Il faut souligner que, pour une meilleure lisibilité qualitative, les images sont affichées avec des échelles de niveaux de gris différentes.

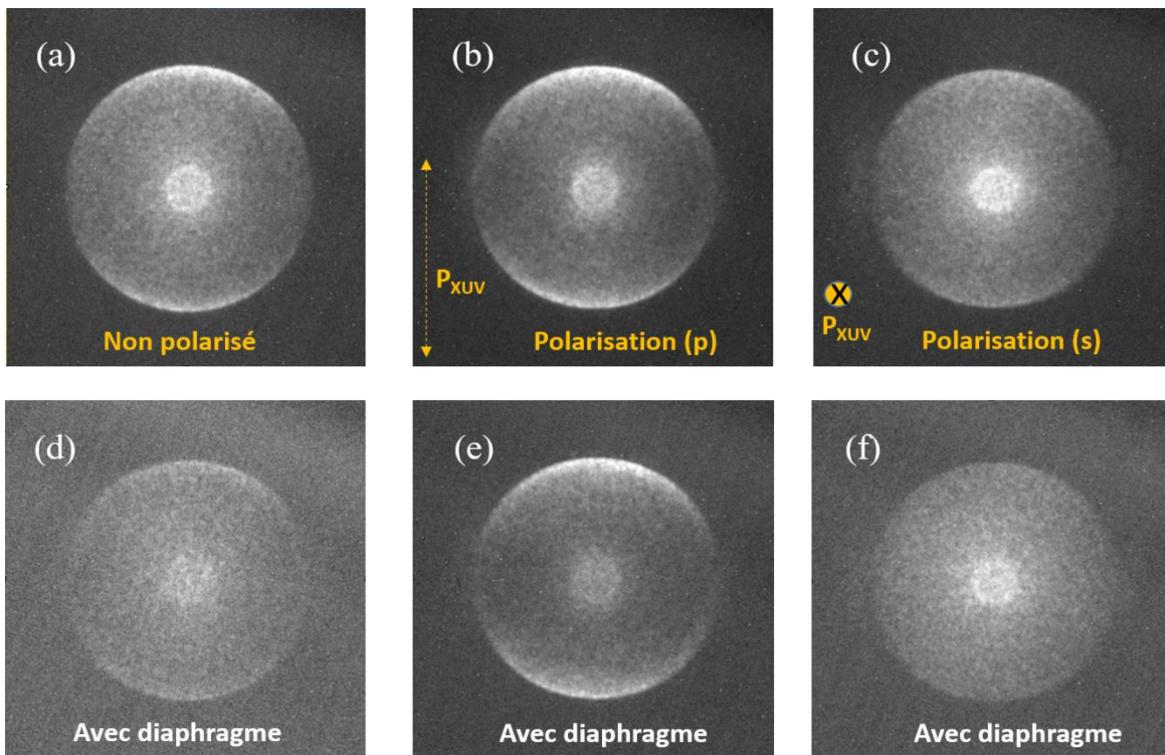


Figure V-15: Spectres bruts de photoélectrons détectés par le spectromètre VMI (gaz cible argon) par le laser XUV, sans (en haut) et avec (en bas) diaphragme, pour trois configurations de polarisation : (a,d) ASE ; (b, e) polarisation p ; (c, f) polarisation s. Paramètres VMI : $V_{rep} = -3kV$, $Z_{oig} = 3mm$, $p = 6.10^{-6}$ mbar. Dans chaque cas, l'axe de polarisation du rayonnement par rapport au détecteur est représenté en orange. Ces images sont moyennées de plusieurs images accumulées de 10 tirs laser (100 tirs laser par image moyenne).

Dans la partie supérieure de la Figure V-15, les images (a-c) ont été obtenues en l'absence de diaphragme, pour trois états de polarisation différents du lasers XUV : (a) ASE, (b) injecté avec polarisation p, (c) injecté avec polarisation s. Dans la partie inférieure, les images (d-f) montrent les spectres obtenus pour les trois mêmes états de polarisation, lorsque le diaphragme est mis en place, et donc une grande partie de l'ASE est éliminée. Sur les images (b) et (c) l'axe de polarisation de l'harmonique XUV amplifiée par rapport au plan du détecteur est indiquée par une flèche orange. Dans le cas du laser XUV ASE (Figure V-15 (a) et (d)), on peut voir que la présence du diaphragme a pour effet de diminuer le niveau de signal, ce qui confirme qu'une grande quantité de l'émission ASE a été bloquée par celui-ci. Ne contribue au processus de photoionisation que la partie de l'émission ASE qui se recouvre spatialement avec la partie injectée dans la tâche focale.

Dans le cas des spectres de la Figure V-15, (b) et (e), l'harmonique injectée dans le plasma laser XUV est en polarisation p, l'axe de polarisation est dans le plan horizontal, parallèle au plan du détecteur. Le signal de photoélectrons est maximal le long de l'axe de polarisation et minimum dans la direction perpendiculaire à celui-ci. Cette forte asymétrie résulte de la valeur élevée ($\beta = 1,85$) du paramètre de distribution angulaire à 38 eV de l'argon. Lorsque le diaphragme est positionné dans le trajet du faisceau

XUV, on remarque (Figure V-15 (e)) que le signal dans la direction perpendiculaire à la polarisation est légèrement diminué. L'effet de la présence du diaphragme est beaucoup plus spectaculaire lorsque le laser XUV injecté fonctionne en polarisation s, dans le plan vertical, i.e. perpendiculaire au plan du détecteur. En comparant les images (c) et (f) de la Figure V-15, on voit que la distribution angulaire est beaucoup plus uniforme lorsque le diaphragme est en place.

Nous constatons donc, pour le moment qualitativement, que la distribution angulaire apparente, telle qu'enregistrée sur le détecteur du VMI, est modifiée par l'état de polarisation du rayonnement ionisant de façon similaire aux résultats des simulations que nous avons présentées dans la section III (voir Figure V-6). Pour effectuer une comparaison quantitative, avec nos simulations numériques et avec les expressions analytiques de notre modèle simplifié, il faut extraire la valeur du paramètre d'anisotropie apparent (β_{apparent}) de nos spectres bruts expérimentaux. Nous avons pour cela utilisé deux méthodes différentes, la première utilisant directement les spectres bruts, la deuxième utilisant inversion d'Abel en supposant une polarisation p. Nous présentons dans la section suivante les méthodes utilisées pour traiter les données, et nous comparons les résultats obtenus par les deux méthodes.

IV.3.1. Mesure de β_{apparent} sans inversion d'Abel, transformation en coordonnées polaires

On a vu dans la section III que le paramètre d'asymétrie β_{apparent} peut être extrait à partir du rapport de signal de photoélectrons entre la direction de polarisation du rayonnement ionisant et la direction perpendiculaire, $R_{\text{apparent}} = \frac{S_{x \text{ app}}}{S_{z \text{ app}}}$ (équation V-30). En toute rigueur ce signal doit être mesuré sur le spectre après inversion, et non sur le spectre brut. Toutefois les spectres que nous étudions étant constitués d'une seule raie (ionisation de la sous-couche 3p de l'argon par des photons de 38 eV), la mesure du signal sur la couronne extérieure dans les spectres bruts constitue une très bonne approximation, comme nous allons le vérifier dans la suite.

Les différentes étapes du traitement des données sont schématisées dans la Figure V-16. L'image (a) montre un exemple de spectre brut dans les conditions de polarisation similaires à la Figure V-15 (b) : polarisation linéaire p (dans le plan du détecteur) du laser XUV injecté. Les valeurs de l'angle θ indiquées sont mesurées par rapport à l'axe de polarisation du laser XUV.

Afin de faciliter les mesures, en particulier l'intégration angulaire sur un intervalle donné, l'image brute, initialement en coordonnées cartésiennes (P_x, P_z), est transformée en représentation polaire (R, θ), comme le montre la Figure V-16 (b), où les angles $\theta = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$ et 270° par rapport à la polarisation XUV sont également indiqués. Enfin la mesure du signal dans la direction de polarisation et dans la direction perpendiculaire est effectuée sur le tracé de la Figure V-16 (c) qui correspond à une coupe du spectre (b) le long de la direction angulaire, selon la ligne en pointillés bleus. Cette ligne est positionnée au maximum de la raie photoélectronique d'énergie cinétique $E_c = 22,24$ eV et elle a une largeur $\Delta R = 10$ px, qui correspond à $\Delta E = 0.5$ eV. La valeur de ΔR doit être la plus petite possible pour se rapprocher des grandeurs S_x et S_z utilisée dans notre modèle analytique, mais suffisamment grande pour limiter le bruit. La valeur $\Delta R = 10$ px est un bon compromis. Sur la Figure V-16 (c) on a indiqué par des flèches les positions angulaires où le signal a été mesuré. Le signal suivant l'axe de polarisation X est mesuré à $\theta = 0^\circ$ et 180° , le signal suivant l'axe de propagation Z du faisceau XUV est mesuré à $\theta = 90^\circ$

et 270°. On voit que le signal est légèrement différent à 0° et 180° d'une part, et à 90° et 270° où le signal est proche de 0, d'autre part (bien que de façon moins marquée). Cette asymétrie est également visible sur le spectre brut montré en (a). En principe, compte tenu de la symétrie de la distribution angulaire autour de l'axe de polarisation, le spectre projeté sur le détecteur devrait être symétrique haut/bas, ainsi que droite/gauche. L'asymétrie observée est principalement due à un centrage imparfait du jet de gaz par rapport au faisceau ionisant et/ou au centre du VMI. Compte tenu de cette légère asymétrie, nous considérerons la valeur moyenne du signal $\langle S_x \rangle = \frac{S_{0^\circ} + S_{180^\circ}}{2}$, et $\langle S_z \rangle = \frac{S_{90^\circ} + S_{270^\circ}}{2}$. Pour tenir compte du bruit la valeur mesurée à chaque angle θ est moyennée sur un petit intervalle angulaire $\Delta\theta = \pm 10^\circ$. Au contraire de la largeur radiale ΔR , la mesure du signal est moins sensible à l'intégration angulaire. Les mesures de $\langle S_x \rangle$ et $\langle S_z \rangle$ nous permettent de calculer le rapport recherché $R_{mes} = \frac{\langle S_x \rangle}{\langle S_z \rangle}$.

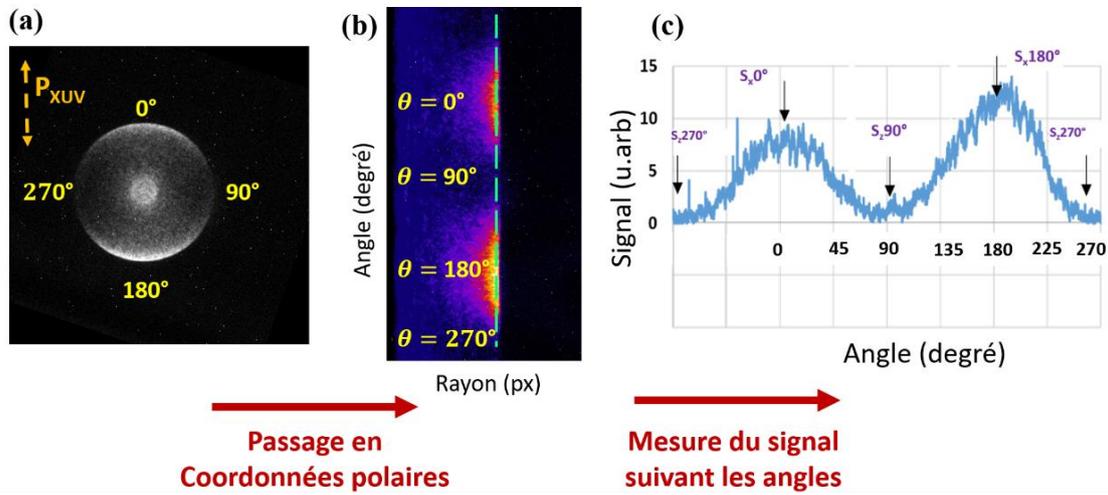


Figure V-16: Première méthode utilisée pour calculer les valeurs du paramètre β_{app} sur les images brutes du VMI, sans le passage par un programme d'inversion d'Abel. Le spectre brut (a) est transformé en coordonnées polaires (b). Le signal dans la direction de polarisation et dans la direction perpendiculaire est mesuré sur le profil (c), correspondant à la variation angulaire du signal à la position de la raie, comme indiqué par la ligne en pointillés bleus sur le spectre (b).

En utilisant l'équation V-24, le rapport R_{mes} mesuré peut être relié au paramètre d'asymétrie apparent β_{app} par l'expression suivante :

$$R_{mes} = \frac{\langle S_x \rangle}{\langle S_z \rangle} = \frac{1 + \beta_{app}}{1 - \frac{\beta_{app}}{2}} \quad (\text{équation V-31})$$

D'où on tire l'expression β_{app} en fonction du rapport R_{mes} mesuré :

$$\beta_{app} = \frac{R-1}{1+\frac{R}{2}} \quad (\text{équation V-32})$$

Nous avons appliqué la méthode décrite aux 6 spectres expérimentaux présentés dans la Figure V-15. Les valeurs du rapport R_{mes} mesurées, ainsi que les valeurs de β_{app} déduites pour les différents états de polarisation sont regroupées dans le tableau V-2.

Spectre	$R = \langle S_x/S_z \rangle$	β_{app}
XUV-mode ASE ; sans diaphragme	15.3	1.65 ± 0.18
XUV-mode ASE ; avec diaphragme	15	1.64 ± 0.3
XUV-injecté, Polarisation (p) ; sans diaphragme	12.7	1.59 ± 0.08
XUV-injecté, Polarisation (p) ; avec diaphragme	26.6	1.83 ± 0.12
XUV-injecté, Polarisation (s) ; sans diaphragme	10.1	1.50 ± 0.18
XUV-injecté, Polarisation (s) ; avec diaphragme	5.2	1.17 ± 0.49

Tableau V-2: Valeurs mesurées du rapport $R_{mes} = \langle S_x/S_z \rangle$ et du paramètre β_{app} d'après l'équation V-31, dans les spectres bruts photoélectroniques présentés sur la Figure V-15, pour différents états de polarisation du laser XUV.

IV.3.2. Mesure de β_{app} par inversion d'Abel par le logiciel pBasex*

La deuxième méthode utilisée pour extraire le paramètre d'anisotropie β_{app} de nos spectres photoélectroniques expérimentaux consiste à effectuer une inversion d'Abel (en supposant une symétrie correspondant à la polarisation p). Comme déjà discuté dans la section III de ce chapitre, l'inversion d'Abel n'est rigoureusement valable que lorsque l'axe de symétrie de l'image VMI est située dans le plan du détecteur, ce qui correspondrait au cas d'un laser XUV polarisé linéairement en p. L'inversion d'Abel des spectres correspondant aux autres états de polarisation considérés ici a pour but d'extraire une valeur du paramètre d'asymétrie apparent β_{app} , comme nous l'avons fait à partir des spectres synthétiques présentés sur la Figure V-15.

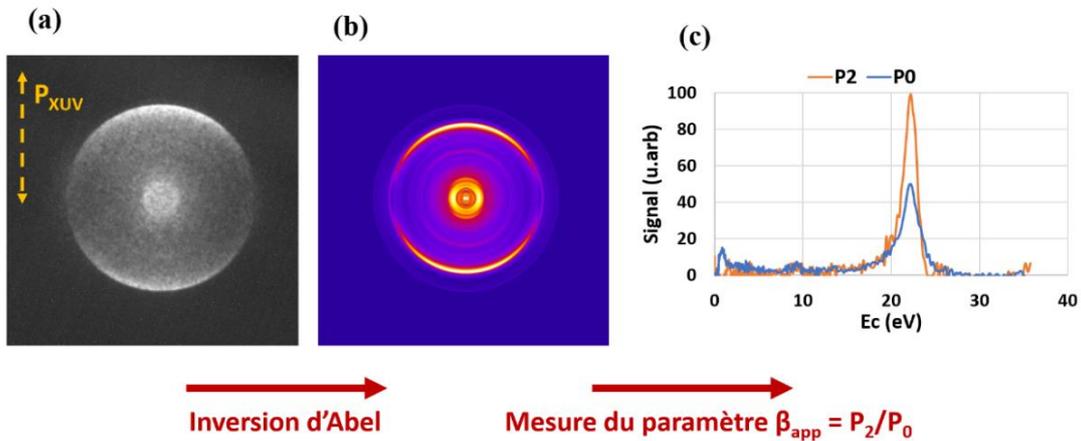


Figure V-17: Deuxième méthode utilisée pour mesurer les valeurs du paramètre β_{app} par inversion d'Abel en utilisant l'algorithme pBasex+. (a) spectre brut obtenu ; (b) spectre inversé ; (c) courbes de $P_0(E)$ et $P_2(E)$ dont on déduit la valeur de β_{app} .

Nous avons utilisé l'algorithme d'inversion pBasex* déjà décrit dans le chapitre II, comme schématisé sur la Figure V-17. Le spectre brut montré en (a) est inversé par pBasex+ en prenant l'axe de polarisation comme axe de symétrie. Le spectre inversé obtenu, c'est à dire la tranche centrale de la sphère, est montrée en (b). L'inversion par pBasex* fournit d'autre part les fonctions $P_0(E)$ et $P_2(E)$ associées aux polynômes de Legendre d'ordre 0 et 2 respectivement intervenant dans la distribution angulaire du signal pour un processus d'ionisation à un photon. Ces courbes sont montrées dans la Figure V-17 (c). La

courbe $P_0(E)$ correspond au spectre de photoélectrons intégrés angulairement. La valeur du paramètre (β_{app}) est obtenue en calculant le rapport P_2/P_0 [134] moyenné sur la largeur à mi-hauteur du profil de la raie (suivant le rapport des moyennes pondérées).

La procédure d'inversion d'Abel par pBasex* a été appliquée aux 6 spectres bruts présentés sur la Figure V-18. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure V-18, qui montre les spectres avant inversion (partie gauche) et les spectres inversés (partie droite), pour les 6 états de polarisation du laser XUV étudiés. Comme dans la Figure V-18, les images du haut correspondent au cas sans diaphragme, celles du bas au cas avec diaphragme en place, et donc émission ASE en partie éliminée.

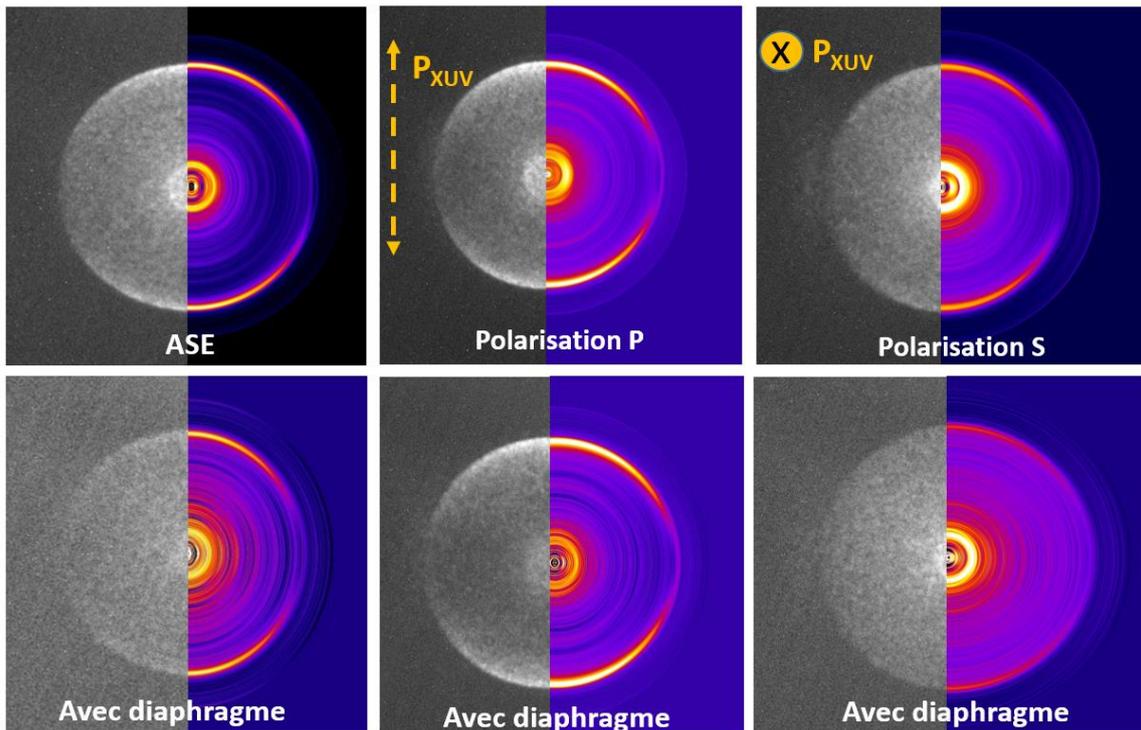


Figure V-18 : Spectres bruts de photoélectrons présentés dans la figure V-15 (à gauche) et les spectres inversés correspondants (à droite), sans (en haut) et avec (en bas) diaphragme, pour trois configurations de polarisation : à gauche en ASE ; au centre pour une polarisation p ; et à droite pour une polarisation s.

Enfin le tableau V-3 regroupe les valeurs de β_{app} calculées à partir des fonctions $P_0(E)$ et $P_2(E)$, fournies par pBasex* pour les différents états de polarisation. Dans la dernière colonne de ce tableau on a également reporté les valeurs de β_{app} trouvées précédemment (tableau V-2). Si on compare les valeurs de β_{app} obtenues par les deux méthodes, on voit qu'on trouve un très bon accord dans le cas du laser XUV ASE et dans le cas du laser XUV injecté en polarisation s. L'accord est un peu moins bon dans le cas de la polarisation p. Nous allons maintenant comparer ces valeurs mesurées sur nos spectres expérimentaux à celles prédites par notre modèle analytique.

Spectre	β_{app}	$\beta_{app}(R)$
XUV-mode ASE ; sans diaphragme	1.68 ± 0.05	1.65 ± 0.18
XUV-mode ASE ; avec diaphragme	1.65 ± 0.06	1.64 ± 0.3
XUV-injecté, Polarisation (P) ; sans diaphragme	1.78 ± 0.04	1.59 ± 0.08
XUV-injecté, Polarisation (P) ; avec diaphragme	1.75 ± 0.08	1.83 ± 0.12
XUV-injecté, Polarisation (S) ; sans diaphragme	1.48 ± 0.2	1.50 ± 0.18
XUV-injecté, Polarisation (S) ; avec diaphragme	1.08 ± 0.3	1.17 ± 0.49

Tableau V-3 : Valeurs de β_{app} résultant de l'inversion d'Abel par l'algorithme pBasex+, des spectres bruts photoélectroniques présentés sur la figure V-16, pour différents états de polarisation du laser XUV. Les valeurs du Tableau V-2 sont rappelées en italiques dans la colonne de droite.

V. Comparaison des mesures de β_{app} avec le modèle analytique

V.1. Estimation du coefficient K à partir du profil spatial du laser XUV

Afin d'évaluer, pour chacun des cas étudiés plus haut, un ordre de grandeur de la proportion de rayonnement polarisé et non polarisé dans le nombre total de photons XUV envoyé dans le VMI, nous repartons des images de la tâche focale du laser XUV que nous avons présentées dans la Figure V-19. Ces images sont reproduites sur la Figure V-19, dans laquelle nous avons ajouté (image (b)) l'image de la tâche focale XUV obtenue dans le cas ASE, avec le diaphragme en place. Sur chaque image, nous avons mesuré le signal intégré sur la surface délimitant la tâche focale ASE (pointillés noirs), qui correspond au signal total, puis le signal intégré sur la surface délimitant l'harmonique amplifiée (pointillés verts). Les résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau V-4.

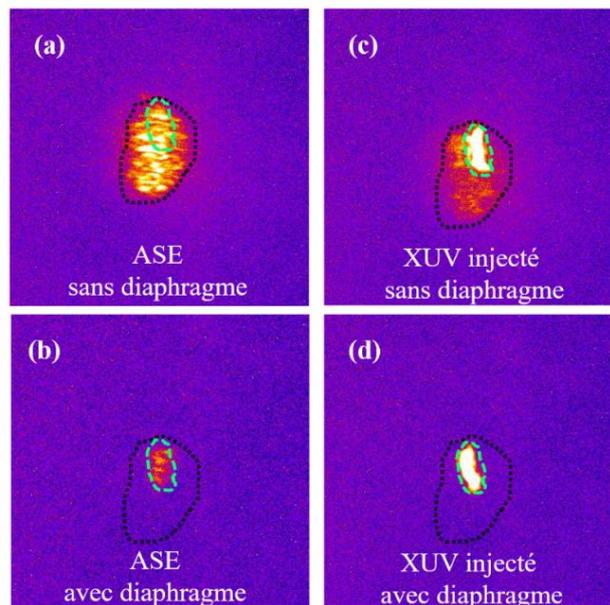


Figure V-19: Mesure du niveau de signal de la partie ASE et la partie harmonique amplifiée dans les tâches focales du laser XUV sans et avec diaphragme pour bloquer l'émission ASE. Les tirets verts montrent la surface mesurée pour la partie harmonique injecté, tandis que les tirets noirs délimitent représentent la mesure de la partie ASE.

	Contour ASE = signal total	Contour HH amplifiée	Coefficient $K = \frac{\Phi_P}{\Phi_{tot}}$
(a) ASE sans diaphragme	$1,6 \cdot 10^7$	$1,1 \cdot 10^6$	0
(b) ASE avec diaphragme	$1,5 \cdot 10^6$	$1,1 \cdot 10^6$	0
(c) injecté sans diaphragme	$3 \cdot 10^7$	$1,6 \cdot 10^7$	0,5
(d) injecté avec diaphragme	$1,6 \cdot 10^7$	$1,4 \cdot 10^7$	0,8-0,87

Tableau V-4 : Signal intégré sur les images (a-d) de la figure V-20, dans les deux zones délimitant la tache focale ASE et l'harmonique amplifiée respectivement. Le coefficient K déduit de ces mesures est indiqué dans la colonne de droite.

Pour l'image (a) « ASE sans diaphragme » on voit dans ce tableau que l'émission ASE mesurée dans la petite zone correspondant à l'harmonique amplifiée (colonne du milieu) est de l'ordre de $1,1 \cdot 10^6$, ce qui est beaucoup plus faible (<10%) que le signal mesuré dans la même zone pour l'image (c) « injecté sans diaphragme » (de l'ordre de $1,6 \cdot 10^7$). On en déduit que le signal provenant de l'harmonique amplifiée polarisée constitue environ 50% du signal total (de l'ordre de $3 \cdot 10^7$), tel que mesuré dans la zone entourant toute la tâche focale. Le reste du signal ($\sim 1,5 \cdot 10^7$) est dû à l'ASE non-polarisée. En l'absence de diaphragme, la tâche focale du laser XUV injecté correspond donc à un coefficient $K \sim 0,5$. Dans le cas où le diaphragme était en place, le signal total, mesuré dans l'image (d) dans la zone délimitant l'ASE, est réduit à $\sim 1,6 \cdot 10^7$, alors que le signal mesuré sur la même image dans la zone délimitant l'harmonique amplifiée est $\sim 1,4 \cdot 10^7$. On en déduit que la proportion du rayonnement polarisé provenant de l'harmonique amplifiée est de l'ordre de 80-87%, selon que la contribution de l'ASE dans la zone de l'harmonique amplifiée ($\sim 1,1 \cdot 10^6$) est soustraite ou pas. Finalement les valeurs du coefficient K évaluées à partir des images de la Figure V-19 sont rassemblées dans la colonne de droite du Tableau V-4.

V.2. Effet du taux de polarisation et comparaison avec le modèle analytique

En associant les valeurs du coefficient K que nous venons d'évaluer aux mesures de β_{app} correspondantes pour chaque configuration de polarisation étudiée, nous pouvons maintenant placer les points expérimentaux sur les courbes $\beta_{app} = f(K, \beta)$ issues de notre modèle analytique, avec $\beta = 1,85$ (Figure V-10). Comme on peut le voir dans la Figure V-20, nos mesures sont en excellent accord avec les courbes calculées, aussi bien pour la polarisation p (en bleu), que la polarisation s (en rouge), ou encore l'ASE (en vert). Il faut rappeler ici que nous avons associé la même valeur de K pour les mesures de β_{app} en polarisation p et s. Nous avons en effet vu que nous pouvions considérer que le passage de p à s pour l'harmonique injectée ne modifiait pas l'intensité de ce rayonnement dans la tâche focale envoyée dans le VMI.

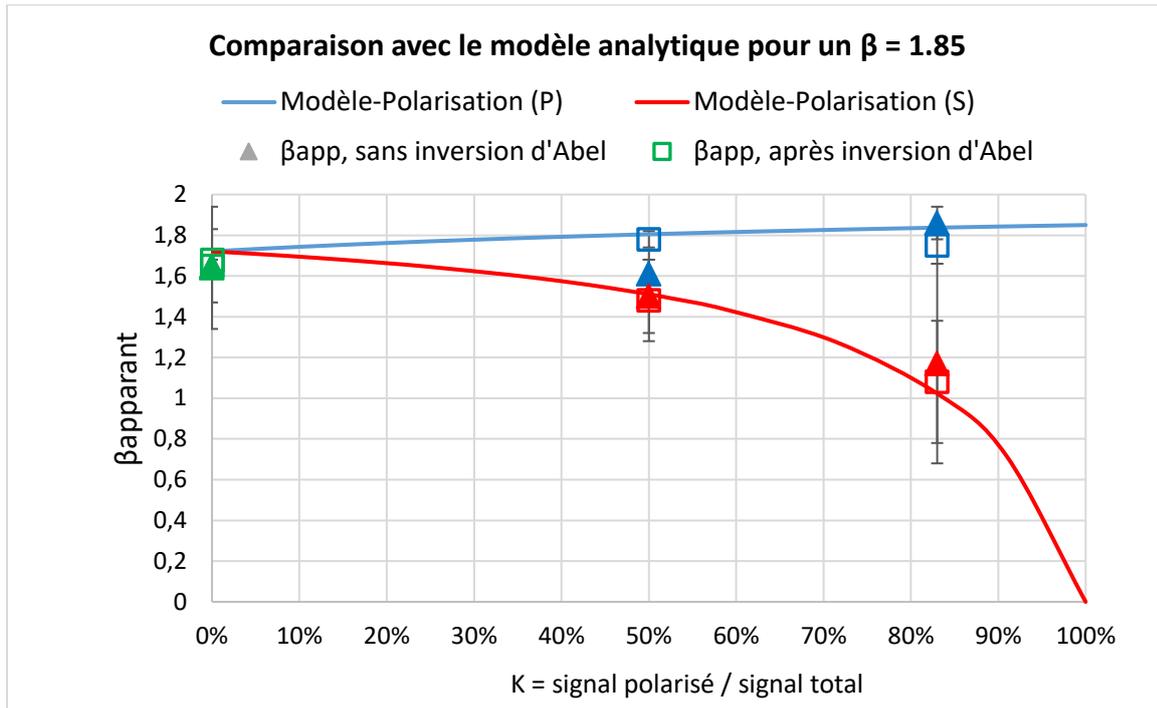


Figure V-20: Comparaison entre les valeurs du β_{app} calculées par le modèle analytique et les valeurs mesurées sur les spectres expérimentaux par deux méthodes, sans et avec inversion d'Abel, pour deux directions de polarisation par rapport au plan du détecteur : p= parallèle ; s= perpendiculaire.

Dans le temps limité que nous avons pu consacrer à cette expérience, il ne nous a malheureusement pas été possible d'affiner davantage la méthode d'élimination de la contribution du rayonnement ASE dans le faisceau laser XUV injecté. Cela nous aurait permis d'étudier le potentiel de notre méthode pour $K > 0,9$ et d'évaluer ainsi la sensibilité de notre méthode pour contrôler (et possiblement éliminer totalement) la proportion d'ASE dans le signal du laser XUV injecté. Les résultats que nous avons obtenus nous permettent toutefois de valider le principe de la méthode. Cette méthode est particulièrement bien adaptée au laser XUV injecté, qui contient de façon inhérente un fond d'émission ASE non-polarisé, qu'il est important de quantifier et de réduire au maximum, non seulement pour progresser dans la technique d'habillage laser pour la caractérisation temporelle, mais aussi pour toute expérience d'application qui vise à utiliser les propriétés de cohérence, de polarisation ou de courte durée de l'harmonique amplifiée.

Plus généralement l'utilisation de la distribution angulaire apparente détectée par le spectromètre VMI pourrait être étendue à d'autres sources XUV cohérentes, notamment les lasers XUV à électrons libres, ou encore les harmoniques d'ordre élevé. Dans ce dernier cas, notre méthode n'est applicable que sur la raie de photoélectrons la plus extérieure sur le spectre, c'est à dire correspondant à l'harmonique de plus forte énergie envoyée dans le VMI. Enfin on a vu que notre méthode de mesure du taux de polarisation est beaucoup plus sensible lorsque le paramètre d'anisotropie β de la raie considérés est proche de 2. Dans la Figure V-21, on a tracé l'évolution en fonction de l'énergie des photons du paramètre d'anisotropie β correspondant à l'ionisation de la sous-couche externe de différents gaz rares : Ne (2p), Ar (3p), Kr (4p) et Xe (5p). Le graphe de gauche présente les valeurs mesurées, telles que trouvées dans

la littérature. Le graphe de droite présente les valeurs des calculs théoriques, telles que tabulées dans la base de données d'Elettra [172]. On voit que sur toute la gamme d'énergie 20-100 eV on peut trouver un gaz rare pour lequel la valeur du paramètre d'asymétrie β est comprise entre 1 et 1,9. Le domaine d'énergie le plus favorable pour appliquer notre méthode est situé dans la gamme 20-40 eV.

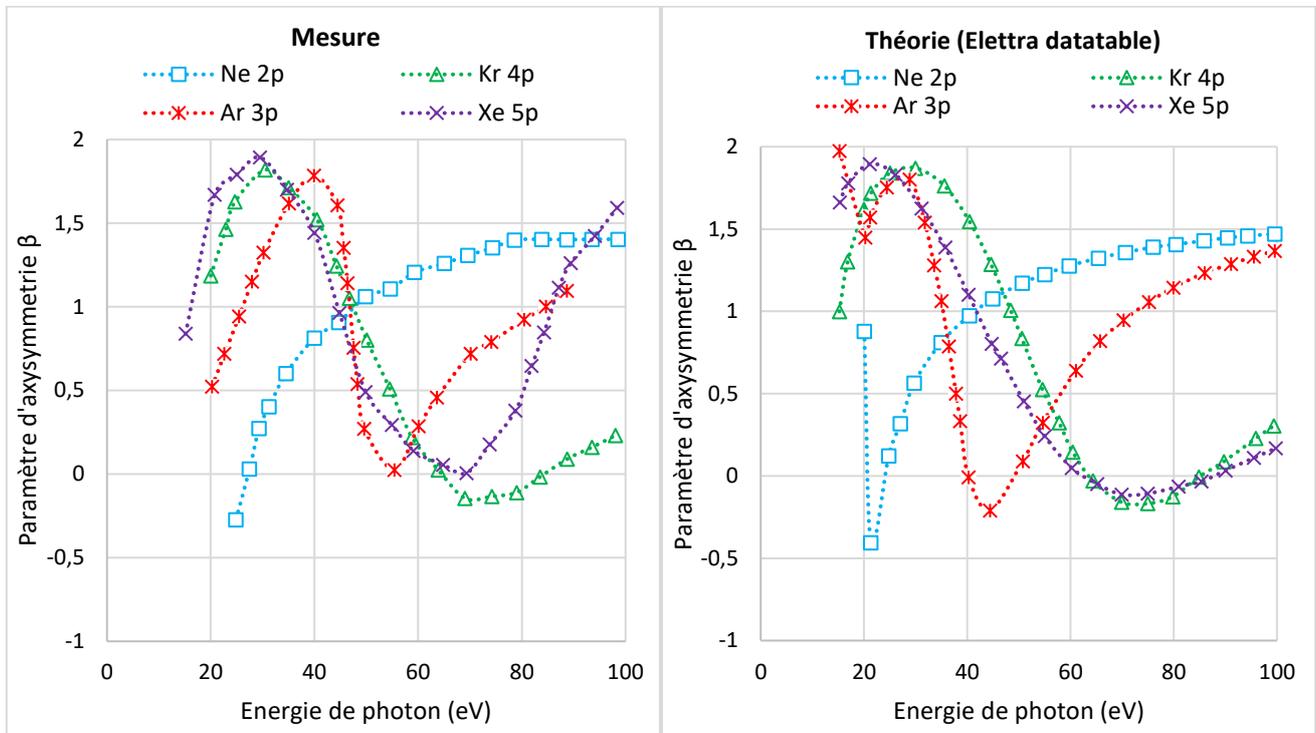


Figure V-21 : l'évolution en fonction de l'énergie des photons du paramètre d'anisotropie β correspondant à l'ionisation de la sous-couche externe de différents gaz rares : Ne (2p), Ar (3p), Kr (4p) et Xe (5p). Les valeurs mesurées, telles que trouvées dans la littérature (à gauche) et les valeurs des calculs théoriques, telles que tabulées dans la base de données d'Elettra [172] (à droite).

VI. Conclusion

Finalement, dans ce chapitre, j'ai étudié l'effet de l'état de polarisation du rayonnement ionisant sur la distribution angulaire apparente des photoélectrons enregistrés sur le détecteur du spectromètre VMI. Les simulations numériques que nous avons présentées nous ont permis de visualiser la modification de la distribution angulaire apparente pour différents états de polarisation et d'introduire le paramètre d'anisotropie apparent β_{app} . Le modèle simplifié que nous avons développé nous a ensuite permis de donner les expressions analytiques de la valeur de β_{app} en fonction du paramètre d'anisotropie atomique β et du coefficient K de proportion de rayonnement polarisé, selon que la polarisation (linéaire) est parallèle ou perpendiculaire au plan du détecteur. Nous avons pu tester la validité de ce modèle dans des expériences que nous avons réalisées sur l'installation LASERIX, avec le laser XUV injecté à 38 eV, constitué d'un mélange de rayonnement polarisé et non-polarisé. Les résultats que nous avons obtenus sont en excellent accord avec notre modèle.

Conclusion et perspectives

Dans cette thèse, nous avons étudié l'application de la technique de photoionisation habillée par laser sur deux sources XUV ultrabrèves et ultra-intenses, qui ont en commun d'être générées par des lasers intenses, de classe 100TW, et d'être associées à la création d'un plasma dense et chaud : le laser XUV en mode injecté d'une part, et les harmoniques d'ordre élevé générées par miroir plasma, d'autre part. Notre objectif initial était d'utiliser cette technique pour caractériser temporellement ces deux sources XUV à leur échelle temporelle respective, c'est à dire femtoseconde pour le laser XUV et attoseconde pour les harmoniques XUV. L'approche que nous avons choisie consiste à ioniser une cible gazeuse à l'aide de l'impulsion XUV à caractériser, en présence d'un champ d'habillage de fréquence différente, choisi dans notre cas dans le domaine infrarouge, qui module le spectre des photoélectrons émis. Cette approche a déjà été utilisée avec succès pour caractériser temporellement les lasers XUV/X à électrons libres avec une résolution temporelle femtoseconde, ainsi que les harmoniques d'ordre élevé générées dans les gaz avec une résolution attoseconde.

A l'aide de simulations numériques utilisant le modèle SFA, nous avons étudié pour chaque source l'influence du champ d'habillage infrarouge sur les spectres photoélectroniques. Nous avons montré l'importance d'avoir accès à la distribution angulaire des photoélectrons émis pour tirer parti des informations temporelles encodées et pour renforcer la fiabilité de la mesure. Dans nos expériences la résolution angulaire est obtenue par l'utilisation d'un spectromètre à imagerie de vitesse (VMI), spécifiquement conçu pour cette étude, et caractérisé au début de notre travail.

Dans le cas des harmoniques générées par miroir plasma, émettant un peigne de raies régulièrement espacées, nous avons cherché à observer l'asymétrie induite par le faisceau d'habillage infrarouge dans la distribution angulaire du spectre de photoélectrons le long de l'axe de polarisation, et sa variation en fonction du retard XUV/IR à l'échelle sub-cycle. Dans cette expérience, particulièrement difficile, nous avons pu enregistrer des spectres de photoélectrons ionisés par les harmoniques XUV en un seul tir, mais nous n'avons pas observé l'effet d'habillage attendu. L'étude détaillée que nous avons menée nous permet de conclure que les deux principaux facteurs qui ont pu masquer cet effet sont (i) les aberrations introduites par le miroir de focalisation de l'impulsion XUV dans le VMI, affectant la synchronisation temporelle avec l'impulsion IR ; (ii) le filtrage spectral insuffisant de l'émission thermique du plasma qui suit l'impulsion des harmoniques XUV, et induit un signal parasite dans les spectres des photoélectrons détectés. Une deuxième expérience améliorant ces deux points aurait été nécessaire pour évaluer plus précisément la faisabilité de l'objectif ultime et original de la méthode : utiliser l'information angulaire des spectres habillés pour remonter, en un seul tir, à la caractérisation complète de l'impulsion XUV, par un algorithme itératif.

Dans le cas du laser XUV injecté, émettant une seule raie spectralement fine, nous avons cherché à remonter au profil temporel de la partie d'amplification cohérente induite par l'harmonique injectée dans le plasma amplificateur, par la méthode de corrélation croisée utilisant le signal de sidebands. En augmentant la durée de l'impulsion d'habillage IR, et en prenant en compte la résolution spectrale limitée de notre VMI dans le traitement des spectres de photoélectrons, nous avons pu mettre en évidence un faible effet d'habillage, pour un retard XUV/IR compatible avec les prédictions de simulations

numériques. Ces résultats, encore préliminaires, constituent une première étape encourageante.

Pour aller plus loin, il est nécessaire d'améliorer autant que possible la résolution spectrale du spectromètre VMI, notamment en travaillant dans une gamme d'énergie cinétique plus faible, ou encore en remplaçant l'aiguille d'injection du gaz cible par une vanne pulsée. De plus la vanne pulsée permet de plus de diminuer la pression de gaz résiduel susceptible de générer un signal parasite dans les images enregistrées. Mais surtout notre travail révèle le rôle néfaste joué par l'émission ASE, qui accompagne l'harmonique amplifiée et dure plus longtemps. Nous avons étudié et proposé une méthode originale pour quantifier et contrôler de façon très sensible la proportion d'ASE présente dans l'impulsion XUV envoyée dans le spectromètre VMI, en nous appuyant sur l'accès à la distribution angulaire fournie par ce spectromètre, et sur la possibilité de changer la direction de polarisation de la partie cohérente de l'impulsion. En améliorant ces deux points critiques, nous pensons qu'il devrait être possible de mener à bien une mesure de corrélation croisée de l'impulsion XUV cohérente du laser XUV injecté, utilisant le signal des sidebands avec un balayage temporel. Cette étape est indispensable pour aller vers l'objectif initial de notre travail, qui était de réaliser des mesures temporelles mono-tir, en utilisant un champ d'habillage THz dans le régime de streaking.

Plus généralement, on voit donc que la présence de rayonnement incohérent, et de durée plus longue que l'impulsion XUV ultrabrève à caractériser, a constitué une difficulté commune aux deux sources que nous avons étudiées. Cette difficulté est spécifique aux mécanismes de génération de ces deux sources, impliquant la création d'un plasma chaud et dense. Elle n'existe pas pour les impulsions des lasers XUV/X à électrons libres, ni pour les harmoniques d'ordre élevé générées dans un gaz (même si l'impulsion XUV doit être séparée du faisceau d'électrons dans le premier cas, et du faisceau IR de génération dans le deuxième cas). Dans notre cas, la présence de rayonnement incohérent de même énergie ou d'énergie proche, accompagnant l'impulsion XUV à caractériser constitue donc un défi supplémentaire de ces expériences, déjà délicates à réaliser.

D'autres difficultés ont également limité l'avancement de notre travail, et devront être prises en compte pour aller plus loin :

- i) la fluctuation de l'impulsion XUV d'un tir à l'autre, qui rend d'autant plus crucial l'objectif de caractérisation en mono-tir, en s'affranchissant du balayage temporel.
- ii) la limitation d'accès aux installations où ces sources sont développées, qui a entravé la possibilité de répéter les expériences en mettant en œuvre les améliorations nécessaires.

Bien qu'offrant une résolution spectrale moins bonne que d'autres types de spectromètres à électrons, le spectromètre VMI que nous avons utilisé nous paraît présenter plusieurs avantages. L'accès à la distribution angulaire des spectres de photoélectrons renforce la fiabilité des mesures puisqu'elle donne accès dans une même image à un effet d'habillage maximal dans la direction de polarisation, et minimal ou nul dans la direction perpendiculaire. Pour les sources harmoniques générées par miroir plasma, la résolution angulaire est indispensable, puisque l'effet du champ d'habillage attendu est une asymétrie du signal des photoélectrons le long de l'axe de polarisation. Pour le laser XUV injecté, la résolution

angulaire nous a permis d'étudier et proposer une méthode expérimentale pour quantifier la contribution de l'émission ASE dans le signal total du laser XUV injecté. Enfin, utilisé en mode ions, en imagerie spatiale et imagerie de vitesse, le spectromètre VMI est un outil précieux et particulièrement utile pour contrôler l'alignement et la superposition des faisceaux XUV et d'habillage.

En conclusion, la caractérisation temporelle des deux sources XUV ultrabrèves que nous avons étudiées dans cette thèse est un enjeu important, mais reste à ce jour difficile à réaliser. En parallèle de notre travail, des premiers résultats encourageants ont également été obtenus par d'autres approches « tout optique », dans le cadre de deux thèses. Au LOA (ENSTA, Institut Polytechnique de Paris) Adeline Kabaszinski [34] [35] a étudié une méthode mono-tir de corrélation croisée, basée sur la chute de réflectivité d'un miroir XUV multicouche irradié par une impulsion IR intense. Une durée de ~ 500 fs pour l'harmonique amplifiée d'un laser XUV OFI a pu être mesurée, sans toutefois remonter au profil temporel de l'impulsion. Au LIDYL (CEA Saclay) une méthode sophistiquée de ptychographie dynamique a été mise en œuvre par Ludovic Chopineau [142] [173] pour la caractérisation spatio-temporelle de la source harmonique par miroir plasma, dans les régimes CWE et ROM. Des durées de 620 as et 450 as respectivement ont été déduites des mesures. Ces deux approches ont notamment l'avantage d'être moins sensibles à la présence de rayonnement parasite que notre méthode basée sur la photoionisation. Toutefois la méthode basée sur la photoionisation habillée par laser reste une alternative intéressante, car contrairement aux deux autres, elle offre la possibilité d'un diagnostic temporel « en ligne », derrière lequel l'impulsion XUV peut être utilisée pour des applications.

Liste des références

- [1] T. H. Maiman, “Stimulated Optical Radiation in Ruby,” *Nat. Publ. Gr.*, vol. 187, 1960.
- [2] J. W. & J. F. B. Hawkes, “Laser principles and Application, International Series in Optoelectronics.”
- [3] P. Jaegle, A. Carillon, P. Dhez, G. Jamelot, A. Sureau, and M. Cukier, “Experimental evidence for the possible existence of a stimulated emission in the extreme UV range,” *Phys. Lett. A*, vol. 36, no. 3, pp. 167–168, Aug. 1971, doi: 10.1016/0375-9601(71)90404-X.
- [4] D. L. Matthews *et al.*, “Demonstration of a soft x-ray amplifier,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 54, no. 2, pp. 110–113, 1985, doi: 10.1103/PhysRevLett.54.110.
- [5] F. R. Elder, A. M. Gurewitsch, R. V. Langmuir, and H. C. Pollock, “Radiation from Electrons in a Synchrotron,” *Phys. Rev.*, vol. 71, no. 11, pp. 829–830, Jun. 1947, doi: 10.1103/PhysRev.71.829.5.
- [6] K. J. Kim and M. Xie, “Self-amplified spontaneous emission for short wavelength coherent radiation,” *Nucl. Inst. Methods Phys. Res. A*, vol. 331, no. 1–3, pp. 359–364, 1993, doi: 10.1016/0168-9002(93)90072-P.
- [7] J. M. J. Madey, “Stimulated emission of bremsstrahlung in a periodic magnetic field,” *J. Appl. Phys.*, vol. 42, no. 5, pp. 1906–1913, 1971, doi: 10.1063/1.1660466.
- [8] L. R. Elias, W. M. Fairbank, J. M. J. Madey, H. A. Schwettman, and T. I. Smith, “Observation of stimulated emission of radiation by relativistic electrons in a spatially periodic transverse magnetic field,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 36, no. 13, pp. 717–720, 1976, doi: 10.1103/PhysRevLett.36.717.
- [9] Y. Inubushi *et al.*, “Measurement of the X-ray spectrum of a free electron laser with a wide-range high-resolution single-shot spectrometer,” *Appl. Sci.*, vol. 7, no. 6, 2017, doi: 10.3390/app7060584.
- [10] G. Lambert *et al.*, “Injection of harmonics generated in gas in a free-electron laser providing intense and coherent extreme-ultraviolet light,” *Nat. Phys.*, vol. 4, no. 4, pp. 296–300, 2008, doi: 10.1038/nphys889.
- [11] E. Allaria *et al.*, “The FERMI@Elettra free-electron-laser source for coherent x-ray physics: Photon properties, beam transport system and applications,” *New J. Phys.*, vol. 12, pp. 1–27, 2010, doi: 10.1088/1367-2630/12/7/075002.
- [12] G. H. C. New and J. F. Ward, “Optical third-harmonic generation in gases,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 19, no. 10, pp. 556–559, 1967, doi: 10.1103/PhysRevLett.19.556.
- [13] J. Reintjes, R. C. Eckardt, C. Y. She, N. E. Karangelen, R. C. Elton, and R. A. Andrews, “Generation of Coherent Radiation at 53.2 nm by Fifth-Harmonic Conversion,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 37, no. 23, pp. 1540–1543, Dec. 1976, doi: 10.1103/PhysRevLett.37.1540.
- [14] A. McPherson *et al.*, “Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 4, no. 4, p. 595, Apr. 1987, doi: 10.1364/JOSAB.4.000595.
- [15] M. Ferray, A. L’Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, “Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 21, no. 3, 1988, doi: 10.1088/0953-4075/21/3/001.

- [16] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, "Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields," *Phys. Rev. A*, vol. 49, no. 3, pp. 2117–2132, 1994, doi: 10.1103/PhysRevA.49.2117.
- [17] P. Salières and M. Lewenstein, "Generation of ultrashort coherent XUV pulses by harmonic conversion of intense laser pulses in gases: Towards attosecond pulses," *Meas. Sci. Technol.*, vol. 12, no. 11, pp. 1818–1827, 2001, doi: 10.1088/0957-0233/12/11/309.
- [18] A. Leblanc, "Miroirs et réseaux plasmas en champs lasers ultra-intenses : génération d'harmoniques d'ordre élevé et de faisceaux d'électrons relativistes," Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay, 2016.
- [19] C. Thaury *et al.*, "Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics," *Nat. Phys.*, vol. 3, no. 6, pp. 424–429, Jun. 2007, doi: 10.1038/nphys595.
- [20] P. Monot *et al.*, "High-order harmonic generation by nonlinear reflection of an intense high-contrast laser pulse on a plasma," *Opt. Lett.*, vol. 29, no. 8, p. 893, Apr. 2004, doi: 10.1364/OL.29.000893.
- [21] F. Quéré *et al.*, "Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 96, no. 12, 2006, doi: 10.1103/PhysRevLett.96.125004.
- [22] J. Bierbach *et al.*, "Generation of 10 μ W relativistic surface high-harmonic radiation at a repetition rate of 10 Hz," *New J. Phys.*, vol. 14, pp. 1–9, 2012, doi: 10.1088/1367-2630/14/6/065005.
- [23] R. Lichters, J. Meyer-ter-Vehn, and A. Pukhov, "Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity," *Phys. Plasmas*, vol. 3, no. 9, pp. 3425–3437, 1996, doi: 10.1063/1.871619.
- [24] LI Gudzenko, "Radiation enhancement in a recombining plasma," *Sov. Phys. Dokl.*, vol. 10, no. 147, 1965.
- [25] M. A. Duguay and P. M. Rentzepis, "Some approaches to vacuum uv and x-ray lasers," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 10, no. 12, pp. 350–352, 1967, doi: 10.1063/1.1728208.
- [26] N. Rohringer *et al.*, "Atomic inner-shell X-ray laser at 1.46 nanometres pumped by an X-ray free-electron laser," *Nature*, vol. 481, no. 7382, pp. 488–491, 2012, doi: 10.1038/nature10721.
- [27] R. C. Elton, "Extension of 3p \rightarrow 3s Ion Lasers into the Vacuum Ultraviolet Region," *Appl. Opt.*, vol. 14, no. 1, p. 97, 1975, doi: 10.1364/ao.14.000097.
- [28] A. Carillon *et al.*, "Saturated and near-diffraction-limited operation of an XUV laser at 23.6 nm," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 68, no. 19, pp. 2917–2920, 1992, doi: 10.1103/PhysRevLett.68.2917.
- [29] J. J. Rocca, V. Shlyaptsev, F. G. Tomasel, O. D. Cortzar, D. Hartshorn, and J. L. A. Chilla, "Demonstration of a discharge pumped table-top soft-x-ray laser," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 73, no. 16, pp. 2192–2195, 1994, doi: 10.1103/PhysRevLett.73.2192.
- [30] B. J. MacGowan *et al.*, "Short wavelength x-ray laser research at the Lawrence Livermore National Laboratory," *Phys. Fluids B*, vol. 4, no. 7, pp. 2326–2337, 1992, doi: 10.1063/1.860203.
- [31] B. E. Lemoff, C. P. J. Barty, and S. E. Harris, "Femtosecond-pulse-driven, electron-excited XUV lasers in eight-times-ionized noble gases," *Opt. Lett.*, vol. 19, no. 8, p. 569, Apr. 1994, doi: 10.1364/OL.19.000569.

- [32] B. E. Lemoff, G. Y. Yin, C. L. Gordon III, C. P. J. Barty, and S. E. Harris, “Demonstration of a 10-Hz Femtosecond-Pulse-Driven XUV Laser at 41.8 nm in Xe IX,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 74, no. 9, pp. 1574–1577, Feb. 1995, doi: 10.1103/PhysRevLett.74.1574.
- [33] P. Zeitoun *et al.*, “A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam,” *Nature*, vol. 431, no. 7007, pp. 426–429, Sep. 2004, doi: 10.1038/nature02883.
- [34] A. Kabacinski, “Physique et application d’une source cohérente femtoseconde à 32.8nm par interaction laser-plasma,” Thèse de doctorat, ENSTA Institut Polytechnique de Paris, 2022.
- [35] A. Kabacinski *et al.*, “Femtosecond soft x-ray lasing in dense collisionally-pumped plasma,” *Phys. Rev. Res.*, vol. 4, no. 3, p. L032009, Jul. 2022, doi: 10.1103/PhysRevResearch.4.L032009.
- [36] A. Klisnick *et al.*, “Transient pumping of a Ni-like Ag x-ray laser with a subpicosecond pump pulse in a traveling-wave irradiation geometry,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 17, no. 6, p. 1093, 2000, doi: 10.1364/josab.17.001093.
- [37] Y. V Afanas’ev and V. N. Shlyaptsev, “Formation of a population inversion of transitions in Ne-like ions in steady-state and transient plasmas,” *Sov. J. Quantum Electron.*, vol. 19, no. 12, pp. 1606–1612, Dec. 1989, doi: 10.1070/QE1989v019n12ABEH009835.
- [38] P. V. Nickles, V. N. Shlyaptsev, M. Kalachnikov, M. Schnürer, I. Will, and W. Sandner, “Short pulse X-ray laser at 32.6 nm based on transient gain in Ne-like titanium,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 78, no. 14, pp. 2748–2751, 1997, doi: 10.1103/PhysRevLett.78.2748.
- [39] Y. Wang *et al.*, “Demonstration of high-repetition-rate tabletop soft-x-ray lasers with saturated output at wavelengths down to 13.9 nm and gain down to 10.9 nm,” *Phys. Rev. A*, vol. 72, no. 5, p. 053807, Nov. 2005, doi: 10.1103/PhysRevA.72.053807.
- [40] D. Alessi *et al.*, “Efficient Excitation of Gain-Saturated Sub-9-nm-Wavelength Tabletop Soft-X-Ray Lasers and Lasing Down to 7.36 nm,” *Phys. Rev. X*, vol. 1, no. 2, p. 021023, Dec. 2011, doi: 10.1103/PhysRevX.1.021023.
- [41] A. Rockwood, Y. Wang, S. Wang, M. Berrill, V. N. Shlyaptsev, and J. J. Rocca, “Compact gain-saturated x-ray lasers down to 685 nm and amplification down to 585 nm,” *Optica*, vol. 5, no. 3, p. 257, Mar. 2018, doi: 10.1364/OPTICA.5.000257.
- [42] R. Keenan, J. Dunn, P. K. Patel, D. F. Price, R. F. Smith, and V. N. Shlyaptsev, “High-repetition-rate grazing-incidence pumped x-ray laser operating at 18.9 nm,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 94, no. 10, pp. 1–4, 2005, doi: 10.1103/PhysRevLett.94.103901.
- [43] S. Kazamias *et al.*, “Laser XUV haute cadence pompé par laser Titane : Saphir, vers la station LASERIX,” *J. Phys. IV*, vol. 138, no. 1, pp. 13–19, Dec. 2006, doi: 10.1051/jp4:2006138003.
- [44] K. Cassou *et al.*, “Optimization toward a high-average-brightness soft-x-ray laser pumped at grazing incidence,” *Opt. Lett.*, vol. 32, no. 2, p. 139, Jan. 2007, doi: 10.1364/OL.32.000139.
- [45] B. A. Reagan, M. Berrill, K. A. Wernsing, C. Baumgarten, M. Woolston, and J. J. Rocca, “High-average-power, 100-Hz-repetition-rate, tabletop soft-x-ray lasers at sub-15-nm wavelengths,” *Phys. Rev. A*, vol. 89, no. 5, p. 053820, May 2014, doi: 10.1103/PhysRevA.89.053820.
- [46] A. Klisnick *et al.*, “Demonstration of a 2-ps transient x-ray laser,” *Phys. Rev. A*, vol. 65, no. 3, p. 033810, Feb. 2002, doi: 10.1103/PhysRevA.65.033810.
- [47] L. Meng *et al.*, “Temporal characterization of a picosecond extreme ultraviolet laser pumped in

- grazing incidence,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 101, no. 14, pp. 2012–2015, 2012, doi: 10.1063/1.4757878.
- [48] O. Guilbaud *et al.*, “Origin of microstructures in picosecond X-ray laser beams,” *Europhys. Lett.*, vol. 74, no. 5, pp. 823–829, Jun. 2006, doi: 10.1209/epl/i2006-10038-4.
- [49] J. Gautier *et al.*, “Optimization of the wave front of high order harmonics,” *Eur. Phys. J. D*, vol. 48, no. 3, pp. 459–463, 2008, doi: 10.1140/epjd/e2008-00123-2.
- [50] T. Ditmire *et al.*, “Amplification of xuv harmonic radiation in a gallium amplifier,” *Phys. Rev. A*, vol. 51, no. 6, pp. R4337–R4340, Jun. 1995, doi: 10.1103/PhysRevA.51.R4337.
- [51] Y. Wang *et al.*, “High-brightness injection-seeded soft-X-ray-laser amplifier using a solid target,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 97, no. 12, pp. 1–4, 2006, doi: 10.1103/PhysRevLett.97.123901.
- [52] S. Suckewer and P. Jaegle, “X-ray laser: Past, present, and future,” *Laser Phys. Lett.*, vol. 6, no. 6, pp. 411–436, 2009, doi: 10.1002/lapl.200910023.
- [53] A. Depresseux *et al.*, “Demonstration of a Circularly Polarized Plasma-Based Soft-X-Ray Laser,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 115, no. 8, pp. 1–5, 2015, doi: 10.1103/PhysRevLett.115.083901.
- [54] J. P. Goddet *et al.*, “Aberration-free laser beam in the soft x-ray range,” *Opt. Lett.*, vol. 34, no. 16, p. 2438, Aug. 2009, doi: 10.1364/OL.34.002438.
- [55] B. Rus *et al.*, “Observation of intense soft-x-ray lasing at the $J = 0$ to $J = 1$ transition in neonlike zinc,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 11, no. 4, p. 564, Apr. 1994, doi: 10.1364/JOSAB.11.000564.
- [56] L. M. Meng *et al.*, “Temporal coherence and spectral linewidth of an injection-seeded transient collisional soft x-ray laser,” *Opt. Express*, vol. 19, no. 13, p. 12087, Jun. 2011, doi: 10.1364/OE.19.012087.
- [57] L. Meng, “Etude expérimentale et simulations numériques des propriétés spectrales de lasers X pompés par excitation collisionnelle,” Thèse de doctorat, Université Paris-Sud (Orsay), 2012.
- [58] I. R. Al’mieiev *et al.*, “Dynamical Description of Transient X-Ray Lasers Seeded with High-Order Harmonic Radiation through Maxwell-Bloch Numerical Simulations,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 99, no. 12, p. 123902, Sep. 2007, doi: 10.1103/PhysRevLett.99.123902.
- [59] C. M. Kim, J. Lee, and K. A. Janulewicz, “Coherent amplification of an ultrashort pulse in a high- and swept-gain medium with level degeneracy,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 104, no. 5, pp. 1–4, 2010, doi: 10.1103/PhysRevLett.104.053901.
- [60] O. Larroche and A. Klisnick, “Two-dimensional Maxwell-Bloch simulation of quasi- π -pulse amplification in a seeded XUV laser,” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 88, no. 3, 2013, doi: 10.1103/PhysRevA.88.033815.
- [61] I. Orfanos *et al.*, “Attosecond pulse metrology,” *APL Photonics*, vol. 4, no. 8, p. 080901, Aug. 2019, doi: 10.1063/1.5086773.
- [62] S. Düsterer *et al.*, “Development of experimental techniques for the characterization of ultrashort photon pulses of extreme ultraviolet free-electron lasers,” *Phys. Rev. Spec. Top. - Accel. Beams*, vol. 17, no. 12, p. 120702, Dec. 2014, doi: 10.1103/PhysRevSTAB.17.120702.
- [63] W. Helml *et al.*, “Ultrashort free-electron laser X-ray pulses,” *Appl. Sci.*, vol. 7, no. 9, pp. 1–42, 2017, doi: 10.3390/app7090915.

- [64] P. Radcliffe *et al.*, “Atomic photoionization in combined intense XUV free-electron and infrared laser fields,” *New J. Phys.*, vol. 14, 2012, doi: 10.1088/1367-2630/14/4/043008.
- [65] V. Wlotzko, “Conception et réalisation d’une caméra à balayage de fente à résolution temporelle picoseconde et à haut taux de répétition,” Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, 2016.
- [66] M. Coleman, L.W., “Sub-nanosecond X-ray streak camera,” in *7th European conference on plasma production by high power lasers*, 1974, p. vol. AED-Conf-74-133-044, 1.
- [67] M. Y. Schelev, “Femto-attosecond photoelectronic imaging (the present state of the art and new trends),” Sep. 2003, vol. 5126, no. 095, pp. 13–20, doi: 10.1117/12.517182.
- [68] J. Feng *et al.*, “An x-ray streak camera with high spatio-temporal resolution,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 91, no. 13, 2007, doi: 10.1063/1.2793191.
- [69] P. Gallant *et al.*, “Characterization of a subpicosecond x-ray streak camera for ultrashort laser-produced plasmas experiments,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 71, no. 10, p. 3627, 2000, doi: 10.1063/1.1310347.
- [70] Y. Wang *et al.*, “Measurement of 1-ps soft-x-ray laser pulses from an injection-seeded plasma amplifier,” *Phys. Rev. A*, vol. 79, no. 2, p. 023810, Feb. 2009, doi: 10.1103/PhysRevA.79.023810.
- [71] R. Moshhammer *et al.*, “Second-order autocorrelation of XUV FEL pulses via time resolved two-photon single ionization of He,” *Opt. Express*, vol. 19, no. 22, p. 21698, 2011, doi: 10.1364/oe.19.021698.
- [72] P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, K. Witte, and G. D. Tsakiris, “Direct observation of attosecond light bunching,” *Nature*, vol. 426, no. 6964, pp. 267–271, 2003, doi: 10.1038/nature02091.
- [73] P. Tzallas, E. Skantzakis, L. A. A. Nikolopoulos, G. D. Tsakiris, and D. Charalambidis, “Extreme-ultraviolet pump–probe studies of one-femtosecond-scale electron dynamics,” *Nat. Phys.*, vol. 7, no. 10, pp. 781–784, Oct. 2011, doi: 10.1038/nphys2033.
- [74] Y. Nomura *et al.*, “Attosecond phase locking of harmonics emitted from laser-produced plasmas,” *Nat. Phys.*, vol. 5, no. 2, pp. 124–128, 2009, doi: 10.1038/nphys1155.
- [75] R. Hörlein *et al.*, “Temporal characterization of attosecond pulses emitted from solid-density plasmas,” *New J. Phys.*, vol. 12, no. 4, p. 043020, Apr. 2010, doi: 10.1088/1367-2630/12/4/043020.
- [76] J. M. Schins *et al.*, “Observation of laser-assisted auger decay in argon,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 73, no. 16, pp. 2180–2183, 1994, doi: 10.1103/PhysRevLett.73.2180.
- [77] T. E. Glover, R. W. Schoenlein, A. H. Chin, and C. V. Shank, “Observation of laser assisted photoelectric effect and femtosecond high order harmonic radiation,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 76, no. 14, pp. 2468–2471, 1996, doi: 10.1103/PhysRevLett.76.2468.
- [78] M. Uiberacker *et al.*, “Attosecond Metrology with Controlled Light Waveforms,” *Laser Phys.*, vol. 15, no. 1, pp. 195–204, 2005.
- [79] P. M. Paul, “Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation,” *Am. Assoc. Adv. Sci.*, vol. 292, no. 5522, pp. 1689–1692, 2001.
- [80] E. Goulielmakis *et al.*, “Direct Measurement of Light Waves,” *Science (80-.)*, vol. 305, no.

- 5688, pp. 1267–1269, Aug. 2004, doi: 10.1126/science.1100866.
- [81] Y. Mairesse and F. Quéré, “Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts,” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 71, no. 1, pp. 1–4, 2005, doi: 10.1103/PhysRevA.71.011401.
- [82] U. Fröhling *et al.*, “Single-shot terahertz-field-driven X-ray streak camera,” *Nat. Photonics*, vol. 3, no. 9, pp. 523–528, 2009, doi: 10.1038/nphoton.2009.160.
- [83] M. Drescher, U. Fröhling, M. Krikunova, T. Maltezopoulos, and M. Wieland, “Time-diagnostics for improved dynamics experiments at XUV FELs,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 43, no. 19, 2010, doi: 10.1088/0953-4075/43/19/194010.
- [84] I. Gorgisyan, R. Ischebeck, E. Prat, S. Reiche, L. Rivkin, and P. Juranic, “Simulation of FEL pulse length calculation with THz streaking method,” *J. Synchrotron Radiat.*, vol. 23, no. 3, pp. 643–651, 2016, doi: 10.1107/S160057751600285X.
- [85] R. Ivanov *et al.*, “Single-shot temporal characterization of XUV pulses with duration from ~ 10 fs to ~ 350 fs at FLASH,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 53, no. 18, 2020, doi: 10.1088/1361-6455/ab9c38.
- [86] R. Riedel *et al.*, “Single-shot pulse duration monitor for extreme ultraviolet and X-ray free-electron lasers,” *Nat. Commun.*, vol. 4, no. 1, p. 1731, Apr. 2013, doi: 10.1038/ncomms2754.
- [87] A. M. Dykhne and G. L. Yudin, “Stimulated effects upon ‘jarring’ of an electron in an external electromagnetic field,” *Sov. Phys. - Uspekhi*, vol. 20, no. 1, pp. 80–86, 1977, doi: 10.1070/PU1977v020n01ABEH005318.
- [88] J. Itatani, F. Quéré, G. L. Yudin, M. Y. Ivanov, F. Krausz, and P. B. Corkum, “Attosecond Streak Camera,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 88, no. 17, p. 4, 2002, doi: 10.1103/PhysRevLett.88.173903.
- [89] L. V. KELDYSH, “Ionization in the field of a strong electromagnetic wave,” *Sov. Phys. JETP*, vol. 20, no. 5, pp. 1307–1314, 1965.
- [90] M. Kitzler, N. Milosevic, A. Scrinzi, F. Krausz, and T. Brabec, “Quantum Theory of Attosecond XUV Pulse Measurement by Laser Dressed Photoionization,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 88, no. 17, p. 4, 2002, doi: 10.1103/PhysRevLett.88.173904.
- [91] F. Quéré, J. Itatani, G. L. Yudin, and P. B. Corkum, “Attosecond Spectral Shearing Interferometry,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 90, no. 7, p. 4, 2003, doi: 10.1103/PhysRevLett.90.073902.
- [92] G. Sansone *et al.*, “Isolated Single-Cycle Attosecond Pulses,” *Science (80-.)*, vol. 314, no. 5798, pp. 443–446, Oct. 2006, doi: 10.1126/science.1132838.
- [93] A. Azima *et al.*, “Direct measurement of the pulse duration and frequency chirp of seeded XUV free electron laser pulses,” *New J. Phys.*, vol. 20, no. 1, 2018, doi: 10.1088/1367-2630/aa9b4c.
- [94] R. Taïeb, A. Maquet, and M. Meyer, “Étude théorique de la photoionisation à deux couleurs XFEL-IR,” *UVX 2008 - 9e Colloq. sur les Sources Coherentes Incoherentes UV, VUV X Appl. Dev. Recent.*, vol. 2008, pp. 133–138, 2009, doi: 10.1051/uvx/2009021.
- [95] V. Véniard, R. Taïeb, and A. Maquet, “Two-Color Multiphoton Ionization of Atoms Using High-Order Harmonic Radiation,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 74, no. 21, pp. 4161–4164, May 1995, doi: 10.1103/PhysRevLett.74.4161.
- [96] R. López-Martens, J. Mauritsson, A. Johansson, J. Norin, and A. L’Huillier, “Time-frequency

- characterization of high-order harmonic pulses,” *Eur. Phys. J. D*, vol. 26, no. 1, pp. 105–109, 2003, doi: 10.1140/epjd/e2003-00085-9.
- [97] M. Meyer *et al.*, “Polarization control in two-color above-threshold ionization of atomic helium,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 101, no. 19, pp. 7–10, 2008, doi: 10.1103/PhysRevLett.101.193002.
- [98] M. Meyer *et al.*, “Angle-resolved electron spectroscopy of laser-assisted auger decay induced by a few-femtosecond x-ray pulse,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, no. 6, pp. 1–5, 2012, doi: 10.1103/PhysRevLett.108.063007.
- [99] A. K. Kazansky, I. P. Sazhina, and N. M. Kabachnik, “Angle-resolved electron spectra in short-pulse two-color XUV+IR photoionization of atoms,” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 82, no. 3, pp. 1–8, 2010, doi: 10.1103/PhysRevA.82.033420.
- [100] F. Quéré, Y. Mairesse, and J. Itatani, “Temporal characterization of attosecond XUV fields,” *J. Mod. Opt.*, vol. 52, no. 2–3, pp. 339–360, 2005, doi: 10.1080/09500340412331307942.
- [101] P. Radcliffe *et al.*, “Atomic photoionization in combined intense XUV free-electron and infrared laser fields,” *New J. Phys.*, vol. 14, no. 4, p. 043008, Apr. 2012, doi: 10.1088/1367-2630/14/4/043008.
- [102] S. Düsterer *et al.*, “Femtosecond x-ray pulse length characterization at the Linac Coherent Light Source free-electron laser,” *New J. Phys.*, vol. 13, 2011, doi: 10.1088/1367-2630/13/9/093024.
- [103] Dominique PLATZER, “Spectroscopie de photoionisation d’atomes et molécules en phase gazeuse aux échelles de temps femtoseconde et attoseconde,” Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay, 2020.
- [104] P. Radcliffe *et al.*, “An experiment for two-color photoionization using high intensity extreme-UV free electron and near-IR laser pulses,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, vol. 583, no. 2–3, pp. 516–525, Dec. 2007, doi: 10.1016/j.nima.2007.09.014.
- [105] J. M. Schins *et al.*, “Cross-correlation measurements of femtosecond extreme-ultraviolet high-order harmonics,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 13, no. 1, p. 197, 1996, doi: 10.1364/josab.13.000197.
- [106] A. Bouhal *et al.*, “Cross-correlation measurement of femtosecond noncollinear high-order harmonics,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 14, no. 4, p. 950, 1997, doi: 10.1364/josab.14.000950.
- [107] J. W. Cooper, “Photoelectron-angular-distribution parameters for rare-gas subshells,” *Phys. Rev. A*, vol. 47, no. 3, pp. 1841–1851, 1993, doi: 10.1103/PhysRevA.47.1841.
- [108] K. L. Reid, “Photoelectron angular distributions,” *Annu. Rev. Phys. Chem.*, vol. 54, no. 19, pp. 397–424, 2003, doi: 10.1146/annurev.physchem.54.011002.103814.
- [109] C. N. Yang, “On the Angular Distribution in Nuclear Reactions and Coincidence Measurements,” *Phys. Rev.*, vol. 74, no. 7, pp. 764–772, Oct. 1948, doi: 10.1103/PhysRev.74.764.
- [110] S. T. Manson and A. F. Starace, “Photoelectron angular distributions: energy dependence for s subshells,” *Rev. Mod. Phys.*, vol. 54, no. 2, pp. 389–405, Apr. 1982, doi: 10.1103/RevModPhys.54.389.
- [111] J. Cooper and R. N. Zare, “Angular Distribution of Photoelectrons,” *J. Chem. Phys.*, vol. 48, no. 2, pp. 942–943, Jan. 1968, doi: 10.1063/1.1668742.

- [112] Tamar Seidman, “Time-Resolved Photoelectron Angular Distribution: Concepts, Applications,” *Annu. Rev. Phys. Chem.*, vol. 53, pp. 41–65, 2002.
- [113] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics M. Born and E. Wolf, 7th (expanded) edition, Cambridge University Press.* .
- [114] W. C. Wiley and I. H. McLaren, “Time-of-Flight Mass Spectrometer with Improved Resolution,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 26, no. 12, pp. 1150–1157, Dec. 1955, doi: 10.1063/1.1715212.
- [115] P Kruit and F H Read, “Magnetic field paralleliser for 2π electron-spectrometer and electron-image magnifier,” *J. Phys. E Sci. Instrum.*, vol. 16, no. 4, 1983.
- [116] C. Tusche, Y.-J. Chen, C. M. Schneider, and J. Kirschner, “Imaging properties of hemispherical electrostatic energy analyzers for high resolution momentum microscopy,” *Ultramicroscopy*, vol. 206, p. 112815, Nov. 2019, doi: 10.1016/j.ultramic.2019.112815.
- [117] A. T. J. B. Eppink and D. H. Parker, “Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses: Application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 68, no. 9, pp. 3477–3484, Sep. 1997, doi: 10.1063/1.1148310.
- [118] D. W. Chandler and P. L. Houston, “Two-dimensional imaging of state-selected photodissociation products detected by multiphoton ionization,” *J. Chem. Phys.*, vol. 87, no. 2, pp. 1445–1447, 1987, doi: 10.1063/1.453276.
- [119] H. L. Offerhaus, C. Nicole, F. Lépine, C. Bordas, F. Rosca-Pruna, and M. J. J. Vrakking, “A magnifying lens for velocity map imaging of electrons and ions,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 72, no. 8, pp. 3245–3248, 2001, doi: 10.1063/1.1386909.
- [120] E. Wrede *et al.*, “Continuum state spectroscopy: A high resolution ion imaging study of IBr photolysis in the wavelength range 440–685 nm,” *J. Chem. Phys.*, vol. 114, no. 6, pp. 2629–2646, 2001, doi: 10.1063/1.1337049.
- [121] G. A. Garcia, L. Nahon, C. J. Harding, E. A. Mikajlo, and I. Powis, “A refocusing modified velocity map imaging electron/ion spectrometer adapted to synchrotron radiation studies,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 76, no. 5, 2005, doi: 10.1063/1.1900646.
- [122] D. Rolles *et al.*, “A velocity map imaging spectrometer for electron-ion and ion-ion coincidence experiments with synchrotron radiation,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, vol. 261, no. 1-2 SPEC. ISS., pp. 170–174, 2007, doi: 10.1016/j.nimb.2007.04.186.
- [123] S. Skruszewicz *et al.*, “A new design for imaging of fast energetic electrons,” *Int. J. Mass Spectrom.*, vol. 365–366, pp. 338–342, 2014, doi: 10.1016/j.ijms.2014.02.009.
- [124] N. G. Kling *et al.*, “Thick-lens velocity-map imaging spectrometer with high resolution for high-energy charged particles,” *J. Instrum.*, vol. 9, no. 5, 2014, doi: 10.1088/1748-0221/9/05/P05005.
- [125] M. Ranke *et al.*, “Velocity map imaging spectrometer with an electric-field-matched gas capillary,” *Meas. Sci. Technol.*, vol. 32, no. 9, 2021, doi: 10.1088/1361-6501/abeddc.
- [126] D. D. Hickstein, S. T. Gibson, R. Yurchak, D. D. Das, and M. Ryazanov, “A direct comparison of high-speed methods for the numerical Abel transform,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 90, no. 6, p. 065115, Jun. 2019, doi: 10.1063/1.5092635.
- [127] L. Montgomery Smith, D. R. Keefer, and S. I. Sudharsanan, “Abel inversion using transform techniques,” *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, vol. 39, no. 5, pp. 367–373, 1988, doi:

10.1016/0022-4073(88)90101-X.

- [128] V. Dribinski, A. Ossadtchi, V. A. Mandelshtam, and H. Reisler, “Reconstruction of Abel-transformable images: The Gaussian basis-set expansion Abel transform method,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 73, no. 7, p. 2634, 2002, doi: 10.1063/1.1482156.
- [129] Y. Sato, Y. Matsumi, M. Kawasaki, K. Tsukiyama, and R. Bersohn, “Ion imaging of the photodissociation of OCS near 217 and 230 nm,” *J. Phys. Chem.*, vol. 99, no. 44, pp. 16307–16314, 1995, doi: 10.1021/j100044a017.
- [130] C. J. Dasch, “One-dimensional tomography: a comparison of Abel, onion-peeling, and filtered backprojection methods,” *Appl. Opt.*, vol. 31, no. 8, p. 1146, 1992, doi: 10.1364/ao.31.001146.
- [131] C. Bordas, F. Paulig, H. Helm, and D. L. Huestis, “Photoelectron imaging spectrometry: Principle and inversion method,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 67, no. 6, pp. 2257–2268, 1996, doi: 10.1063/1.1147044.
- [132] M. J. J. Vrakking, “An iterative procedure for the inversion of two-dimensional ion/photoelectron imaging experiments,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 72, no. 11, pp. 4084–4089, Nov. 2001, doi: 10.1063/1.1406923.
- [133] G. A. Garcia, L. Nahon, and I. Powis, “Two-dimensional charged particle image inversion using a polar basis function expansion,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 75, no. 11, pp. 4989–4996, 2004, doi: 10.1063/1.1807578.
- [134] A. Röder, “Excited-State Dynamics in Open-Shell Molecules.,” Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay & Julius-Maximilians-Universität (Wurtzbourg, Allemagne), 2017.
- [135] D. A. Dahl, J. E. Delmore, and A. D. Appelhans, “SIMION PC/PS2 electrostatic lens design program,” *Rev. Sci. Instrum.*, vol. 61, no. 1, pp. 607–609, Jan. 1990, doi: 10.1063/1.1141932.
- [136] S.-Y. Liu *et al.*, “He I Ultraviolet Photoelectron Spectroscopy of Benzene and Pyridine in Supersonic Molecular Beams Using Photoelectron Imaging,” *J. Phys. Chem. A*, vol. 115, no. 14, pp. 2953–2965, Apr. 2011, doi: 10.1021/jp1098574.
- [137] P. Johnsson *et al.*, “Characterization of a two-color pump–probe setup at FLASH using a velocity map imaging spectrometer,” *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 24, p. 4163, 2010, doi: 10.1364/ol.35.004163.
- [138] K. Varjú *et al.*, “Angularly resolved electron wave packet interferences,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 39, no. 18, pp. 3983–3991, 2006, doi: 10.1088/0953-4075/39/18/026.
- [139] D. M. P. Holland, A. C. Parr, D. L. Ederer, J. L. Dehmer, and J. B. West, “The angular distribution parameters of argon, krypton and xenon for use in calibration of electron spectrometers,” *Nucl. Instruments Methods Phys. Res.*, vol. 195, no. 1–2, pp. 331–337, Apr. 1982, doi: 10.1016/0029-554X(82)90793-5.
- [140] V. Loriot *et al.*, “Angularly resolved RABBITT using a second harmonic pulse,” *J. Opt. (United Kingdom)*, vol. 19, no. 11, 2017, doi: 10.1088/2040-8986/aa8e10.
- [141] A. Lévy *et al.*, “Double plasma mirror for ultrahigh temporal contrast ultraintense laser pulses,” *Opt. Lett.*, vol. 32, no. 3, p. 310, 2007, doi: 10.1364/ol.32.000310.
- [142] L. Chopineau, “Physique attoseconde relativiste sur miroirs plasmas,” Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay, 2019.
- [143] L. Chopineau *et al.*, “Identification of Coupling Mechanisms between Ultraintense Laser Light

- and Dense Plasmas,” *Phys. Rev. X*, vol. 9, no. 1, pp. 1–18, 2019, doi: 10.1103/PhysRevX.9.011050.
- [144] K. Codling, R. G. Houlgate, J. B. West, and P. R. Woodruff, “Angular distribution and photoionization measurements on the 2p and 2s electrons in neon,” *J. Phys. B At. Mol. Phys.*, vol. 9, no. 5, 1976, doi: 10.1088/0022-3700/9/5/004.
- [145] P. Heissler *et al.*, “Two-photon above-threshold ionization using extreme-ultraviolet harmonic emission from relativistic laser-plasma interaction,” *New J. Phys.*, vol. 14, 2012, doi: 10.1088/1367-2630/14/4/043025.
- [146] C. Thaury, “Génération d’harmoniques d’ordres élevés sur miroir plasma,” Thèse de doctorat, Université Paris-Sud - Paris XI, 2008.
- [147] C. Bourassin-Bouchet, S. de Rossi, F. Delmotte, and P. Chavel, “Spatiotemporal distortions of attosecond pulses,” *J. Opt. Soc. Am. A*, vol. 27, no. 6, p. 1395, Jun. 2010, doi: 10.1364/JOSAA.27.001395.
- [148] C. Bourassin-Bouchet, M. M. Mang, F. Delmotte, P. Chavel, and S. de Rossi, “How to focus an attosecond pulse,” *Opt. Express*, vol. 21, no. 2, p. 2506, 2013, doi: 10.1364/oe.21.002506.
- [149] F. Quéré *et al.*, “High-order harmonic generation using plasma mirrors,” *Plasma Phys. Control. Fusion*, vol. 50, no. 12, 2008, doi: 10.1088/0741-3335/50/12/124007.
- [150] L. Waldecker *et al.*, “Focusing of high order harmonics from solid density plasmas,” *Plasma Phys. Control. Fusion*, vol. 53, no. 12, pp. 1–6, 2011, doi: 10.1088/0741-3335/53/12/124021.
- [151] O. Peyrusse, M. Busquet, J. C. Kieffer, Z. Jiang, and C. Y. Côté, “Generation of hot solid-density plasmas by laser radiation pressure confinement,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 75, no. 21, pp. 3862–3865, 1995, doi: 10.1103/PhysRevLett.75.3862.
- [152] “NIST Atomic Spectra Database.” <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>.
- [153] “CXRO: X-Ray Interactions With Matter.” https://henke.lbl.gov/optical_constants.
- [154] B. Flöter *et al.*, “EUV Hartmann sensor for wavefront measurements at the Free-electron LASer in Hamburg,” *New J. Phys.*, vol. 12, no. 8, p. 083015, Aug. 2010, doi: 10.1088/1367-2630/12/8/083015.
- [155] “Wenbin Li, Xiaoying Ma, Xiaoyue Yang, and Zhanshan Wang, ‘Simulation of cross-correlation method for temporal characterization of VUV free-electron-lasers,’” *Chinese Opt. Lett.*, vol. 11, no. 9, p. 091403, 2013.
- [156] P. Finetti *et al.*, “Pulse duration of seeded free-electron lasers,” *Phys. Rev. X*, vol. 7, no. 2, pp. 1–19, 2017, doi: 10.1103/PhysRevX.7.021043.
- [157] O. DELMAS, “Étude de la mise en forme temporelle d’impulsions laser de haute puissance pour l’excitation des sources laser X-UV sur la plateforme LASERIX,” Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay, 2015.
- [158] O. Delmas *et al.*, “Q-switched laser-assisted grazing incidence pumping (QAGRIP) for efficient soft x-ray laser generation,” *Opt. Lett.*, vol. 39, no. 21, p. 6102, 2014, doi: 10.1364/ol.39.006102.
- [159] O. Guilbaud *et al.*, “Gain dynamics in quickly ionized plasma for seeded operated soft x-ray lasers,” *Opt. Lett.*, vol. 40, no. 20, p. 4775, Oct. 2015, doi: 10.1364/OL.40.004775.

- [160] A. K. Pandey *et al.*, “Towards subpicosecond pulses from solid target plasma based seeded soft X-ray laser,” *Opt. Express*, vol. 28, no. 20, p. 28924, Sep. 2020, doi: 10.1364/OE.399339.
- [161] A. K. Pandey, “Twisted High-order Harmonics: Generation, Characterization, and Amplification in XRL-plasma,” Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay, 2022.
- [162] E. Cormier, D. Garzella, P. Breger, P. Agostini, G. Chériaux, and C. Leblanc, “Above-threshold ionization contrast and channel closure in argon,” *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 34, no. 2, pp. L9–L17, Jan. 2001, doi: 10.1088/0953-4075/34/2/101.
- [163] M. Ilchen *et al.*, “Symmetry breakdown of electron emission in extreme ultraviolet photoionization of argon,” *Nat. Commun.*, vol. 9, no. 1, 2018, doi: 10.1038/s41467-018-07152-7.
- [164] L. H. Haber, B. Doughty, and S. R. Leone, “Photoelectron angular distributions and cross section ratios of two-color two-photon above threshold ionization of argon,” *J. Phys. Chem. A*, vol. 113, no. 47, pp. 13152–13158, 2009, doi: 10.1021/jp903231n.
- [165] C. M. Kim, K. A. Janulewicz, H. T. Kim, and J. Lee, “Amplification of a high-order harmonic pulse in an active medium of a plasma-based x-ray laser,” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 80, no. 5, pp. 1–4, 2009, doi: 10.1103/PhysRevA.80.053811.
- [166] E. Oliva *et al.*, “Comparison of natural and forced amplification regimes in plasma-based soft-x-ray lasers seeded by high-order harmonics,” *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, vol. 84, no. 1, 2011, doi: 10.1103/PhysRevA.84.013811.
- [167] F. Tissandier *et al.*, “Three-dimensional Maxwell-Bloch calculation of the temporal profile of a seeded soft x-ray laser pulse,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 101, no. 25, 2012, doi: 10.1063/1.4773208.
- [168] Andréa Le Marec, “Vers les lasers XUV femtosecondes : étude des propriétés spectrales et temporelles de l ’ amplification de rayonnement XUV dans un plasma.,” Thèse de doctorat, Université Paris-Sud (Orsay), 2017.
- [169] K. Huang, “Theory of angular distribution and spin polarization of photoelectrons,” *Am. Phys. Soc.*, vol. 22, no. 1, 1980.
- [170] R. L. Dubs, S. N. Dixit, and V. McKoy, “Circular dichroism in photoelectron angular distributions from oriented linear molecules,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 54, no. 12, pp. 1249–1251, 1985, doi: 10.1103/PhysRevLett.54.1249.
- [171] A. Depresseux, “Development of an ultrashort and intense collisional OFI plasma-based soft X-ray laser,” Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique de Paris, 2015.
- [172] “<https://vuo.elettra.eu/services/elements/WebElements.html>.”
- [173] L. Chopineau *et al.*, “Spatio-temporal characterization of attosecond pulses from plasma mirrors,” *Nat. Phys.*, vol. 17, no. 8, pp. 968–973, Aug. 2021, doi: 10.1038/s41567-021-01253-9.