



**HAL**  
open science

# Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordres élevés pour l'optique non-linéaire dans l'extrême UV

Sophie Kazamias-Moucan

► **To cite this version:**

Sophie Kazamias-Moucan. Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordres élevés pour l'optique non-linéaire dans l'extrême UV. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Ecole Polytechnique X, 2003. Français. NNT: . tel-00008285

**HAL Id: tel-00008285**

**<https://pastel.hal.science/tel-00008285>**

Submitted on 27 Jan 2005

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

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

Thèse de Doctorat de l'ECOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : Physique Quantique

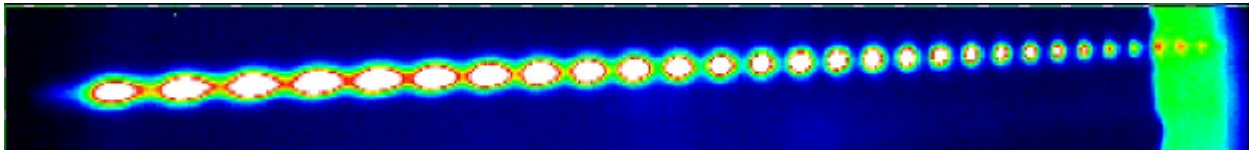
présentée par

Sophie Kazamias-Moucan

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Ecole Polytechnique

Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordres élevés  
pour l'optique non-linéaire dans l'extrême UV



Soutenue publiquement le 3 janvier 2003 devant le jury composé de :

M. Alfred Maquet

M. Henri Bachau

M. François Aguillon

M. Bertrand Carré

M. Philippe Balcou

Président, rapporteur

Rapporteur

Directeur de thèse

*Thèse préparée au Laboratoire d'Optique Appliquée  
ENSTA – Ecole Polytechnique - CNRS*

Thèse de Doctorat de l'ECOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : Physique Quantique

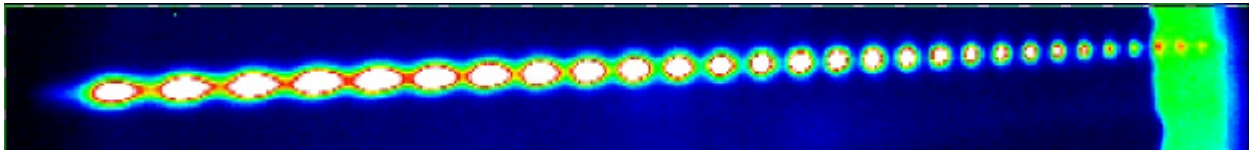
présentée par

Sophie Kazamias-Moucan

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Ecole Polytechnique

Optimisation d'une source d'harmoniques d'ordres élevés  
pour l'optique non-linéaire dans l'extrême UV



Soutenue publiquement le 3 janvier 2003 devant le jury composé de :

M. Alfred Maquet

M. Henri Bachau

M. François Aguillon

M. Bertrand Carré

M. Philippe Balcou

Président, rapporteur

Rapporteur

Directeur de thèse

*Thèse préparée au Laboratoire d'Optique Appliquée  
ENSTA – Ecole Polytechnique - CNRS*

A ma mère,

à tous les miens.

Ce manuscrit synthétise le travail réalisé sur la génération d'harmoniques au Laboratoire d'Optique Appliquée de 2000 à 2003. Je remercie la directrice du laboratoire, Madame Danièle Hulin pour m'y avoir accueillie, ainsi que Philippe Balcou, mon directeur de thèse pour sa grande culture scientifique et ses compétences étendues de la physique des lasers à la physique atomique. J'ai été particulièrement touchée par la marque de confiance qu'il m'a faite en m'autorisant à rédiger puis soutenir ma thèse dans les délais impartis.

Je désire remercier également les autres membres de mon jury de thèse, et en particulier mes deux rapporteurs MM. Henri Bachau et Alfred Maquet pour avoir assumé cette responsabilité malgré le calendrier. Je suis reconnaissante à M. François Aguillon pour avoir accepté de se plonger dans une thématique relativement nouvelle pour lui et à M. Bertrand Carré pour la rigueur et la pertinence de ses remarques sur le manuscrit.

La plus grande partie du travail expérimental a été réalisée avec Denis Douillet. Il a permis de considérablement améliorer la technologie et la fiabilité de notre source en concevant de nouvelles pièces mécaniques. Je voudrais lui dire toute mon admiration pour être à la fois un ingénieur-chercheur, un sportif et un père de haut niveau! Merci aussi à Thierry Lefrou pour son assistance électronique et ses talents en matière de pronostics footballistiques.

Frederik Weihe m'a fait profiter de son expérience de post-doc américain, j'ai beaucoup apprécié sa délicatesse humaine et nos discussions sur le rapport entre les grandeurs exprimées dans le système métrique ou anglo-saxon !

Je remercie Constance Valentin, ma voisine de bureau, pour avoir relu avec une grande attention le manuscrit en refaisant les calculs et pour m'avoir fait découvrir un délicieux Champagne pour le pot. Georges Grillon a lui-aussi emporté chez lui les chapitres en cours d'écriture. Je le remercie pour sa gentillesse, son expérience et sa grande armoire optique. Merci à Stéphane Sebban pour avoir lu la thèse et l'avoir émaillée de ses commentaires roses et constructifs.

Je remercie Olivier Albert pour m'avoir instruite sur les algorithmes génétiques et à son voisin de bureau, Karsten Plamann pour partager mes horaires de restauration et de nombreux sujets de conversation extra-scientifiques.

La collaboration avec l'équipe du LIXAM de Philippe Zeitoun nous a permis de bénéficier d'un matériel supplémentaire et de faire des expériences en commun, avec Pascal Mercère notamment, que je remercie aussi pour ses calculs optiques.

Je remercie MM. Blanc et Nicol du groupe cible de l'IPN d'Orsay pour la confection des filtres d'aluminium si importants pour nos expériences et pour les progrès que nous avons faits dans la conception et la caractérisation de ces filtres.

Je remercie les membres du groupe ELF dont Jean-Philippe Rousseau, Thomas Planchon et Serge Ferré du bureau d'en face pour leur compétence en optique, et plus particulièrement encore les « dames de la salle rouge » :

Frédérique Augé pour le cours de rattrapage sur la chaîne laser et l'adresse de certains fournisseurs,

Geneviève Mullot pour l'attention qu'elle porte aux problèmes humains et pour un certain bouquet de tulipes,  
enfin Laura Antonucci pour avoir repris le flambeau de la logistique du laser au quotidien.

Merci à toutes les personnes du secrétariat, Dolorès, Fadila, Cathy, Octavie, Cécile et Nathalie pour leur gentillesse et leur grande aide dans les problèmes administratifs. Pour les problèmes informatiques, je remercie Arnaud Chiron et Alain Paris de m'avoir débloqué des situations de bug. Enfin, je remercie Daniel Milly et Jean-Lou Charles (Charlie) pour la réalisation de pièces mécaniques et pour la boîte à bonbons toujours pleine et si gentiment ouverte aux visiteuses...

Je tiens à remercier aussi toutes les personnes qui se sont organisées pour assister à la soutenance et particulièrement celles qui ont participé gastronomiquement à la réussite et la convivialité du pot qui a suivi (merci Christine pour les canelloni). J'ai été très émue de la présence simultanée de Tristan, Vincent, Nicolas et Roberto (par ordre d'apparition). Leur amitié m'est très précieuse, comme l'entourage de toute ma famille. Je voudrais remercier mon Philippe bien-aimé pour avoir embelli, mis en page et imprimé ce manuscrit et pour son soutien actif et patient (autant avec moi qu'avec Word) pendant la période de la rédaction.

<b>1. INTRODUCTION.....</b>	<b>11</b>
1.1. REFERENCES DU CHAPITRE 1: .....	14
<b>2. OPTIMISATION EXPERIMENTALE DES FLUX DE PHOTONS HARMONIQUES EN GEOMETRIE LONGUE FOCAL.....</b>	<b>15</b>
2.1. LE DISPOSITIF LASER DE POMPE.....	15
2.1.1. CARACTERISTIQUES TECHNIQUES GENERALES .....	15
2.1.2. PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT DE L'AMPLIFICATEUR REGENERATIF .....	18
2.1.3. PROBLEMES DE CONTRASTE LIES A L'AMPLIFICATEUR REGENERATIF.....	19
2.2. MOYENS DE CONTROLE ET DE MESURE DES PARAMETRES IMPORTANTS POUR LA GENERATION D'HARMONIQUES.....	21
2.2.1. MESURE DE LA DUREE D'IMPULSION ET DE LA PHASE SPECTRALE PAR SPIDER .....	21
2.2.2. CONTROLE DE L'ENERGIE LASER PAR LAME DEMI-ONDE SUIVIE D'UN POLARISEUR .....	22
2.2.3. MESURE DU RAPPORT DE STREHL ET LA PHASE SPATIALE PAR SHACK-HARTMANN .....	22
2.3. LE DISPOSITIF DE GENERATION D'HARMONIQUES .....	25
2.3.1. SCHEMA DE PRINCIPE .....	25
2.3.2. L'UTILISATION D'UNE CELLULE COMME CIBLE GAZEUSE.....	26
2.3.3. L'UTILISATION DE FILTRES METALLIQUES .....	27
2.4. LES SPECTROGRAPHES D'ANALYSE .....	30
2.4.1. LE SPECTROGRAPHE EN TRANSMISSION .....	30
2.4.2. LE SPECTROGRAPHE A REFLEXION .....	30
2.4.3. LE DISPOSITIF DE DETECTION DU RAYONNEMENT XUV .....	31
2.5. LA CALIBRATION DES FLUX DE PHOTONS ET DES EFFICACITES DE CONVERSION .....	32
2.5.1. LES FLUX DE PHOTONS .....	32
2.5.2. LES EFFICACITES DE CONVERSION .....	33
2.5.3. RESULTATS DE L'OPTIMISATION.....	33
2.5.4. LE FLUX A 13 NM.....	35
2.6. LES EFFICACITES DE CONVERSION DANS LES DIFFERENTES EQUIPES MONDIALES.....	36
2.6.1. LA CONFIGURATION CAPILLAIRES CREUX (EQUIPE DE H. KAPTEYN ET M. MURNANE-USA) .....	37
2.6.2. LA CONFIGURATION HAUTE PRESSION, HAUTE INTENSITE (VIENNE).....	37
2.6.3. LA CONFIGURATION FOCALISATION DOUCE DE LASERS DE QUELQUES MJ-20 A 30 FS (FRANCE : LOA-CELIA).....	37
2.6.4. L'UTILISATION DE LASERS TRES ENERGETIQUES (PLUSIEURS DIZAINES DE MJ) (CEA SACLAY ET EQUIPE JAPONAISE) .....	37
2.6.5. CONCLUSION DU CHAPITRE : SCHEMA RECAPITULATIF .....	38
2.7. REFERENCES DU CHAPITRE 2 : .....	39
2.7.1. POUR L'INSTALLATION LASER.....	39
2.7.2. POUR LA PARTIE GENERATION D'HARMONIQUES .....	39
<b>3. MODELISATION 1D DE LA GENERATION D'HARMONIQUES EN GEOMETRIE LONGUE FOCAL.....</b>	<b>41</b>
3.1. À L'ECHELLE MICROSCOPIQUE : L'INTERACTION LASER INTENSE - ATOME.....	41
3.1.1. LES DIFFERENTS PROCESSUS D'IONISATION .....	42
3.1.2. LE MODELE A TROIS ETAPES POUR LA GENERATION D'HARMONIQUES : MODELE SEMI-CLASSIQUE .....	44
3.1.3. ÉQUATION DE PROPAGATION DE L'ELECTRON IONISE .....	45

3.1.4.	LA LOI DE COUPURE PAR LE MODELE DE LA MECANIQUE CLASSIQUE .....	47
<b>3.2.</b>	<b>LE MODELE QUANTIQUE DE LEWENSTEIN .....</b>	<b>48</b>
3.2.1.	BASES DU MODELE .....	48
3.2.2.	CALCUL DE L'AMPLITUDE ET DE LA PHASE DU DIPOLE [10].....	49
3.2.3.	LA DESINTRICATION DES CHEMINS QUANTIQUES.....	50
<b>3.3.</b>	<b>À L'ECHELLE MACROSCOPIQUE : L'ACCORD DE PHASE.....</b>	<b>54</b>
3.3.1.	CADRE GENERAL D'ETUDE DE L'ACCORD DE PHASE .....	54
3.3.2.	L'ACCORD DE PHASE EN MILIEU NON ABSORBANT .....	55
3.3.3.	L'ACCORD DE PHASE EN MILIEU ABSORBANT : NOTION DE LIMITE D'ABSORPTION.....	56
3.3.4.	LA CONDITION DE LIMITE D'ABSORPTION .....	58
<b>3.4.</b>	<b>APPLICATION AUX HARMONIQUES : CALCUL DE LA LONGUEUR DE DEPHASAGE .....</b>	<b>58</b>
3.4.1.	LE VECTEUR D'ONDE DU LASER : $K_1$ .....	59
3.4.2.	LE VECTEUR D'ONDE HARMONIQUE $K_0$ .....	62
3.4.3.	LE GRADIENT DE PHASE PROPRE $K$ .....	62
3.4.4.	BILAN FINAL .....	63
<b>3.5.</b>	<b>LA LONGUEUR D'ABSORPTION POUR LES HARMONIQUES .....</b>	<b>63</b>
<b>3.6.</b>	<b>CODE DE CALCUL DE L'ACCORD DE PHASE DEPENDANT DU TEMPS .....</b>	<b>66</b>
3.6.1.	LES TAUX D'IONISATION ADK ET LE CALCUL DU DEPHASAGE.....	66
3.6.2.	LE CALCUL DU DEPHASAGE .....	68
3.6.3.	LES AVANTAGES DU CODE 1D.....	70
<b>3.7.</b>	<b>ILLUSTRATION DES DIFFERENTES METHODES D'ACCORD DE PHASE.....</b>	<b>70</b>
3.7.1.	LA CONFIGURATION CAPILLAIRE A PARTIR DE L'ARTICLE DE DURFEE ET AL. [18].....	71
3.7.2.	LA CONFIGURATION DE FOCALISATION DOUCE .....	72
3.7.3.	LA CONFIGURATION FORTE PRESSION - FORTE FOCALISATION [21].....	76
3.7.4.	LE CAS SPECIFIQUE DE L'AUTOGUIDAGE DU FAISCEAU ET SES CONSEQUENCES SUR L'ACCORD DE PHASE 77	
<b>3.8.</b>	<b>CONCLUSION DU CHAPITRE.....</b>	<b>77</b>
<b>3.9.</b>	<b>REFERENCES DU CHAPITRE 3:.....</b>	<b>77</b>
<b>4.</b>	<b><u>ÉTUDE DIRECTE DE L'ACCORD DE PHASE PAR LA MISE EN EVIDENCE DE FRANGES DE MAKER : LE ROLE DES CHEMINS QUANTIQUES .....</u></b>	<b><u>79</u></b>
<b>4.1.</b>	<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>79</b>
<b>4.2.</b>	<b>MISE EN EVIDENCE EXPERIMENTALE D'EFFETS DE COHERENCE DANS LA GENERATION D'HARMONIQUES.....</b>	<b>80</b>
<b>4.3.</b>	<b>CONDITION NECESSAIRE D'EXISTENCE DES FRANGES D'ACCORD DE PHASE.....</b>	<b>82</b>
4.3.1.	ASPECT SPATIAL : LA VARIATION DE LA PHASE DE PROPAGATION, CADRE THEORIQUE.....	82
4.3.2.	PROCESSUS PHYSIQUES INDUISANT UNE PHASE NON LINEAIRE .....	84
4.3.3.	VERIFICATION DE NOS HYPOTHESES PAR LE CALCUL DES PHASES CORRESPONDANT A L'INSTANT DU MAXIMUM DE FLUX HARMONIQUE DANS LES CONDITIONS EXPERIMENTALES .....	88
<b>4.4.</b>	<b>LE BROUILLAGE DES FRANGES ET LES LIMITES DU CODE UNIDIMENSIONNEL .....</b>	<b>90</b>
4.4.1.	BROUILLAGE TEMPOREL.....	90
4.4.2.	SELECTION SPECTRALE.....	91
4.4.3.	INFLUENCE DE LA LONGUEUR DU MILIEU SUR LE FLUX HARMONIQUE .....	92
<b>4.5.</b>	<b>INFLUENCE DE LA LONGUEUR D'ABSORPTION SUR LE CONTRASTE .....</b>	<b>94</b>
<b>4.6.</b>	<b>CONCLUSION DU CHAPITRE .....</b>	<b>95</b>
<b>4.7.</b>	<b>REFERENCES DU CHAPITRE 4 .....</b>	<b>96</b>
<b>5.</b>	<b><u>DU ROLE DE LA DIAPHRAGMATION DU FAISCEAU .....</u></b>	<b><u>97</u></b>



<b>5.1. RAPPELS SUR LES FAISCEAUX GAUSSIENS ET ETUDE DE LA GEOMETRIE FOCALE D'UN FAISCEAU DIAPHRAGME .....</b>	<b>98</b>
5.1.1. ÉQUATIONS DE BASE POUR LES FAISCEAUX GAUSSIENS.....	98
5.1.2. TRANSMISSION D'UN DIAPHRAGME .....	99
5.1.3. FOCALISATION D'UN FAISCEAU DIAPHRAGME.....	100
5.1.4. INTENSITE SUR L'AXE ET LONGUEUR DE RAYLEIGH .....	103
5.1.5. EXTENSION TRANSVERSE DU FAISCEAU .....	104
<b>5.2. INFLUENCE DE LA DIAPHRAGMATION DU FAISCEAU SUR LA GENERATION D'HARMONIQUES....</b>	<b>105</b>
5.2.1. SIMPLE DEPENDANCE EN PARAMETRE CONFOCAL .....	105
5.2.2. ALLURE GENERALE DES COURBES NOMBRE DE PHOTONS HARMONIQUES EN FONCTION DE LA TAILLE DU DIAPHRAGME .....	107
5.2.3. ASPECT TEMPOREL DE L'OPTIMISATION .....	109
5.2.4. LE CAS DU XENON : LA DISPERSION ATOMIQUE .....	111
5.2.5. ÉTUDE DU PARAMETRE ENERGIE.....	112
<b>5.3. CONCLUSION DU CHAPITRE .....</b>	<b>115</b>
<b>5.4. REFERENCES.....</b>	<b>115</b>
<b><u>6. CONTROLE SPECTRAL ACTIF DES HARMONIQUES .....</u></b>	<b><u>119</u></b>
<b>6.1. PHYSIQUE DES DECALAGES SPECTRAUX DES HARMONIQUES.....</b>	<b>119</b>
6.1.1. IMPORTANCE DE LA PULSATION INSTANTANEE DU LASER .....	120
6.1.2. INFLUENCE DE L'IONISATION SUR LE SPECTRE HARMONIQUE .....	123
6.1.3. ROLE DE LA PHASE DU DIPOLE SUIVANT LE CHEMIN QUANTIQUE.....	124
<b>6.2. MONTAGE EXPERIMENTAL EN VUE DE L'ACCORDABILITE DES HARMONIQUES .....</b>	<b>125</b>
6.2.1. LE DAZZLER : OU COMMENT CONTROLER LA PHASE SPECTRALE DU LASER .....	128
6.2.2. L'ALGORITHME GENETIQUE .....	130
<b>6.3. RESULTATS EXPERIMENTAUX DE CONTROLE SPECTRAL .....</b>	<b>135</b>
6.3.1. GAMME D'ACCORDABILITE .....	135
6.3.2. ALLURE DES SPECTRES OPTIMISES .....	136
6.3.3. ÉVALUATION DE L'OPTIMISATION AU COURS DES GENERATIONS SUCCESSIVES .....	137
6.3.4. MODIFICATIONS INDUITES PAR LE DAZZLER SUR LA PHASE ET L'INTENSITE TEMPORELLES DU LASER INFRAROUGE .....	138
6.3.5. COMPARAISON AVEC LES PREDICTIONS DU CODE .....	139
<b>6.4. CONCLUSION DU CHAPITRE .....</b>	<b>141</b>
<b>6.5. REFERENCES.....</b>	<b>141</b>
<b><u>7. LA FOCALISATION DES HARMONIQUES .....</u></b>	<b><u>143</u></b>
<b>7.1. PROPRIETES DU MIROIR TORIQUE UTILISE POUR FOCALISER LES HARMONIQUES .....</b>	<b>143</b>
7.1.1. PROBLEMES TECHNIQUES LIES A L'OPTIQUE DANS LA GAMME SPECTRALE XUV .....	143
7.1.2. PRINCIPE OPTIQUE DU MIROIR TORIQUE .....	144
7.1.3. CONFIGURATION EXPERIMENTALE DE FOCALISATION .....	145
<b>7.2. DISPOSITIF D'IMAGERIE ET DE CALIBRATION DE LA ZONE FOCALE .....</b>	<b>147</b>
7.2.1. DISPOSITIF EXPERIMENTAL.....	147
7.2.2. CALIBRATION DES IMAGES .....	148
<b>7.3. EXPLORATION ET CALIBRATION DE LA ZONE FOCALE DES HARMONIQUES.....</b>	<b>149</b>
7.3.1. IMPORTANCE DES EFFETS D'ABERRATION .....	149
7.3.2. ÉVOLUTION DE L'ALLURE DE LA TACHE EN FONCTION DE LA DISTANCE AU FOYER (Z) .....	151
7.3.3. PHENOMENE DE SATURATION .....	153
7.3.4. RAPPORT DE QUALITE DE LA FOCALISATION DES HARMONIQUES.....	154
<b>7.4. INTENSITES REELLEMENT ATTEINTES AU FOYER - PERSPECTIVES .....</b>	<b>154</b>

7.4.1.	CAS DE FIGURE THEORIQUE .....	155
7.4.2.	CAS DE FIGURE CONCRET .....	155
<b>7.5.</b>	<b>CONCLUSION DU CHAPITRE .....</b>	<b>155</b>
<b>7.6.</b>	<b>REFERENCES DU CHAPITRE 7 : .....</b>	<b>156</b>
<b>8.</b>	<b><u>CONCLUSION .....</u></b>	<b><u>157</u></b>
<b>8.1.</b>	<b>REFERENCES.....</b>	<b>158</b>
<b>9.</b>	<b><u>BIBLIOGRAPHIE GENERALE CLASSEE PAR ORDRE ALPHABETIQUE D'AUTEUR...</u></b>	<b><u>159</u></b>
	<b><u>ANNEXES.....</u></b>	<b><u>161</u></b>



# 1. Introduction

L'apparition du rayonnement laser au début des années 1960 a révolutionné de nombreux domaines de la physique et a permis de multiples applications, déjà utilisées dans notre vie quotidienne. Or, pour des raisons technologiques, les longueurs d'onde habituelles des lasers se situent dans l'infrarouge et partiellement dans le domaine visible.

Cependant, l'intérêt de développer des sources analogues dans le domaine des plus courtes longueurs d'onde n'est plus à démontrer, en particulier dans le domaine de l'extrême ultraviolet (XUV) couvrant la gamme de longueurs d'onde comprises entre 1 et 100 nm environ. Les applications en sont très nombreuses, notamment en métrologie, en lithographie X et applications en physique atomique et moléculaire. Une des applications très prometteuse en biologie est la microscopie dans la fenêtre de l'eau, très bien adaptée à l'observation des composés organiques pour laquelle la longueur d'onde d'observation est comprise entre 2 et 4 nanomètres. Ces applications requièrent des qualités spécifiques du rayonnement et expliquent que les habituelles sources de rayonnement X, telles que les tubes, les synchrotrons ou les décharges plasma, ne soient pas toujours optimisées.

Les sources XUV créées par laser -harmoniques d'ordres élevés ou laser X- semblent une bonne alternative aux grandes installations synchrotron pour certaines applications : un coût de fonctionnement moindre et la possibilité de développer des sources de faible encombrement spatial ne sont pas à négliger. Ces sources présentent en outre l'avantage sur les synchrotrons actuels de délivrer des impulsions de très courte durée (femtosecondes, voire attosecondes pour les harmoniques) tout en garantissant un nombre de photons par tir comparable voire supérieur. Cette spécificité leur permet déjà de sonder la matière à des échelles de temps jamais encore atteintes : celle du mouvement des électrons sur les couches internes des atomes par exemple.

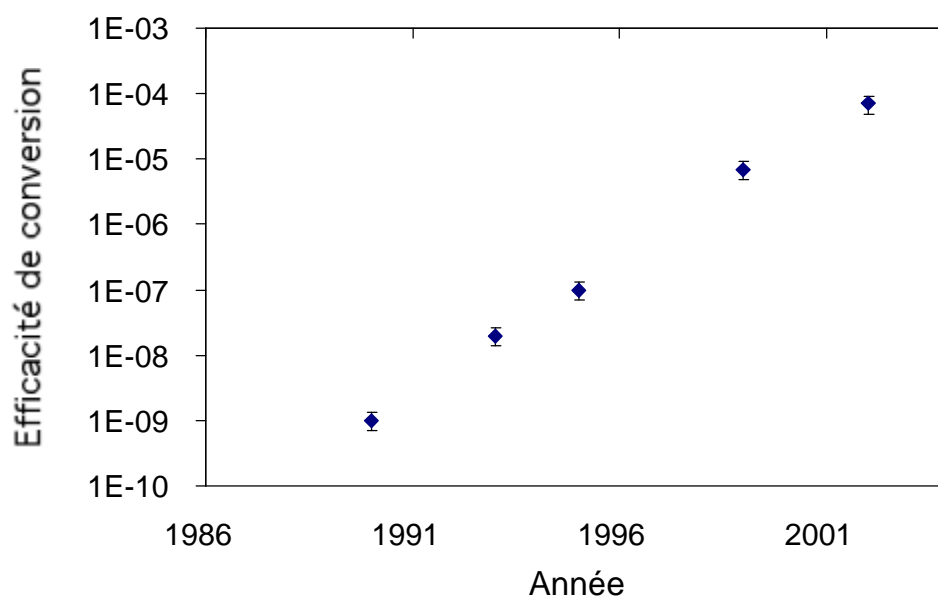
On a donc souvent évoqué l'idée de « synchrotron de poche » pour de telles sources. Il reste cependant à prouver leur stabilité au jour le jour et à continuer à améliorer les flux de photons moyens, notamment en augmentant les cadences qui restent pour l'instant le handicap majeur par rapport aux synchrotrons, si l'on pense à des expériences nécessitant l'accumulation d'un signal sur de grandes durées ou des comptages en coïncidence.

Le présent travail porte sur la source de rayonnement XUV basée sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz rares. Ce rayonnement provient de l'interaction hautement non-linéaire entre un champ laser intense et les atomes d'un gaz. Pour des raisons de symétrie, seuls les ordres harmoniques impairs sont produits mais la particularité intéressante de cette émission est l'existence d'un plateau constitué de plusieurs ordres harmoniques successifs pour lesquels le nombre de photons produits ne décroît pas avec l'ordre. Cette caractéristique indique que le processus de génération d'harmoniques au niveau atomique ne peut être compris dans le simple cadre de la théorie des perturbations. Enfin, comme pour tout phénomène d'optique non linéaire, il convient d'étudier l'accord de phase qui peut permettre d'accroître le nombre de photons produits en sortie de milieu.

Expérimentalement, la production de l'harmonique 3 a été démontrée pour la première fois en 1967 dans un milieu gazeux [1] et les ordres harmoniques maximaux détectés sont restés inférieurs à 9 jusqu'à la fin des années 1970 [2]. Des ordres harmoniques de l'ordre de quelques

dizaines ont été mis en évidence dans la période 1980/1990, notamment par l'équipe du CEA-Saclay, en utilisant des lasers de courte durée d'impulsion - typiquement plusieurs centaines de picosecondes - donc également plus intenses [3]. Enfin, l'ordre harmonique le plus élevé publié en 1993 par l'équipe de Saclay est de 135 [4] pour atteindre près de 300 en 1997 [5] dans l'équipe de l'université du Michigan. Parallèlement à la recherche d'ordres harmoniques toujours plus élevés, les efficacités de conversion -c'est-à-dire la part d'énergie laser convertie en énergie harmonique- n'ont cessé de croître. La référence [3] de l'équipe de Saclay datant de 1990 aboutit à une efficacité de  $10^{-9}$  pour l'harmonique 11 produite dans le xénon. L'équipe du LLC à Lund (Suède) en 1993 a publié dans la référence [6] un nombre de photons qui permet de déduire une efficacité de  $2.10^{-8}$ . Elle atteint  $10^{-7}$  en 1995 dans l'équipe de Livermore en Californie [7].

Dans les dernières années, les efforts constants des équipes américaines, japonaises et européennes pour la modélisation théorique du phénomène ainsi que les progrès dans les techniques expérimentales - lasers de pompe et cibles gazeuses - ont permis de poursuivre l'amélioration du nombre de photons produits [8]. Les efficacités de conversion ainsi obtenues se sont accrues de plusieurs ordres de grandeur par rapport aux valeurs précédemment citées et seront exposées dans le chapitre 2 avec la méthode expérimentale correspondante. Le graphique suivant présente l'efficacité de conversion maximale publiée au cours des années pour la génération d'harmoniques (tous gaz et tous ordres élevés confondus).



*Figure 1.1 : Evolution des efficacités de conversion maximales pour la génération d'harmoniques en fonction de l'année de publication.*

Au début de cette thèse, certains auteurs ont même affirmé avoir atteint la limite maximale d'efficacité de cette source. Nous montrerons que cette limite, faute d'avoir été complètement déterminée, n'est pas ultime, mais que les efficacités de conversion démontrées actuellement permettent d'envisager de nouvelles applications de la source harmonique. Nous nous concentrerons sur les expériences nécessitant des éclaircissements très importants dans la gamme spectrale XUV pour ouvrir la voie à un domaine encore inexploré à ce jour : l'optique non linéaire dans l'XUV. On peut supposer que les découvertes seront passionnantes si l'on se réfère aux

progrès considérables qu’avaient permis à l’époque la mise au point de lasers infrarouges et la découverte de l’optique non linéaire.

La première étape de ce travail de thèse a donc été de mener l’optimisation expérimentale sur notre système laser, du nombre de photons harmoniques produits dans différents gaz rares et aboutissant à des longueurs d’onde qui couvrent une bonne partie de la gamme spectrale XUV. Cette optimisation a conduit à une calibration en absolu du nombre de photons produits et à des valeurs très satisfaisantes des efficacités de conversion. Ces progrès ont été permis par les nombreuses avancées réalisées en technologie des lasers de pompe infrarouge. Les lasers à haute cadence et d’une énergie de l’ordre de la dizaine de millijoule permettent en effet une nouvelle géométrie d’interaction laser-gaz, dite « longue focale », qui accroît l’efficacité de la génération d’harmoniques.

Après avoir décrit dans le chapitre deux notre dispositif expérimental, tant du point de vue du laser de pompe que du point de vue de la génération d’harmoniques d’ordres élevés et de sa détection ; nous poserons dans le troisième chapitre le cadre théorique de la génération d’harmoniques au niveau microscopique et macroscopique. Par l’utilisation d’un code unidimensionnel d’accord de phase dépendant du temps nous pourrons alors montrer clairement la spécificité de cette nouvelle géométrie par rapport aux conceptions de générations d’harmoniques habituellement utilisées dans d’autres équipes.

Le chapitre quatre sera consacré à l’une des premières mesures directes de la longueur de déphasage intervenant comme effet macroscopique dans la génération d’harmoniques. Cette mesure permet de suivre l’évolution de l’accord de phase avec les conditions de génération. Nous pourrons aller plus loin dans l’étude de la configuration « longue focale » et analyser au niveau spatio-temporel le rôle des différents chemins quantiques impliqués dans la génération d’harmoniques.

Le chapitre cinq sera consacré à l’étude du rôle de la diaphragmation du faisceau infrarouge dans l’optimisation de la génération d’harmoniques. Cet effet de la troncature du faisceau a déjà été observé expérimentalement par de nombreuses équipes, mais n’a encore jamais été étudié en profondeur en géométrie longue focale. Une étude complète de la géométrie des faisceaux gaussiens tronqués et de la dépendance spatio-temporelle de l’accord de phase nous permettra de montrer pourquoi ce dispositif relativement simple d’utilisation peut permettre une amélioration très nette du signal.

Le chapitre six présente un cas de contrôle cohérent de la longueur d’onde des harmoniques au moyen d’une boucle d’algorithme génétique. Cela nous permet de montrer la grande adaptabilité du rayonnement harmonique aux exigences de futurs utilisateurs. Nous avons démontré qu’un contrôle actif de la phase et l’amplitude spectrales du laser de pompe pouvait induire une accordabilité quasi totale du rayonnement harmonique dans la gamme XUV.

Enfin, il reste à évaluer la qualité de focalisation de ce rayonnement harmonique, qui seule permettra d’atteindre des éclaircissements suffisants sur cible pour explorer un nouveau domaine très prometteur de l’interaction lumière-matière. Le chapitre sept présente donc une mesure directe de la zone focale d’un faisceau d’harmoniques par observation de la fluorescence induite sur un cristal de YAG dopé cérium par le rayonnement XUV focalisé. Cette caractérisation de la

focalisation nous permet de conclure sur les éclaircissements déjà atteints vers 30 nm et ceux qui sont envisageables à court terme par une optimisation supplémentaire des techniques de focalisation.

### **1.1. Références du chapitre 1:**

- [1] G.H. New and J.F. Ward, Phys. Rev. Lett. **19**, 556 (1967)
- [2] J. Reintjes et al., Phys. Rev. Lett. **37**, 1540 (1977)
- [3] L.A. Lompré et al., J. Opt. Soc. Am. **7**, 754 (1990)
- [4] A. L'Huillier et Ph. Balcou, Phys. Rev. Lett. **70**, 774 (1993)
- [5] Z. Chang et al., Phys. Rev. Lett. **79**, 2967 (1997)
- [6] C.G. Wahlström et al., Phys. Rev. A **48**, 4709 (1993)
- [7] T. Ditmire et al., Phys. Rev. A **51** R902 (1995)
- [8] T. Brabec et al., Rev. Mod. Phys. **72**, 2, 545 (2000)

## 2. Optimisation expérimentale des flux de photons harmoniques en géométrie longue focale

Ce chapitre présente le travail réalisé en vue de maximiser les flux de photons harmoniques dans différents gaz rares en jouant sur les paramètres qui influencent la génération d'harmoniques et l'accord de phase, comme la pression, la longueur du milieu, la position cellule-foyer, la géométrie focale du laser etc. Une attention toute particulière a été apportée à la calibration en absolu du détecteur, afin d'estimer le nombre de photons produits pour en déduire finalement des efficacités de conversion fiables qui permettent de souligner l'intérêt de la configuration longue focale permise par le progrès des technologies laser : hautes cadences, haute énergie et faible durée d'impulsion. Ces données chiffrées sont alors utilisables pour des comparaisons avec d'autres configurations de génération d'harmoniques telles que celles utilisant les capillaires.

Dans une première partie, nous décrivons l'installation laser infrarouge en nous attachant à la description des caractéristiques laser les plus importantes pour la génération d'harmoniques. Nous présenterons dans une deuxième partie notre montage expérimental pour la source harmonique et nous concluons sur les meilleures efficacités de conversion obtenues, en les comparant à celles d'autres équipes travaillant sur la même thématique. On justifiera ces valeurs expérimentales dans le chapitre suivant après avoir posé le cadre de compréhension générale de la génération d'harmoniques.

### 2.1. Le dispositif laser de pompe

#### 2.1.1. Caractéristiques techniques générales

L'installation laser de la « salle rouge » du LOA, couramment utilisée pour la génération d'harmoniques, est un système entièrement basé sur des cristaux de saphir dopé au titane (Ti:Sa) et utilisant la technique d'amplification à dérive de fréquences (CPA pour *Chirped Pulse Amplification*) [1]. Il délivre des impulsions de 30 fs environ à une longueur d'onde de 800 nm et une cadence de 1kHz [2]. Cette cadence est particulièrement bien adaptée à la génération d'harmoniques. À 30 fs, des impulsions de quelques millijoules suffisent pour générer efficacement des harmoniques, ce qui permet ces cadences relativement élevées. Le flux de photons harmoniques moyen par seconde est alors augmenté de façon simple par rapport aux lasers de cadence plus faibles. Dans le cadre de nos expériences, l'énergie par impulsion varie de 4 à 7 mJ et le diamètre du faisceau, parallèle en sortie de laser, mesuré au sens des faisceaux gaussiens ( $1/e^2$  de l'intensité maximale) est de 22 mm, soit un éclairement d'environ  $2\text{mJ/cm}^2$ . Dans cette configuration, les intensités laser atteintes restent suffisamment modestes pour permettre de travailler dans l'air, ce qui facilite considérablement les réglages.

Les choix technologiques faits sur cette chaîne laser ont des conséquences sur l'efficacité de la génération d'harmoniques. D'abord, celle-ci, en tant qu'effet hautement non linéaire, est très sensible à l'intensité crête atteinte par l'impulsion, intensité elle-même inversement proportionnelle à la durée d'impulsion à énergie fixée. Nous avons également remarqué l'importance de la qualité du contraste de l'impulsion laser, mesuré entre le pic principal et le pied de l'impulsion. En effet, des impulsions parasites d'intensité suffisante pour provoquer une ionisation partielle du milieu gazeux, sans pour autant générer efficacement des harmoniques, peuvent induire des effets



complexes de propagation et perturber l'accord de phase au passage de l'impulsion principale (voir chapitre 3). Enfin l'éclairement attendu au foyer du laser dépend fortement de la régularité du front de phase spatiale du faisceau.

Nous présentons à présent les différents éléments constituant la chaîne laser et pouvant influencer la génération d'harmoniques. La figure (2.2) montre un schéma de principe de l'installation laser de la salle rouge du LOA.

Le premier élément de la chaîne laser est constitué par l'oscillateur, qui délivre un train d'impulsions de quelques nJ de durée 15 femtosecondes à très haute cadence (100 MHz).

Avant amplification, l'impulsion est étirée jusqu'à 100 picosecondes par un étireur basé sur le principe d'un triplet de Offner [3]. L'intérêt de la technique CPA est d'étirer de façon parfaitement contrôlée les impulsions femtosecondes pour permettre de les amplifier sans que l'intensité crête atteinte n'induisse des effets non linéaires, voire une détérioration des différents éléments optiques constituant la chaîne laser (réseaux, miroirs, cristaux, etc.). Il suffira ensuite, en fin de chaîne, de comprimer l'impulsion à une durée de quelques dizaines de femtosecondes par le processus inverse de l'étirement.

Le triplet de Offner schématisé sur la figure (2.1), présente l'avantage sur d'autres systèmes d'étirement de fonctionner uniquement en réflexion. Par construction, il n'induit aucun défaut de phase autre que ceux qui sont liés à la qualité des optiques qui le composent.

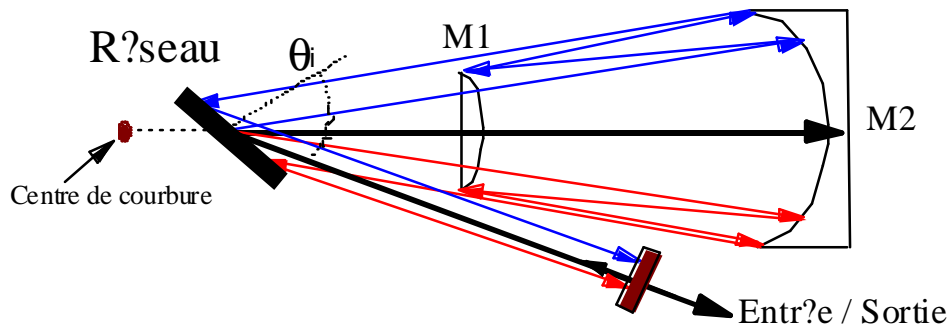
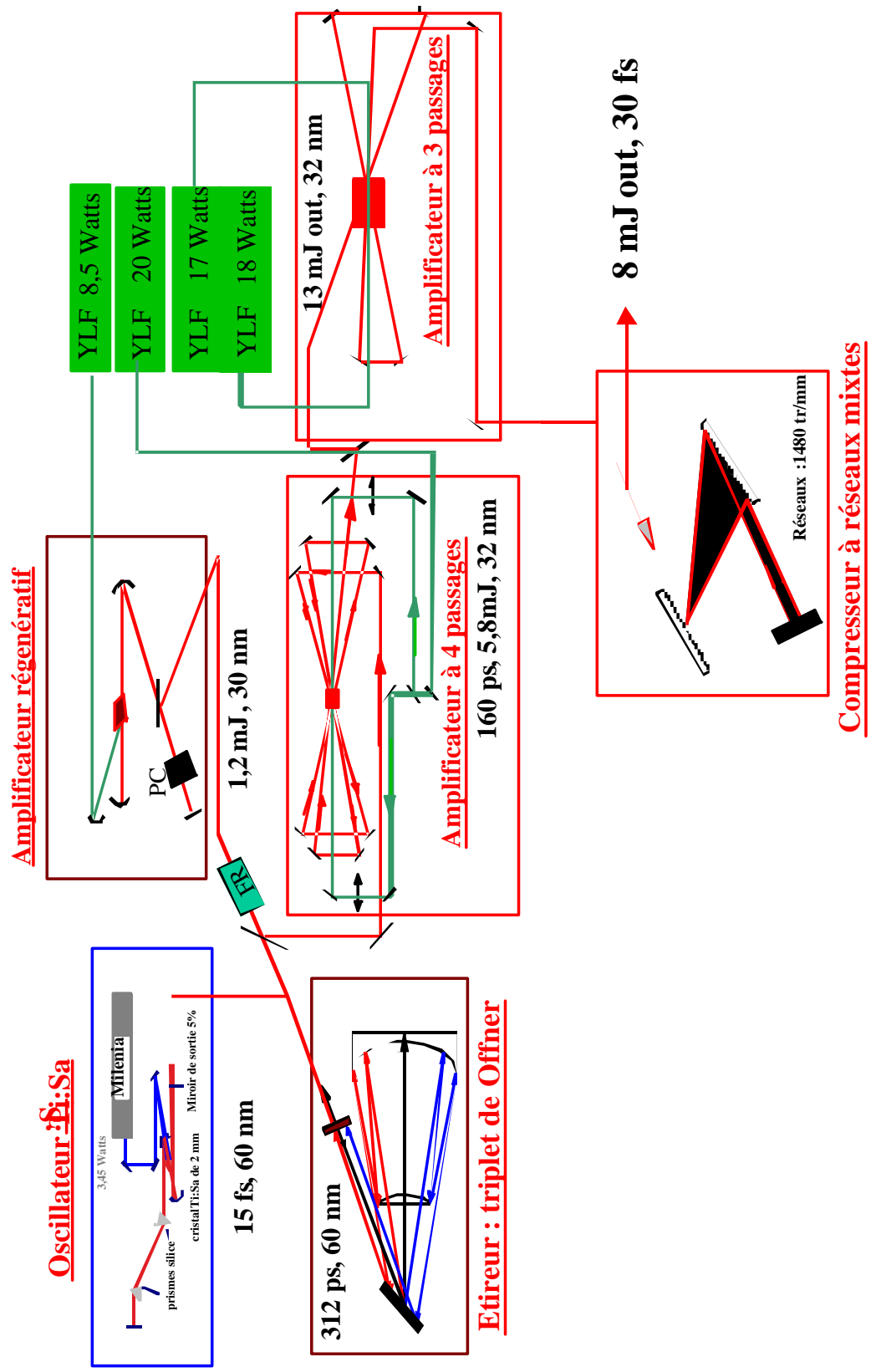


Figure 2.1 : Schéma de principe d'un étireur à triplet de Offner



Page précédente : Figure 2.2 : Schéma de principe de la chaîne laser de la salle rouge.

Le compresseur situé en bout de chaîne est constitué de deux réseaux de diffraction fabriqués à Livermore. Leur haute réflectivité permet de limiter l'absorption d'énergie donc de diminuer les effets thermiques pouvant induire une détérioration de la forme temporelle et spatiale de l'impulsion. Ce compresseur permet de réaliser l'opération exactement inverse de celle de l'étireur.

### 2.1.2. Principe de fonctionnement de l'amplificateur régénératif

L'étage le plus important quant à son influence sur les caractéristiques temporelles de l'impulsion en sortie est le premier étage d'amplification, dit préamplificateur qui présente le gain le plus important. Pour cette chaîne kHz, il est basé sur le principe de l'amplificateur régénératif dont l'inversion de population est obtenue par pompage au kHz avec un laser à base de YLF doublé émettant dans le vert (laser commercial Thalès). Contrairement aux systèmes multipassages utilisés pour les amplificateurs de puissance, dans lesquels le faisceau à amplifier ne traverse qu'un nombre de fois limité le milieu, l'amplificateur régénératif est construit comme une cavité laser autonome : en l'absence d'un faisceau à amplifier, il se comporte comme un oscillateur et peut émettre un rayonnement laser. L'amplificateur régénératif permet donc de réaliser un nombre important de passages dans le milieu amplificateur (généralement plusieurs dizaines). En contrepartie, la figure (2.3) montre que le fort gain obtenu implique un rétrécissement plus important de la largeur du spectre (souvent appelé «rétrécissement par le gain»), donc par transformation de Fourier une impulsion plus longue après compression.

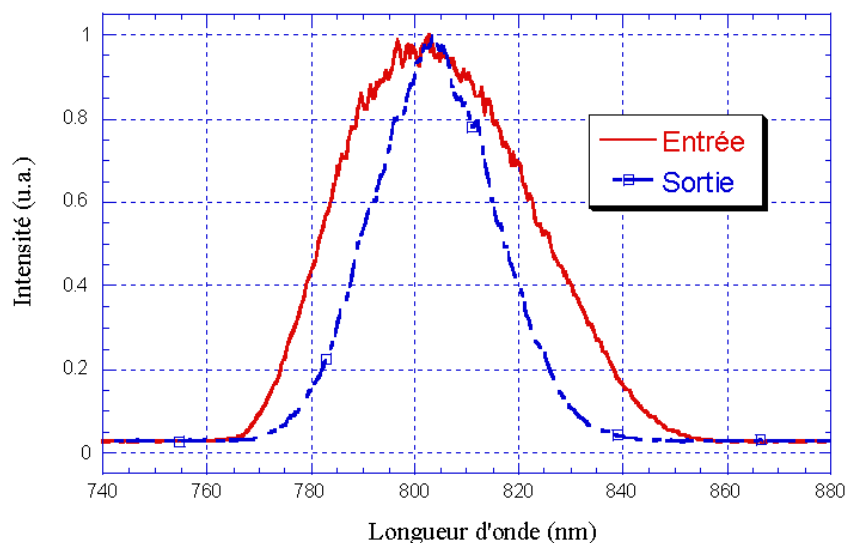


Figure 2.3 : Effet de l'amplificateur régénératif sur le spectre de l'impulsion : on observe un net rétrécissement de la largeur du spectre impliquant après recompression une plus grande durée d'impulsion.

Les avantages de ce dispositif sont une facilité de réglages accrue par rapport aux systèmes multipassages, et un meilleur mode spatial dû à la présence d'une cavité. Il est important d'insister sur le fonctionnement de ce système régénératif car il permet d'expliquer l'origine de nombreuses impulsions avant et après l'impulsion principale et qui sont responsables d'une moins bonne qualité du contraste du laser. La figure (2.4) montre le schéma de principe de ce type d'amplificateur.

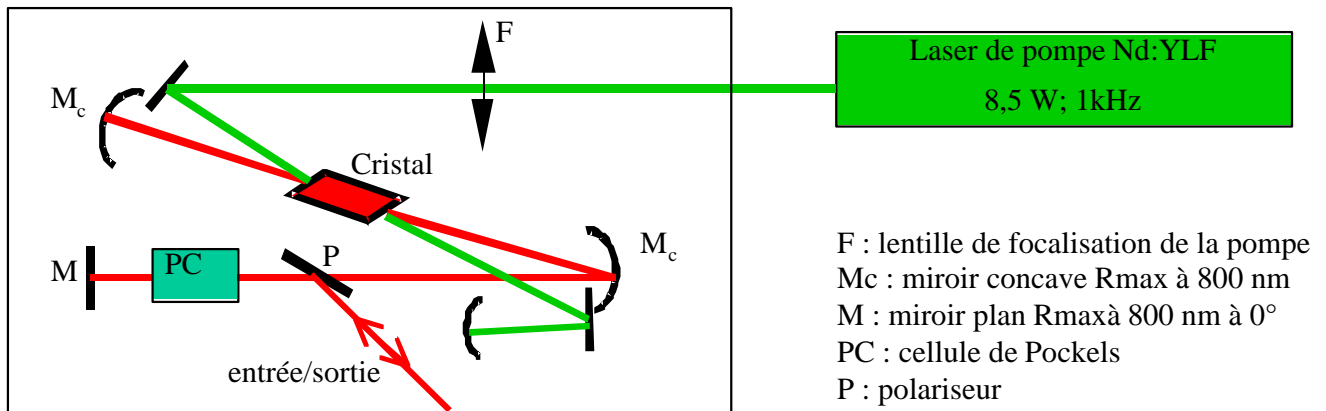


Figure 2.4 : Schéma de principe de l'amplificateur régénératif

L'amplificateur régénératif de la salle rouge est une cavité laser constituée de trois miroirs de réflectivité maximum contenant un cristal de Ti:Sa (dont les faces sont taillées à l'angle de Brewster), une cellule de Pockels et un polariseur. L'ensemble polariseur-cellule de Pockels constitue la porte optique permettant aux impulsions à amplifier d'entrer et de sortir de l'amplificateur. Les impulsions à l'entrée de l'amplificateur ont une polarisation verticale. Or, à cause du polariseur à l'intérieur de la cavité et des faces à Brewster du cristal de saphir dopé au titane, seules des impulsions de polarisation horizontale peuvent osciller dans la cavité. Chaque milliseconde, la cellule de Pockels sélectionne une impulsion en tournant sa polarisation de 90 degrés, ce qui permet à l'impulsion de rester piégée dans la cavité (le polariseur ne réfléchit plus l'impulsion, mais la transmet). Après plusieurs passages dans le milieu amplificateur (36 dans notre cas), lorsque le gain est optimisé, le processus inverse permet de sortir l'impulsion amplifiée grâce à une seconde rotation de la polarisation.

### 2.1.3. Problèmes de contraste liés à l'amplificateur régénératif

Dans une chaîne laser, on définit le contraste comme le rapport entre l'intensité crête de l'impulsion principale et celle de tout rayonnement parasite qui s'y superpose (émission spontanée amplifiée, pré ou post-impulsions, défauts de recompression, etc.)

La majorité des problèmes de contraste, et en particulier l'émission spontanée amplifiée (ASE) vient du préamplificateur à gain élevé, ceci quelle que soit la cadence de fonctionnement du laser. Dans le cas particulier de l'amplificateur régénératif de la chaîne kHz de la salle rouge, une étude de contraste a montré une valeur de quelques  $10^7$  vis à vis de l'ASE en sortie de chaîne.

En revanche, cette même étude a montré qu'il existe deux types de pics parasites, qui nuisent à la qualité du contraste, pouvant être induits par l'amplificateur régénératif : des impulsions distantes de 10 nanosecondes de l'impulsion principale et des impulsions situées à quelques picosecondes. Pour des raisons évidentes, les deuxièmes sont plus difficiles à détecter et à éliminer.

Les impulsions à 10 nanosecondes correspondent à une fraction de l'impulsion en voie d'amplification par la cavité qui est partiellement réfléchi par le polariseur, celui-ci n'étant pas une optique parfaite (10 ns correspondent au temps de parcours de l'impulsion dans la cavité, cette valeur sera bien sûr différente si on change la longueur de la cavité). On pallie ce problème par l'adjonction d'un filtrage temporel supplémentaire à l'échelle nanoseconde placé à la sortie de la cavité du régénératif, constitué d'une autre cellule de Pockels suivie d'un polariseur.

Un appareil plus sophistiqué permet de détecter par une corrélation du faisceau à  $3\omega$ , les impulsions séparées de quelques picosecondes de l'impulsion principale, indécélables sur un oscilloscope ou même une auto corrélation à  $2\omega$ . Ces dernières peuvent être dues à des réflexions multiples sur les faces de la cellule de Pockels (ou sur toute autre optique du régénératif) ou à une coïncidence malencontreuse entre une impulsion de l'oscillateur et l'impulsion contenue dans la cavité du régénératif au moment où elle est injectée/réjectée. Ces effets ne peuvent se voir que sur une corrélation à trois oméga du signal en sortie de la chaîne laser, comme le montre la figure (2.5). Enfin, si l'axe du cristal n'est pas parfaitement aligné sur celui de la cellule de Pockels, des effets de biréfringence peuvent induire la formation d'un spectre cannelé dont la transposition dans le domaine temporel donne lieu à de nombreuses pré et post-impulsions. Une mesure de ce spectre permet alors de corriger l'alignement du cristal. Après optimisation du contraste par le contrôle de tous les paramètres cités ci-dessus, on aboutit à un contraste de quelques  $10^5$  pour les impulsions à 10 ns et de quelques  $10^4$  pour celles qui sont à quelques picosecondes.

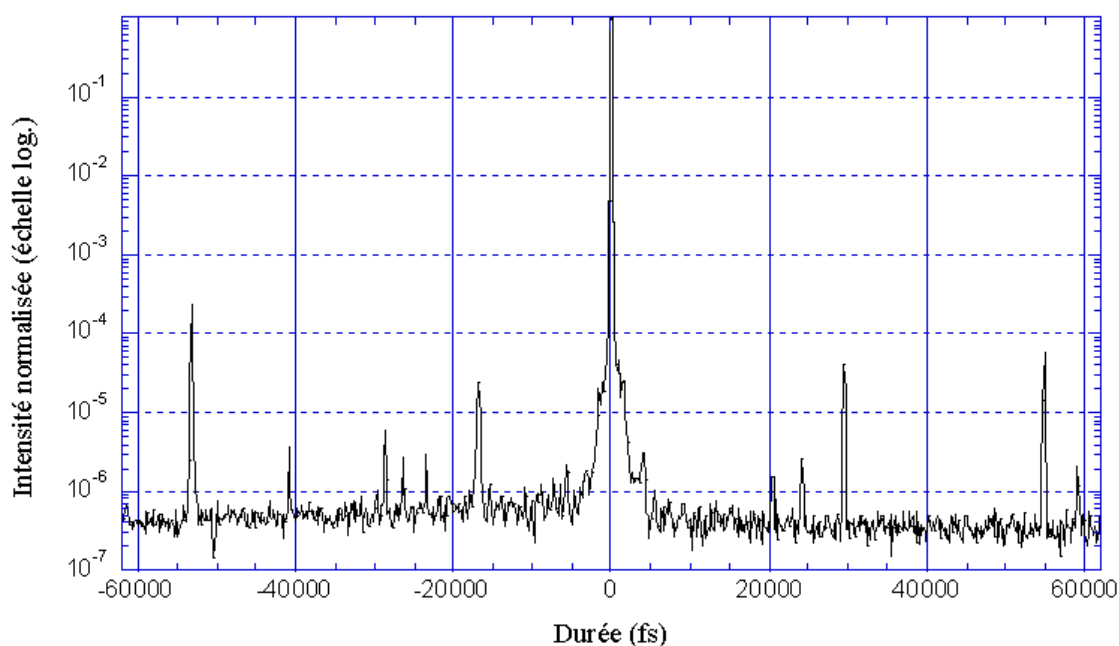


Figure 2.5 : Variation temporelle de l'intensité du laser de la salle rouge mesurée par un corrélateur à  $3\omega$  permettant de mettre en évidence un contraste temporel de  $10^4$  pour le laser de la salle rouge

## 2.2. Moyens de contrôle et de mesure des paramètres importants pour la génération d'harmoniques

### 2.2.1. Mesure de la durée d'impulsion et de la phase spectrale par SPIDER

La méthode SPIDER (pour «Spectral Phase Interferometer for Direct Electric Field Reconstruction») est une transposition dans le domaine temporel des méthodes d'interférométrie à décalage utilisées dans le domaine spatial, par exemple en astronomie [4]. Elle consiste à mesurer le spectre de l'impulsion étudiée et à reconstruire sa phase spectrale (exemple figure (2.6)) à partir de la mesure du battement entre deux répliques de l'impulsion de fréquences proches de cette impulsion. La connaissance de cette phase spectrale permet alors la reconstruction du profil temporel de l'impulsion de départ (exemple figure (2.7)).

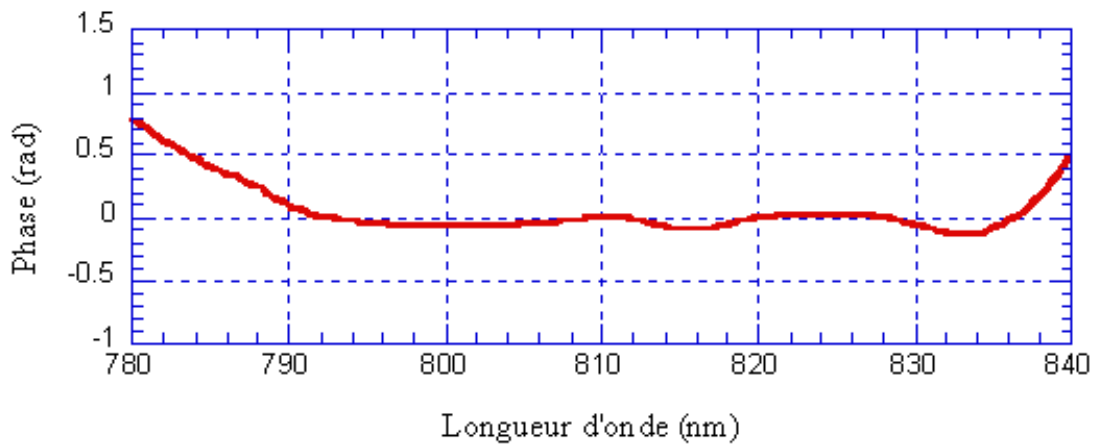


Figure 2.6 : Mesure SPIDER de la phase spectrale du laser : on observe une différence de phase inférieure à un radian.

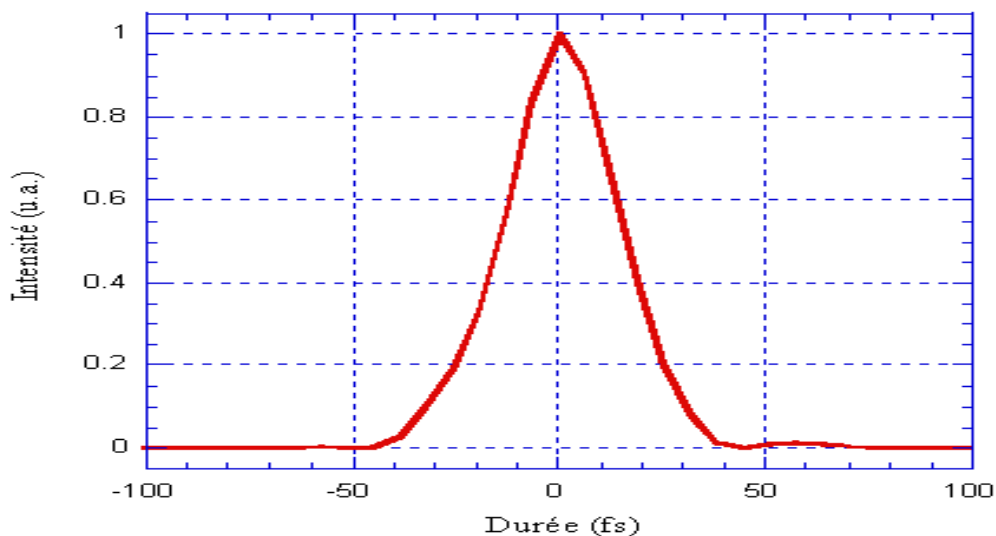


Figure 2.7 : Reconstruction de l'allure temporelle de l'impulsion du laser de la salle rouge : on observe une durée de 30 fs à mi-hauteur.

### 2.2.2. Contrôle de l'énergie laser par lame demi-onde suivie d'un polariseur

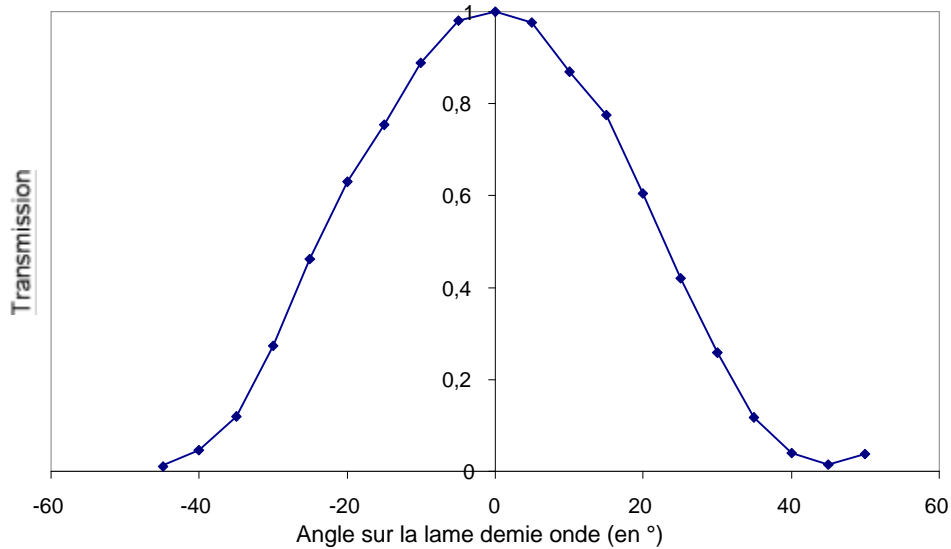


Figure 2.8 : Energie en transmission du laser en fonction de l'angle sur la lame demi-onde (mesure expérimentale)

Pour amener l'énergie du laser à une valeur souhaitée, on dispose une lame demi-onde placée avant les réseaux du compresseur. En régime de fonctionnement normal, la polarisation du laser est rectiligne horizontale et les réseaux du compresseur ont une efficacité de diffraction optimale pour cette polarisation. Le rôle de la lame demi-onde est de tourner la polarisation, c'est-à-dire d'introduire une composante verticale. Seule la composante horizontale du laser sera diffractée de façon appréciable par les réseaux et contribuera à l'énergie du laser mesurée en sortie. La composante verticale contribuera quant à elle à l'échauffement des réseaux par absorption. Nous avons pu constater les effets néfastes de l'échauffement sur la qualité spatiale du faisceau en faisant l'imagerie en temps réel de ce dernier au foyer d'une lentille. Sans lame demi-onde, l'image du faisceau présente une allure circulaire normale ; mais la présence de la lame demi-onde fortement tournée induit un étalement de la tâche et une forme très irrégulière du foyer. Les densités d'énergie atteintes au foyer sont considérablement diminuées par rapport à un faisceau limité par diffraction. On empêche l'échauffement des réseaux en éliminant, grâce à un polariseur de Glan, la composante verticale de la polarisation induite par la lame demi-onde avant l'arrivée de l'impulsion sur le compresseur. Cette technique s'est révélée très efficace et nous avons pu valider cette amélioration par imagerie du foyer dans les deux conditions. Certains effets thermiques modifient la propagation du faisceau, notamment lors de son passage dans les cristaux des étages de puissance pompés à haute cadence. Pour quantifier cette influence, on peut mesurer la phase et l'amplitude spatiales du faisceau laser avec un détecteur de front d'onde de Shack-Hartmann [5] et les comparer à celles d'un faisceau gaussien de référence.

### 2.2.3. Mesure du rapport de Strehl et la phase spatiale par Shack-Hartmann

La mesure de la phase spatiale d'un faisceau en champ lointain permet d'en déduire, par un calcul de diffraction, la taille du foyer ainsi que la répartition d'énergie laser en son voisinage. Si la phase est plate, c'est le cas d'un faisceau gaussien idéal, l'intensité obtenue sera maximale à l'énergie donnée. Dans le cas contraire, l'énergie ne sera pas parfaitement concentrée au foyer et il y

aura une forte diminution de l'intensité obtenue. Le rapport de Strehl est défini comme le rapport des intensités crête focalisées sur l'axe entre un faisceau réel et un faisceau gaussien :

$$r_{Strehl} = \frac{I_{\max}(réel)}{I_{\max}(gaussien)} \quad (2.1)$$

La phase et l'amplitude spatiales du faisceau de la salle rouge ont été mesurées par un senseur de front d'onde Shack-Hartmann et la figure (2.9) montre la variation de la phase sur une section transverse du faisceau, la répartition d'intensité est quant à elle proche de celle d'un faisceau gaussien.

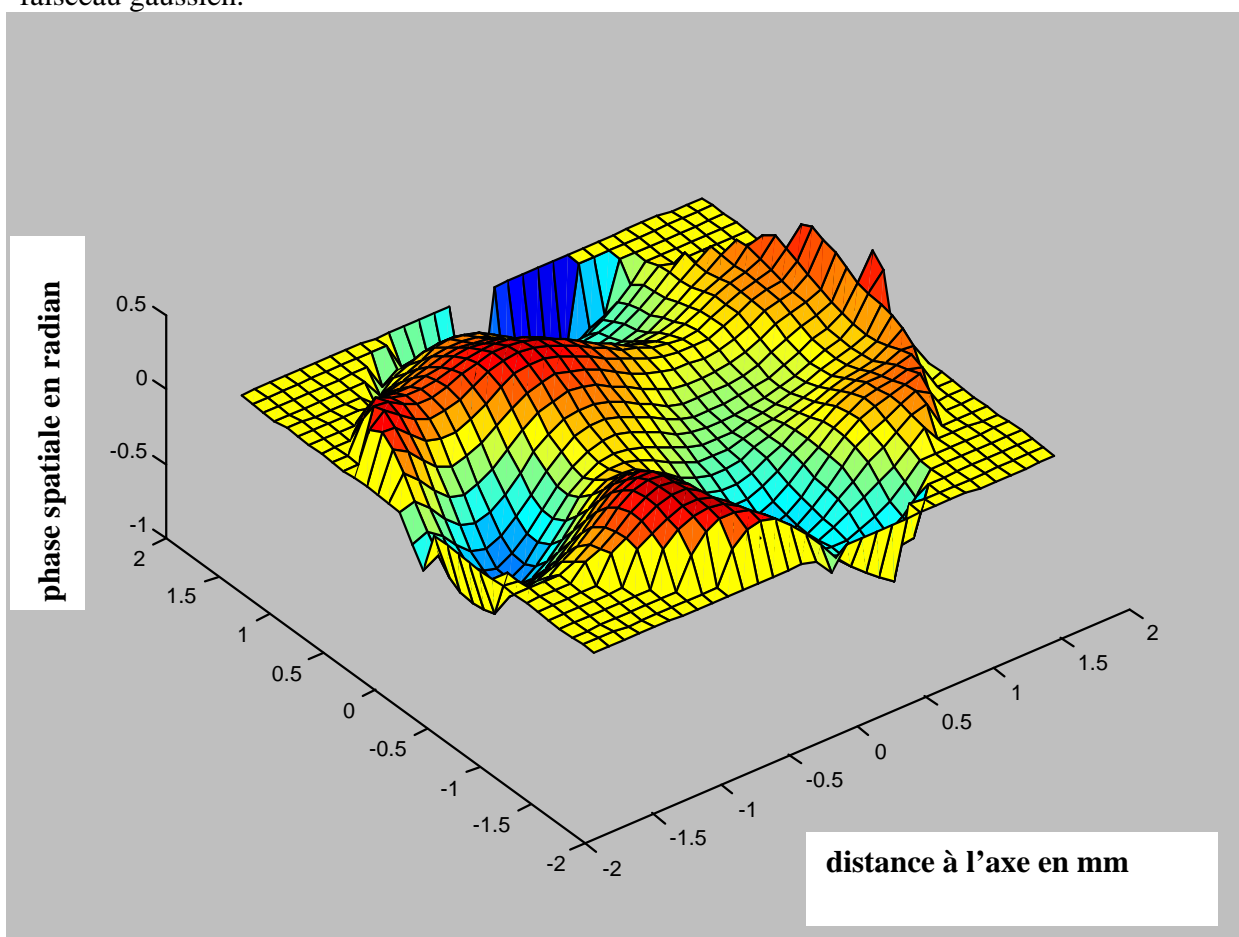
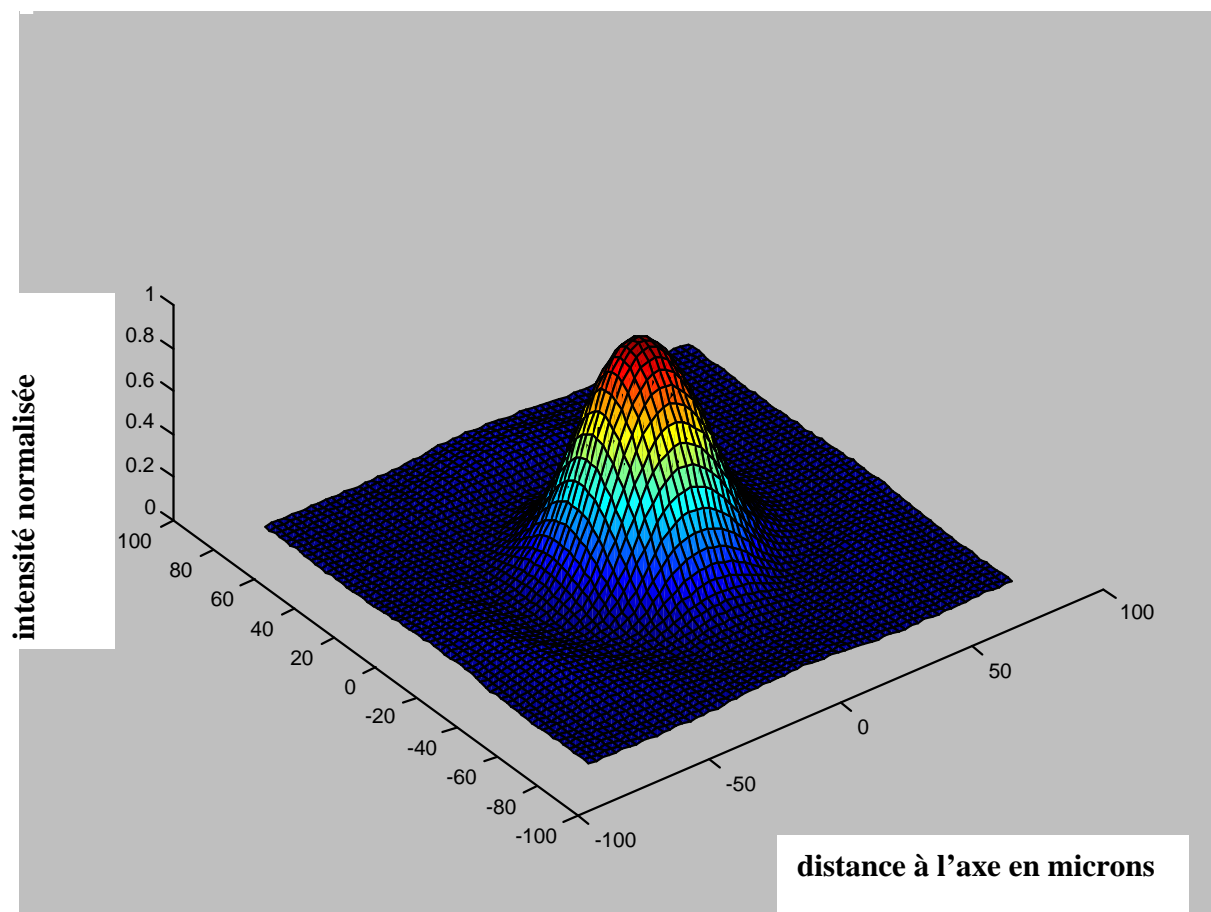


Figure 2.9 : Variation de la phase spatiale sur une section transverse du faisceau de taille caractéristique 3,8 mm. L'écart de phase maximal à la référence n'excède pas un radian.

Le logiciel HASO lié à l'appareil [6] permet, à partir de la mesure précédente, de reconstruire directement la zone focale visible sur la figure suivante et d'en déduire le rapport de Strehl.





*Figure 2.10 : Variation de l'intensité laser autour du foyer à une lentille de focale 1 mètre reconstruite par un calcul de diffraction à partir des fichiers de phase et d'amplitude spatiales mesurées avec un Shack Hartmann.*

Les deux figures précédentes permettent de mettre en évidence de faibles écarts de phase spatiale qui induisent une répartition très régulière de l'énergie au foyer et donc un rapport de Strehl très élevé. Dans les conditions correspondant au laser de la salle rouge en octobre 2002, ce rapport atteint 90 % environ. Il convient de noter que cette valeur est réellement très bonne et n'est pas toujours atteinte. En effet, suivant les conditions laser, les rapports de Strehl peuvent ne pas dépasser 60 %, comme nous l'avons par exemple observé un an plus tôt par le même type de mesure (cf. figure (5.14)).

Ce rapport de Strehl a une grande importance dans la détermination réelle de l'intensité atteinte au foyer et peut expliquer souvent des divergences entre les données expérimentales et les valeurs issues de codes de calcul théoriques reposant sur la valeur numérique de l'intensité au foyer d'un faisceau gaussien parfait. Ce paramètre joue en effet un rôle extrêmement important dans le processus non-linéaire de la génération d'harmoniques.

### 2.3. Le dispositif de génération d'harmoniques

Les différentes installations harmoniques sont de types très variés et répondent à des exigences précises. Indépendamment du choix de la méthode de génération (capillaire, cellule, jet), la simple détection ou l'utilisation des harmoniques implique des choix technologiques spécifiques.

Le premier problème est celui de l'élimination du rayonnement infrarouge sur l'axe de propagation des harmoniques. Parmi les différentes techniques possibles, nous avons utilisé des filtres. Une alternative est également d'utiliser un détecteur insensible au rayonnement laser tout en restant sensible aux longueurs d'onde harmoniques, par exemple des galettes de micro-canaux (MCP en anglais pour *Micro-Channel-Plates*).

Enfin, suivant que l'on désire étudier les harmoniques dans leur ensemble (réseau de diffraction), ou sélectionner une seule harmonique (miroirs multicouches ou monochromateurs), ou maximiser le flux total harmonique, les instrumentations à choisir sont différentes.

Nous avons utilisé une cellule comme cible gazeuse et différents types de spectrographes que nous décrirons par la suite. Le type de détecteur est alors choisi en fonction de la longueur d'onde étudiée et dépend de l'utilisation de filtres.

#### 2.3.1. Schéma de principe

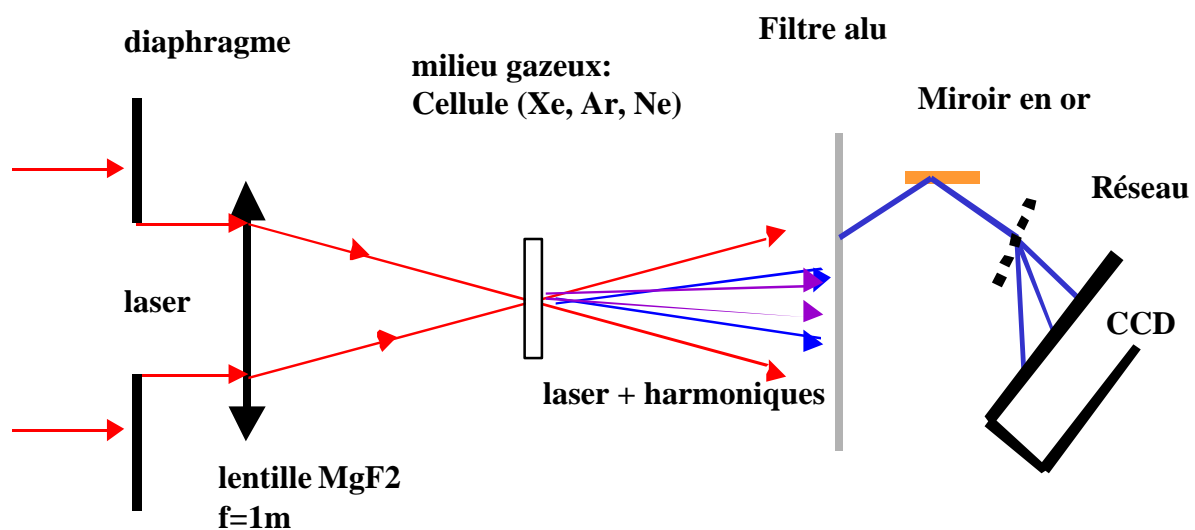


Figure 2.11 : Schéma de principe de l'installation harmoniques de la salle rouge

Le schéma de l'expérience de génération d'harmoniques est présenté sur la figure (2.11) et permet de constater que faisceau laser de la salle rouge est tout d'abord diaphragmé pour ajuster l'énergie ou la géométrie du foyer puis est focalisé par une lentille de focale 1 mètre en MgF<sub>2</sub>, matériau qui permet d'éviter d'éventuels effets non linéaires de type effet Kerr. Le foyer du laser se trouve à proximité d'une cellule de gaz qui est placée sous vide. Les harmoniques émises colinéairement au faisceau infrarouge se propagent sous vide sur une distance d'1 mètre environ avant de traverser les filtres en aluminium. Ils sont disposés le plus loin possible du foyer du laser pour éviter une détérioration due à l'intensité laser. On place ensuite soit un dispositif d'analyse

(spectrographe), soit une expérience utilisant les harmoniques comme source XUV. Le premier spectromètre utilisé est constitué d'un miroir sphérique en or utilisé en incidence rasante et d'un réseau à transmission qui permet de séparer les différents ordres harmoniques. Le détecteur peut tout aussi bien être une caméra CCD XUV, ou des galettes de micro-canaux ou bien encore un multiplicateur d'électrons secondaires.

### 2.3.2. L'utilisation d'une cellule comme cible gazeuse

La cellule de gaz est une cible parfaitement bien adaptée au type de laser infrarouge que nous utilisons pour générer des harmoniques. En effet, indépendamment des critères d'accord de phase dont nous discuterons dans les chapitres suivants, elle convient bien à une cadence kHz. Les jets utilisés jusqu'alors ont des cadences d'ouverture plus basses et l'utilisation d'un jet continu impliquerait de nombreuses pertes de gaz. Les capillaires nécessitent quant à eux un très bon alignement du faisceau laser et une grande stabilité de pointé. De plus, le type d'accord de phase qu'ils permettent d'obtenir correspond mieux à des énergies plus faibles (de l'ordre de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>).

Les cellules de gaz présentent aussi l'avantage de permettre le contrôle simple de la longueur du milieu sous vide et de garantir une pression homogène contrairement aux jets. Enfin, l'alignement en est beaucoup moins critique que pour les capillaires car c'est le faisceau laser lui-même qui perce l'entrée et la fin de la cellule fermée par des clinquants en fer.

La cellule que nous avons utilisée est représentée par son schéma mécanique figure (2.12), elle est constituée d'un tube rempli de gaz dont l'extrémité aval est motorisée sous vide pour en faire varier la longueur. La position de la lentille de focalisation est elle même modifiable pour amener le foyer du laser à la position désirée par rapport à l'entrée de la cellule.

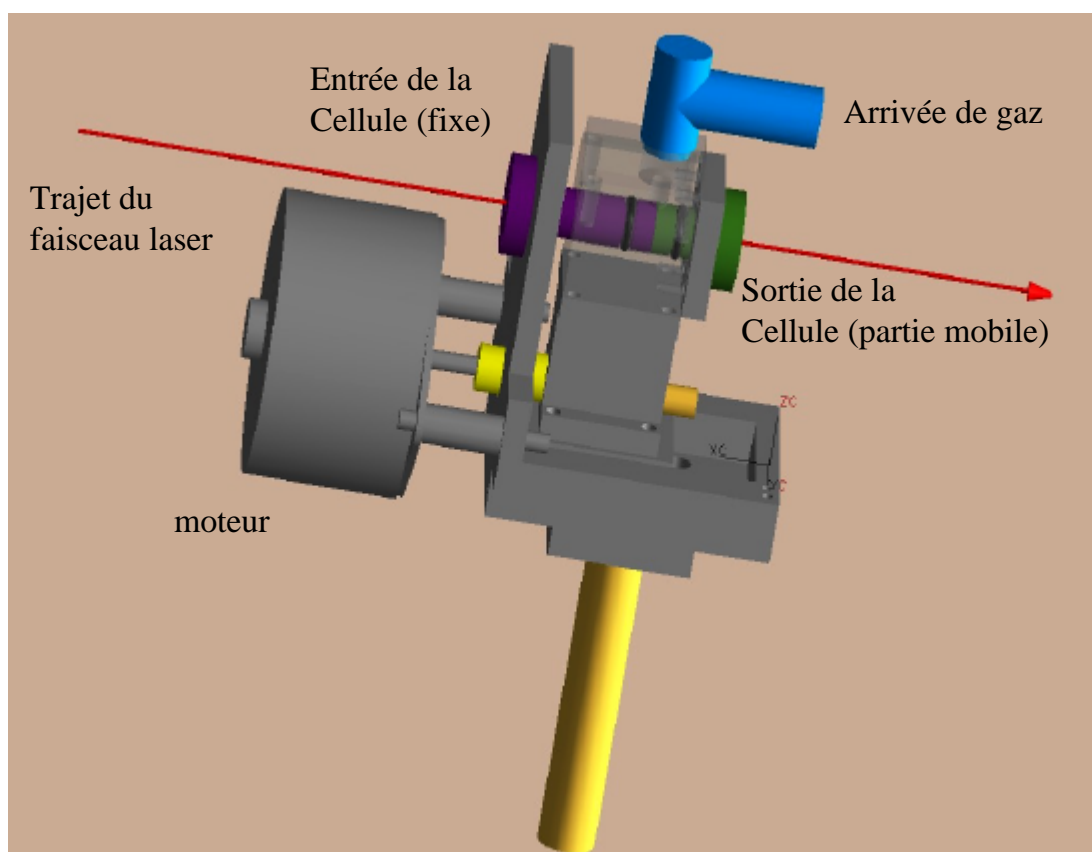


Figure 2.12 : Schéma de construction mécanique de la cellule de gaz. La cellule est ici représentée avec une longueur nulle, dans le cas réel, le gaz se trouve entre les embouts amont (en violet) et aval (en vert), les clinquants sont collés à cet endroit avant d'être percés par le laser (dessin D. Douillet).

### 2.3.3. L'utilisation de filtres métalliques

L'élimination du rayonnement infrarouge avant détection des harmoniques est un problème récurrent. En effet, l'énergie contenue dans le faisceau infrarouge est considérablement plus importante que celle convertie en rayonnement harmonique. Si les détecteurs ne sont pas tout simplement endommagés par les éclaircissements infrarouges atteints, ils peuvent être saturés au point de ne plus pouvoir distinguer le rayonnement XUV. La solution technique que nous avons utilisée est celle des filtres en aluminium, qui est aussi employée par d'autres équipes travaillant sur les harmoniques. L'aluminium présente l'avantage de transmettre les longueurs d'onde qui nous intéressent (entre 17,5 et 80 nm) et de couper totalement le rayonnement infrarouge. Chaque filtre est composé de deux films d'aluminium accolés de 125 nm, plutôt qu'un seul d'épaisseur double. Si la transmission théorique est la même, l'intérêt d'utiliser deux films au lieu d'un est que cela permet de limiter au maximum les fuites dues à des micro-trous, inévitables pour des films aussi minces. Le site Internet du CXRO associé au « Center for X-Ray Optics of the Lawrence Berkeley National Laboratory » [7] permet de connaître les transmissions théoriques des filtres d'aluminium comme le montre la figure (2.13) :

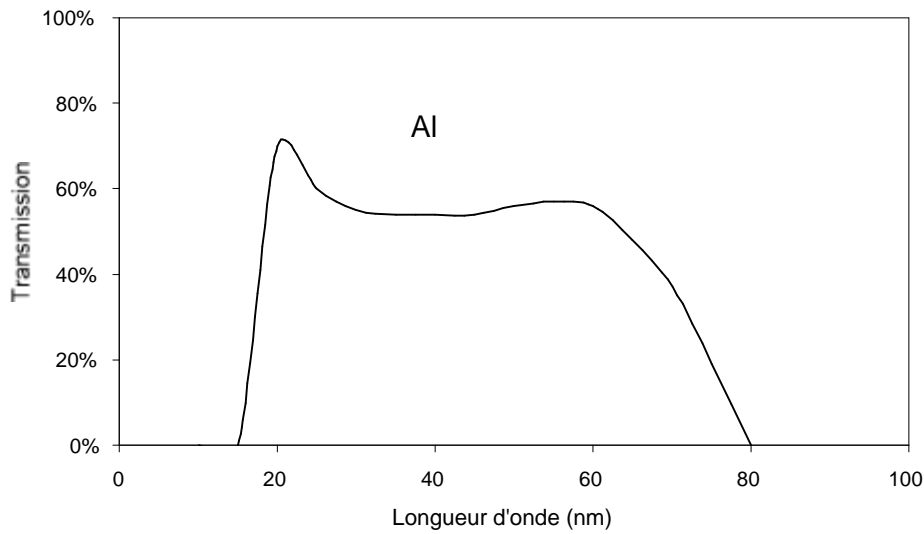


Figure 2.13 : Transmission théorique de 250 nm d'aluminium pur en fonction de la longueur d'onde (en nm)

Ces valeurs théoriques ne correspondent pas exactement à celles que nous avons pu mesurer expérimentalement sur les filtres d'aluminium de  $2 \times 125$  nm avec lesquels nous travaillons. Cette mesure a été possible grâce au fait que chacun des filtres est amovible sous vide : la transmission d'un filtre étant le rapport entre le flux harmonique transmis par deux filtres et le flux harmonique transmis par un seul d'entre eux.

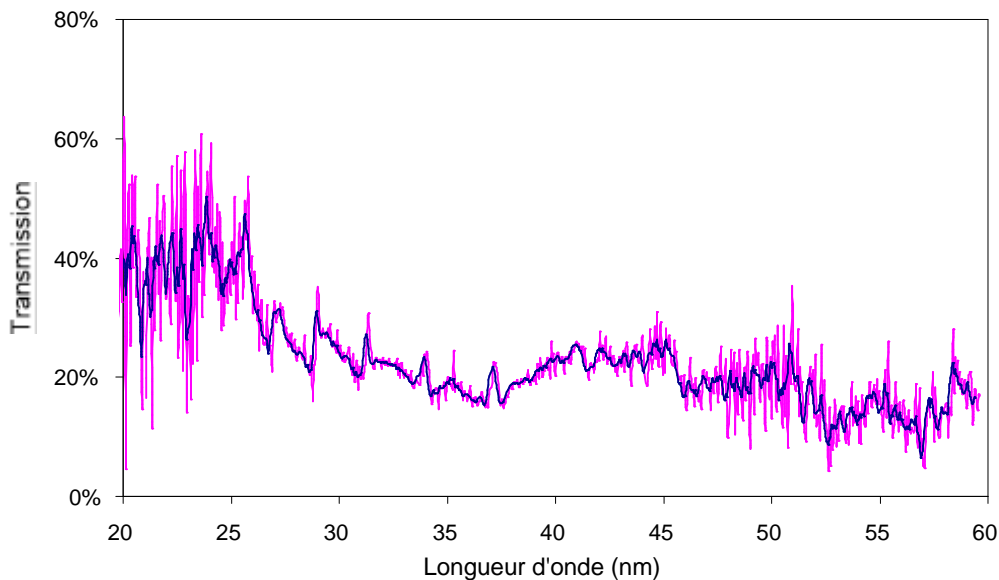


Figure 2.14 : Transmission mesurée expérimentalement d'un filtre composé de 2 pellicules de 125 nm d'aluminium chacun.

La courbe présentée figure (2.14) présente le résultat de la mesure de la transmission d'un filtre aluminium. On constate que la transmission est double (40 %) pour les longueurs d'onde situées vers 20 nm par rapport au voisinage de 40 nm (plutôt 20 %). Les données sont très bruitées à cause du caractère instable du flux tir à tir des harmoniques dû aux multiples sources de fluctuations du laser, mais une tendance claire se dégage. La valeur moyenne de la transmission

est moins bonne que celle prédite par les données théoriques et l'on observe un creusement de la transmission vers 40 nm plus important que ne le prédit la figure (2.15). Tout cela est compatible avec l'hypothèse qu'une fine couche d'oxyde d'aluminium ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) se forme à la surface des filtres, malgré leur stockage sous vide. Par comparaison entre la transmission mesurée et la transmission théorique de l'oxyde d'aluminium, on déduit que l'épaisseur d'oxyde compatible avec l'expérience est d'environ 15 nm.

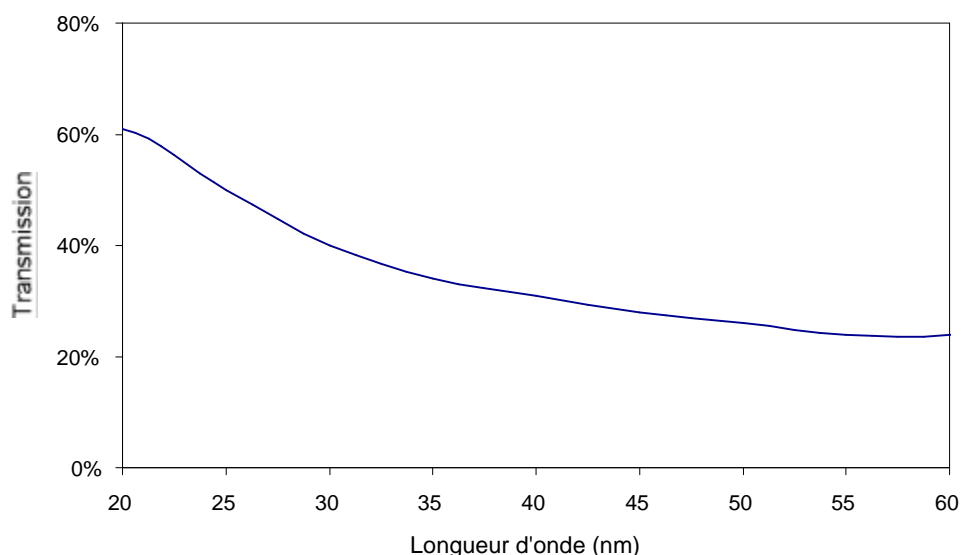


Figure 2.15 : Transmission théorique d'une couche d'oxyde d'aluminium de 15 nanomètres en fonction de la longueur d'onde en nm

L'étude de longueurs d'onde plus courtes pourrait se faire en utilisant des filtres ayant une transmission spectrale différente : les deux principaux candidats sont le zirconium et le titane, comme le montre la double courbe de transmission spectrale ci-dessous.

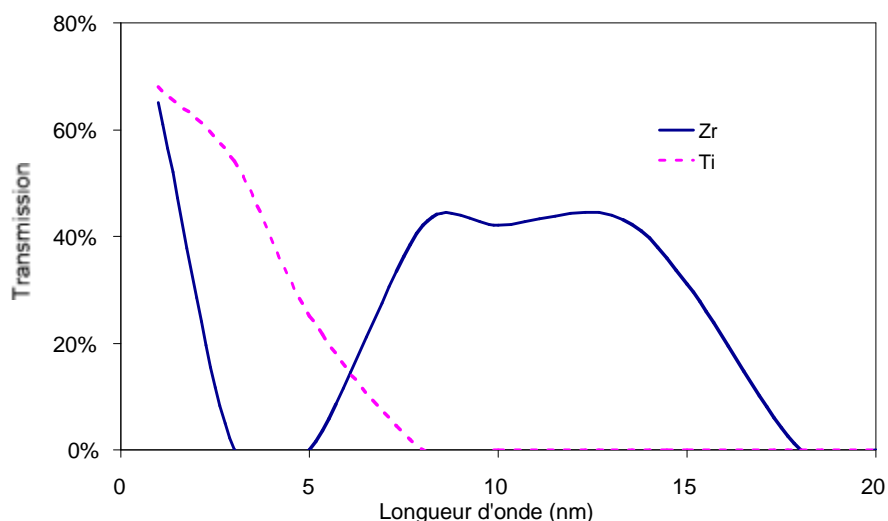


Figure 2.16 : Transmission théorique de 250 nm de zirconium (trait plein) et de titane (trait pointillé) en fonction de la longueur d'onde.

On remarque ainsi que les fenêtres de transmissions des filtres sont très complémentaires. L'utilisation de filtres en zirconium semble adaptée à la gamme de longueur d'onde de 13 nm, zone d'intérêt majeur pour les projets de lithographie X, tandis que le titane présente une transmission très importante vers la fenêtre de l'eau (vers 4 nm). Cette gamme de longueurs d'onde est très prometteuse pour la microscopie d'échantillons biologiques car l'absorption par les molécules d'eau est relativement importante par rapport à celle des molécules carbonées. Un très bon contraste est alors attendu pour ce genre de microscopie.

Les essais que nous avons réalisés ont montré que le zirconium et le titane ne résistent pas à un flux laser trop important. En fait le laser 5mJ, 30 fs, 1kHz est capable de les vaporiser en quelques secondes même en propagation de faisceau parallèle. À l'inverse, les filtres ont résisté aux tests réalisés sur la chaîne multiterawatt du LOA (1 J, 30 fs, 10 Hz), ce qui met en évidence l'influence du taux de répétition sur le chauffage des filtres. Le processus d'endommagement des filtres semble donc être une simple fusion, liée à l'élévation de température du métal par absorption d'énergie laser. Sous vide, le filtre ne peut se refroidir que par conduction ; le coefficient critique permettant d'évaluer la résistance d'un filtre est donc sa conductivité thermique. L'aluminium présente logiquement la plus forte conductivité thermique : 2,37 W/cm/K; alors que celles du titane et du zirconium sont respectivement 0,2 W/cm/K et 0,3 W/cm/K. Les filtres aluminium, quoique plus résistants ne doivent pas être exposés plus de quelques secondes de suite sous peine d'observer une zone surfondue en leur centre. L'évacuation de la chaleur induite par l'énergie laser devra être étudiée si l'on veut maintenir la technologie « filtres » dans les expériences d'harmoniques hautes énergie/haute.

## **2.4. Les spectrographes d'analyse**

Nous avons travaillé avec deux géométries différentes de spectrographes : l'un utilisant un réseau de diffraction en transmission qui présente l'avantage d'avoir une réponse spectrale plate, et l'autre en réflexion conçu pour étudier plus précisément les longueurs d'onde très courtes (entre 4 et 8 nm).

### **2.4.1. Le spectrographe en transmission**

Ce spectrographe est constitué d'un miroir sphérique recouvert d'or utilisé en incidence quasi rasante, suivi d'un réseau à transmission, l'image de la source X se trouvant sur notre détecteur. Le réseau de 2000 traits par mm est utilisé à l'ordre un, sa transmission de 3 %, elle est issue d'une caractérisation sur synchrotron. Le miroir image la zone émissive des harmoniques, mais focalise le rayonnement dans une seule direction, ce qui permet de mesurer la distribution angulaire et donc la divergence du faisceau harmonique. La calibration en longueur d'onde est permise par la diffraction d'un laser Hélium Néon d'alignement sur la grille du réseau support (58,8 traits par mm). On a ainsi accès au nombre de pixels sur la caméra qui séparent deux ordres consécutifs du réseau ce qui permet ensuite de déduire la loi de longueur d'onde en fonction du numéro de pixel, de la loi des réseaux. La présence de ce réseau support peut devenir un inconvénient quand on observe des harmoniques assez élevées (présence d'ordres diffractés par le support).

### **2.4.2. Le spectrographe à réflexion**

Ce spectrographe représenté figure (2.17) est composé d'un miroir torique recouvert d'or utilisé en incidence rasante ( $i=81,31^\circ$ ), il est suivi d'un réseau plan en réflexion de 600 traits par mm. Le signal de l'ordre 1 est recueilli sur une caméra CCD mobile sur un axe distant de 767,1 mm du centre du réseau.

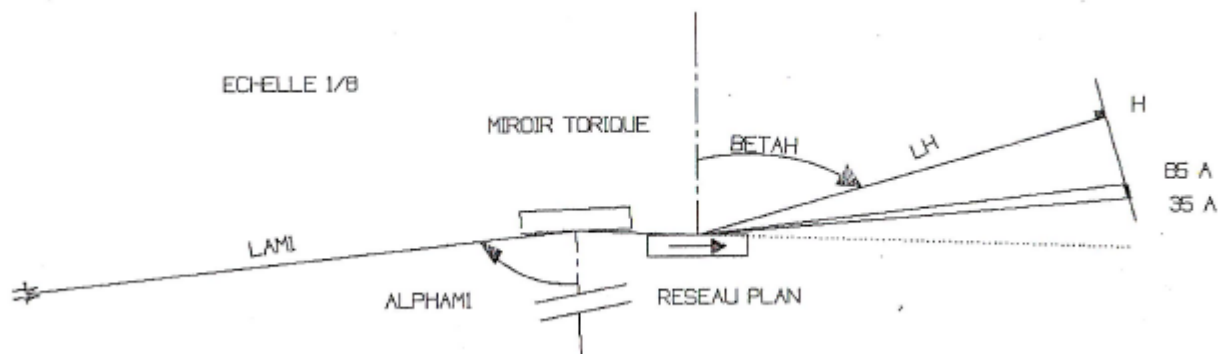


Figure 2.17 : Schéma de principe optique du spectrographe à réflexion.

Le spectrographe à réflexion est adapté à l'étude de longueurs d'onde très courtes (4 nm à 8 nm) correspondant aux ordres harmoniques supérieurs à 100. En effet, la réflectivité du réseau à l'ordre 1, de même que la géométrie angulaire au niveau du détecteur, sont optimisées pour cette gamme spectrale.

#### 2.4.3. Le dispositif de détection du rayonnement XUV

Plusieurs types de détecteurs sont sensibles aux longueurs d'onde harmoniques et chacun est adapté à un type d'étude particulière. On peut distinguer ceux qui sont calibrés en absolu comme les caméras CCD XUV ou les photodiodes calibrées. Ils présentent l'avantage de donner directement les nombres de photons harmoniques par tir. La photodiode placée sur le faisceau avant le spectromètre intègrera le signal présent sur tout le spectre alors que la caméra XUV placée après un réseau de diffraction permettra de distinguer la contribution de chaque harmonique au flux total. L'inconvénient de ces deux détecteurs étant qu'ils sont sensibles au rayonnement infrarouge et qu'ils nécessitent donc une très bonne isolation photonique de l'expérience (emploi de filtres par exemple).

Les galettes de micro-canaux (MCP) sont elles très peu sensibles au rayonnement infrarouge et peuvent être utilisées sans filtres, ce qui permet d'augmenter considérablement la quantité de photons harmoniques qui arrivent sur le détecteur et d'observer des gammes spectrales interdites par les filtres (en dessous de 17,5 nm pour les filtres aluminium). Elles exigent un bon vide pour fonctionner correctement ( $10^{-6}$  torr).

Les flux de photons et les efficacités de conversion donnés ci-dessous ont été déterminés en utilisant une caméra CCD XUV calibrée : le nombre de coups enregistrés par pixel est proportionnel à l'énergie d'un photon incident moyennant une amplification électronique interne. Tous les autres éléments susceptibles d'atténuer le rayonnement infrarouge ont été rigoureusement étudiés afin de parvenir à des données les plus fiables possibles. Cela nous permet de comparer les efficacités de conversion publiées récemment par d'autres équipes à celles que nous avons obtenues.



## 2.5. La calibration des flux de photons et des efficacités de conversion

Le paragraphe ci-dessous décrit précisément comment nous avons obtenu les chiffres d'efficacité de conversion énoncés en conclusion de ce chapitre avant de citer les valeurs des équipes européennes, japonaises et américaines travaillant sur le sujet.

### 2.5.1. Les flux de photons

Une calibration de flux de photons se fait à partir d'une image de spectre harmonique enregistrée par la caméra CCD (cf figure (2.18)). Chaque pic correspond à un ordre impair, c'est-à-dire une longueur d'onde qui est un sous-multiple impair de la longueur d'onde du laser.

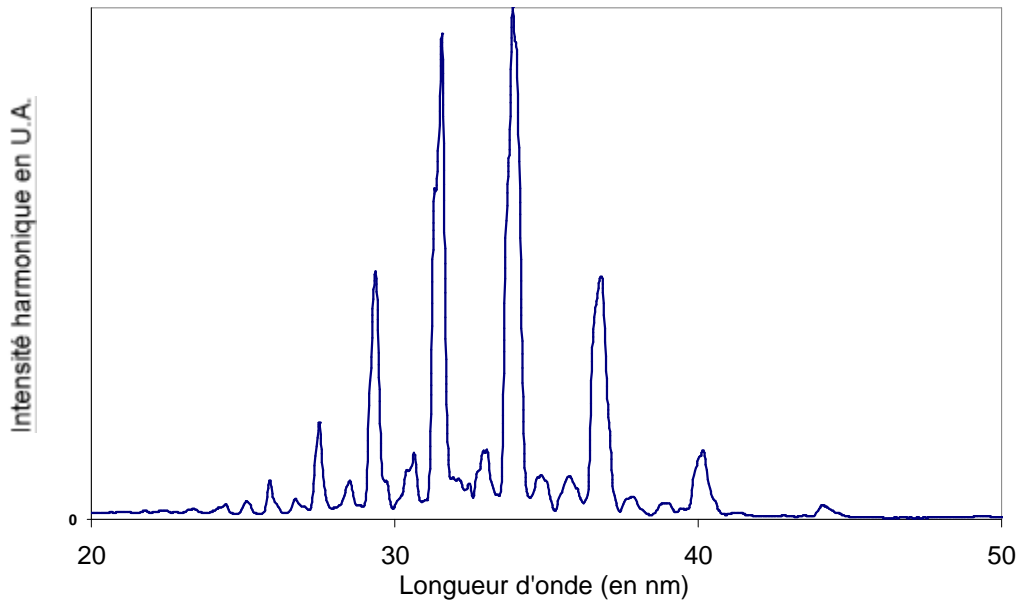


Figure 2.18 : Allure de spectre caractéristique de l'argon qui sert de point de départ à la calibration en absolu (échelle linéaire).

On intègre le nombre de coups correspondant à une harmonique donnée, pendant un temps donné. L'acquisition a été faite en général sur 0,1 seconde, ce qui correspond à 100 tirs (cadence kHz). Le nombre de coups par tir et par harmonique peut se ramener à un nombre de photons. D'après les données du fabricant, seuls 40 % des photons incidents sur la caméra seront absorbés par la surface sensible. Un photon absorbé créera une paire électron-trou avec un rendement quantique de 0,3 électrons par électron-volt de photon incident. Chaque photon de l'harmonique  $q$  transporte une énergie  $E_q = q \cdot 1,55$  eV. (1,55 eV est l'énergie transportée par un photon du laser infrarouge et correspond à une longueur d'onde de 800 nanomètres). Le résultat peut s'exprimer sous la forme suivante :

$$N_q = \frac{(\text{nombre de coups total})}{0,3 E_q R_{\text{miroir}} T_{\text{réseau}} T_{\text{filtres}} N_{\text{tirs}}}$$

R et T représentent respectivement les réflectivité et transmission du miroir en or, du réseau et des filtres.

$N_{\text{tirs}}$  est le nombre de tirs enregistrés lié au temps d'acquisition

Enfin  $N_q$  donne le nombre de photons par harmonique et par tir qui permet de calculer ensuite les efficacités de conversion.

### 2.5.2. Les efficacités de conversion

Par définition, c'est le rapport entre l'énergie contenue dans une harmonique et l'énergie laser qu'il a fallu dépenser pour la produire. Les lasers utilisés n'étant pas toujours parfaits tout comme les composants de l'expérience, on donne en général le rapport entre l'énergie harmonique produite et l'énergie laser arrivant sur cible et étant susceptible de réellement générer des harmoniques. Les différences entre ces deux efficacités de conversion peuvent être notables. La deuxième valeur permet de mieux comparer différentes équipes en se ramenant à l'optimisation de la génération proprement dite et non celle du laser de pompe. Les rendements sont plutôt faibles en raison de l'ordre très élevé de la génération d'harmoniques (autour de  $10^{-5}$  actuellement).

### 2.5.3. Résultats de l'optimisation

Nous avons travaillé avec les trois gaz rares suivants : néon, argon et xénon. Chaque gaz a donné lieu à une optimisation spécifique. Les conditions « idéales » pour les trois gaz correspondent en général à une cellule placée plusieurs millimètres voire centimètres après le foyer du laser. Le laser lui-même est diaphragmé le plus possible pour se placer en configuration longue focale. La longueur de cellule est de quelques millimètres et la pression est d'environ 15 à 40 torr. Les spectres correspondant aux meilleures efficacités de conversion mesurées sont ici présentés sur les figures (2.19), (2.20), (2.21).

#### 2.5.3.1. Xénon

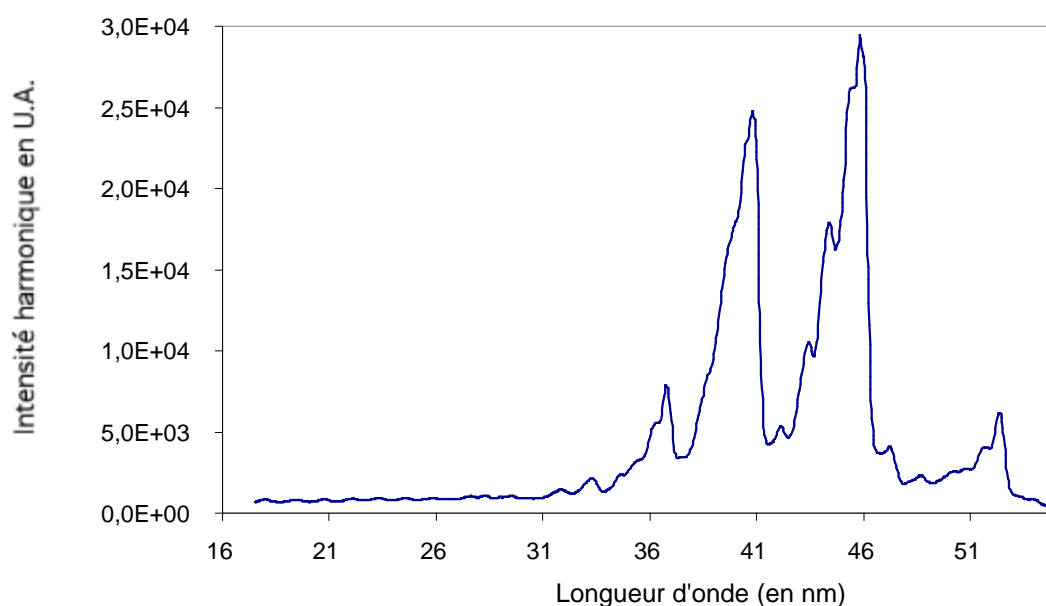
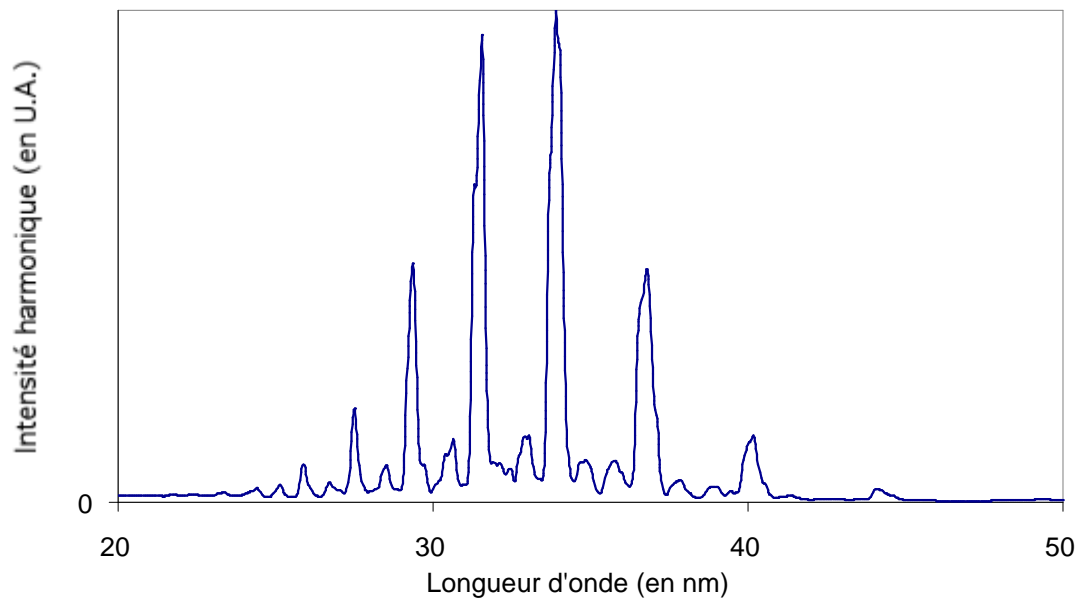


Figure 2.19 : Spectre harmonique obtenu dans le xénon pour 3 mm de cellule, une pression de 15 torr et un foyer placé 7 mm avant la cellule

Le nombre de photon maximal obtenu par tir et pour **l'harmonique 17** (46 nm) est de  $1.5 \cdot 10^{10}$  ce qui correspond à une efficacité de conversion mesurée de  $2 \cdot 10^{-5}$ . Il a été obtenu pour une cellule de 3 mm de long, placée 7 mm après le foyer du laser. La pression était de 15 torr.

### 2.5.3.2. Argon



*Figure 2.20 : Spectre harmonique obtenu dans l'argon pour 2mm de cellule, une pression de 30 torr et une cellule placée 5 mm après le foyer (échelle linéaire).*

Le nombre de photon maximal obtenu par tir et pour **l'harmonique 23** (34 nm) est de  $10^{10}$  ce qui correspond à une efficacité de conversion de  $3 \cdot 10^{-5}$ . Il a été obtenu pour une cellule de 2 mm de long, placée 5 mm après le foyer du laser. La pression était de 30 torr.

On peut remarquer que l'efficacité de conversion dans l'argon est similaire à celle obtenue dans le xénon, cela est dû en partie au fait que les photons produits dans le xénon sont moins énergétiques, mais surtout l'énergie laser nécessaire pour optimiser les flux de photons dans le xénon est légèrement plus grande. Ce résultat, contraire à l'intuition sera expliqué dans le chapitre 5 au paragraphe 5.2.4.

### 2.5.3.3. Néon

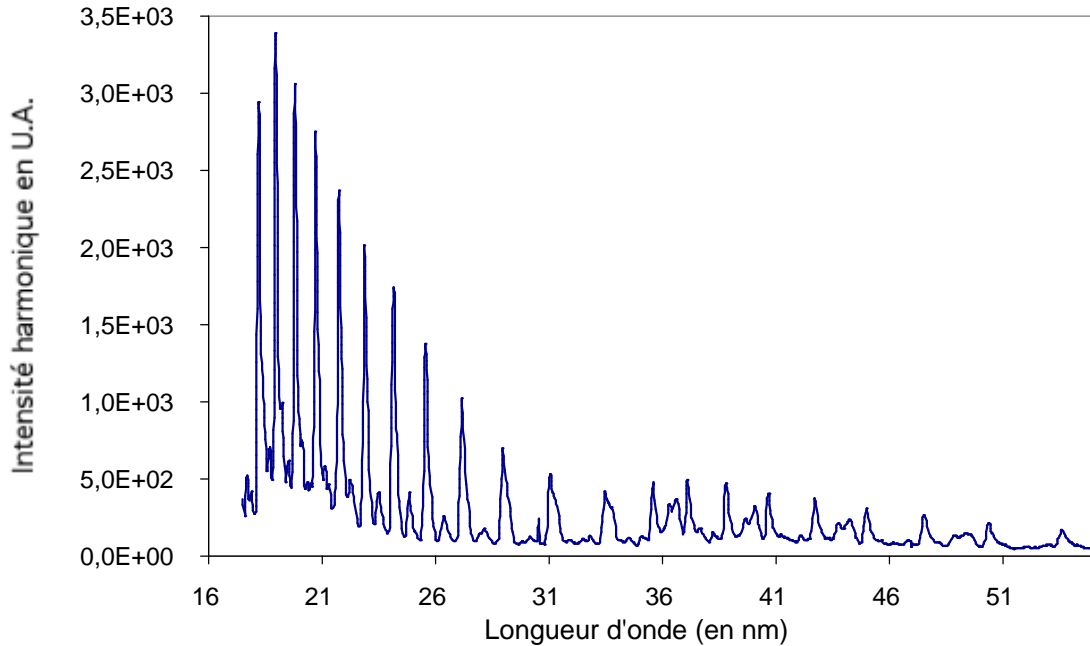


Figure 2.21 : Spectre harmonique obtenu dans le néon pour une cellule de 2 mm, une pression de 25 torr et un foyer placé 15 mm avant la cellule.

Le nombre de photon maximal obtenu par tir et pour **l'harmonique 43** (19 nm) est de  $1.10^7$  ce qui correspond à une efficacité de conversion de  $3,5.10^{-8}$ . Il a été obtenu pour une cellule de 2 mm de long, placée 15 mm après le foyer du laser. La pression était de 25 torr.

L'extension du spectre vers les courtes longueurs d'onde est uniquement limitée par la coupure induite par le filtre en aluminium à 17,5 nanomètres. C'est pourquoi l'étude des gammes spectrales correspondant à des énergies de photons plus élevées requiert un autre type de détection.

### 2.5.4. Le flux à 13 nm

Dans le cadre des nombreux travaux en vue de la lithographie à 13 nm, nous avons enregistré un spectre dans le néon à cette gamme de longueur d'onde. Les filtres aluminium ne pouvaient pas être utilisés à cause de leur coupure à 17,5 nm. Le spectre présenté a donc été enregistré à l'aide d'une galette micro-canaux (MCP) dont la réponse n'est pas calibrée, suivie d'une caméra CCD et sans utiliser de filtres en aluminium car les galettes sont aveugles au rayonnement infrarouge. Par contre, la chute brutale de la transmission du filtre à cette longueur d'onde (elle passe de  $10^{-4}$  à 17 nm à 46 % à 17,2 nm) nous a permis de déterminer avec certitude les ordres harmoniques correspondant au spectre suivant :

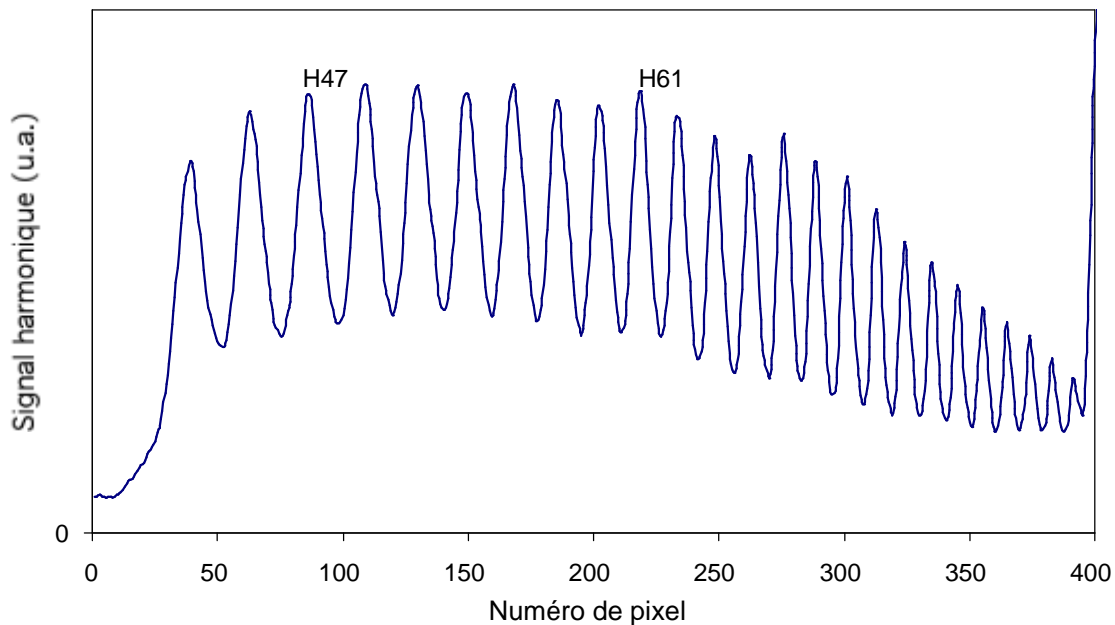


Figure 2.22 : Spectre harmonique obtenu dans le néon et observé sans filtre aluminium par des galettes de micro-canaux (MCP) - échelle linéaire. H47 est la troisième harmonique en partant des faibles numéro de pixel (échelle linéaire).

Le spectrographe d'étude dans ce cas est le spectrographe en réflexion, mieux adapté aux courtes longueurs d'onde. Cependant, par comparaison des spectres des figures (2.22) et (2.23), on constate que le nombre de photons à 13 nm (H61) est similaire à celui des harmoniques proches de la coupure de l'aluminium (H47), ce qui permet d'estimer le nombre de photons par tir à cette longueur d'onde à  $1.10^7$ , d'où un nombre de photons par seconde de  $1.10^{10}$ . On remarque aussi que les flux de photons à des ordres aussi élevés que 91 ne sont pas négligeables non plus, ceci dans des conditions quotidiennes de génération d'harmoniques.

Il est intéressant de constater que cette valeur est notablement supérieure à celle publiée par le groupe de l'université de Vienne [8] qui annonce un flux de photons moyen par seconde de  $10^{10}$  dans la bande de réflectivité maximale d'un miroir multicouche Mo:Si centrée à 13,4 nm et qui contient donc 3 harmoniques (H57, H59, H61).

## 2.6. Les efficacités de conversion dans les différentes équipes mondiales

La mise en évidence récente de l'importance de la réabsorption dans la génération d'harmoniques a conduit certains auteurs à insister sur l'existence d'une limite maximale à l'efficacité de conversion dite « en limite d'absorption » pour laquelle l'accord de phase a lieu sur une distance de milieu supérieure à plusieurs fois la longueur d'absorption (distance au cours de laquelle un rayonnement UV est atténué d'un facteur e). La discussion théorique de la pertinence de cette affirmation sera faite dans les chapitres suivants, mais une étude des efficacités de conversion publiées peut d'ores et déjà permettre de constater des divergences notables entre ces valeurs. L'année 1999 a vu la parution simultanée de nombreux articles [8], [9], [10] traitant de l'importance de la limite d'absorption qui proposaient des méthodes différentes pour l'atteindre, chacune exploitant au mieux les conditions laser et adaptant la configuration de génération

d'harmoniques pour optimiser les efficacités de conversion. On se propose de présenter brièvement chacune de ces méthodes en donnant les chiffres d'efficacités de conversion qui sont rarement donnés clairement, en raison de nombreuses difficultés techniques dues à la calibration des flux de photons dans la gamme spectrale XUV. Enfin, l'accroissement de l'énergie disponible par impulsion en sortie de chaînes laser a permis tout récemment d'améliorer les nombres de photons par harmonique par tir d'au moins un ordre de grandeur ; tout en maintenant, voire augmentant les efficacités de conversion [11], [12],[13].

#### 2.6.1. La configuration capillaires creux (équipe de H. Kapteyn et M. Murnane-USA)

Cette configuration est bien adaptée aux lasers de faible énergie qui peuvent avoir l'avantage d'une cadence plus élevée. Les chiffres publiés récemment dans la revue Science [14] correspondent à un laser de 0,8 mJ de durée 25 femtosecondes avec un taux de répétition de 5 kHz. L'utilisation d'un capillaire rempli de quelques dizaines de torrs au plus de gaz et pouvant aller jusqu'à 10 cm de long permet un bon accord de phase par un contrôle total de la propagation du faisceau. Leur dernière efficacité de conversion citée, correspondant à  $10^8$  photons par harmonique et par tir pour l'argon vers 30 nm, est égale à  $1,5 \cdot 10^{-6}$ .

#### 2.6.2. La configuration haute pression, haute intensité (Vienne)

Le milieu gazeux est composé d'un tube percé dans lequel est focalisé le laser de durée d'impulsion ultracourte (7 femtosecondes) contenant 0,8 mJ par impulsion [8]. La focalisation est telle ( $f=300\text{mm}$ ) que les intensités atteintes peuvent être assez élevées (quelques  $10^{15} \text{ W/cm}^2$ ). Les efficacités de conversion obtenues sont de  $3 \cdot 10^{-8}$  dans le néon vers 13 nm ( $2 \cdot 10^6$  photons par harmonique et par tir) ; et de  $3 \cdot 10^{-6}$  dans l'argon vers 30 nm ( $2 \cdot 10^8$  photons par harmonique et par tir). Cette technique semble être efficace pour les ordres élevés. L'accord de phase obtenu dans ces conditions est extrêmement transitoire à cause de la faible durée d'impulsion et des conditions d'ionisation très précises pour que la longueur de déphasage devienne infinie.

#### 2.6.3. La configuration focalisation douce de lasers de quelques mJ-20 à 30 fs (France : LOA-CELIA)

Le laser utilisé pour ces expériences de génération d'harmoniques contient assez d'énergie pour permettre une focalisation douce et obtenir une zone accrue de génération. Dans ces conditions la configuration en cellule de gaz se rapproche beaucoup de la configuration en capillaires, les ordres de grandeur des différentes longueurs impliquées sont semblables de même que les intensités atteintes et les taux d'ionisation correspondants. Dans le cas particulier de la propagation libre (en cellule ou en jet) la phase atomique peut jouer un rôle positif pour l'accord de phase si la cellule est placée après le foyer du laser. Les efficacités de conversion publiées dans l'article [9] sont de  $7,5 \cdot 10^{-6}$  dans l'argon vers 30 nm (soit  $10^9$  photons par harmonique et par tir), dans le xénon, elle vaut  $4 \cdot 10^{-5}$  (soit  $1,5 \cdot 10^{10}$  photons par harmonique et par tir). Les valeurs que nous avons nous-même obtenues et avons données dans le paragraphe précédent sont à inclure sous cette rubrique.

#### 2.6.4. L'utilisation de lasers très énergétiques (plusieurs dizaines de mJ) (CEA Saclay et équipe japonaise)

Deux articles récents publiés par deux équipes différentes montrent que l'efficacité de conversion peut être notablement augmentée par utilisation de lasers de pompe de plus en plus énergétiques focalisés par des lentilles de très longues focales (jusqu'à 5 mètres). La cible gazeuse est une cellule ou un jet de longueur quelques millimètres, voire centimètres pour les Japonais, la pression qui y règne est modérée (quelques dizaines de torrs). L'effet qui explique un bon accord de phase malgré les intensités relativement hautes est l'autoguidage du faisceau par ionisation. Dans ces conditions, les meilleures efficacités de conversion seront obtenues pour une cellule placée avant le foyer du laser. Pour la référence du CEA, elles valent  $10^{-6}$  pour l'argon vers 30 nm (soit  $10^9$  photons par harmonique et par tir),  $7 \cdot 10^{-8}$  pour le néon vers 13 nm (soit  $4 \cdot 10^7$  photons par harmonique et par tir), et enfin un record de  $7 \cdot 10^{-5}$  pour le xénon vers 55 nm (soit  $5 \cdot 10^{11}$  photons par harmonique et par tir). Pour la référence [15], l'efficacité de conversion est donnée pour l'argon vers 30 nm et vaut  $1,5 \cdot 10^{-5}$  (soit  $3,7 \cdot 10^{10}$  photons par harmonique et par tir). La même équipe a auparavant publié dans la référence [16]  $1 \cdot 10^8$  photons par harmonique et par tir dans le néon résultant en une efficacité de conversion de  $1 \cdot 10^{-6}$ .

### 2.6.5. Conclusion du chapitre : Schéma récapitulatif

Pour plus de clarté, nous allons résumer ces valeurs dans le graphique suivant. Il convient de préciser que les conditions de mesure des nombres de photons sont très soumises aux aléas de l'expérience (difficulté de mesure de la transmission des filtres) et aux instabilités de la source harmonique liées à celle du laser. C'est pourquoi une marge d'erreur relativement importante de 30 % est généralement admise par les auteurs. Cela explique aussi que certains auteurs hésitent à donner ces valeurs qui seules permettent de comparer les performances des différentes sources en présence. Nous montrons figure (2.23) le cas de l'argon vers 30 nm pour lequel nous avons pu recueillir le maximum de données chiffrées. Il se trouve également que ce gaz nous a permis de démontrer les meilleures efficacités de conversion.

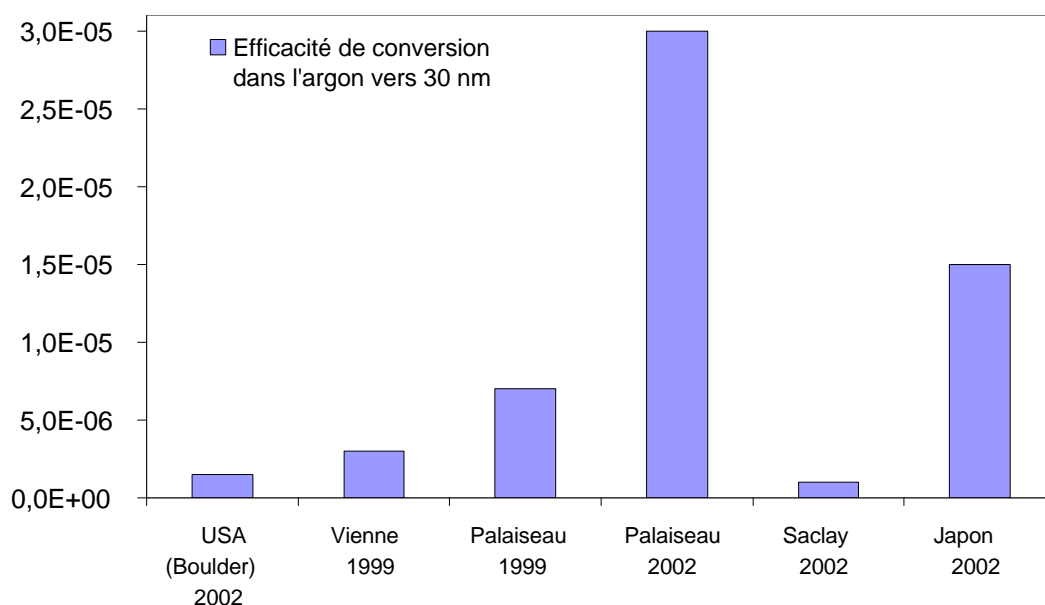


Figure 2.23 : Graphique récapitulatif des efficacités de conversion publiées pour le néon vers 30 nm par différentes équipes mondiales (données récentes).

Cette étude comparative nous permet de situer notre installation harmoniques parmi les meilleures efficacités de conversion publiées à ce jour. L'argon semble être le gaz le mieux approprié à nos conditions laser. On remarque cependant des disparités dans ces valeurs pourtant toutes obtenues en limite d'absorption comme on le montrera dans le chapitre suivant en essayant de comprendre les raisons de ces différences. Il semble désormais utile d'exposer les mécanismes microscopiques et macroscopiques qui expliquent la génération d'harmoniques.

## **2.7. Références du chapitre 2 :**

### 2.7.1. Pour l'installation laser

- [1] Salin, Thèse de doctorat de l'Université Paris Sud (1987)
- [2] Leblanc, Thèse de doctorat de l'école Polytechnique (1993)
- [3] Chériaux et al., Optics Letters, **21** 414 (1996)
- [4] Dorrer et al., Optics Letters, **24**, n°21 (1999)
- [5] Tyson, « Adaptative optics engineering handbook », (Marcel Dekker, Inc., 2000) 123
- [6] Société Oxalis, renseignements disponibles sur le site : <http://www.oxalis-laser.com>

### 2.7.2. Pour la partie génération d'harmoniques

- [7] Site du CXRO: <http://www-cxro.lbl.gov>
- [8] Schnürer et al. Phys. Rev. Lett. **83**, 722 (1999)
- [9] Constant et al. Phys. Rev. Lett. **82**, 1668 (1999)
- [10] Durfee et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 2187 (1999)
- [11] Takahashi et al., Phys. Rev. A **66**, 021802 (2002) (Rapid Communications)
- [12] Hergott et al., Phys. Rev. A **66**, 021801(R) (2002)
- [13] Kazamias et al., Eur. Phys. Journal D, sur le site de edpscience.fr (septembre 2002)
- [14] Bartels et al., Science **297**, 376 (2002)
- [15] Tamaki et al. Phys. Rev. A **62**, 063802 (2000)
- [16] Tamaki et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1422 (1999)





### **3. Modélisation 1D de la génération d'harmoniques en géométrie longue focale**

La génération d'harmoniques d'ordres élevés est un phénomène qui présente à la fois des aspects microscopiques et macroscopiques. La création de rayonnement harmonique par interaction dipolaire entre le gaz rare cible et le laser excitateur se fait à l'échelle atomique et des modèles quantiques expliquent ce processus tout en permettant de prédire l'amplitude et la phase de la polarisation créée.

Une fois émis par les atomes, le rayonnement harmonique devra se propager en milieu gazeux et une bonne efficacité de génération sera obtenue quand les dipôles seront en phase les uns avec les autres et pourront interférer constructivement pour engendrer le champ total. De nombreux effets peuvent influencer le déphasage, comme la géométrie du faisceau laser infrarouge, l'ionisation induite lors de son passage dans le milieu gazeux (qui est la contrepartie de la génération d'harmonique elle-même) et enfin la phase intrinsèque du dipôle atomique. L'optimisation simultanée de toutes ces contraintes a pour but d'obtenir un bon accord de phase.

Le dernier point important de l'interaction entre le rayonnement XUV et le gaz qui le génère est la réabsorption possible à l'intérieur du milieu. En effet, tout photon émis en début de milieu sera réabsorbé au bout de quelques longueurs d'absorption et tout se passera comme si le milieu gazeux avait pour unité de longueur effective la longueur d'absorption et non sa « vraie » longueur. Ce problème semble incontournable malgré un accord de phase parfait et c'est ainsi que la notion de limite d'absorption est apparue dans les articles récents qui traitent de l'accord de phase.

Le chapitre qui suit analysera chacun des points évoqués ci-dessus : de la génération de rayonnement harmonique au niveau atomique jusqu'au nombre de photons recueillis en sortie de milieu en passant par des considérations d'accord de phase et de longueur d'absorption. Tout ce qui suit rentre dans le cadre d'une approximation 1 D : on ne considère que les harmoniques émises colinéairement à l'axe de propagation du laser et résultant d'un accord de phase sur l'axe également. Il est évident que cette approximation néglige les effets d'accord de phase vectoriel et ne permet pas de prédire l'émission harmonique hors axe. Cependant, cette approximation est valide dans le cadre de notre étude de la génération d'harmonique en régime de focalisation douce et d'intensités au foyer du laser relativement faibles. De plus notre détecteur était dessiné pour collecter les photons émis sur l'axe de l'expérience et dans un petit angle solide.

#### ***3.1. À l'échelle microscopique : l'interaction laser intense - atome***

Lors de l'interaction du champ laser intense avec les atomes du gaz, il se produit une ionisation partielle de ces atomes. Les électrons issus de cette ionisation sont accélérés dans le champ laser, puis se recombinent à leur ion parent. Ceci n'est possible qu'en polarisation linéaire pour laquelle la probabilité de recombinaison de l'électron sur son ion est non nulle; alors que cette probabilité est très faible en polarisation circulaire. C'est lors de cette recombinaison que se produit l'émission d'un rayonnement harmonique d'ordre très élevé.

La génération d'harmonique est donc intimement liée à l'ionisation puisque le processus implique que des électrons entrent dans un état du continuum. La première étape d'un modèle de génération d'harmoniques est basée sur la compréhension des processus qui aboutissent par interaction avec le champ du laser, à la libération d'un électron du potentiel attracteur qui le lie au noyau.

### 3.1.1. Les différents processus d'ionisation

Les progrès faits en technologie des lasers ont permis d'atteindre des intensités toujours plus importantes, à tel point que le champ électrique lumineux devient comparable au champ qui relie au noyau les électrons de la couche externe. Ceci a des conséquences sur les processus qui peuvent amener à l'ionisation des atomes.

#### **3.1.1.1. Ionisation multiphotonique**

En régime d'intensité modérée, un électron lié au noyau sera ionisé s'il absorbe un nombre de photons suffisant pour lui permettre d'acquérir une énergie égale à son énergie de liaison : c'est l'ionisation multiphotonique [1].

#### **3.1.1.2. Ionisation tunnel**

En régime d'intensité plus élevée (dès quelques  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> pour les gaz lourds) le champ du laser est capable de modifier le champ qui relie l'électron au noyau en abaissant la barrière de potentiel à franchir pour ioniser l'atome. Au moment du maximum de l'impulsion, cette barrière peut être si basse que la probabilité de franchissement de cette barrière par effet tunnel devient non nulle. Ce phénomène pourra se produire deux fois par cycle optique [2].

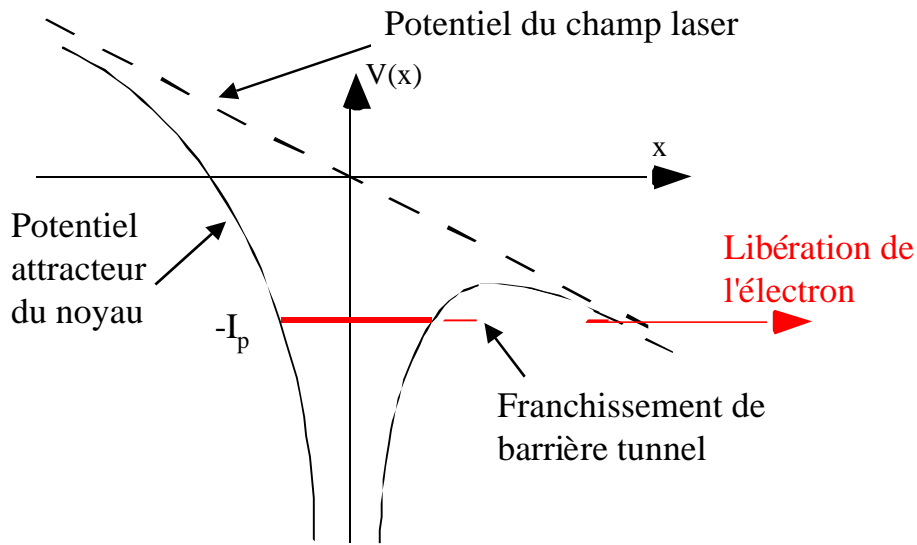


Figure 3.1 : Mécanisme d'ionisation par effet tunnel en présence d'un fort champ électrique laser oscillant.

On peut introduire à ce niveau le paramètre sans dimension de Keldysh, qui permet de savoir à intensité donnée quel est parmi les deux cités plus haut, le régime d'ionisation dominant [3].

$$g = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (3.1)$$

où  $U_p$  est le potentiel pondérateur du laser, et  $I_p$  le potentiel de première ionisation du gaz.

En fait,  $\gamma$  permet de comparer le potentiel d'ionisation de l'électron ( $I_p$ ) et le potentiel pondérateur du laser ( $U_p$ ). Si  $\gamma \gg 1$ , le potentiel atomique domine le potentiel laser et l'ionisation sera de nature multiphotonique. Dans le cas contraire, le champ laser étant assez important pour induire des modifications sur le champ coulombien, un processus d'ionisation par effet tunnel aura dans ce cas une probabilité non négligeable.

### 3.1.1.3. Ionisation par suppression de barrière

Si l'intensité augmente encore, la barrière de potentiel tunnel peut devenir effectivement négative et l'électron sera ionisé extrêmement facilement. On parle du régime de suppression de barrière ; il aura lieu quand le champ électrique laser aura une valeur supérieure au champ qui lie l'électron au noyau. On peut le traduire par une condition sur l'intensité laser en polarisation linéaire [3] :

$$I_{BSI} (W / cm^2) = 3.8.10^9 \frac{I_p^4 (eV)}{Z^2} \quad (3.2)$$

$I_{BSI}$  est l'intensité de suppression de barrière,  $I_p$  le potentiel d'ionisation,  $Z$  la charge de l'ion obtenu (cette relation est valable pour les degrés d'ionisation successifs).

Il est important de noter que la transition entre ces différents régimes d'ionisation n'est pas aussi nette que pourraient le laisser penser les paramètres définis ci-dessus. Ces derniers caractérisent en réalité la nature du processus dominant l'ionisation mais ne sont pas des critères absolus de description du mécanisme global de libération de l'électron [4].

Dans la génération d'harmoniques, il importe de se placer dans une situation pour laquelle  $I_{\text{laser}} < I_{\text{BSI}}$  car seuls les atomes neutres sont susceptibles d'émettre des harmoniques dans le cadre du modèle atomique généralement admis [5].

Gaz considéré	$I_p$ (eV)	$I_{\text{BSI}}$ (W/cm <sup>2</sup> )
Néon	21,56	8,20E+14
Argon	15,76	2,34E+14
Xénon	12,13	8,23E+13

En deçà de cette intensité de suppression de barrière, on peut calculer « analytiquement » la probabilité d'ionisation par unité de temps d'un atome soumis à un champ laser [2] par le modèle Ammosov-Delone-Krainov (ADK).

### 3.1.2. Le modèle à trois étapes pour la génération d'harmoniques : modèle semi-classique

Historiquement, c'est un des premiers modèles qui a permis de rendre compte des caractéristiques principales d'un spectre d'harmoniques, c'est-à-dire l'existence d'un plateau suivi d'une coupure vers les ordres harmoniques élevés [6], [7]. Cette coupure recule avec l'intensité laser et dépend du gaz utilisé.

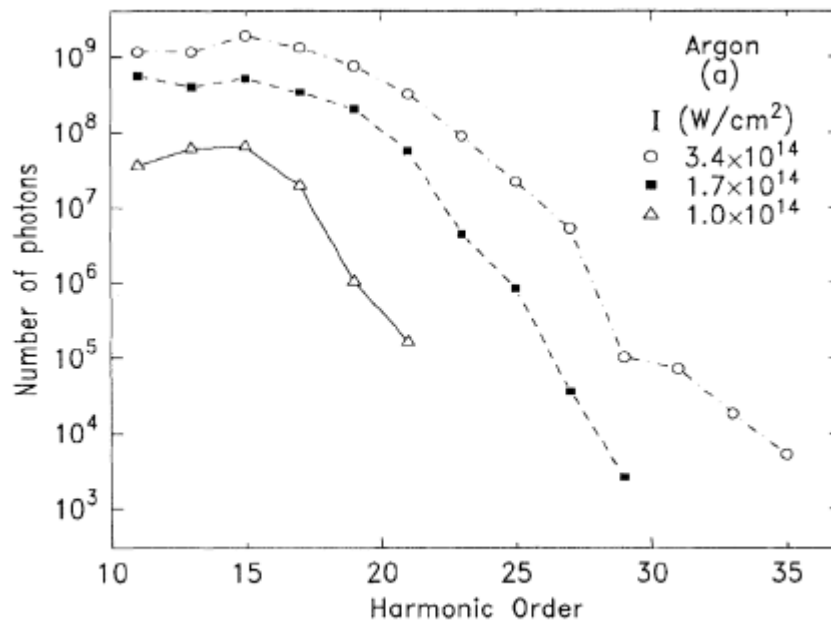


Figure 3.2 : Exemple de spectres caractéristiques observés dans l'argon pour différentes intensités laser. La figure est issue de la référence [8].

Le processus de génération d'harmoniques proprement dit se décompose en trois étapes :

### 1-Ionisation par effet tunnel induite par le laser

L'électron issu de l'ionisation laser entre dans un état du continuum avec une vitesse nulle et se trouve près du noyau à l'instant  $t'$  (notation reprise par la suite dans le modèle quantique).

### 2-Accélération dans le continuum par le champ du laser

L'électron libéré est accéléré par le champ laser, et ne ressent pratiquement plus l'effet du potentiel attracteur du noyau. Il acquiert une énergie cinétique dont la valeur dépend de son instant d'ionisation ( $t'$ ) par rapport au maximum du champ électrique du laser. Sa probabilité de recombinaison au noyau s'exprime par la condition de retour de la trajectoire au voisinage de l'ion : elle-même dépend de l'instant d'ionisation. Rappelons qu'en polarisation circulaire, le champ électrique a une direction qui tourne au cours d'un cycle optique et envoie l'électron loin de son point de départ. En polarisation linéaire au contraire, l'électron est accéléré toujours dans la même direction, seul le sens de variation change, ce qui rend possible un retour au point initial.

### 3-Recombinaison radiative et émission d'un photon harmonique

Arrivé à proximité du noyau, l'électron a une probabilité non nulle de se recombiner à l'instant  $t$  à son ion parent en émettant un photon harmonique qui aura pour énergie la somme du potentiel d'ionisation de l'électron et de son énergie cinétique acquise pendant son passage dans le continuum.

#### 3.1.3. Équation de propagation de l'électron ionisé

Un simple calcul classique de l'équation du mouvement de l'électron dans le continuum en présence de la force électrique oscillante du champ laser permet de calculer le gain d'énergie cinétique de l'électron :

$$\begin{aligned} \dot{f} &= q\dot{E}(t) = qE_0 \cos(\omega t) \cdot \dot{e}_x \\ \text{soit } a(t) &= \frac{qE_0}{m} \cos(\omega t) \end{aligned} \quad (3.3)$$

$$\text{et } v(t) = \frac{qE_0}{m\omega} [\sin(\omega t) - \sin(\omega t')] ]$$

$t'$  est le temps d'ionisation et par définition  $v(t')=0$ , d'où finalement :

$$x(t) = -\frac{qE_0}{m\omega^2} [\cos(\omega t) - \cos(\omega t')] - \frac{qE_0}{m\omega} \sin(\omega t') \cdot (t - t') \quad (3.4)$$

On pose également  $x(t')=0$ , puisque l'électron est proche du noyau au moment de son ionisation ; le gain d'énergie cinétique dans le continuum sera alors donné par :

$$\Delta E_c = \frac{1}{2} m(v(t))^2 \quad (3.5)$$

$t$  est par définition le moment de recombinaison.

La loi de vitesse de l'électron se compose d'une partie oscillante et d'une vitesse de dérive. En se plaçant dans un référentiel dont l'origine d'espace est la partie oscillante, référentiel dit de « Krammers-Henneberger » [9], la trajectoire de l'électron est tout simplement une droite, tandis que celle de l'ion parent devient sinusoïdale (il était immobile dans le référentiel du laboratoire). Les conditions  $x(t')=0$  et  $v(t')=0$  se traduisent par le fait que la trajectoire électronique est tangente à celle de l'ion au moment de l'ionisation.

On peut aisément représenter graphiquement ces deux trajectoires dans le nouveau référentiel et constater que tous les instants d'ionisation ne donnent pas nécessairement lieu à une recombinaison, de plus le temps de parcours dans le continuum de l'électron dépend de  $t'$  comme le montre la figure ci-dessous. On montre également que le gain d'énergie cinétique est proportionnel au carré de la différence des pentes des trajectoires électronique et ionique au moment de la recombinaison.

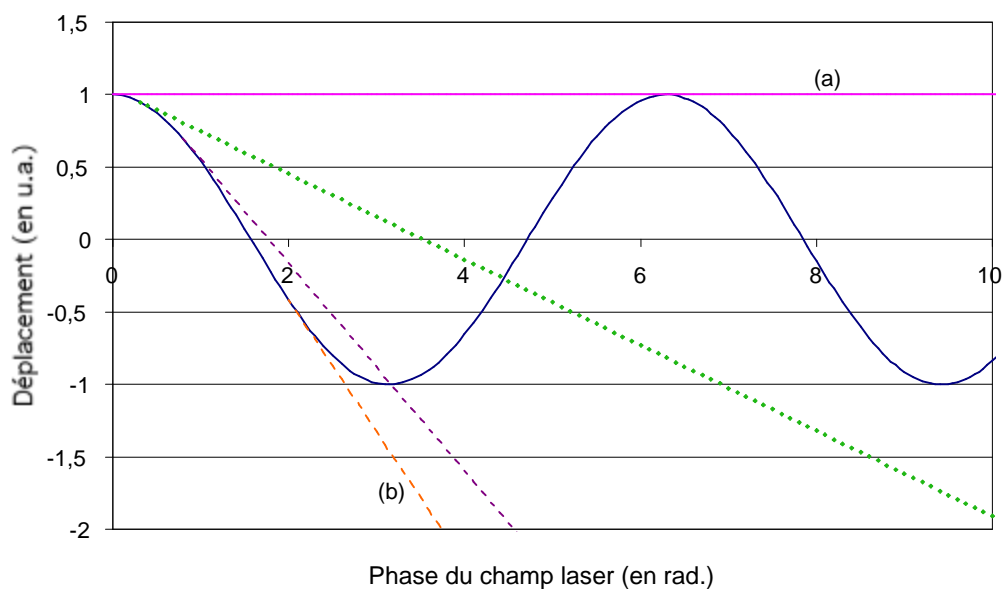


Figure 3.3 : Trajectoires ionique et électronique dans le référentiel de « Kramers-Henneberger », pour différents instants d'ionisation de l'électron par rapport au cycle optique du laser.

La trajectoire (a) correspond à un électron émis au maximum du champ laser, elle donne lieu à une recombinaison un cycle optique après, c'est la plus grande durée de passage de l'électron dans le continuum. Si l'électron est émis avec une certaine phase par rapport au laser, il y aura recombinaison tant que la phase sera comprise entre 0 et  $\pi/2$  (modulo  $\pi$ ), le temps de passage dans le continuum diminuant quand la phase augmente. La trajectoire (b) montre un cas sans recombinaison.

Un calcul totalement quantique de l'évolution de la fonction d'onde de l'électron lors de la génération d'harmoniques permet de visualiser le même phénomène :

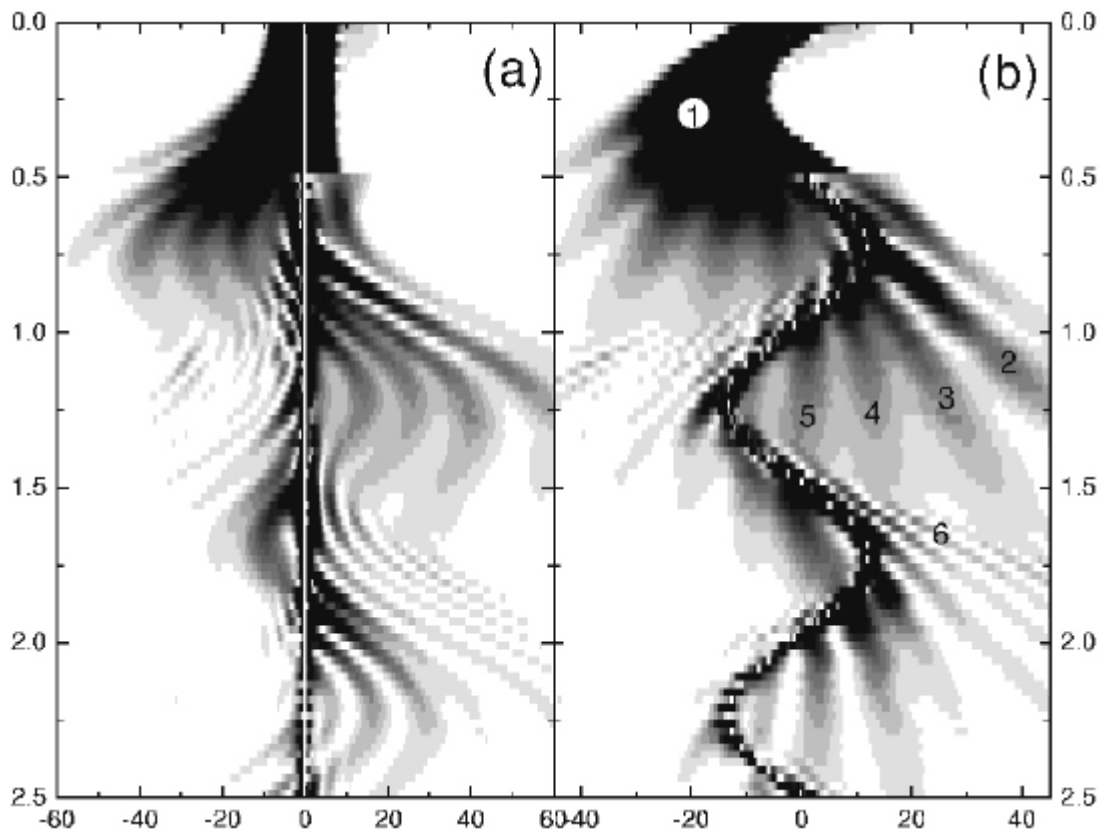


Figure 3.4 : Représentation des densités de fonction d'onde de l'électron en fonction du temps dans deux référentiels distincts : d'une part le référentiel usuel du laboratoire (a), d'autre part le référentiel de « Kramers-Henneberger »(b). Cette figure est extraite de la référence [9].

### 3.1.4. La loi de coupure par le modèle de la mécanique classique

L'énergie cinétique classique (équation (3.5)) maximale acquise par l'électron dans le champ laser en fonction des instants d'ionisation et de recombinaison correspond à  $3,17 U_p$ , où  $U_p$  est le potentiel pondérateur du laser, proportionnel à l'intensité selon la loi :

$$U_p(eV) \approx 5,99 \cdot 10^{-14} \cdot I(W/cm^2) \quad (3.6)$$

Ce modèle permet d'expliquer la loi de coupure du plateau des harmoniques et de comprendre son origine physique : c'est en fait l'énergie maximale que peut acquérir un électron accéléré dans le champ du laser ajoutée à l'énergie de liaison de l'atome.

$$N_{\max} = (I_p + 3,17U_p) / h\nu \quad (3.7)$$

On peut aussi voir sur la figure (3.3) qu'il peut exister plusieurs temps de passage dans le continuum qui aboutissent au même gain d'énergie cinétique final : ce sont des trajectoires ou des « chemins » dont la nature profonde sera expliquée dans le modèle quantique.

En revanche, ce modèle semi classique ne permet pas de calculer la polarisation induite par le laser à la fréquence  $q\omega$ , en termes de champ complexe caractérisé par son amplitude et sa phase. C'est l'intérêt majeur des deux articles de M. Lewenstein datant de 1994 et 1995 [5], [10].



## 3.2. Le modèle quantique de Lewenstein

### 3.2.1. Bases du modèle

Ce modèle totalement quantique de la génération d'harmoniques date de 1994 et a permis de franchir une étape importante dans la compréhension globale du processus. Une explication détaillée de toutes les étapes du calcul permettant d'aboutir aux composantes de Fourier du dipôle à partir de l'équation de Schrödinger de l'électron soumis au champ laser est donnée en annexe n°1.

Cette étude est valable dans le cas où  $U_p$  est très grand devant  $I_p$  (et même  $I_p=0$ ) ; dans ce cas, le potentiel pondérateur du laser est si grand que l'électron une fois ionisé ne ressentira plus l'effet attracteur du potentiel du noyau. Cette approximation porte le nom d'« approximation de champ fort » (SFA en Anglais pour Strong Field Approximation). On suppose de plus que  $I_p$  est prépondérant devant l'énergie contenue dans un photon laser, ceci pour que l'ionisation se fasse par effet tunnel. Cette hypothèse est justifiée par le fait qu'un photon laser de 800 nm porte l'énergie  $E=1,55$  eV et que les potentiels d'ionisation valent au minimum une dizaine d'électron-Volt pour les gaz rares que nous étudions.

Le calcul du dipôle  $d$  se ramène au calcul de l'excursion de l'électron par rapport au noyau (notée  $x$ ) ; le dipôle vaut  $qx$ , où  $q$  est la charge de l'électron. La valeur de  $x(t)$  fait apparaître une intégrale sur tous les instants de recombinaison  $t$  et d'ionisation  $t'$  et toutes les impulsions  $p$  :

$$x(t) = i \int_0^t dt' \int d^3p \cdot E \cos t' d_x(p - A(t')) d_x^*(p - A(t)) \exp(-iS(p, t, t')) \quad (3.8)$$

$$\text{avec } S(p, t, t') = \int_{t'}^t dt'' \left( I_p + \frac{(p - A(t''))^2}{2} \right)$$

Cette équation traduit tout simplement le fait que le dipôle résultant ( $q \cdot x(t)$ ) provient de l'interférence entre tous les chemins quantiques caractérisés par les trois valeurs ( $t, t', p$ ). Les termes  $dx$  et  $dx^*$  sont liés à la probabilité d'émission d'un électron dans le continuum pour l'une, et la probabilité de recombinaison radiative pour l'autre.

La phase de l'intégrand est par définition l'action, soit ici l'intégrale de l'énergie cinétique de l'électron dans le continuum plus le potentiel d'ionisation, et correspond à la phase de la fonction d'onde de l'électron, analogue au terme en  $\exp(-i2\pi Et/h)$  dans le cas d'états stationnaires.

La réflexion physique à partir de ces calculs et la démonstration du fait qu'on retrouve les conclusions du modèle classique à trois étapes repose sur l'approximation de point selle aussi appelée méthode de la phase stationnaire (« *saddle point* » en Anglais). Cela revient à considérer que dans une intégrale complexe, seuls les termes qui n'oscillent pas au premier ordre contribuent de façon significative (voir annexe1). Les calculs sont considérablement simplifiés et les phénomènes physiques dominants ressortent. La condition de stationnarité de la phase introduite plus haut se ramène alors à la condition physique  $x(t)=x(t')$  : les électrons susceptibles d'induire un dipôle atomique important sont ceux qui se recombineront à l'ion dont ils sont issus. On note aussi que l'étalement du paquet d'onde de l'électron dans sa propagation libre dans le continuum diminue au cours du temps la probabilité de recombinaison au noyau et favorise les temps courts de

recombinaison. La deuxième intégrale impliquant une autre condition de stationnarité, on peut conclure que les électrons qui contribuent le plus au dipôle sont ceux qui arrivent dans le continuum avec une vitesse nulle.

On peut s'intéresser désormais au spectre harmonique, c'est-à-dire aux composantes de Fourier du dipôle. En raison de la symétrie radiale du potentiel du noyau atomique, seuls les ordres impairs joueront un rôle important dans la valeur de l'intégrale. L'application de la méthode de point selle au calcul de la transformée de Fourier permet d'aboutir à l'équation de conservation d'énergie :

$$E_c + I_p = (2M + 1)h\omega = qh\omega \quad (3.9)$$

M est un entier positif, q est l'ordre harmonique,  $E_c$  l'énergie cinétique de l'électron.

C'est de cette manière que l'on retrouve la loi de coupure (dite du « *cutoff* » en Anglais) qui donne l'ordre maximal que l'on peut obtenir à intensité laser donnée.

Les conclusions du modèle semi classique sont donc bien redémontrées dans le cadre plus rigoureux du modèle quantique. Ce modèle permet d'aller plus loin et de mettre en évidence la différence de phase entre les deux principaux chemins quantiques aboutissant à une même énergie de photon harmonique, comme permettait déjà de le comprendre le modèle semi classique.

### 3.2.2. Calcul de l'amplitude et de la phase du dipôle [10]

En repartant de l'équation (3.9), et des conditions initiales  $x(t)=x(t')=0$  ainsi que  $v(t')=0$ , toutes issues de l'application de la méthode du point selle au calcul de l'intégrale donnant les composantes de Fourier du dipôle, on cherche à trouver le triplet  $(t, t', p)$  de solutions au problème.

On montre alors que lorsque l'intensité n'est pas suffisante pour qu'une harmonique donnée soit dans le plateau, le système n'a pas de solution réelle : l'harmonique est dans la coupure et ne pourra pas être générée efficacement. Si l'intensité augmente et que l'harmonique étudiée se trouve dans le plateau, deux solutions réelles d'égale importance existent au problème posé. L'une correspond à un électron émis au voisinage du maximum du champ et dont le temps de passage dans le continuum ( $\tau_2$ ) sera élevé, d'où une phase de la fonction d'onde importante au moment de la recombinaison ; l'autre correspond à une trajectoire bien plus courte dans le continuum (de durée  $\tau_1$ ) donc une phase accumulée plus faible. En effet, on peut montrer par la méthode de la phase stationnaire que la phase s'écrit au premier ordre :

$$\mathbf{j} = -U_p \cdot \mathbf{t} \quad (3.10)$$

Le chemin quantique présentant la phase la plus importante est appelé « chemin 2 » tandis que celui correspondant à une phase inférieure se nomme « chemin 1 ». Si l'intensité augmente encore, d'autres solutions réelles peuvent apparaître (chemin 3 et ainsi de suite). Elles correspondent à des trajectoires d'ordre supérieur dont le temps de passage dans le continuum dépasse la période optique du laser. Elles n'ont qu'une importance mineure dans les conditions de générations d'harmoniques qui nous intéressent.

La figure (3.4) suivante montre le résultat du calcul par la méthode de la phase stationnaire du dipôle en termes de phase et d'amplitude pour une harmonique donnée en fonction de l'intensité laser. On observe bien la transition plateau - coupure et le fait que la phase accumulée lors du

passage de l'électron dans le continuum est très importante (elle peut valoir plusieurs dizaines de radians même à des intensités relativement faibles). Le dipôle varie ici comme une loi de puissance de l'intensité laser (typiquement ordres 3 à 6) lorsque l'harmonique est dans le plateau.

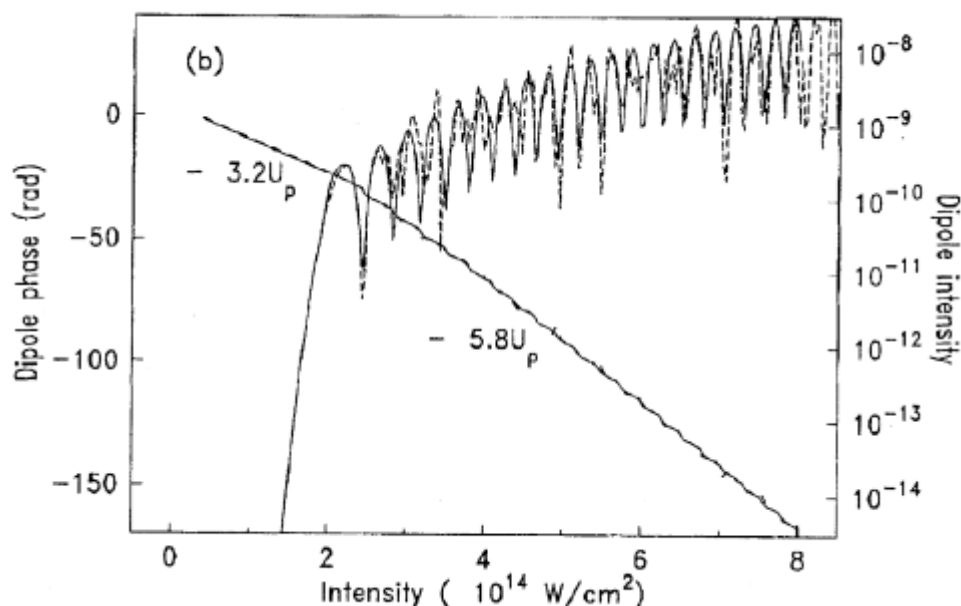


Figure 3.4 : Variation de la phase et de l'amplitude du dipôle en fonction de l'intensité pour l'harmonique 45 dans le néon, les valeurs sont obtenues par la méthode de la phase stationnaire et résultent de l'interférence entre les deux chemins quantiques prédominants. (Figure extraite de la référence [10])

### 3.2.3. La désintrication des chemins quantiques

En appliquant les techniques de l'analyse temps/fréquence aux composantes complexes du dipôle issu des calculs de Lewenstein, Ph. Balcou et al. ont montré comment on pouvait séparer qualitativement les contributions des différents chemins quantiques [11], en se basant sur une représentation graphique. Pour effectuer une modélisation globale du phénomène, comprenant à la fois les aspects microscopiques et macroscopiques, il est en effet indispensable de pouvoir étudier séparément les contributions de chaque chemin quantique, l'accord de phase dépendant fortement de ceux-ci. Il est donc nécessaire de définir une méthode numérique pour évaluer quantitativement les composantes du dipôle suivant chaque chemin, réalisant ainsi une « désintrication » numérique des chemins du dipôle.

On a vu dans le paragraphe 3.2.2 à travers la formule (3.10) que la phase correspondant à un chemin quantique donné est proportionnelle à l'intensité laser. Si on considère donc dans le cas général que la phase d'une composante spectrale du dipôle (notée  $d_q(I)$ ) peut s'écrire  $-\alpha I$ , on peut calculer la valeur de ce dipôle (notée  $d_q(\alpha)$ ) dans l'espace réciproque de variable  $\alpha$  par une transformation de Fourier. Chaque chemin quantique sera alors caractérisé dans un diagramme  $(\alpha, d_q(\alpha))$  par un pic de signal pour une valeur précise de  $\alpha$ . La courbe de la figure (3.5) montre l'intensité du dipôle de l'harmonique 45 générée dans le néon en fonction de  $\alpha$  à  $I_0=6.10^{14} \text{ W/cm}^2$

fixée. On retrouve les conclusions exposées dans le paragraphe précédent : deux chemins quantiques principaux sont visibles, l'un de phase  $-\alpha I$  avec  $\alpha \sim 26 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$  (le chemin 2), l'autre de phase quasi nulle (le chemin 1 :  $\alpha \sim 3 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ ). Pour des intensités encore supérieures, on détecte la présence de chemins quantiques d'ordres plus élevés (essentiellement les chemins 3 et 4). Ces derniers donnent lieu à des phases atomiques nettement supérieures à celles des deux premiers chemins ( $\alpha_3=40 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$  et  $\alpha_4=54 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$  respectivement).

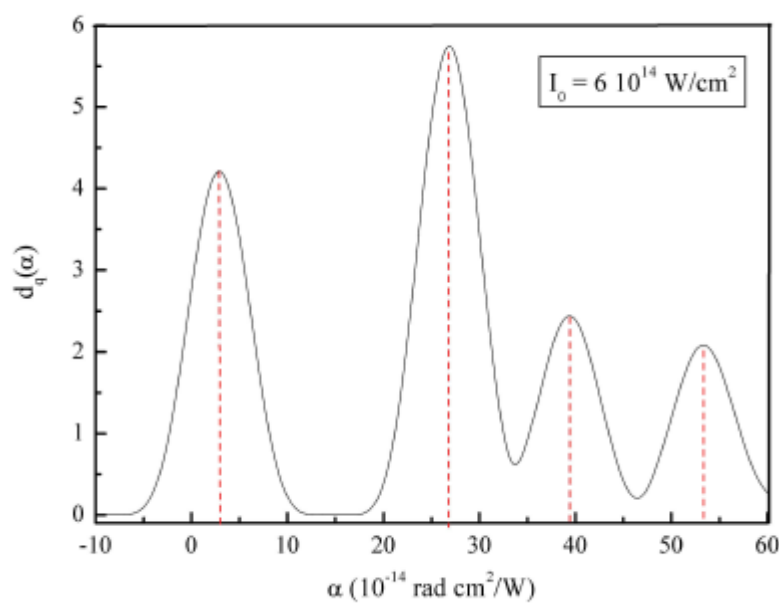


Figure 3.5 : Amplitude du dipôle correspondant à l'harmonique 45 dans le néon dans une coupe à  $I$  fixée d'un diagramme  $(\mathbf{a}, I)$ . On voit clairement les deux chemins quantiques prédominants ainsi que les chemins 3 et 4 d'intensité moindre (figure C. Valentin).

Nous avons réalisé une étude numérique nouvelle de cette problématique. Il apparaît en effet dès la référence [11], qu'une simple transformation de Fourier aboutit à des artefacts numériques pour le calcul des composantes du dipôle. Il est donc nécessaire d'y rajouter une fonction  $G$ , dite « d'apodisation », qui permet un filtrage du résultat numérique de l'intégrale suivante au voisinage de l'intensité de référence  $I_0$  :

$$d_{q,I_0}(\mathbf{a}) = \int_0^{I_{\max}} d_q(I) e^{-iaI} G(I, I_0) dI \quad (3.11)$$

Le dipôle est dans ce cas exprimé comme une fonction de la variable réciproque  $\alpha$ , il est représenté sur la figure suivante pour différentes formes mathématiques de la fonction d'apodisation :

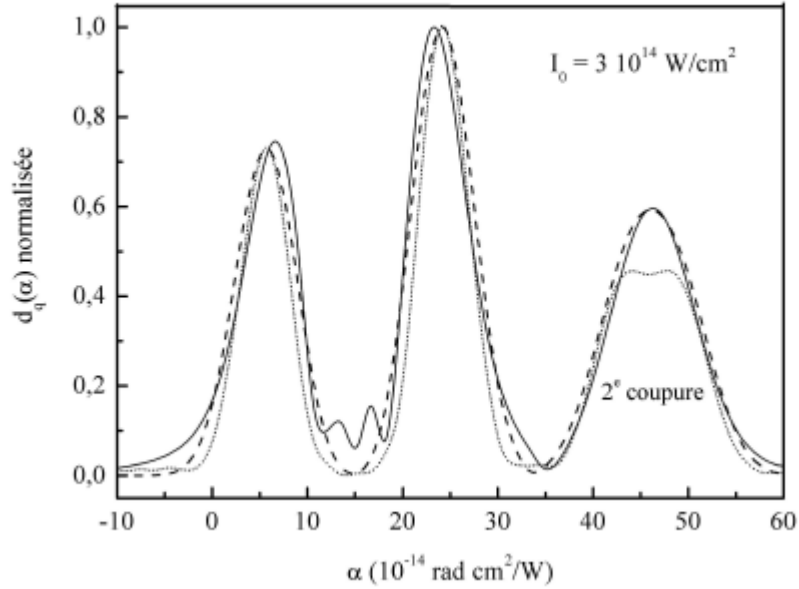


Figure 3.6 : Variation de l'intensité du dipôle de l'harmonique 41 générée dans le néon à une intensité de  $3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , cette intensité est trop faible pour que les troisième et quatrième chemins quantiques soient dans le plateau, ce qui explique qu'ils soient représentés par un seul pic indifférencié situé dans la deuxième coupure. Ligne continue : fenêtre sinusoidale  $G(I, I_0) = \exp(3I/2) \sin(\mathbf{p}(2I_0 - I)/2I_0)$ . Petits pointillés : fenêtre gaussienne  $G(I, I_0) = \exp(-(I - I_0)^2 / \mathbf{s}^2)$ . Grands pointillés : fenêtre de Blackman-Harris  $G(I, I_0) = a - b \cos(\mathbf{p}I/I_0) + c \cos(2\mathbf{p}I/I_0)$ . (graphique C. Valentin).

On constate sur la figure (3.6) que la forme de la fonction d'apodisation n'a pas d'influence sur le résultat physique global des calculs mais plutôt sur l'allure des courbes. La fonction d'apodisation qui donne les résultats les plus satisfaisants est la fenêtre dite de « Blackman-Harris », couramment utilisée dans d'autres domaines de la physique basés sur des techniques de filtrage : elle aboutit à l'allure de courbe la plus lisse.

En conclusion de cette partie, la désintrinsication des chemins quantiques permet d'écrire la polarisation induite par le laser à la fréquence  $q\omega$  sous la forme de la somme suivante sur tous les chemins quantiques  $k$  ( $\varphi_{at,k} = -\alpha_k I$ ) :

$$d_q(\mathbf{w}) = \sum_k d_q(k) \exp(i \mathbf{j}_{at,k}) \quad (3.12)$$

Le calcul exposé graphiquement ci-dessus ne fait intervenir que des considérations atomiques pour évaluer l'importance des deux chemins. Eu égard à leur grande différence de comportement, chaque chemin quantique sera amené à jouer un rôle particulier dans l'accord de phase à travers le gradient de sa phase propre. Suivant les conditions, la propagation du faisceau harmonique et les considérations macroscopiques peuvent modifier les rapports d'amplitude de tel ou tel chemin.

Après avoir exposé l'origine atomique de la génération d'harmoniques, il convient d'étudier en détail la propagation du rayonnement émis avant de se prononcer sur l'importance des

paramètres qui sont susceptibles d'améliorer le nombre de photons en sortie de milieu. C'est pourquoi la partie suivante s'attache à présenter le cadre général d'étude de l'accord de phase pour se concentrer sur la spécificité de la génération d'harmoniques et conclure quant à l'influence de chaque chemin quantique sur le nombre de photons final.

### 3.3. À l'échelle macroscopique : l'accord de phase

L'accord de phase est régi par le comportement collectif des atomes du milieu par l'intermédiaire des dipôles. Chaque dipôle rayonne à partir de la position de son atome émetteur et peut interférer constructivement ou destructivement avec les dipôles émis en d'autres points du milieu suivant leur phase relative. On expliquera dans la suite, l'origine physique des termes entrant dans le calcul de la longueur de déphasage. Le code unidimensionnel permettant de reproduire nos données expérimentales est alors introduit. Il sert à expliciter les mécanismes d'accord de phase présentés en fin de chapitre 2.

#### 3.3.1. Cadre général d'étude de l'accord de phase

Les équations de Maxwell appliquées au cas d'un champ  $E$  de fréquence  $\omega$  se propageant dans un milieu de polarisation  $P(\omega)$  et d'indice optique  $n(\omega)$  aboutissent à l'équation suivante [12] :

$$\nabla^2 E(\mathbf{w}) + n^2(\mathbf{w}) \frac{\mathbf{w}^2}{c^2} E(\mathbf{w}) = - \frac{\mathbf{w}^2}{\epsilon_0 c^2} P^{NL}(\mathbf{w}) \quad (3.13)$$

Si l'on écrit le champ  $E(\omega)$  sous la forme  $\mathbf{E} \exp(-ik.z)$  avec  $k$  le vecteur d'onde associé à la pulsation  $\omega$  ( $k=n\omega/c$ ), on obtient dans le cadre de l'approximation paraxiale:

$$2i k(\mathbf{w}) \frac{\mathbf{E}}{\mathbf{z}} = \frac{\mathbf{w}^2}{\epsilon_0 c^2} P(\mathbf{w}) \exp(i k(\mathbf{w}) z) \quad (3.14)$$

Dans le cas du champ de l'harmonique  $q$  induite à la pulsation  $q\omega$  par la polarisation atomique, on peut réaliser l'intégrale formelle pour  $E_q$  :

$$\mathbf{e} = \frac{q \mathbf{w}}{2i \epsilon_0 c n_q} \int P_q \exp(ik_q z) dz \quad (3.15)$$

Le terme de polarisation  $P_q$  est le produit de la densité du milieu (proportionnelle à la pression  $\rho$ ) par le dipôle  $d_q$  issu des calculs atomiques présentés dans la partie précédente. Celui-ci est donc décrit par une amplitude et une phase atomique intrinsèque  $\mathbf{j}_{at,k}$ . À cette phase propre, s'ajoute la phase de propagation  $qk_1$ , de telle sorte qu'on peut définir en tout point  $z$  un déphasage  $\varphi(z)$  entre le faisceau harmonique et la polarisation source.

$$\mathbf{j} = (k_q - qk_1)z - \mathbf{j}_{at,k} \quad (3.16)$$

Avec cette définition le champ  $E_q$  émis par un milieu de longueur  $l_{med}$  devient :

$$E_q \propto \int_0^{l_{med}} \mathbf{r} |d_q(z)| \exp(i \mathbf{j}(z)) dz \quad (3.17)$$

L'expression (3.17) issue de la formule (3.15) traduit bien le fait qu'à chaque position  $z$ , le champ harmonique est le résultat de l'interférence entre les champs émis par tous les points en amont avec leur phase respective  $\varphi(z)$ . On néglige ici tout phénomène de réabsorption du rayonnement harmonique par le milieu.

### 3.3.2. L'accord de phase en milieu non absorbant

En ne considérant que la propagation 1D des harmoniques, le nombre de photons émis sur l'axe par unité de temps est donné par:

$$N_{out} = \frac{q\mathbf{w}}{4c\mathbf{e}_0\hbar} \left| \int_0^{l_{med}} \mathbf{r} |d_q(z)| \exp(i\mathbf{j}(z)) dz \right|^2 \quad (3.18)$$

Si, en première approximation, on considère que l'intensité du dipôle  $|d_q|$  ne dépend pas de  $z$  et qu'on linéarise la phase en écrivant:

$$\mathbf{j}(z) = \mathbf{dk} \cdot z, \quad \text{alors :} \quad (3.19)$$

$$N_{out} = \frac{q\mathbf{w}\mathbf{r}^2}{4c\mathbf{e}_0\hbar} \left| \int_0^{l_{med}} |d_q(z)| \exp(i\mathbf{dk} \cdot z) dz \right|^2$$

et peut s'intégrer analytiquement en :

$$N_{out} \propto |d_q|^2 \left| \frac{e^{i\mathbf{dk}l_{med}} - 1}{\mathbf{dk}} \right|^2 \quad \text{soit :} \quad (3.20)$$

$$N_{out} \propto |d_q|^2 \frac{1}{\mathbf{dk}^2} (4 \sin^2(\mathbf{dk}l_{med}/2))$$

Pour étudier l'influence de l'accord de phase sur le nombre de photons produits, on sépare dans l'expression précédente la partie purement atomique (notée A) de la partie propagation à caractériser. On peut réécrire  $N_{out}$  sous la forme :

$$N_{out} = A * l_{med}^2 * F_{qlin} \quad \text{avec :} \quad (3.21)$$

$$F_{qlin} = \sin^2(\mathbf{dk} \cdot l_{med}/2)$$

$F_{qlin}$  est un paramètre sans dimension (rappelons que  $\delta k$  est homogène à l'inverse d'une longueur), qui exprime la qualité de l'accord de phase puisqu'il atteint son maximum de 1 lorsque la phase  $\varphi$  est indépendante de  $z$  ( $\delta k=0$ ). Dans ce cas, le signal harmonique sera une fonction quadratique de la longueur du milieu, comme on s'y attend dans un cas d'accord de phase parfait.

En pratique,  $\delta k$  prend une valeur finie non nulle et l'on peut poser:

$$l_p = \mathbf{p} / \mathbf{dk} \quad \text{et} \quad (3.22)$$

$$F_{qlin} = \sin^2(\mathbf{p} \cdot l_{med} / 2l_p)$$

On définit la longueur de déphasage  $l_\pi$ , souvent également appelée longueur de cohérence, par la longueur séparant deux points source du milieu, émettant des ondes harmoniques avec une différence de phase de  $\pi$ . L'interférence sera alors destructive. Si  $l_{med}$  est inférieure à  $l_\pi$ , le champ



harmonique se construit progressivement, mais si  $l_{\text{med}}$  dépasse cette valeur, chaque couple de points séparés de  $l_{\pi}$  s'annule par interférence et au bout de  $2l_{\pi}$  le signal est totalement nul.

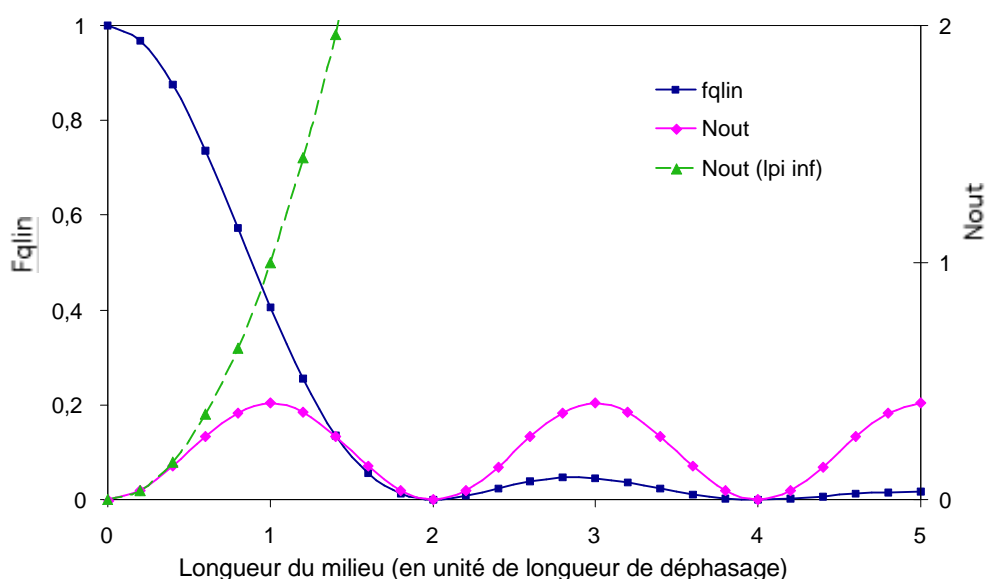


Figure 3.7 : Variation du nombre de photons produits en fonction de la longueur du milieu en unité de longueur de déphasage. On représente également le cas d'une longueur de cohérence infinie. Sur l'axe de gauche : variation du facteur d'accord de phase en fonction de la longueur du milieu.

Pour résumer, en l'absence d'absorption, le nombre de photons harmoniques émis par un milieu gazeux varie quadratiquement en fonction de sa longueur quand l'accord de phase est parfait ( $l_{\text{med}} \ll l_{\pi}$ ). Dans le cas contraire, il s'exprime comme le produit d'un terme source purement atomique par  $l_{\text{med}}^2$  et par un terme sans dimension, nombre compris entre 0 et 1 qui caractérise l'accord de phase (cf figure (3.7)).

Cependant, dans de nombreux cas, notamment à forte pression de gaz, le paramètre pertinent n'est plus la longueur du milieu mais la longueur d'absorption qui caractérise la distance que peut parcourir un photon harmonique avant d'être absorbé.

### 3.3.3. L'accord de phase en milieu absorbant : notion de limite d'absorption

On peut généraliser le calcul précédent au cas où la longueur d'absorption est le facteur limitant de l'accord de phase. Par définition, la longueur d'absorption est la distance de propagation au bout de laquelle un rayonnement est atténué par absorption d'un facteur  $1/e$ . On peut encore écrire que le champ électrique émis au point  $z=0$  vaudra au point  $z$  :

$$E(z) = E_0 \exp(-z/2l_{\text{abs}}) \quad (3.23)$$

Le facteur 2 vient du fait que  $l_{\text{abs}}$  est définie pour l'énergie et que celle-ci est proportionnelle au module carré du champ électrique.

En faisant les mêmes approximations que précédemment, c'est-à-dire une phase  $\varphi$  linéaire en  $z$  et un dipôle harmonique indépendant de  $z$ , on peut écrire :

$$N_{out} = \frac{\mathbf{r}^2 q \mathbf{w}}{4c \mathbf{e}_0 \hbar} \left| \int_0^{l_{med}} |d_q| \exp\left(\frac{z - l_{med}}{2l_{abs}}\right) \exp(i \mathbf{dk} \cdot z) dz \right|^2$$

soit

$$N_{out} = \frac{\mathbf{r}^2 q \mathbf{w}}{4c \mathbf{e}_0 \hbar} |d_q|^2 \left| e^{\frac{-l_{med}}{2l_{abs}}} \left( \frac{e^{\frac{l_{med}}{2l_{abs}} + i \mathbf{dk} \cdot l_{med}} - 1}{\frac{1}{2l_{abs}} + i \mathbf{dk}} \right) \right|^2 \quad (3.24)$$

ou encore :

$$N_{out} = \frac{\mathbf{r}^2 q \mathbf{w}}{4c \mathbf{e}_0 \hbar} |d_q|^2 \cdot 4l_{abs}^2 \cdot \frac{1}{1 + 4 \cdot \mathbf{dk}^2 l_{abs}^2} \left( 1 + \exp\left(\frac{-l_{med}}{l_{abs}}\right) - 2 \cos(\mathbf{dk} \cdot l_{med}) \exp\left(\frac{-l_{med}}{2l_{abs}}\right) \right)$$

Notons au passage que le champ électrique E est proportionnel à l'expression analytique suivante :

$$E \propto e^{\frac{-l_{med}}{2l_{abs}}} \left( \frac{e^{\frac{l_{med}}{2l_{abs}} + i \mathbf{dk} \cdot l_{med}} - 1}{\frac{1}{2l_{abs}} + i \mathbf{dk}} \right) \quad (3.25)$$

Le nouveau terme sans dimension  $F_{qabs}$ , compris entre 0 et 1, qui traduira l'accord de phase en régime d'absorption sera :

$$F_{qabs} = \frac{1}{1 + 4 \cdot \mathbf{dk}^2 l_{abs}^2} \left( 1 + \exp\left(\frac{-l_{med}}{l_{abs}}\right) - 2 \cos(\mathbf{dk} \cdot l_{med}) \exp\left(\frac{-l_{med}}{2l_{abs}}\right) \right)$$

de telle sorte que (3.26)

$$N_{out} \propto l_{abs}^2 * F_{qabs}$$

On vérifie aisément qu'on se ramène au cas précédent (cas sans absorption) en faisant tendre  $l_{abs}$  vers l'infini. Dans ce cas, les deux  $N_{out}$  seront identiques mais pas les facteurs d'accord de phase qui ne sont pas limites l'un de l'autre mais on a plutôt :

$$F_{qabs} * l_{abs}^2 \rightarrow F_{qlin} * l_{med}^2 \quad (3.27)$$

On vérifie aussi simplement que  $F_{qabs}$  tend vers 1 en limite d'absorption, c'est-à-dire quand l'accord de phase est assez bon pour que  $l_{\pi} \gg l_{abs}$ ,  $l_{med} \gg l_{abs}$ , comme le montre la figure (3.8).

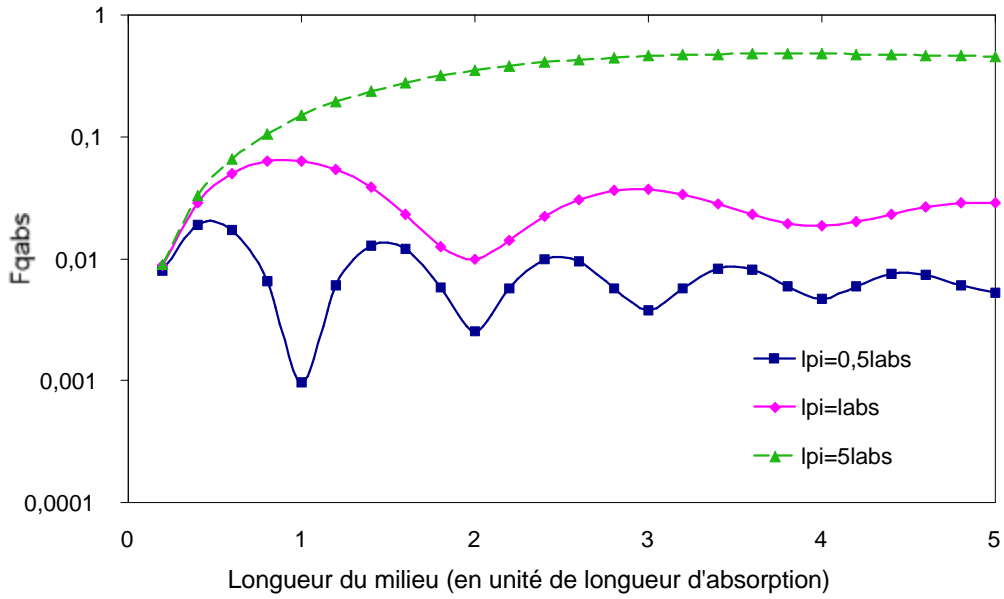


Figure 3.8 : Evolution du facteur d'accord de phase dans un milieu de longueur variable en présence d'absorption pour différentes valeurs de la longueur de déphasage  $l_p$ .

### 3.3.4. La condition de limite d'absorption

La limite d'absorption peut alors être définie comme la condition suivant laquelle le nombre de photons en sortie de milieu est uniquement limité par la longueur d'absorption et non par les deux autres longueurs qui sont la longueur du milieu et la longueur de déphasage. Cette condition se traduit simplement en termes de  $F_{qabs}$  qui doit être supérieur à une valeur fixée. Dans un article de 1999 [13], E. Constant et al. ont proposé  $F_{qabs}=0,5$  comme limite inférieure. Cela donne les deux conditions suivantes sur  $l_{med}$  et  $l_p$  :

$$\begin{aligned} l_{med} &> 3l_{abs} \\ l_p &> 5l_{abs} \end{aligned} \quad (3.28)$$

Après avoir décrit un cadre d'étude de l'accord de phase et son influence sur le nombre de photons qu'on peut attendre en sortie de milieu, on détermine dans la partie suivante l'origine physique de ce déphasage et la façon de l'évaluer quantitativement.

### 3.4. Application aux harmoniques : calcul de la longueur de déphasage

Nous nous fixons comme objectif de comprendre les facteurs limitant l'accord de phase. On pourra alors montrer comment les flux harmoniques en sortie de milieu peuvent être optimisés.

On s'intéresse ici au désaccord de vecteurs d'onde  $\delta k$ , lui-même gradient du déphasage  $\varphi$  et qui dans le cas où la phase est linéaire en  $z$ , est lié à  $l_\pi$  par  $\delta k = \pi/l_\pi$ . D'après l'équation (3.16), on a :

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{k}} &= \dot{k}_q - q\dot{k}_1 - \dot{K} \\ \text{avec } \dot{K} &= \nabla_{\mathbf{r}} \mathbf{j}_{at} \end{aligned} \quad (3.29)$$

Dans le cadre du modèle théorique 1D qui nous intéresse, on peut ignorer la nature vectorielle des vecteurs d'onde et ne s'intéresser qu'au calcul de la norme de  $\delta k$  (pas d'accord de phase hors axe). Nous allons détailler dans la partie suivante chacun des termes de l'équation (3.29).

### 3.4.1. Le vecteur d'onde du laser : $k_1$

Ce vecteur d'onde est sensible à de nombreuses influences. D'une part, la focalisation du faisceau induit un déphasage plus connu sous le nom de phase de Gouy, d'autre part les termes de dispersion atomique et électronique jouent également un rôle que l'on étudie dans la suite.

#### 3.4.1.1. Influence de la focalisation

La génération d'harmoniques d'ordres élevés requiert des intensités laser importantes, c'est pourquoi le milieu gazeux est placé au voisinage de la zone focale. Or, au passage du foyer, un faisceau gaussien voit sa phase de propagation augmenter de  $\pi$  en plus de sa phase de propagation naturelle ( $\varphi(z) = -k \cdot z + \psi(z)$ , d'après la convention de signe page 682 du Siegman [14]), traduisant le fait que la variation de la taille du faisceau a changé de signe (un faisceau converge vers le foyer pour ensuite diverger). Cette phase est majoritairement acquise par le faisceau sur une longueur caractéristique de la taille du foyer : la longueur de Rayleigh ( $z_0$ ). Elle porte le nom de « phase de Gouy » et vaut  $\psi(z) = \arctan(z/z_0)$  pour un faisceau gaussien, elle est représentée sur la figure (3.9).

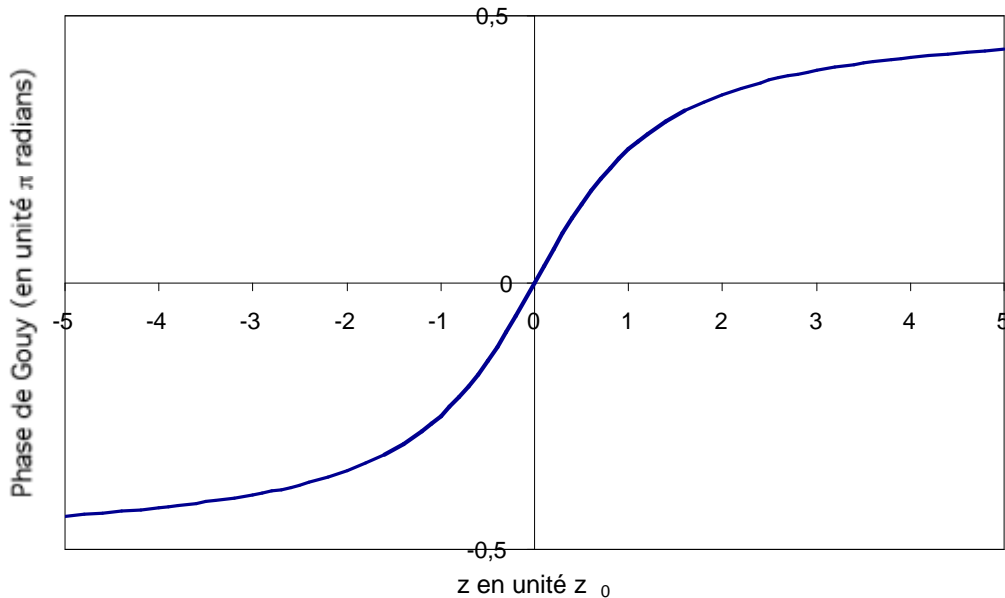


Figure 3.9 : Evolution de la phase spatiale de focalisation d'un faisceau gaussien appelée aussi phase de Gouy.

La modification du vecteur d'onde  $k_1$  induite par la focalisation est donc :

$$dk_{Gouy} = \frac{d}{dz} \left( -\arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) \right) = \frac{-1/z_0}{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2} \quad (3.30)$$

$\delta k_{\text{gouy}}$  est donc négatif quel que soit le signe de  $z$  et sera le plus important au niveau du foyer. Il peut être considérablement diminué si on augmente la distance de Rayleigh, comme c'est le cas pour une focalisation douce.

### 3.4.1.2. Influence des termes de dispersion

La relation entre l'indice d'un milieu et le module du vecteur d'onde est donnée par l'équation de dispersion  $k = n \frac{\omega}{c}$ .

Dans la génération d'harmoniques, on s'intéresse aux termes de dispersion qui induisent une modification temporelle de l'indice du milieu : ce sont la dispersion atomique et électronique.

#### La dispersion atomique :

L'indice des gaz rares est très légèrement supérieur à 1 mais cela suffit pour induire des effets notables dans le mécanisme d'accord de phase. La dispersion atomique est positive et d'autant plus importante que le gaz rare considéré est lourd, elle est 10 fois plus importante pour le xénon que pour le néon. Pour une pression de référence de 1 bar à température ambiante, l'indice du néon est de  $1+6,70 \cdot 10^{-5}$ , celui de l'argon de  $1+2,51 \cdot 10^{-4}$  et celui du xénon de  $1+6,21 \cdot 10^{-4}$ . Ce qui donne [15] :

$$\begin{aligned} dk_{at}(Ne) &= \frac{\omega}{c} \cdot 6,70 \cdot 10^{-8} \text{ par mbar} \\ dk_{at}(Ar) &= \frac{\omega}{c} \cdot 2,51 \cdot 10^{-7} \text{ par mbar} \\ dk_{at}(Xe) &= \frac{\omega}{c} \cdot 6,21 \cdot 10^{-7} \text{ par mbar} \end{aligned} \quad (3.31)$$

Cette contribution positive à l'indice de réfraction n'est valable que tant que l'atome n'est pas ionisé car l'ion produit a une polarisabilité très inférieure à celle de l'atome. On peut aussi remarquer que la contribution de la dispersion atomique à l'indice est proportionnelle à la pression.

#### La dispersion électronique :

Le vecteur d'onde  $k_1$  du laser infrarouge est dépendant de l'ionisation du milieu par la loi bien connue pour les plasmas qui donne la variation de l'indice en fonction de la densité électronique  $n_e$

$$n(\omega) = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c(\omega)}} \quad (3.32)$$

où  $n_c$  est la densité critique et vaut :

$$n_c = \frac{\omega^2 m_e}{\mu_0 c^2 e^2} \quad (3.33)$$

$\omega$  est la pulsation du laser,  $m_e$ , et  $e$  respectivement la masse et la charge de l'électron,  $\mu_0$  et  $c$  les constantes fondamentales du vide.

On en déduit directement la variation de vecteur d'onde induite par l'ionisation, dans le cas où  $n_e \ll n_c$  pour lequel le développement limité de la racine carrée est possible :

$$dk_1 = dn \frac{W}{c} = -\frac{n_e}{2n_c} \frac{W}{c} \quad (3.34)$$

### 3.4.1.3. Bilan intermédiaire : influence de la pression sur la longueur de déphasage :

Les équations précédentes permettent d'écrire le vecteur d'onde du laser sous la forme suivante :

$$k_1 = n \frac{W}{c} - \frac{d}{dz} \arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) = \frac{W}{c} \left(1 - \frac{n_e}{2n_c} + dn_{at}\right) - \frac{d}{dz} \arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) \quad (3.35)$$

Avant d'aborder les facteurs atomiques intervenant dans le calcul du déphasage, on peut remarquer que les termes de dispersion atomique et électronique sont de signes opposés, avec une dispersion atomique susceptible de compenser en début d'impulsion le gradient de phase de Gouy. Il y aura compensation suffisante si le signe du désaccord total de vecteur d'onde est négatif avant que l'ionisation ne se produise au sein du milieu. Cette dernière induira en effet un accroissement du désaccord de vecteur d'onde à travers l'augmentation de  $n_e$  et la diminution de  $n_{at}$ . Le terme de gradient de phase de Gouy ne dépend pas de la pression alors que la dispersion atomique croît linéairement avec la densité du milieu. L'équation de compensation porte donc sur la densité  $\rho$ :

$$r \frac{W}{c} c_{at} = \frac{d}{dz} \arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) \quad (3.36)$$

$c_{at}$  est la polarisabilité du milieu, les valeurs numériques sont données pour chaque gaz dans l'équation (3.31). Nous montrons sur la figure (3.10) la variation temporelle de la longueur de déphasage issue des calculs de taux d'ionisation pour différentes valeurs de la pression d'argon dans la cellule. Dans les conditions expérimentales présentées ici (longueur de Rayleigh de 10 mm), tant que la pression reste inférieure à 40 torr, la longueur de déphasage (moyennant  $k_q=1$  et  $K=0$ ) ne passe pas par une valeur infinie alors que ce phénomène se produit pour des valeurs de pression plus élevées. On remarque également qu'une pression élevée permet de reculer vers le maximum de l'impulsion l'instant où le maximum de la longueur de déphasage est atteint, ce qui favorise une plus grande réponse atomique du milieu (intensité plus élevée).

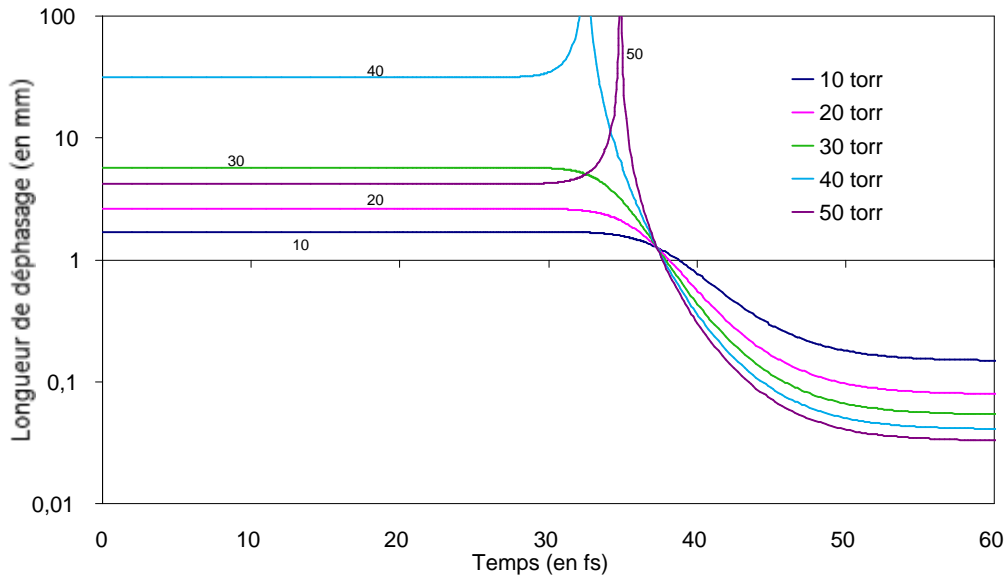


Figure 3.10 : Variation temporelle de la longueur de déphasage de l'harmonique 25 générée dans l'argon pour différentes valeurs de la pression : longueur de Rayleigh 10 mm, intensité  $3.10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, le maximum de l'impulsion de durée 30 fs correspond à  $t=50$  fs.

On peut approfondir cette réflexion en calculant le taux d'ionisation qui permet à la longueur de déphasage de prendre une valeur infinie par équilibrage entre les deux termes de dispersion et la phase de Gouy. L'équation (3.35) permet de déduire la condition suivante :

$$P_{ionis} = \frac{\mathbf{dn}_{at} - \frac{c}{\mathbf{w}} \left( \frac{1/z_0}{1+(z/z_0)^2} \right)}{\frac{N_0}{2n_c} + \mathbf{dn}_{at}} \quad (3.37)$$

où  $N_0$  est la densité du milieu.

Pour améliorer la réponse dipolaire, on aura intérêt à ce que le maximum de la longueur de déphasage ait lieu pour une intensité élevée donc une valeur de  $P_{ionis}$  également élevée.  $P_{ionis}$  est optimisée en augmentant la pression du milieu mais aussi la longueur de Rayleigh du laser. Nous avons jusqu'à présent négligé le gradient de phase propre du dipôle harmonique. Cela n'est bien sûr pas possible dans tous les cas. Nous montrerons dans la partie suivante l'influence des deux derniers termes sur l'accord de phase :  $k_q$  et  $K$ .

#### 3.4.2. Le vecteur d'onde harmonique $k_q$

L'indice du milieu vu par les longueurs d'onde harmoniques est très proche de 1. La dispersion atomique est ici complètement négligeable tout comme la variation d'indice due à l'ionisation variant comme la longueur d'onde au carré (équation (3.37)) :  $k_q=q*\omega/c$ .

#### 3.4.3. Le gradient de phase propre $K$

Le seul terme de déphasage induit par les ondes harmoniques elles mêmes vient de la phase atomique du dipôle introduite plus haut. Elle varie proportionnellement à l'intensité et la

contribution à la variation du désaccord de vecteur d'onde sera, pour un faisceau gaussien d'intensité maximale  $I_0$  et de longueur de Rayleigh  $z_0$  :

$$K = -a \frac{qI}{z} = \frac{2aI_0 z / z_0^2}{(1 + (z/z_0)^2)^2} \quad (3.38)$$

Ce terme est le seul à introduire une dissymétrie de part et d'autre du foyer car il change de signe avec  $z$ . L'accord de phase sera meilleur sur l'axe pour  $z$  positif car  $K$  est alors positif et peut compenser le terme de dispersion électronique négative par exemple. L'effet inverse se produira pour  $z$  négatif, c'est-à-dire quand la cellule sera placée avant le foyer du laser.

#### 3.4.4. Bilan final

Toutes les considérations précédentes permettent d'aboutir au calcul effectif du désaccord de vecteur d'onde :

$$\mathbf{dk} = k_q - qk_1 - K$$

$$\mathbf{dk} = \frac{q\mathbf{w}}{c} \left( \frac{n_e}{2n_c} - \mathbf{dn}_{at} \right) + \frac{q/z_0}{(1 + (z/z_0)^2)} - \frac{2aI_0 z / z_0^2}{(1 + (z/z_0)^2)^2} \quad (3.39)$$

Le dernier point à aborder dans les considérations sur la propagation des harmoniques dans leur milieu générateur est la notion de longueur d'absorption, qui en cas d'accord de phase limite les efficacités de conversion.

### 3.5. La longueur d'absorption pour les harmoniques

Cette notion a déjà été abordée dans le paragraphe 3.2, mais sans indiquer les ordres de grandeur habituels de cette longueur, qui sont d'une grande importance pour comprendre dans quel régime d'accord de phase on se place.

On rappelle que, par définition, la longueur d'absorption est la distance de propagation au bout de laquelle un rayonnement est atténué par absorption d'un facteur  $1/e$ . Si le flux vaut  $F_0$  en début de milieu et qu'il n'y a pas d'autre terme source, il vaudra  $F_0 \exp(-L/L_{abs})$  au bout d'une distance  $L$ . La transmission  $T$  d'une certaine longueur  $L$  de milieu est liée à  $l_{abs}$  par  $l_{abs} = -L/\ln(T)$ . C'est ainsi que l'on calcule les longueurs d'absorption à partir des valeurs de transmission extraites du site du CXRO [16] (cf figures (3.11), (3.12), (3.13)).



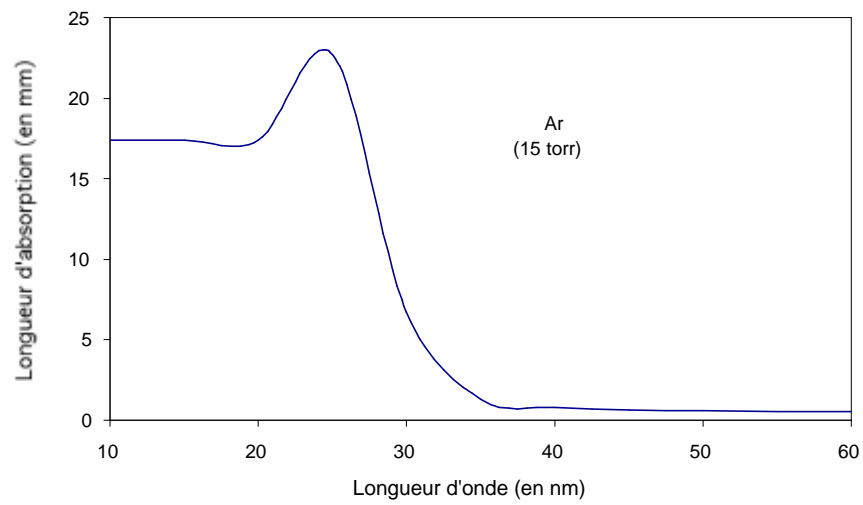


Figure 3.11 : Longueur d'absorption dans l'argon pour une pression de 15 torr en fonction de la longueur d'onde.

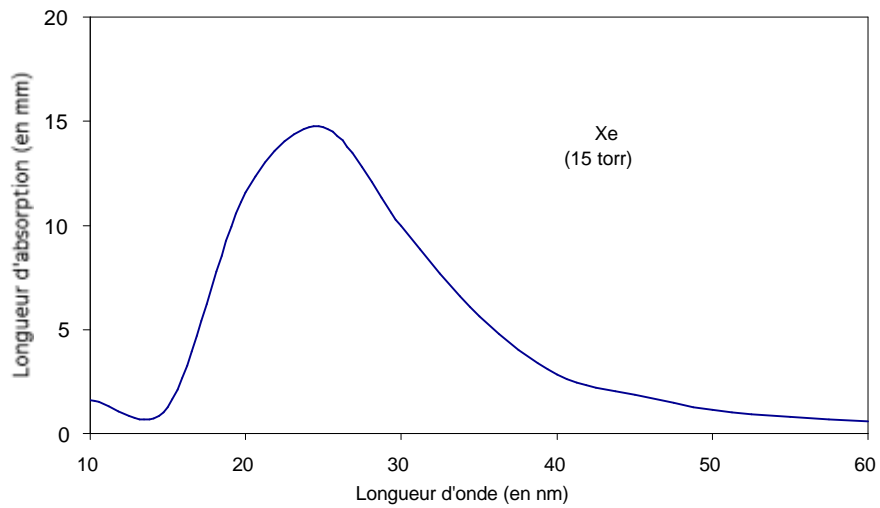


Figure 3.12 : Longueur d'absorption pour le xénon pour une pression de 15 torr en fonction de la longueur d'onde.

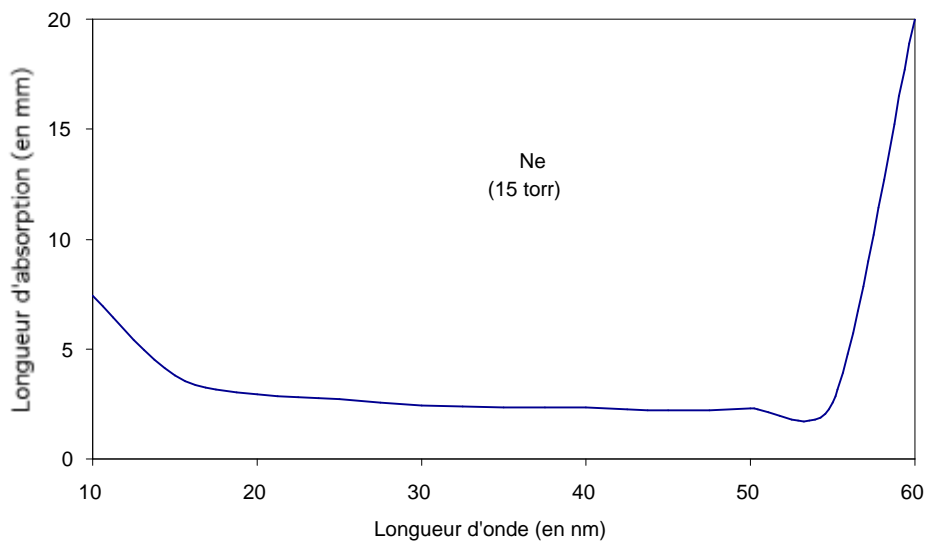


Figure 3.13 : Longueur d'absorption dans le néon pour une pression de 15 torr en fonction de la longueur d'onde.

D'un point de vue microscopique, l'absorption par un gaz rare d'un photon de longueur d'onde fixée peut induire une ionisation de celui-ci si l'énergie contenue dans le photon est supérieure au seuil d'ionisation de l'atome considéré. C'est pourquoi  $l_{\text{abs}}$  est inversement proportionnelle à la section efficace de photoionisation ( $\sigma$ ) :  $l_{\text{abs}}=1/\sigma\rho$  où  $\rho$  est la densité de gaz (l'absorption est proportionnelle au nombre d'absorbeurs potentiels). La section efficace de photoionisation permet de calculer la probabilité d'absorption d'un photon par l'atome en vue d'émettre un électron. La génération d'harmoniques correspond au phénomène strictement inverse : un électron accéléré par le laser se recombine avec son ion parent pour émettre un photon. Une grande section efficace de photoionisation à une longueur d'onde donnée impliquera donc une petite longueur d'absorption mais aussi une émission harmonique plus importante. Les dipôles harmoniques les plus intenses du spectre d'un gaz donné sont donc aussi ceux pour lesquelles la longueur d'absorption est la plus faible.

Comme nous l'avons vu et nous le verrons plus amplement plus tard, la longueur d'absorption est une grandeur fondamentale pour la génération d'harmoniques. De plus, elle peut varier considérablement d'un gaz à l'autre et d'une harmonique à la suivante comme c'est le cas pour les harmoniques efficaces dans l'argon : pour une pression de 15 torr, elle varie de 7 mm pour l'harmonique 27 à seulement 700 microns pour l'harmonique 19. Le tableau suivant récapitule les valeurs en mm utiles pour la compréhension des expériences :

Ordre harmonique	$L_{\text{abs}}\text{Ne}(\text{mm})$	$L_{\text{abs}}\text{Xe}(\text{mm})$	$L_{\text{abs}}\text{Ar}(\text{mm})$
51	3,8	1,84	17
49	3,58	1,84	17
47	3,38	2,89	17
45	3,38	2,89	17
43	3,24	3,6	17
41	3,07	11,59	17
39	2,94	14,2	17
37	2,8	14,6	19

35	2,8	14,94	22
33	2,75	14,92	23
31	2,73	14,7	22
29	2,64	13,37	19
27	2,54	10,82	7
25	2,38	8,2	2,74
23	2,37	6,44	1,46
21	2,34	3,45	0,95
19	2,28	2,38	0,72
17	2,2	1,57	0,61
15	2,56	0,94	0,57

Tableau récapitulatif 3.14 : Longueurs d'absorption en mm pour néon, argon, xénon à une pression de 15 torr et pour les principaux ordres harmoniques visibles dans un spectre

### 3.6. Code de calcul de l'accord de phase dépendant du temps

Nous rappelons que le processus de génération d'harmoniques implique des phénomènes dont la variation en temps est très rapide. Le dipôle harmonique lui-même varie comme une loi de puissance de l'intensité du laser, de plus l'accord de phase dépend fortement de l'ionisation à travers les variations des dispersions atomique et électronique. La première étape d'un code de simulation de génération d'harmoniques est donc le calcul des taux d'ionisation.

#### 3.6.1. Les taux d'ionisation ADK et le calcul du déphasage

Les formules les plus communément utilisées sont celles des taux dits ADK (pour Ammosov, Delone et Krainov). L'expression de ces taux est relativement complexe, notamment à cause de l'utilisation de potentiels issus de la méthode du défaut quantique pour ramener le cas des atomes lourds au cas plus simple de l'atome d'hydrogène. L'interprétation de la valeur de chaque terme de l'équation est parfois ambiguë et la dépendance en les nombres quantiques  $l$ ,  $m$ ,  $n$  peut varier d'un auteur à un autre. Pour toutes ces raisons, les taux qui seront utilisés par la suite dans le programme sont issus de l'article [17] dans lequel les auteurs donnent une valeur corrigée des taux ADK et surtout élimine la dépendance problématique en  $l$ ,  $m$ ,

$$w_{ADK} = \sqrt{\frac{3n^* F}{pZ^3}} \frac{FD^2}{8pZ} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^* F}\right)$$

avec

$$n^* = \frac{Z}{\sqrt{2I_p}} \quad (3.40)$$

$$D = \left(\frac{4eZ^3}{Fn^{*4}}\right)^{n^*}$$

$Z$  est la charge de l'ion produit (pour les harmoniques :  $Z=1$ ) et  $F$  est le champ laser relié à l'intensité par :

$$F(V/m) = \sqrt{8p \cdot 10^{-7} c \cdot 10^4 \cdot I(W/cm^2)} \quad (3.41)$$

Les unités utilisées pour la formule ci-dessus sont les unités atomiques : l'unité atomique d'énergie est par définition deux fois le potentiel d'ionisation de l'hydrogène et vaut 27,2 eV tandis que l'unité atomique de champ électrique vaut  $5,14 \cdot 10^{11}$  V/m, c'est le champ électrique qui lie le noyau et l'électron dans l'atome de Bohr. L'unité de temps atomique est  $2,41 \cdot 10^{-17}$  s.

En exprimant les taux en  $s^{-1}$  pour les rendre utilisables dans les calculs, on obtient leur loi de variation avec l'intensité suivant la nature du gaz étudié.

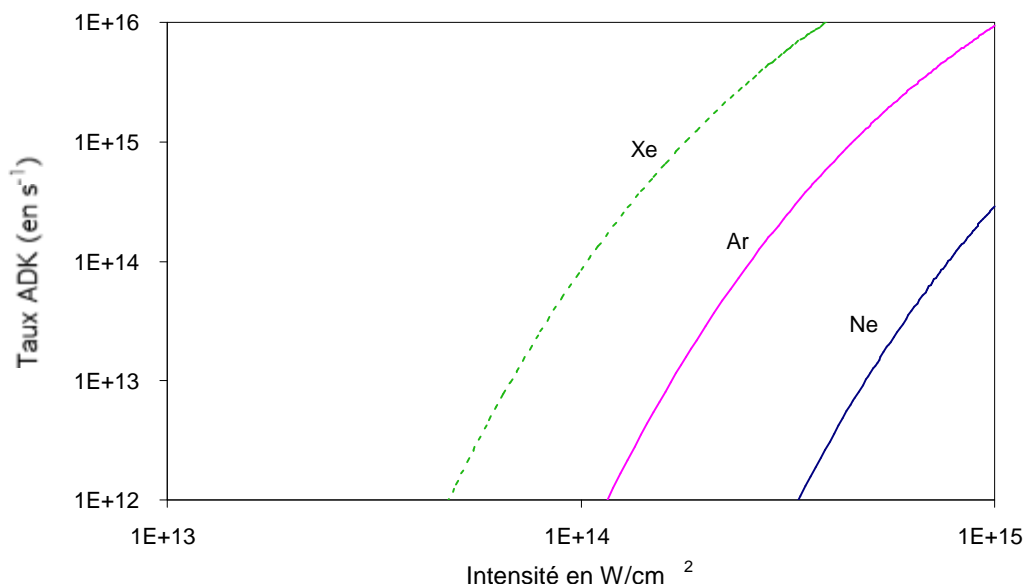


Figure 3.15 : Evolution des taux d'ionisation ADK de première ionisation en fonction de l'intensité pour trois gaz rares.

Les taux ADK permettent de résoudre un système d'équations aux populations atomique et ionique et de calculer la probabilité d'ionisation d'un atome soumis à une impulsion laser de durée et d'intensité fixées.

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}[N^0] &= -w_{ADK}(F(t)) \cdot [N^0] \\ \frac{d}{dt}[N^+] &= +w_{ADK}(F(t)) \cdot [N^0] \end{aligned} \quad (3.42)$$

$[N^0]$  et  $[N^+]$  sont les concentrations respectives d'atomes neutres et d'espèce une fois ionisée, la concentration électronique est égale à  $[N^+]$ . Il est possible de généraliser ce système au cas où l'intensité dans le milieu est telle que plusieurs états successifs d'ionisation sont atteints ; c'est rarement le cas dans les conditions de génération d'harmoniques que nous allons étudier. La figure (3.16) montre les degrés d'ionisation de l'argon en fonction du temps pour différentes valeurs usuelles de l'intensité laser.

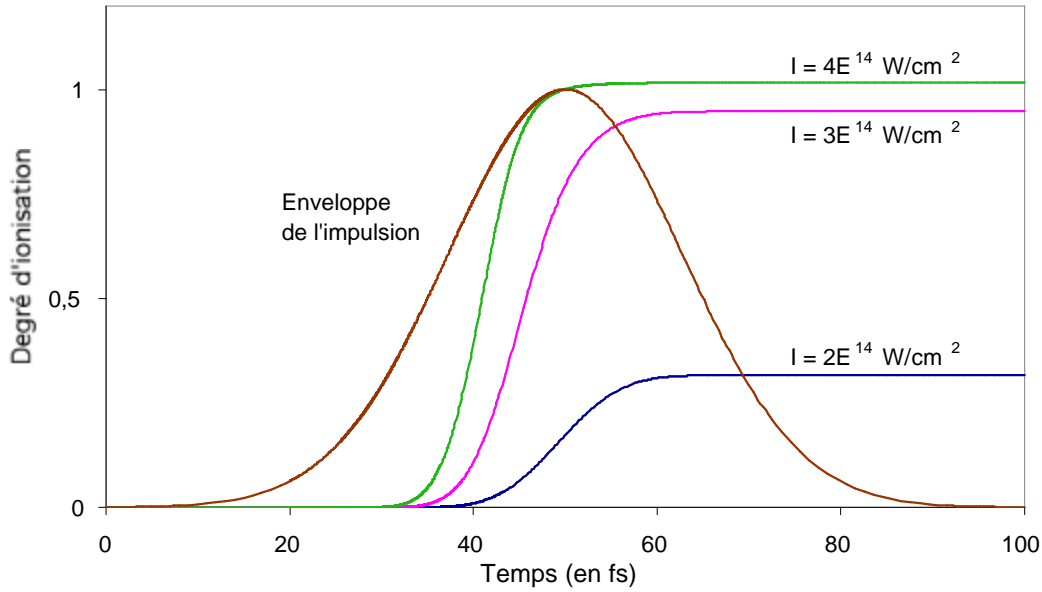


Figure 3.16 : Evolution du degré d'ionisation calculé dans l'argon avec les taux ADK pour une impulsion de durée 30 fs et d'intensité variable, le maximum se situant à 50 fs. Pour  $I=10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, ce taux est pratiquement nul, tandis que dès que  $I>3.10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, l'ionisation est presque totale. Enfin, si  $I$  dépasse  $5.10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, on peut ioniser des états de charge supérieurs.

### 3.6.2. Le calcul du déphasage

Dans le programme de simulation, on calcule d'abord les concentrations électroniques dépendantes du temps. Ces valeurs sont ensuite utilisées pour le calcul du déphasage entre le faisceau harmonique et le faisceau laser infrarouge. Cette phase dépend de très nombreux paramètres, tels que la position relative cellule-foyer, le taux d'ionisation, la longueur de la cellule, la longueur de Rayleigh, etc. Comme il a été exposé ci-dessus, le nombre de photons émis sur l'axe par unité de temps et de surface est proportionnel à l'intégrale suivante :

$$N_{out}(t) \propto \left| \int_0^{l_{med}} |dq(z)| \exp\left(\frac{z-l_{med}}{2l_{abs}}\right) \exp(i\mathbf{j}(t,z)) dz \right|^2 \quad (3.43)$$

Il est important de préciser les notations qui seront utilisées, notamment dans le cas où la cellule est placée avant le foyer. L'intégrale devra être faite sur la longueur de la cellule ( $\zeta$  va de 0 à  $l_{med}$ ), mais de nombreuses grandeurs sont définies par rapport au foyer du laser ( $z$  est tel que l'entrée de la cellule est en  $z_{cell}$ ). La figure (3.17) résume cela graphiquement.

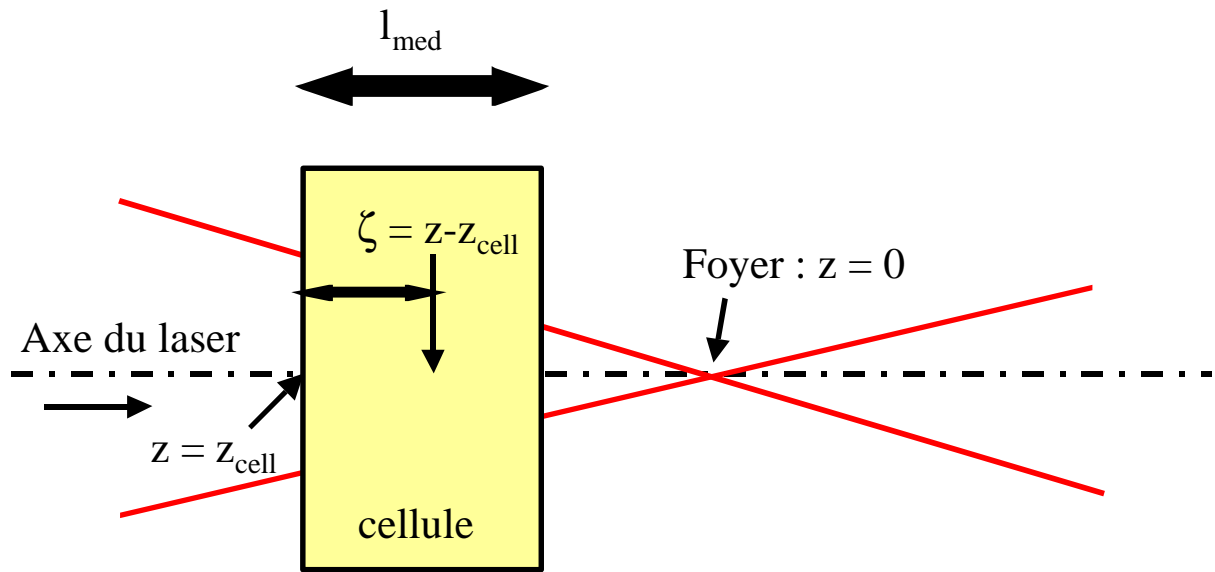


Figure 3.17 : Schéma récapitulatif des notations utilisées dans le calcul de  $N_{out}$ .

Avec les conventions énoncées plus haut, la phase à l'intérieur de l'intégrale s'écrit :

$$\mathbf{j}(\mathbf{z}, t) = \mathbf{z} \cdot \mathbf{dk}_{disp} + q \arctan\left(\frac{\mathbf{z} + z_{cell}}{z_0}\right) + \mathbf{a}I(\mathbf{z} + z_{cell}) \quad (3.44)$$

$\delta k_{disp}$  contient les termes de dispersions électronique et atomique.

Le carré du dipôle peut lui aussi être inclus dans l'intégrale, il varie comme la puissance cinquième de l'intensité [5] et dépend donc de la position  $z$ . Une correction au dipôle doit être apportée en cas d'ionisation : seuls les atomes non ionisés peuvent émettre des harmoniques dans notre modèle, on multiplie le dipôle par la concentration de neutres encore présents dans le milieu.

Par intégration de la formule précédente on obtient un flux instantané de photons qu'il reste à intégrer sur toute la durée de l'impulsion pour obtenir un nombre proportionnel au nombre de photons émis dans une harmonique donnée par impulsion.

La figure (3.18) suivante montre dans un cas typique de nos conditions expérimentales, l'évolution temporelle des différents facteurs entrant dans l'accord de phase. On représente la valeur algébrique des désaccords de vecteurs d'onde associés respectivement aux dispersions atomique et électronique, aux gradients de phase de Gouy et de phase atomique

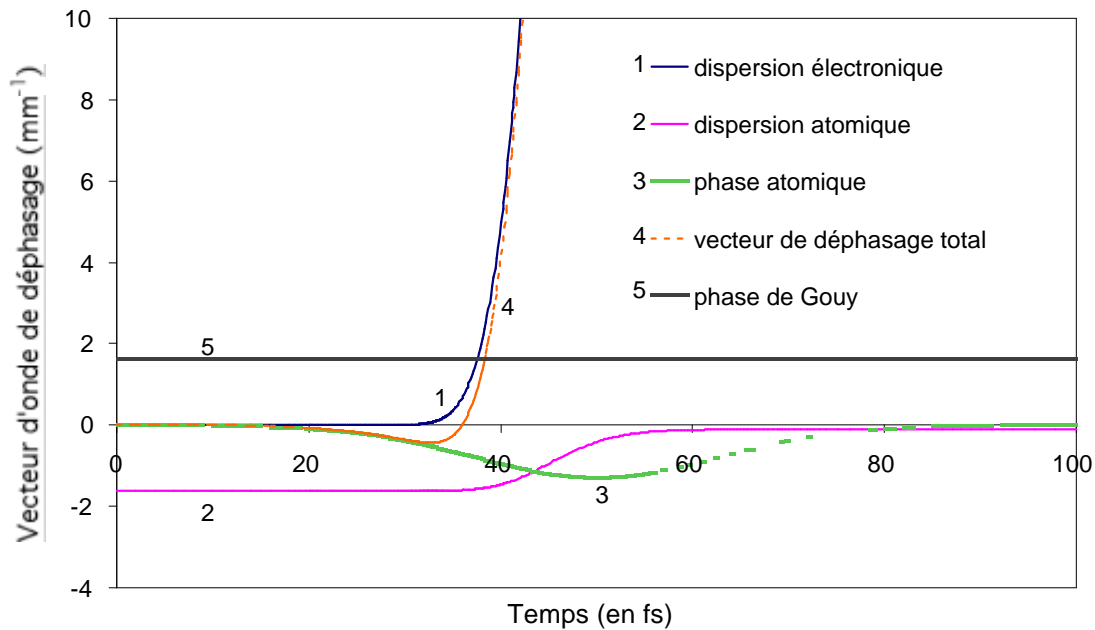


Figure 3.18 : Evolution temporelle des différents paramètres entrant dans l'accord de phase de l'harmonique 25 générée dans l'argon. Longueur de Rayleigh de 15 mm, intensité laser de  $3.10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, cellule 2 mm après le foyer, 25 torr d'argon. Impulsion centrée à 50 fs et de largeur 30 fs.

### 3.6.3. Les avantages du code 1D

Ce code 1D présente l'avantage d'être facilement modifiable pour pouvoir étudier l'influence de n'importe quel paramètre entrant en jeu dans la génération d'harmoniques. Le calcul est quasi instantané et l'on a accès à la dépendance en temps de toutes les grandeurs pertinentes. Ce code est écrit sous le logiciel Matlab et nous a permis non seulement de comprendre de façon plus approfondie les points importants de la génération d'harmoniques dans nos conditions expérimentales mais aussi de reproduire assez fidèlement les données plus quantitatives (voir par exemple chapitre 5).

Nos conditions de génération (focalisation douce) et de collection du rayonnement harmonique (sur l'axe et avec un faible angle solide) étaient bien adaptées à l'utilisation d'un code unidimensionnel. À titre d'exemple, nous allons l'utiliser pour illustrer les diverses conditions utilisées pour la génération d'harmoniques par les équipes dont nous avons rapporté les efficacités de conversion à la fin du chapitre précédent.

### 3.7. Illustration des différentes méthodes d'accord de phase

Nous allons étudier, au moyen du même modèle, 3 configurations différentes d'accord de phase afin de comprendre ce qui fait la spécificité de chacune et de voir que les expériences étant toute en limite d'absorption, on observe cependant des différences dans les efficacités de conversion obtenues.

En effet, la condition dite de « limite d'absorption » impose des valeurs minimales à la longueur de déphasage et à la longueur du milieu à partir de la longueur d'absorption (cf. équation (3.28)). Ce critère d'accord de phase longitudinal n'évoque pas les autres dimensions du problème qui sont le temps et l'espace transverse. On peut en effet se demander pendant combien de temps durera l'accord de phase et quelle sera alors la valeur du dipôle atomique. Le code 1D présenté ci-dessus peut bien répondre à ces différentes questions.

### 3.7.1. La configuration capillaire à partir de l'article de Durfee et al. [18]

Cet article présente les conditions de génération d'harmoniques en capillaires creux sans toutefois donner d'efficacité de conversion chiffrée, on peut supposer qu'elle est proche de celle publiée par la même équipe dans la revue Science datée de 2002 [19].

Les conditions de génération sont ici une intensité faible ( $1,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ), une pression modérée (15-30 torr) et une longueur de milieu de 5cm composée de trois capillaires mis bout à bout (celui du milieu fait 3 cm et assure une pression constante). Le taux d'ionisation ne dépasse pas 1% et un très bon accord de phase est obtenu par compensation des dispersions électronique et atomique pendant toute la durée de l'impulsion. La contrepartie est que le dipôle est peu intense. C'est l'inconvénient majeur de la configuration capillaire.

La propagation du faisceau laser dans un capillaire implique au premier ordre que l'intensité est constante dans le milieu sur tout l'axe de propagation, mais il ne faut pas oublier que le guide d'onde qu'est le capillaire implique une dispersion négative. En effet, le vecteur d'onde du fondamental s'écrit dans ces conditions :

$$k_f = \frac{2p}{1} - \frac{u_{11}^2 I}{4pa^2} \quad (3.45)$$

avec  $u_{11} = 2,405$  et  $a = \text{rayon du capillaire}$

Dans le cas de l'expérience de Durfee et al., [18]  $a$  vaut 75 microns et la variation de la norme du vecteur d'onde vaut  $6,55 \cdot 10^{-2} \text{ mm}^{-1}$ . Il est d'ores et déjà intéressant de comparer cette valeur à celle qu'induirait la phase de Gouy d'un faisceau laser, de longueur de Rayleigh  $z_0$ , en propagation libre :

$$dk_{Gouy} = \frac{1/z_0}{1 + (z/z_0)^2} \quad (3.46)$$

La valeur de la longueur de Rayleigh qui donnerait une dispersion de vecteur d'onde analogue à celle induite par le guide d'onde dans la configuration capillaire est de 15 mm. On comprend alors aisément que la configuration propagation libre devient équivalente à celle de la propagation guidée dès lors que la focalisation est assez douce.

La figure (3.19) est issue du code et représente la variation au cours de l'impulsion du facteur d'accord de phase et du dipôle atomique, le flux harmonique étant l'intégrale en temps du produit des deux. On remarque que ce facteur d'accord de phase est très bon tout au cours de l'impulsion, on se place ici clairement dans le cadre de la limite d'absorption.



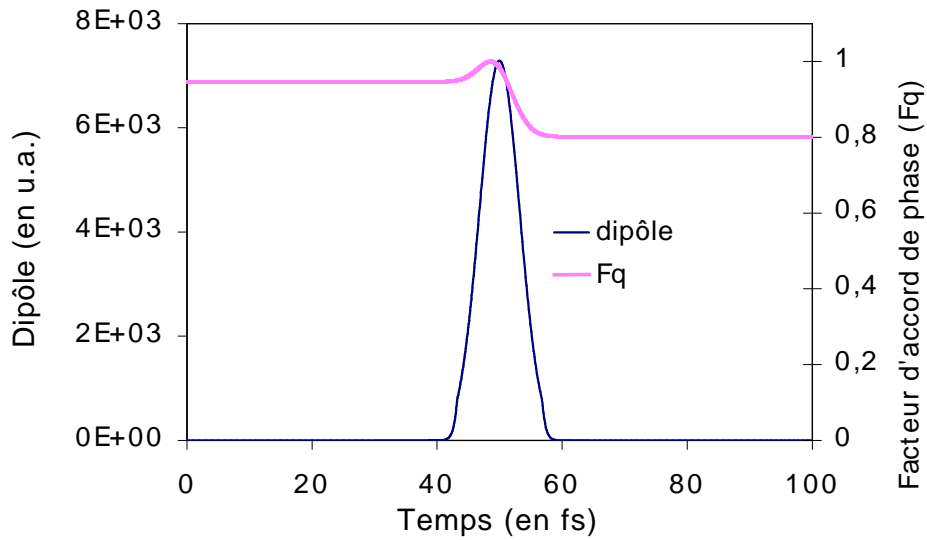


Figure 3.19 : Evolution des paramètres microscopique et macroscopique dans la génération de l'harmonique 23 dans l'argon en capillaire, telle que rapportée dans l'article [18] (pression=28 torr, intensité  $1,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , durée d'impulsion 20 fs longueur de milieu 3cm centrée sur 50 fs).

### 3.7.2. La configuration de focalisation douce

En optimisant les efficacités de conversion dans nos conditions expérimentales, nous avons observé un maximum pour une focalisation douce correspondant à une longueur de Rayleigh proche de 20 mm. L'intensité est alors supérieure à celle de la configuration en capillaire, de même que l'intensité du dipôle au moment d'un bon accord de phase. De plus, l'intérêt de la propagation libre est que la présence de la phase atomique (pour le deuxième chemin quantique, et si la cellule est placée après le foyer) peut améliorer l'accord de phase et lui permettre d'avoir lieu plus près du maximum de l'impulsion.

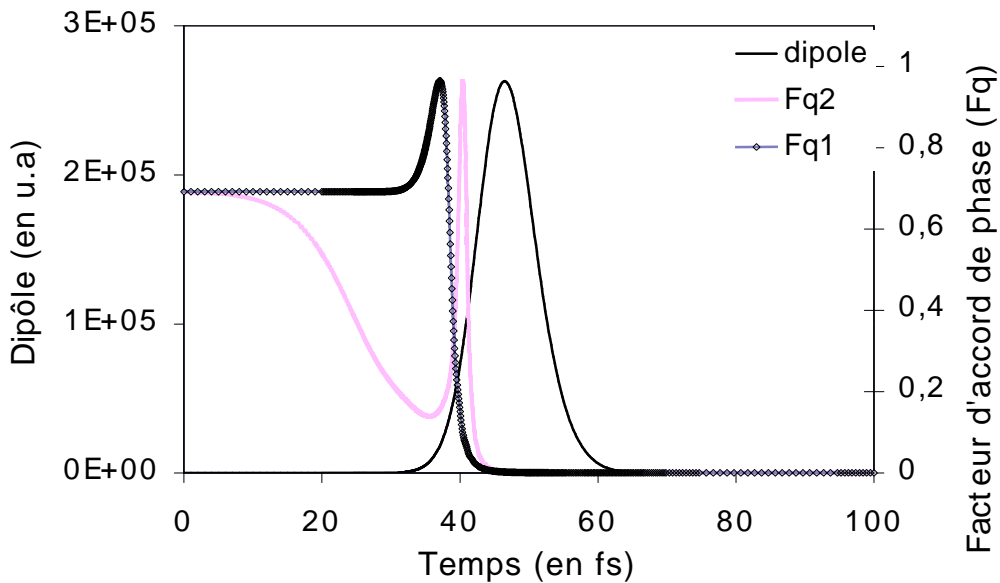


Figure 3.20 : Evolution des paramètres microscopiques et macroscopiques dans la génération de l'harmonique 23 dans l'argon en propagation libre et focalisation douce (pression=20 torr, intensité  $3 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, durée d'impulsion 30 fs, longueur de Rayleigh de 20 mm, longueur de milieu 8mm).fq1 et fq2 sont respectivement les facteurs d'accord de phase des chemins 1 et 2.

Cette amélioration du signal harmonique due à la présence de la phase atomique est confirmée expérimentalement par la courbe présentée sur la figure (3.21) qui donne le nombre de photons produits en fonction de la position relative foyer/cellule. Un bon accord est obtenu entre les résultats du code pour le deuxième chemin quantique et les données expérimentales. Une large zone d'optimisation du signal est observée pour z positif, donc un gradient d'intensité négatif. Cette zone a une étendue équivalente à la longueur de Rayleigh du faisceau (17 mm dans ce cas).

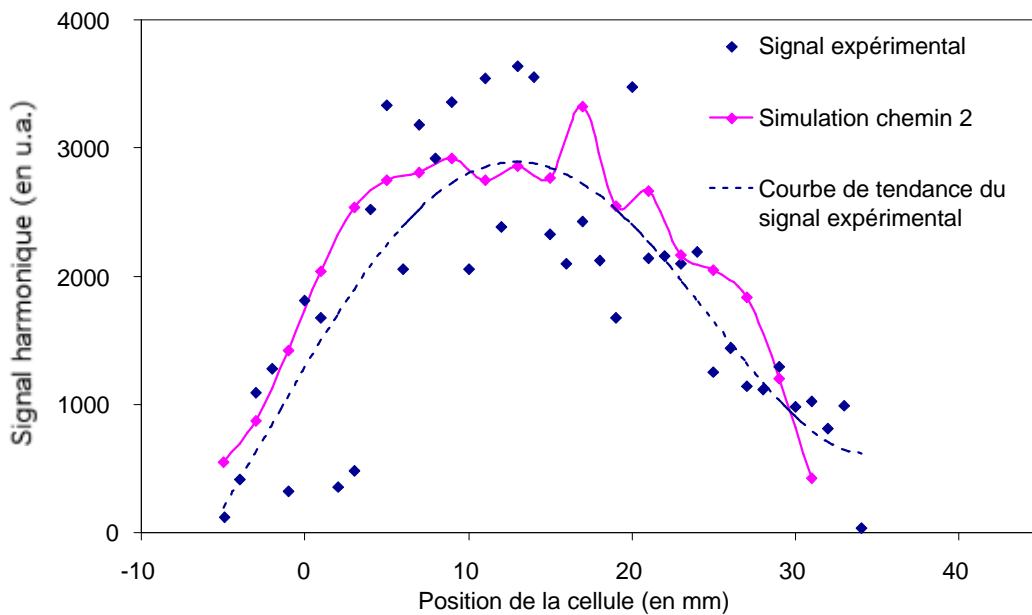
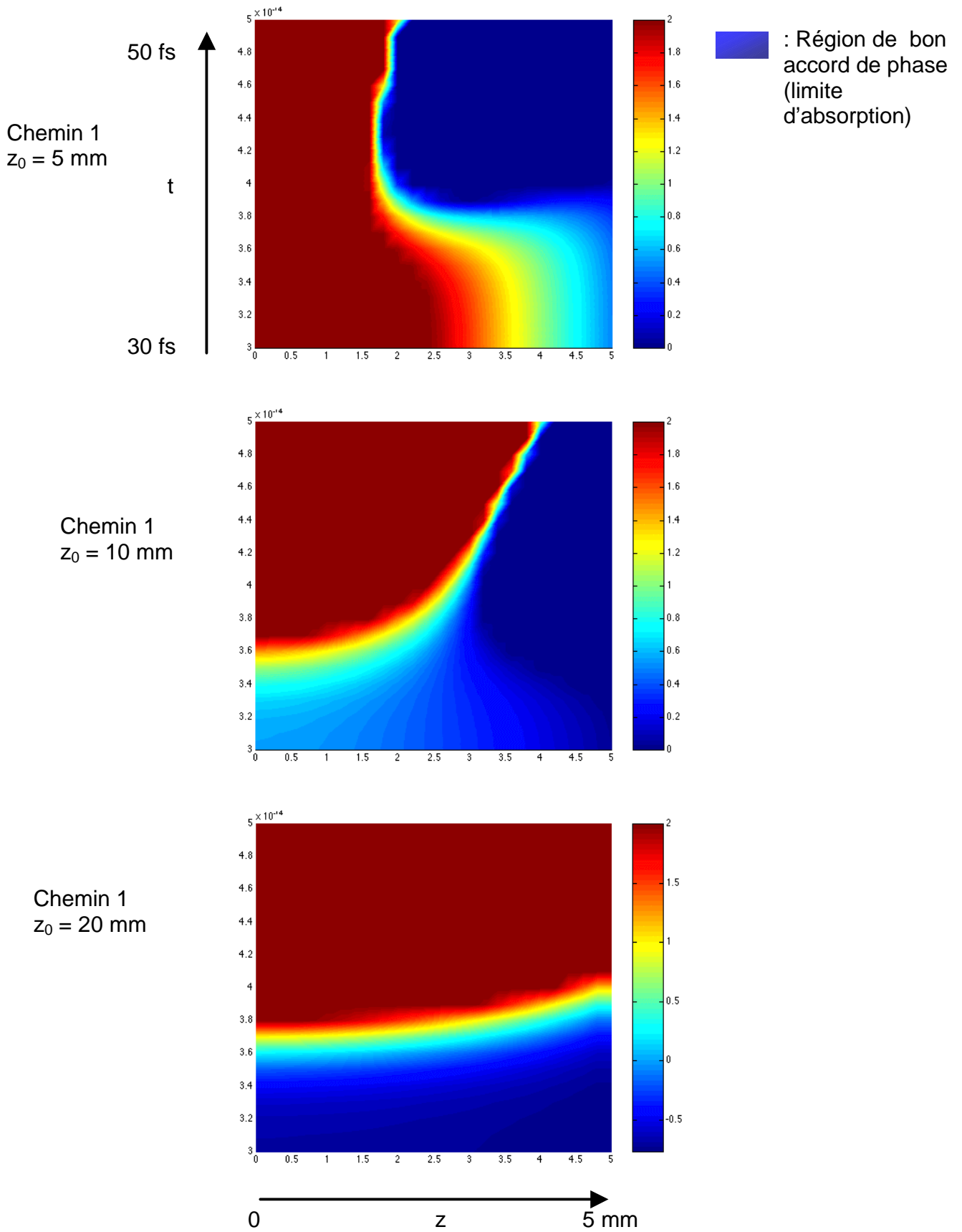
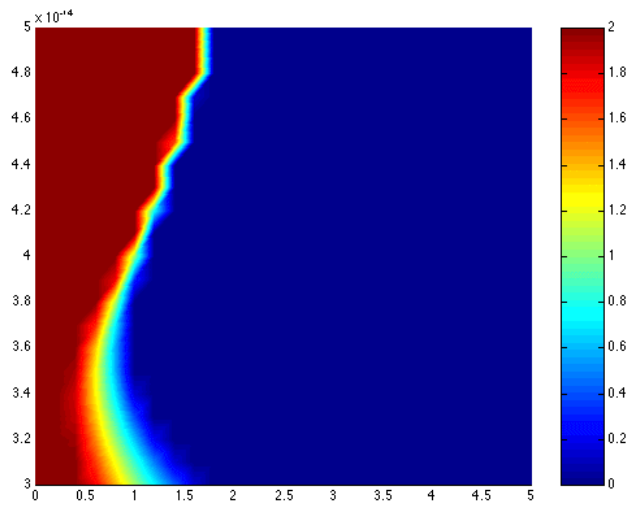


Figure 3.21 : Variation du signal de l'harmonique 23 générée dans l'argon en fonction de la position relative foyer - cellule. Pression 15 torr, diaphragme 12 mm longueur de cellule 4 mm.

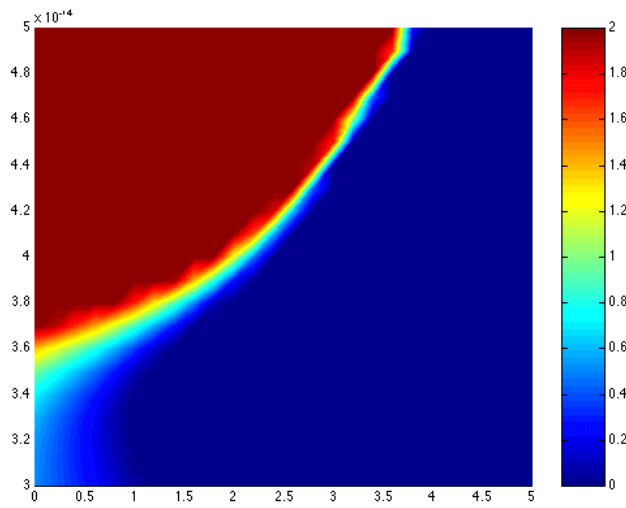
Nous pouvons adopter l'approche utilisée dans la référence [20] puis dans la thèse de doctorat de R. Haroutunian [15] pour représenter graphiquement les zones d'accord de phase. La figure (3.22) montre le cas de trois longueurs de Rayleigh différentes : 5mm, 10 mm et 15 mm. On considère la génération de l'harmonique 25 dans l'argon à une intensité maximale de  $3 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. La cellule mesure 5 mm, c'est-à-dire environ 3 fois la longueur d'absorption pour une pression de 30 torr. Son entrée est placée au foyer. Un bon accord de phase sera représenté par un désaccord de vecteur d'onde dont la norme n'excède pas  $\frac{P}{5l_{abs}}$  soit environ  $0,4 \text{ mm}^{-1}$  (zone en bleu d'après l'échelle de couleur utilisée dans les figures 3.22 ci-dessous). La coordonnée x va de 0 à 5 et représente en mm la position dans la cellule, le foyer est en 0. La coordonnée y représente le temps entre 30 et 50 femtosecondes. Le maximum de l'impulsion est pour 50 fs et la durée d'impulsion est de 30 fs.



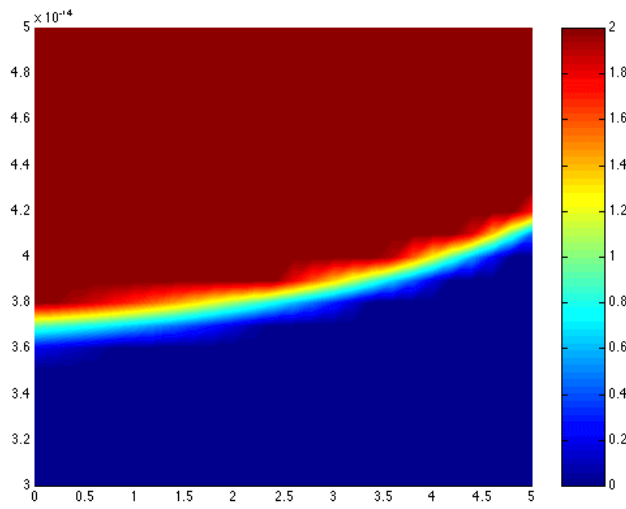
Chemin 2  
 $z_0 = 5 \text{ mm}$



Chemin 2  
 $z_0 = 10 \text{ mm}$



Chemin 2  
 $z_0 = 20 \text{ mm}$



Figures 3.22 ci-dessus : Module du désaccord de vecteur d'onde (en  $\text{mm}^{-1}$ ) pour les chemins 1 et 2 et différentes géométries laser en fonction du temps (le maximum de l'impulsion est en 50 fs) et de la coordonnée  $z$  sur l'axe de propagation.

On montre ainsi une nouvelle fois l'intérêt de la génération d'harmonique en configuration longue focale. Une grande longueur de Rayleigh permet d'assurer une zone étendue d'accord de phase homogène. En outre, la présence du deuxième chemin quantique permet de repousser les limites temporelles de l'accord de phase. Comme on s'y attend, l'effet sera moins spectaculaire pour une longueur de Rayleigh réellement très grande car le gradient d'intensité devient négligeable.

### 3.7.3. La configuration forte pression - forte focalisation [21]

Pour ce concept de génération d'harmoniques, toutes les longueurs en présence sont diminuées : taille du foyer, durée d'impulsion, longueur d'absorption. L'accord de phase est obtenu transitoirement, comme le montre le graphique suivant, mais l'intensité qui règne dans le milieu au moment de l'accord de phase est très importante, ce qui augmente la réponse atomique :

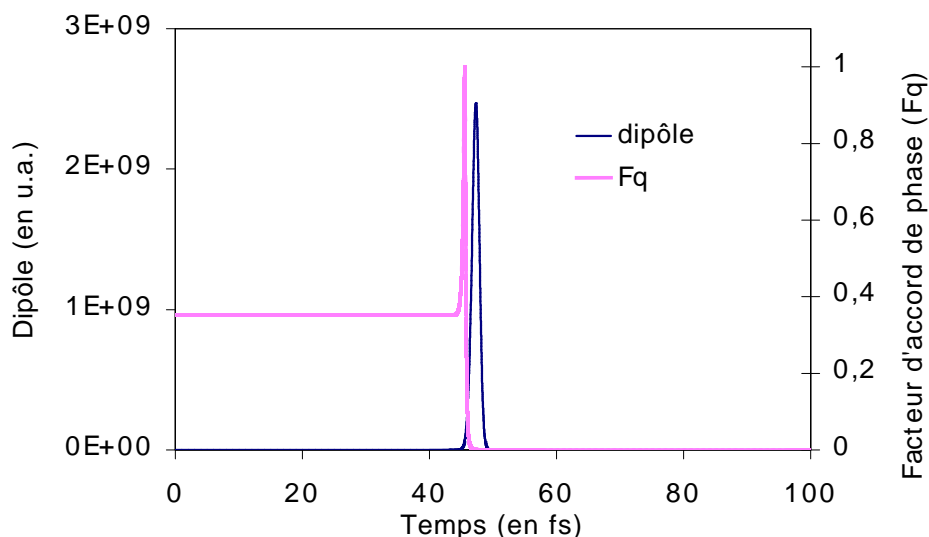


Figure 3.23 : Évolution des paramètres microscopique et macroscopique dans la génération de l'harmonique 23 dans l'argon (pression 300 torr, Intensité  $7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , durée d'impulsion 7 fs, longueur de Rayleigh 3 mm = longueur de milieu), présenté dans la référence Schnürer et al. [21]

Les considérations précédentes permettent de mieux comprendre les avantages de notre configuration expérimentale et d'expliquer les bonnes efficacités de conversion que nous avons obtenues. Le caractère doux de la focalisation nous permet de nous placer dans une situation de propagation laser analogue à celle qu'on voit dans les capillaires avec toutefois une intensité supérieure (en pratique deux fois plus grande) qui nous permet d'avoir une réponse atomique plus efficace, et pendant une durée plus longue (30fs contre 20 fs pour la référence [18]). L'intérêt de la propagation libre est de pouvoir utiliser les potentialités de la phase atomique en termes d'accord de phase. La technique viennoise quant à elle présente un flux harmonique instantané exceptionnellement élevé mais pendant un instant très court et généré sur une distance très limitée

à cause de l'absorption. Notre configuration semble être un bon compromis entre ces deux extrêmes.

#### 3.7.4. Le cas spécifique de l'autoguidage du faisceau et ses conséquences sur l'accord de phase

L'équipe de Tamaki et al. a publié dans la référence [22], une efficacité de conversion exceptionnellement élevée dans le néon (plus de 1 ordre de grandeur de plus que toutes les autres équipes). La raison invoquée est l'autoguidage du faisceau par compensation de la focalisation due à la lentille par la défocalisation due à l'ionisation. En effet, le terme d'ionisation introduit une courbure du front d'onde car l'indice est plus faible au centre que sur la périphérie du faisceau, aboutissant formellement à une lentille divergente. Cet effet ne se produit que si la cellule est placée avant le foyer du laser.

Dans la mesure où ce processus peut avoir lieu, les conséquences sur l'accord de phase semblent très intéressantes en ce sens que l'ionisation n'est plus aussi critique pour l'accord de phase. Cependant, il est bon de rappeler que l'autoguidage par ionisation est très sensible à de petites variations des caractéristiques du laser (intensité, propagation). Les derniers résultats obtenus en focalisation douce de lasers énergétiques font état également de ce phénomène d'autoguidage [23], [24].

### 3.8. Conclusion du chapitre

Ce chapitre a permis d'exposer tous les paramètres qui pouvaient avoir une influence sur la génération d'harmoniques tant du point de vue microscopique que macroscopique. L'utilisation d'un code 1D basé sur les considérations précédentes a permis d'analyser différentes possibilités d'accord de phase et de conclure que nos configurations expérimentales correspondent à un bon compromis entre les termes dipolaires (qui exigent une forte intensité pour être conséquents) et la problématique de l'accord de phase qui peut être détruit par une ionisation trop importante. On a montré que l'utilisation appropriée de la phase atomique permet d'améliorer les efficacités de conversion en décalant le moment de l'accord de phase vers le maximum de l'impulsion. Enfin, les expériences de génération d'harmoniques en faisceau autoguidé par l'ionisation ouvrent de nouvelles possibilités pour la génération d'harmoniques en présence d'une forte ionisation.

### 3.9. Références du chapitre 3:

- [1] Agostini et al., IEEE J. Quantum Electron. **QE-4**, 667 (1968)
- [2] Ammosov, Delone et Krainov (ADK) JETP **64**, 1991 (1986)
- [3] Ilkov et al., J. Phys. B **25**, 4005 (1992)
- [4] Taïeb et al., Phys. Rev. Lett. **87** (2001)
- [5] Lewenstein et al., Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994)
- [6] Kulander et al., in Proceedings of the super intense laser atom physic III workshop, vol. 316 of NATO Advanced study institute, series B/Physics, edited by B. Piraux (Plenum Press, New York, 1993)
- [7] Corkum et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)
- [8] Wahlström et al., Phys. Rev. A, **48**, 4709 (1993)
- [9] Muller et al., Phys. Rev. Lett., **81**, 1207 (1998)
- [10] Lewenstein et al., Phys. Rev. A, **52**, 4747 (1995)

- [11] Balcou et al., J. Phys. B, **32**, 2973 (1999)
- [12] Cours d'optique non linéaire de l'ENSTA
- [13] Constant et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1668 (1999)
- [14] Siegman, Lasers (The University of California, 1986)
- [15] Haroutunian, thèse de doctorat de l'école Polytechnique (2001)
- [16] Site du CXRO: <http://www-cxro.lbl.gov>
- [17] Delone et al., Physics Uspekhi **41**,469 (1998)
- [18] Durfee et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 2187 (1999)
- [19] Bartels et al., Science, **297**, 376 (2002)
- [20] Balcou et al., Phys. Rev. A **55**, 3204 (1997)
- [21] Schnürer et al., Phys. Rev. Lett., **83**, 722 (1999)
- [22] Tamaki et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1422 (1999)
- [23] Hergott et al., Phys. Rev. A **66**, 021801(R) (2002)
- [24] Tamaki et al. Phys. Rev. A **62**, 063802 (2000)

## 4. Étude directe de l'accord de phase par la mise en évidence de franges de Maker : le rôle des chemins quantiques

### 4.1. Introduction

Nous présentons dans ce chapitre les premières mesures expérimentales réellement probantes de franges d'accord de phase pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Ces figures d'interférence, dites aussi « franges de Maker » [1] sont la manifestation du lien entre la longueur de déphasage et la longueur du milieu. Elles avaient été décrites pour la première fois par l'équipe du CEA Saclay dans les références [1] et [2] et mesurées expérimentalement sur les harmoniques 7 et 13 avec un contraste assez faible comme le montre la figure ci-dessous :

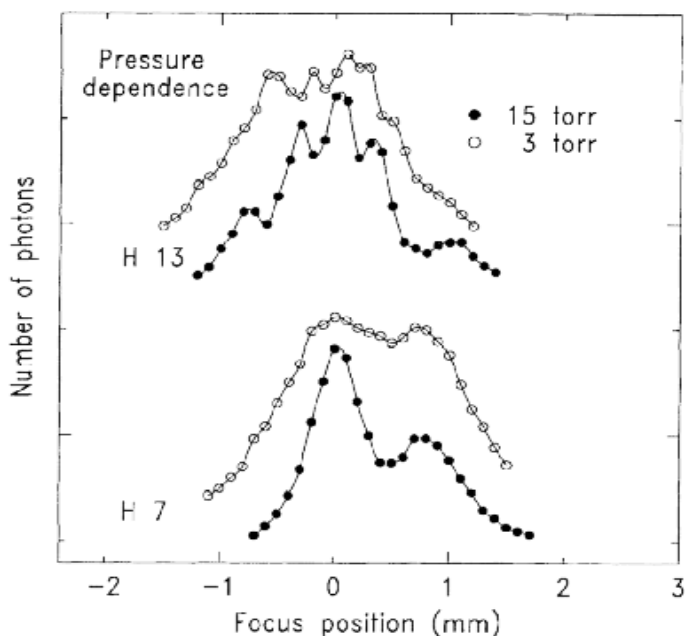


Figure 4.1 : Détection expérimentale de franges d'accord de phase pour les harmoniques 7 et 13 générées dans le xénon en configuration courte focale. Cette figure est extraite de la référence [1], les données sont représentées en coordonnées linéaires.

Depuis, les conditions de génération d'harmoniques n'ont plus permis d'observer de nouveau ce phénomène. Nos conditions de focalisation douce et de basse pression, avec une cellule placée avant le foyer ont permis de mettre en évidence des franges exceptionnellement contrastées (un facteur supérieur à 100 est mesuré entre le signal le plus faible et le plus élevé pour les harmoniques hautes dans l'argon). Le signal harmonique en tant que fonction de la longueur de cellule présente des minima et des maxima séparés par définition par une longueur de déphasage. La figure 4.2, montre la détection de ces franges pour l'harmonique 25 générée dans l'argon, l'incertitude expérimentale seule ne permet pas d'expliquer de telles variations du signal harmonique.



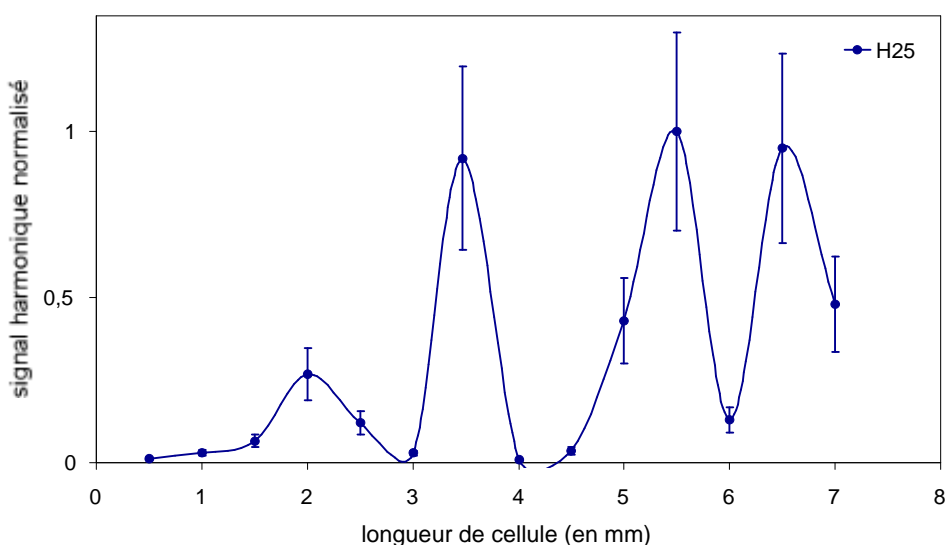


Figure 4.2 : Détection expérimentale de franges d'accord de phase pour l'harmonique 25 généré dans 15 torr d'argon en configuration longue focale. L'entrée de la cellule de longueur variable est placée 2 mm avant le foyer, les données sont représentées en coordonnées linéaires pour faciliter la comparaison avec la figure 4.1, une incertitude expérimentale de 30% est admise à cause du caractère instable de la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

L'intérêt majeur de la détection de ces franges est qu'elle permet de connaître la valeur effective précise de la longueur de déphasage, ce qui est rarement possible expérimentalement. On peut ainsi déduire de l'évolution des franges, en fonction notamment de la position cellule-foyer, l'influence de ce paramètre sur l'accord de phase. Dans une première partie, après avoir étudié précisément les conditions nécessaires d'existence de franges d'interférence nous insisterons sur la contribution spécifique des deux chemins quantiques principaux à l'accord de phase.

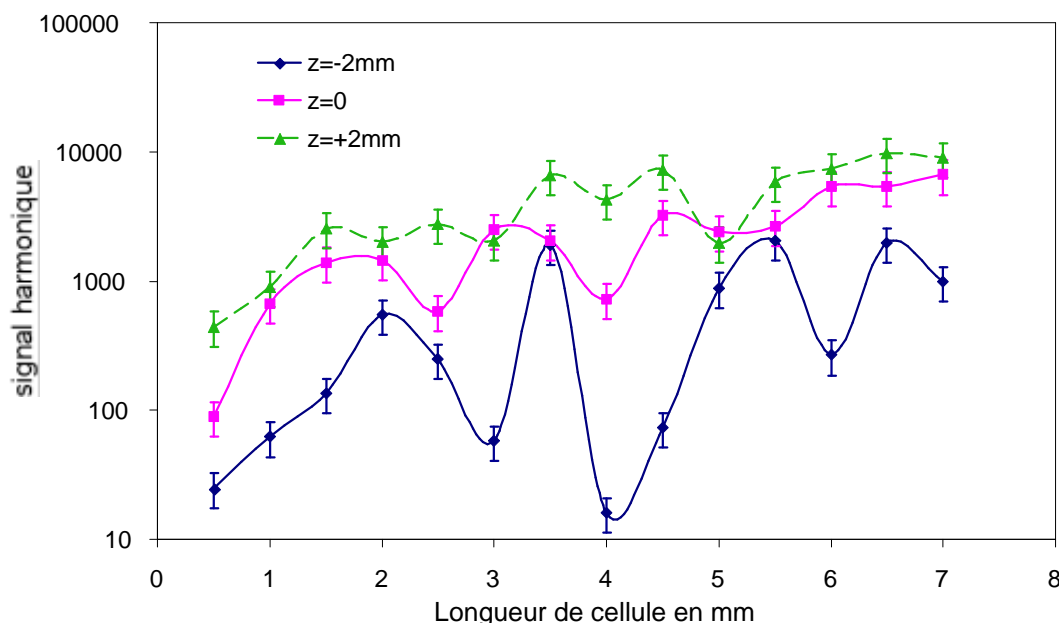
Nous étudierons dans une deuxième partie l'influence de la longueur d'absorption sur le contraste des franges et validerons de la sorte notre modèle de description des franges.

#### 4.2. Mise en évidence expérimentale d'effets de cohérence dans la génération d'harmoniques

L'étude de la variation du signal harmonique en fonction de la longueur de milieu est tout à fait adaptée à notre montage expérimental car il est possible de faire varier aisément la longueur de la cellule. Dans une région pour laquelle le signal harmonique n'est pas optimisé, c'est-à-dire quand la longueur de déphasage est nettement inférieure à la longueur du milieu, des franges d'accord de phase avec un contraste excellent ont été observées. Cette condition correspond dans notre cadre expérimental à une entrée de la cellule placée avant le foyer du laser. Le contraste est d'environ 100 pour l'harmonique 25 générée dans l'argon comme le montre la figure 4.3 représentée en coordonnées logarithmiques.

La longueur de déphasage apparente dans ces conditions est d'environ 0,75 mm, étant donné que deux minima consécutifs de la courbe correspondent à trois points expérimentaux soit 1.5 mm. Notons en effet qu'une condition requise pour « résoudre » la variation du signal

harmonique en fonction de la longueur est que le pas de mesure soit inférieur à la moitié de la longueur de déphasage. La longueur maximale du milieu doit également être supérieure à quatre fois la longueur de déphasage de telle sorte que deux oscillations au minimum soient détectables. Notre courbe expérimentale met quant à elle en évidence 3 minima locaux.



*Figure 4.3 : Variation du signal de l'harmonique 25 dans l'argon en fonction de la longueur de cellule pour différentes positions relatives de l'entrée de la cellule par rapport au foyer, 2 mm avant, 2 mm après et au foyer. La pression dans la cellule est de 15 torr, le diamètre du diaphragme est de 12 mm. On rappelle que z positif correspond à une cellule placée après le foyer du laser.*

La figure (4.3) permet de mettre en évidence un changement de comportement notable des franges au passage du foyer. Lorsque le signal est optimisé en plaçant la cellule après le foyer, les franges ont un contraste très diminué, voire disparaissent et la croissance du signal avec la longueur du milieu devient quasi quadratique, ce qui traduit un meilleur accord de phase. La figure (4.4) correspond quant à elle à une cellule placée 16 mm après le foyer du laser : on observe bien une croissance quadratique du signal de l'harmonique 23 suivie d'une saturation vers 6 mm de longueur de milieu, ce qui permet de démontrer que la longueur de déphasage est bien supérieure à la longueur d'absorption dans ces conditions (6 mm contre 1,5 mm). Nous montrons ainsi que la génération d'harmoniques se fait dans ce cas en limite d'absorption, contrairement au cas présenté dans la figure (4.3) pour laquelle  $z=-2$  mm aboutit à une longueur de déphasage nettement inférieure à la longueur d'absorption pour l'harmonique 25 (0,75 mm contre 2,7 mm).

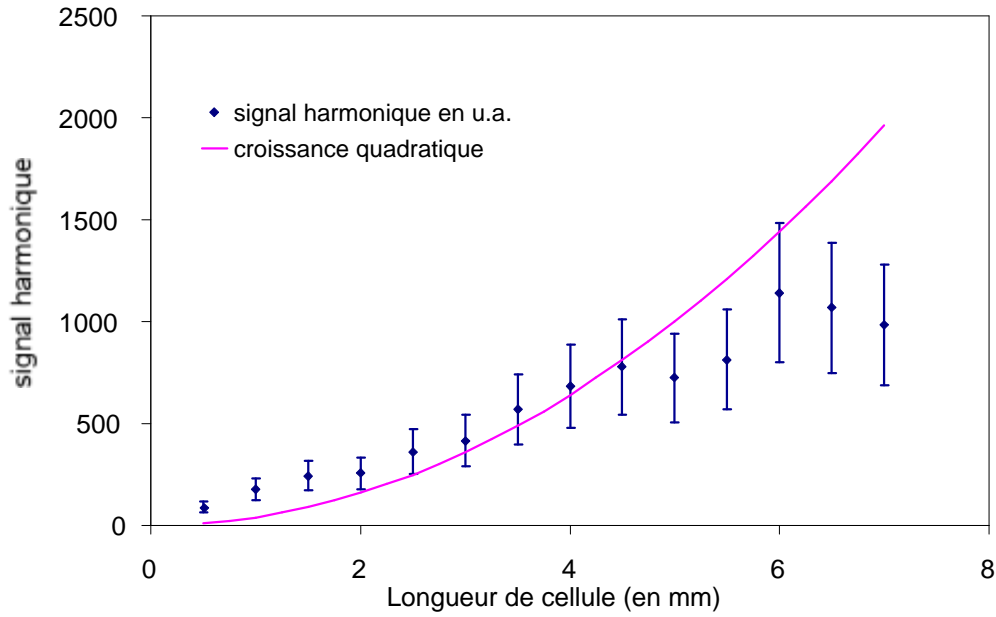


Figure 4.4 : Variation du signal de l'harmonique 23 générée dans l'argon pour une cellule placée 16 mm après le foyer. Les autres paramètres de génération sont identiques à ceux de la figure 4.3

L'accroissement de la longueur de déphasage peut également se lire sur la courbe de la figure (3.21) du chapitre 3 donnant la variation du signal harmonique en fonction de la position cellule-foyer. Nous avons démontré que l'optimisation du signal pour les  $z$  positifs est due à la contribution positive du deuxième chemin quantique.

### 4.3. Condition nécessaire d'existence des franges d'accord de phase

L'observation d'un tel contraste de franges est assez surprenante compte tenu de la complexité spatio-temporelle du mécanisme de génération d'harmoniques. L'existence même de telles franges exige donc des conditions qui garantissent que la longueur de déphasage soit bien fixée, ceci pour éviter un brouillage des franges au sens du vocabulaire des interférences.

#### 4.3.1. Aspect spatial : la variation de la phase de propagation, cadre théorique

Nous reprenons ici quelques définitions importantes évoquées dans la partie accord de phase du chapitre 3. L'observation de franges d'accord de phase est liée, comme nous l'avons vu, à l'existence même d'une longueur de déphasage homogène à un instant donné sur toute la longueur du milieu, en l'occurrence la cellule. En effet, reprenons la formule (3.24) qui donne le flux harmonique instantané en sortie de milieu :

$$N_{out}(t) \propto \left| \int_0^{l_{med}} d_q(z) \exp\left(\frac{z - l_{med}}{2l_{abs}}\right) \exp(i\mathbf{j}_q(t, z)) dz \right|^2 \quad (4.1)$$

Dans le cas où le dipôle est constant dans le milieu et où la phase est linéaire par rapport à  $z$  et s'écrit  $\pi z/l_\pi$ , le résultat de l'intégrale fait apparaître logiquement des franges d'interférences de période  $2l$  :

$$N_{out} \propto d_q^2 \frac{4l_{abs}^2}{1 + 4p^2 \frac{l_{abs}}{l_p^2}} \left( 1 + \exp\left(\frac{-l_{med}}{l_{abs}}\right) - 2 \cos\left(\frac{pl_{med}}{l_p}\right) \exp\left(\frac{-l_{med}}{2l_{abs}}\right) \right) \quad (4.2)$$

Dans le cas où  $l_\pi$  est non constante dans le milieu, il y a brouillage des franges. Le contraste sera en effet fortement détérioré en présence de variations trop importantes de la longueur de déphasage au sein de la cellule.

À titre d'illustration, nous avons choisi trois variations de phase différentes par rapport à la position dans la cellule, notée  $z$ . La première correspond à une phase totalement linéaire, donc à une longueur de déphasage constante. Les deux autres formes de phases choisies comme exemple correspondent respectivement à une croissance quadratique et sous-linéaire (racine carrée) de la phase, pour lesquelles la longueur de déphasage varie avec la position. Ces allures de variation de la phase peuvent correspondre à des cas expérimentaux, dépendant notamment de la position cellule-foyer.

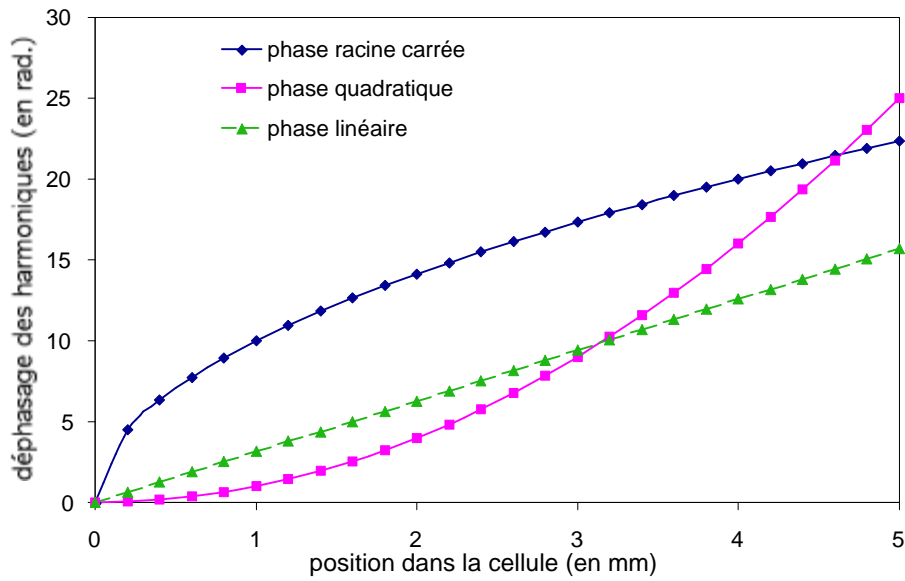


Figure 4.5 : Représentation de trois variations heuristiques de la phase des harmoniques en fonction de la coordonnée à l'intérieur de la cellule. ( $\mathbf{j}(z)=\mathbf{p}z$  en trait continu,  $\mathbf{j}(z)=z^2$  en trait pointillé,  $\mathbf{j}(z)=10 \cdot z^{1/2}$  en croix superposées sur trait continu)

On étudie alors l'influence de la variation spatiale de la phase sur le contraste des franges en calculant le nombre de photons harmoniques en fonction de la longueur de milieu d'après l'équation (4.1) en négligeant la variation suivant  $z$  du dipôle atomique. Les résultats du calcul sont présentés sur la figure 4.6.

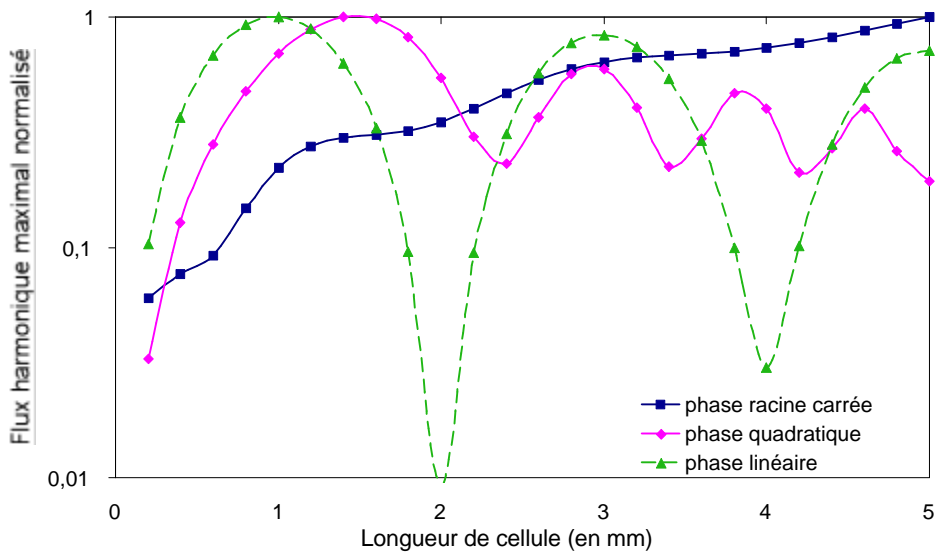


Figure 4.6 : Influence de la forme de la phase sur le flux de photons harmoniques en sortie de cellule en fonction de la longueur du milieu (les croix représentent une phase racine carrée, le trait continu une phase linéaire, et les pointillés une phase quadratique).

Il apparaît ici clairement que le meilleur contraste de franges est obtenu pour une phase linéaire des harmoniques c'est-à-dire une longueur de déphasage fixe. Dans le cas contraire, c'est-à-dire pour une variation sous-linéaire ou quadratique de la phase, de légères oscillations du signal sont observables mais leur contraste est très inférieur.

Ces résultats nous permettent de rappeler deux propriétés différentes de la phase ayant une influence distincte sur la variation du signal harmonique en sortie de milieu de longueur variable. D'une part, le contraste est pour une grande partie lié à la linéarité de la phase (dérivée seconde nulle), d'autre part le nombre de photons en sortie de milieu est essentiellement lié à la dérivée première de la phase : si celle-ci tend vers une valeur nulle ( $\delta k=0$ ), l'accord de phase est optimisé par une longueur de déphasage qui tend vers l'infini.

#### 4.3.2. Processus physiques induisant une phase non linéaire

Une étude des phénomènes conduisant à la détermination de la phase de propagation des harmoniques est nécessaire pour comprendre dans quelles conditions de génération, des franges d'accord de phase sont théoriquement observables.

Le chapitre 3 a permis d'explicitier clairement tous les termes entrant dans le calcul du déphasage entre le faisceau harmonique et le rayonnement infrarouge:

- le déphasage dû à l'ionisation par modification des dispersions atomique et électronique
- le déphasage dû à la phase de focalisation du laser
- le déphasage dû à la phase atomique

La longueur de déphasage est reliée à l'inverse du gradient de ces grandeurs. Elle sera clairement définie si et seulement si les gradients sont homogènes dans toute la cellule. On s'intéresse au terme du premier ordre dans le développement linéaire du gradient spatial de la phase des harmoniques et on rappelle que :

$$\begin{aligned}
dk_{dispersion\ \acute{e}lectronique} &= \frac{q\omega}{c} \frac{rP_{ionisation}}{2n_c}(t) \\
dk_{dispersion\ atomique} &= -\frac{q\omega}{c} dn_{at}(1 - P_{ionisation}) \\
dk_{Gouy} &= \frac{q/z_0}{1 + (z/z_0)^2} \\
dk_{phase\ atomique} &= a \frac{\int I(t)}{\int z} = -a \frac{2I_0 z/z_0^2}{(1 + (z/z_0)^2)^2}
\end{aligned} \tag{4.3}$$

$P_{ionisation}$  est le taux d'ionisation au sein du milieu,  $\rho$  la densité du milieu (proportionnelle à la pression),  $n_c$  la densité critique,  $\omega$  la pulsation du laser,  $q$  l'ordre harmonique. L'intensité est supposée suivre la loi des faisceaux gaussiens pour une longueur de Rayleigh  $z_0$  et une intensité maximale  $I_0$ .

Le terme d'ordre 1 en  $z$  dans l'expression des  $\delta k$  dus aux dispersions électronique et atomique sera négligeable devant l'ordre 0 si le taux d'ionisation est constant dans le milieu. Si on suppose que ce taux varie comme une certaine puissance ( $n$ ) de l'intensité, il sera constant si  $z \ll z_0$ . En effet :

$$P_{ionisation} \propto I^n \Rightarrow P_{ionisation} \propto \frac{I_0^n}{(1 + (z/z_0)^2)^n} \approx I_0^n (1 - n(z/z_0)^2) \tag{4.4}$$

De même,  $\delta k_{Gouy}$  sera constant si et seulement si  $z \ll z_0$ .

On peut donc établir une condition nécessaire pour l'observation de franges d'accord de phase : la longueur de Rayleigh doit être grande par rapport à la longueur de cellule. Les trois figures suivantes permettent de confirmer ce résultat de façon explicite. On y représente la variation spatio-temporelle du déphasage au sein d'une cellule de 5 mm dont l'entrée est placée au foyer du laser, pour trois longueurs de Rayleigh différentes et une intensité laser constante ( $3.10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>). La variation des taux d'ionisation suit les lois ADK et on néglige la phase atomique, on représente le déphasage toutes les femtosecondes de 0 à 100 fs, chaque courbe représente un instant de l'impulsion. La référence de phase est prise en sortie de milieu. Seul le cas correspondant à une grande longueur de Rayleigh permet de mettre en évidence une variation linéaire du déphasage avec  $z$  au voisinage du meilleur accord de phase.

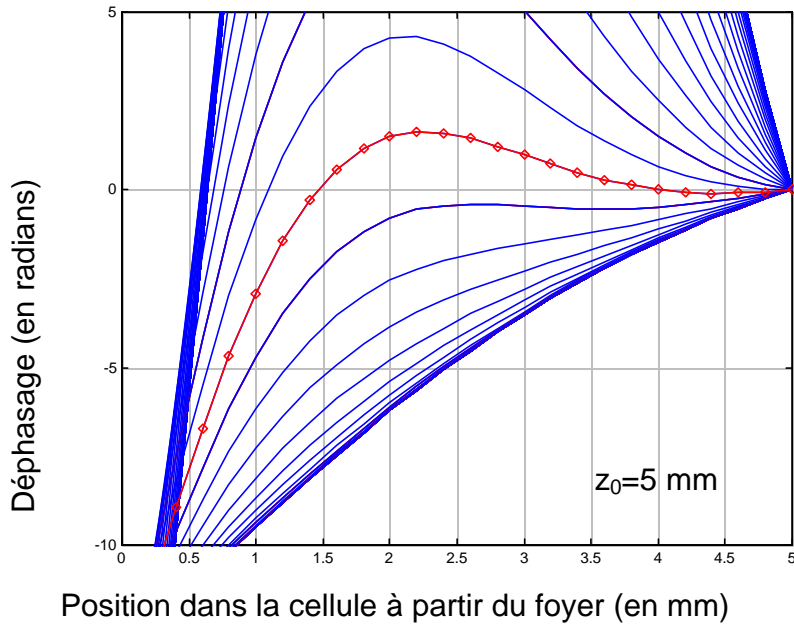


Figure 4.7 : Variation spatiale du déphasage entre l'harmonique 25 générée dans l'argon et le faisceau infrarouge. L'entrée de la cellule est placée au foyer du laser ( $z=0 \text{ mm}$ ), l'intensité vaut  $3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , la pression est de 20 torr et la longueur de Rayleigh de 5 mm. L'instant de meilleur accord de phase en fin de cellule est représenté par les losanges.

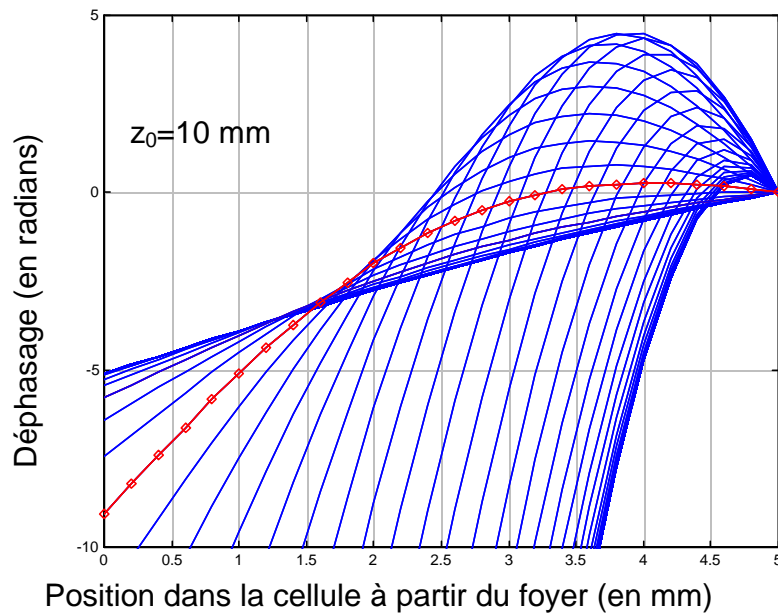


Figure 4.8 : Variation spatiale du déphasage entre l'harmonique 25 générée dans l'argon et le faisceau infrarouge. L'entrée de la cellule est placée au foyer du laser ( $z=0 \text{ mm}$ ), l'intensité vaut  $3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , la pression est de 20 torr et la longueur de Rayleigh de 10 mm. L'instant de meilleur accord de phase en fin de cellule est représenté par les losanges.

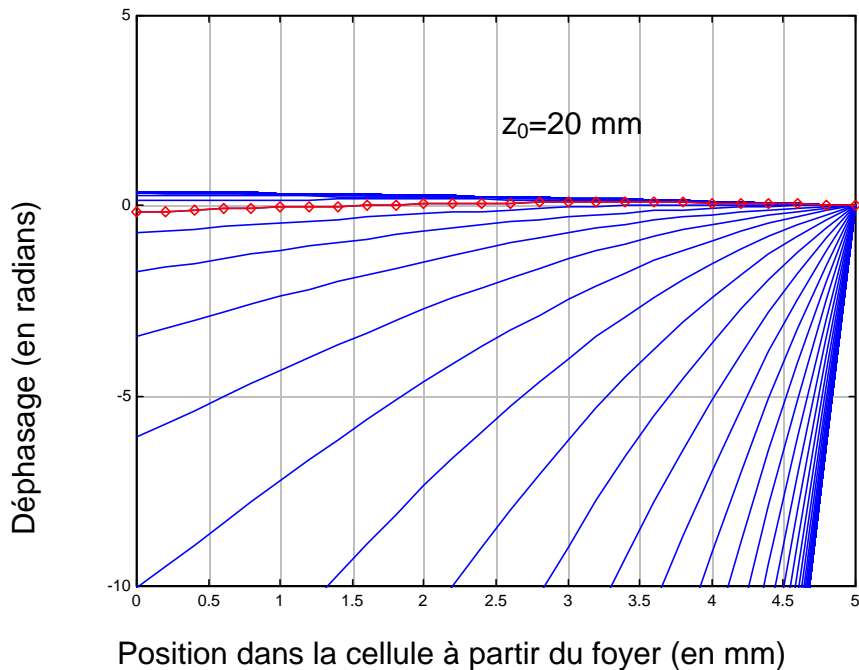


Figure 4.9 : Variation spatiale du déphasage entre l'harmonique 25 générée dans l'argon et le faisceau infrarouge. L'entrée de la cellule est placée au foyer du laser ( $z=0$  mm), l'intensité vaut  $3 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, la pression est de 20 torr et la longueur de Rayleigh de 20 mm. L'instant de meilleur accord de phase en fin de cellule est représenté par les losanges.

Par contre, le terme de gradient de phase atomique d'ordre le moins élevé en  $z$  est linéaire, donc sa variation au premier ordre est impossible à négliger, à moins que le terme de phase atomique tout entier soit négligeable devant les autres paramètres. On rappelle que c'est le cas du chemin 1 pour lequel  $\alpha$  est très faible. Ces conclusions sont en accord avec une remarque faite dans la référence [4]. Les auteurs avaient remarqué que leur code de simulation tridimensionnel permettait de voir des franges d'accord de phase uniquement lorsque la phase atomique liée au dipôle était négligée.

Cela explique que nous avons observé des franges très contrastées dans le cas où la cellule était placée avant le foyer, zone de prédominance du chemin 1. En effet, l'influence d'une forte phase atomique provenant du chemin 2 est dans ce cas contre-productive car le gradient de l'intensité détériore l'accord de phase sur l'axe. Le nombre de photons produits dans ces conditions est négligeable par rapport au nombre de photons produits en ne considérant que le premier chemin quantique. Par contre, si la cellule est placée après le foyer, les conclusions sont inversées et c'est le deuxième chemin quantique qui contribuera le plus au flux de photons.

On conclut ainsi que la configuration « longue focale » est une condition requise pour l'observation de ces franges (les mesures ont été faites pour un diaphragme de 12 mm de diamètre qui garantit une longueur de Rayleigh de 14 mm minimum). De plus, comme nous l'avons vu précédemment, le rôle de la phase atomique est minimisé en plaçant la cellule avant le foyer. Il est rare que toutes ces conditions nécessaires soient réunies dans une même expérience, ce qui



expliquerait pourquoi nous sommes les premiers à avoir observé des franges de Maker aussi contrastées.

#### 4.3.3. Vérification de nos hypothèses par le calcul des phases correspondant à l'instant du maximum de flux harmonique dans les conditions expérimentales

Notre code 1D est ici utilisé pour déterminer le flux de photons harmoniques dépendant du temps. Le maximum de flux est obtenu pour un instant dans l'impulsion correspondant à une certaine valeur de l'intensité laser et de l'ionisation dans le milieu. Quatre cas spécifiques sont alors comparés : pour une cellule courte placée 2 mm après le foyer ( $z=2\text{mm}$ ), on analyse séparément les cas des chemins 1 et 2. On fait de même pour la même cellule placée 2 mm avant le foyer ( $z=-2\text{ mm}$ ).

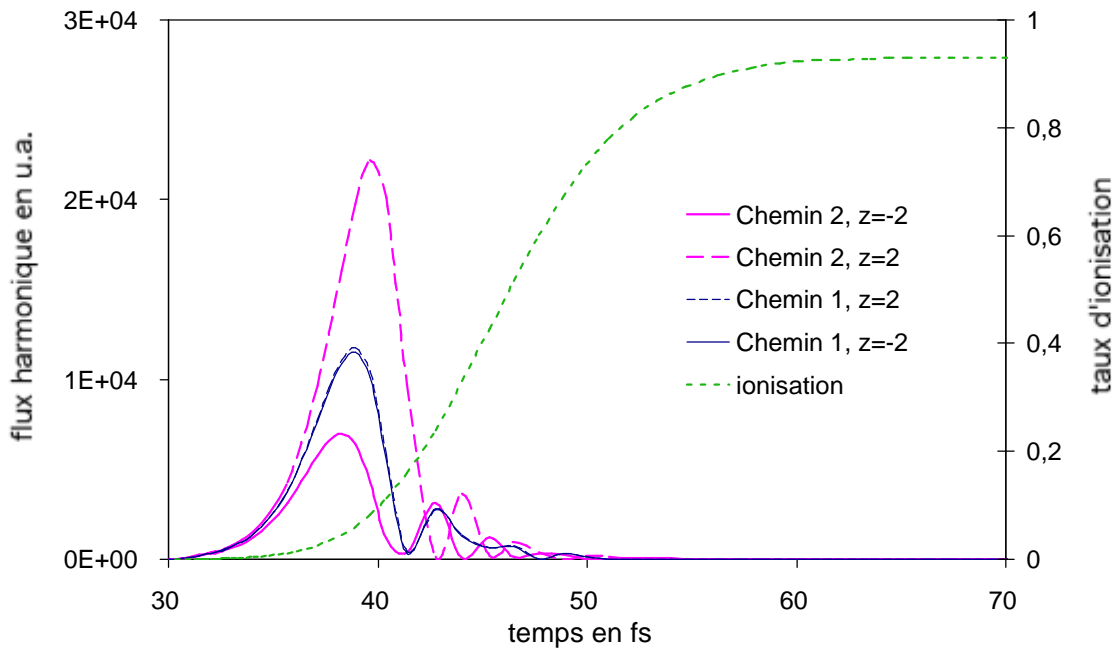


Figure 4.10 : Variation du flux de l'harmonique 25 dans l'argon en fonction du temps pour les deux chemins quantiques et pour deux positions de la cellule symétriques par rapport au foyer. Les conditions utilisées dans le code sont un diaphragme de 12 mm, une cellule de 1 mm et une pression de 15 torr. Le maximum de l'impulsion est centré sur 50 fs. Le taux d'ionisation est représenté en pointillés sur l'axe de droite.

La figure (4.10) permet d'abord de comparer les nombres de photons produits : dans le cas du chemin 2 ce nombre dépend fortement de la position de la cellule par rapport au foyer, tandis que le chemin 1 est indifférent à ce paramètre. Cela corrobore les conclusions du chapitre 3 selon lesquelles l'accord de phase est obtenu plus tard dans l'impulsion et est de meilleure qualité pour le chemin 2 que pour le chemin 1, dans le cas  $z$  positif. Le taux d'ionisation qui permet d'obtenir le maximum de flux correspond à 4 % environ.

Avec les valeurs de taux d'ionisation et d'intensité données par le maximum de flux harmonique, il est possible de reconstruire l'évolution du déphasage dans la cellule.

La figure suivante représente la variation spatiale du déphasage au sein d'une cellule de longueur 5 mm au moment du maximum du flux pour les deux chemins quantiques de part et d'autre du foyer.

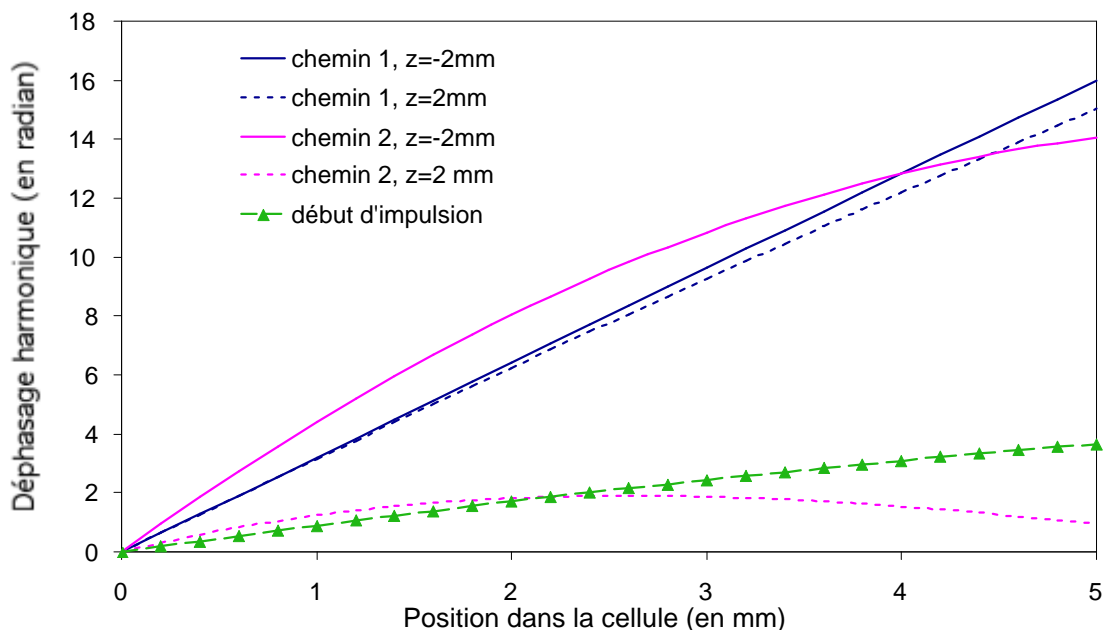


Figure 4.11 : Variation spatiale de la phase de l'harmonique 25 dans l'argon prise au moment du maximum de flux dans les conditions de la figure précédente, on différencie les deux chemins quantiques pour deux positions de cellule différentes.

On remarque tout d'abord que la phase induite par le premier chemin quantique est quasiment indifférente au signe de  $z$ , la position de la cellule par rapport au foyer. De plus, la variation de cette phase est bien linéaire dans nos conditions expérimentales. Le cas du deuxième chemin quantique est radicalement différent : la phase ne présente jamais de variation linéaire en  $z$ , que l'accord de phase soit bon comme dans le cas  $z$  positif, ou qu'il soit mauvais comme dans le cas  $z$  négatif. On met ainsi en évidence le fait que la variation du gradient de la phase atomique avec  $z$ ,  $y$  compris dans le cas d'une focalisation douce ne permet pas de définir une longueur de déphasage constante dans le milieu.

Cette figure permet de prouver que les franges observées expérimentalement dans le cas d'une cellule placée 2 mm avant le foyer sont bien issues de la contribution du chemin 1. La disparition des franges lorsque la cellule est placée après le foyer provient de la contribution du chemin 2 pour lequel la longueur de déphasage n'est pas constante dans le milieu tout en restant toujours supérieure à celle qui provient du chemin 1 (figure (4.11) : courbe en pointillés gris).

Nous avons donc établi des conditions nécessaires d'observation de franges d'accord de phase contrastées. La longueur de Rayleigh doit être grande devant la longueur de milieu et l'on doit se placer dans des conditions qui permettent de négliger le rôle du gradient de phase atomique. Tout cela permet de garantir que la longueur de déphasage est constante dans le milieu à un instant donné. Ces conditions ne sont pas des conditions suffisantes : il peut en outre exister des raisons temporelles de brouillage des franges, comme le montrent les résultats issus du code unidimensionnel.

#### 4.4. Le brouillage des franges et les limites du code unidimensionnel

##### 4.4.1. Brouillage temporel

Jusqu'à présent l'étude des franges a porté exclusivement sur l'instant du maximum de flux harmonique. Une étude complète nécessite de considérer tous les instants de l'impulsion qui contribuent à l'émission d'harmoniques. L'intégration temporelle est réalisée par le code avec les conditions initiales correspondant à l'expérience. On constate alors une forte diminution du contraste théorique obtenu, comme le montre la figure (4.12). On reproduit uniquement qualitativement le changement de comportement au passage du foyer, des effets de déphasage sont cependant décelables dans le cas  $z$  négatif.

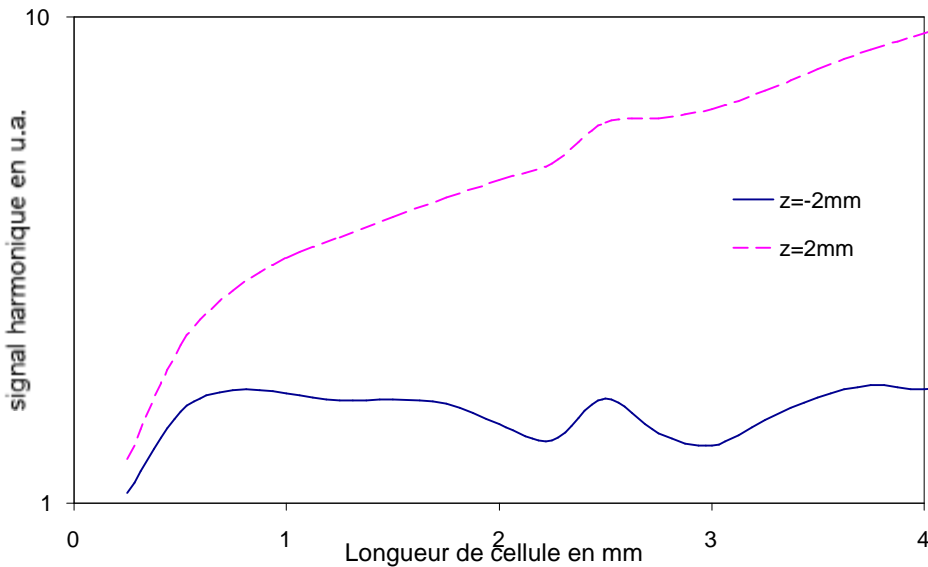


Figure 4.12 : Variation du signal de l'harmonique 25 dans l'argon en fonction de la longueur de cellule. Les valeurs proviennent du calcul par le code unidimensionnel avec comme conditions les valeurs expérimentales utilisées pour les figures précédentes. En trait continu, le signal harmonique pour une cellule placée 2 mm avant le foyer et en pointillé pour une cellule placée après le foyer.

Les contributions des deux chemins quantiques au flux de photons harmoniques sont sommées. Le léger rebond observé sur la courbe en pointillés, comme dans les résultats expérimentaux provient de l'addition du signal du chemin 1 qui induit une légère modulation au signal prédominant du chemin 2.

Du point de vue du code unidimensionnel, la perte de lisibilité des franges provient de la forte dépendance temporelle de la longueur de déphasage. Si le maximum de flux est obtenu à un instant tel que la longueur de déphasage correspond à la demie période des franges observées, les instants précédant ce maximum correspondent à une longueur de déphasage plus grande et ceux

qui suivent à une longueur de déphasage inférieure (voir figure ci-dessous). L'intégration sur l'ensemble des instants de l'impulsion diminue considérablement le contraste théorique. Les franges sont donc brouillées par la variation de la longueur de déphasage.

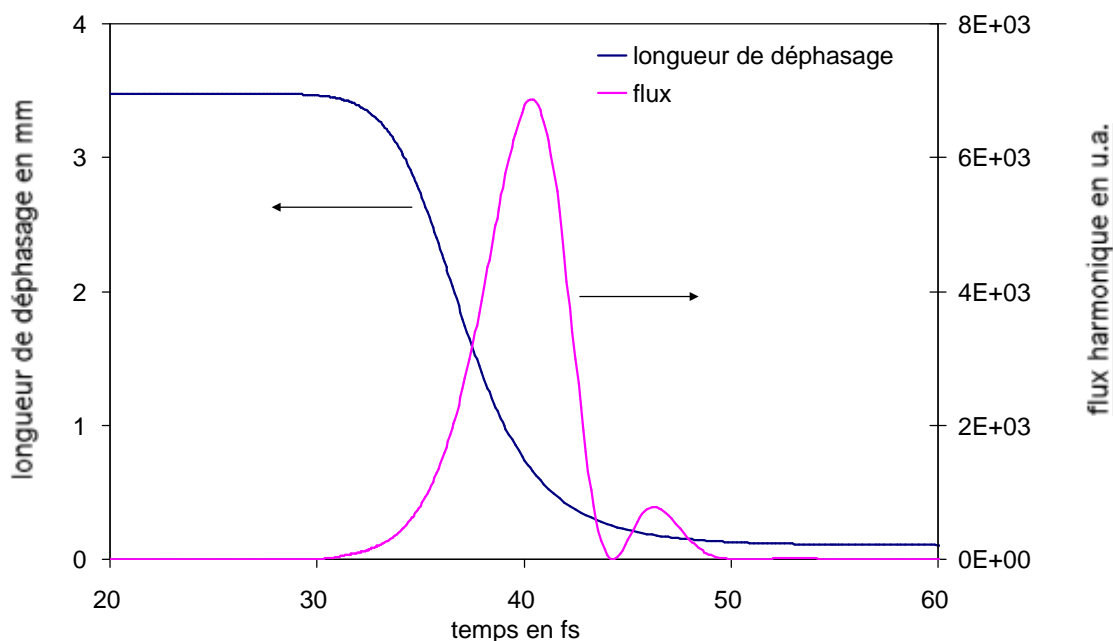


Figure 4.13 : Evolution conjointe de la longueur de déphasage et du flux de l'harmonique 25 en fonction du temps. Le maximum de l'impulsion correspond à 50 fs, on se place dans le cas  $z=-2$  mm et on étudie la contribution du chemin 1. Les conditions expérimentales sont analogues à celles des figures précédentes.

On remarque que dans les conditions expérimentales correspondant à l'observation de franges contrastées, la pression au sein de la cellule n'est pas suffisante pour que la dispersion atomique permette à la longueur de déphasage d'être infinie à un certain instant de l'impulsion, ceci réduit considérablement les possibilités de brouillage temporel des franges en limitant l'intervalle des valeurs que peut prendre la longueur de déphasage.

#### 4.4.2. Sélection spectrale

En réalité, le dépouillement des données a été fait non pas en intégrant le signal contenu dans toute une harmonique mais en ne considérant que le pixel correspondant au maximum de signal pour une harmonique donnée, ce qui revient à ne considérer qu'une seule fréquence pour une harmonique. C'est pourquoi, un meilleur accord avec les résultats expérimentaux a été obtenu par le code unidimensionnel en ne sélectionnant dans une harmonique donnée que la fréquence correspondant au maximum de signal dans le domaine spectral. En effet, comme nous le verrons dans le chapitre sur le contrôle spectral des harmoniques, une ionisation progressive du milieu peut conduire à une émission harmonique décalée par rapport à sa valeur nominale ( $q\omega$ ). Cet effet évolue au cours de l'impulsion et le fait de sélectionner spectralement le signal permet d'éviter de considérer des instants dans l'impulsion qui correspondent à une situation trop éloignée de celle qui aboutit au maximum de signal, avec notamment une longueur de déphasage très différente. On

limite ainsi une des causes de brouillage temporel des franges comme le montre la figure suivante, pour laquelle le contraste est meilleur que celui de la figure (4.12) :

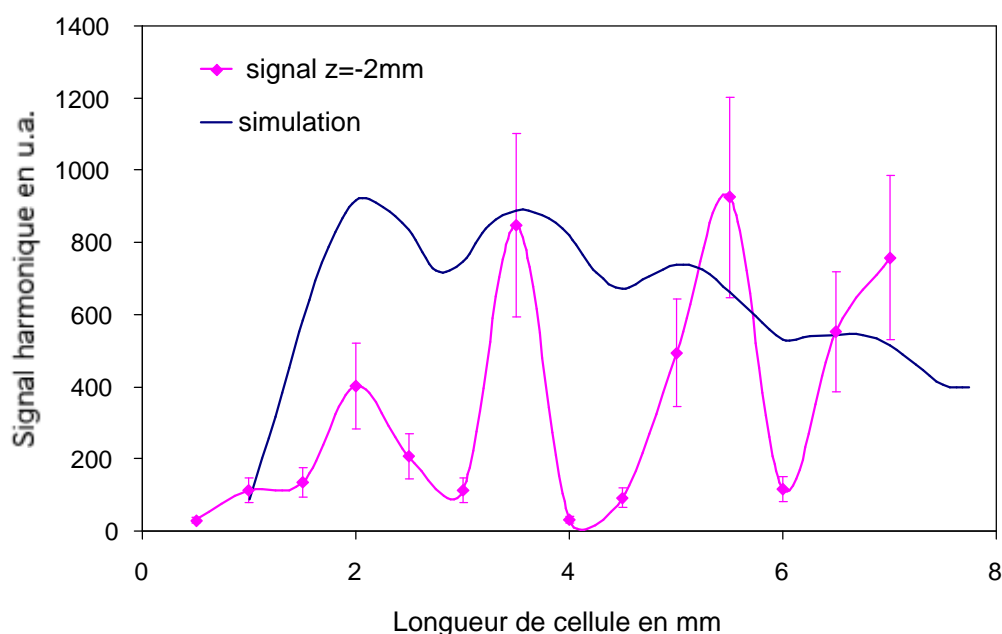


Figure 4.14 : Comparaison des données expérimentales correspondant au signal de l'harmonique 25 en fonction de la longueur de cellule pour  $z=-2$  mm avec les résultats du code unidimensionnel à sélection spectrale.

La période des franges obtenue par le code à sélection spectrale est très satisfaisante et correspond bien aux données expérimentales. Le contraste théorique est cependant moins important que le contraste mesuré, en raison du phénomène de brouillage des franges dû aux interférences dans le domaine spatial et qui est abordé dans la partie suivante.

#### 4.4.3. Influence de la longueur du milieu sur le flux harmonique

Nous avons également remarqué que la longueur de déphasage aboutissant à un flux optimum est influencée par la longueur du milieu, comme le montre l'équation 4.2. On voit là une application directe de la définition de longueur de déphasage : le signal harmonique peut se construire sur une longueur de déphasage et se détruire sur la longueur de déphasage suivante, et ainsi de suite alternativement. Le signal est maximal quand la longueur de milieu est un multiple impair de la longueur de déphasage et minimisé pour les multiples pairs.

Ainsi, pour une longueur de cellule donnée, la variation temporelle du flux instantané des harmoniques présente des minima locaux lorsque la longueur de déphasage se trouve être un sous multiple pair de la longueur de milieu. Par exemple, si la longueur du milieu est de 3 mm et que la longueur de déphasage est de 1,5 mm, le signal est pratiquement nul alors qu'il sera important pour une longueur de déphasage de 1 mm, pourtant inférieure à la valeur précédente. Dans nos conditions de génération, ce phénomène se produit parfois et induit un flux harmonique dont l'enveloppe temporelle est assez accidentée (rebonds de post-impulsion visibles sur les figures (4.10) et (4.13)). A longueur de milieu fixée, l'élimination de la variable temps entre la variation du flux et la variation de la longueur de déphasage permet de faire apparaître le flux instantané

comme fonction de la longueur de déphasage et explicite clairement cet effet que l'on peut qualifier de « franges de Maker temporelles ».

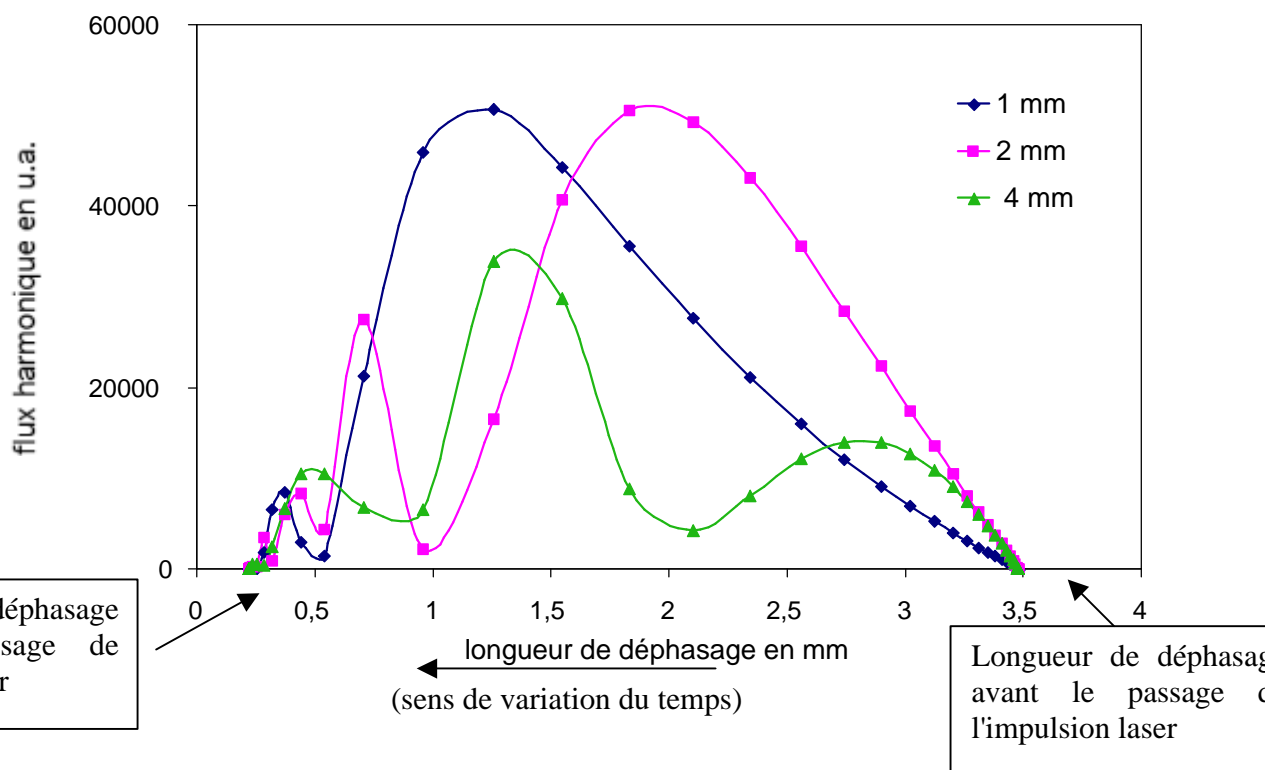


Figure 4.15 : Variation du flux harmonique en fonction de la longueur de déphasage pour différentes longueurs de cellule (1 mm représentés par des losanges, 2 mm par des carrés, 4 mm par des triangles), on observe des minima du flux instantané pour des longueurs de déphasage correspondant à la moitié de la longueur de la cellule.

On voit sur la figure précédente que, indépendamment de la valeur du dipôle à cet instant, le flux harmonique présente des « nœuds » correspondant à des valeurs de la longueur de déphasage égales à la moitié de la longueur du milieu (voire aussi au quart pour 4 mm de cellule). On peut en conclure que la longueur de déphasage prédominante, à longueur de milieu donnée, est celle qui permet d'obtenir le flux instantané maximum. Dans les conditions présentées ci-dessus, cette valeur sera environ 1,3 mm pour une cellule de longueur 1 ou 4 mm alors qu'elle sera beaucoup plus élevée pour une cellule de longueur 2 mm.

On souligne ainsi que ce phénomène devrait lui aussi contribuer à la diminution du contraste des franges. En effet, la longueur de déphasage susceptible de conduire à un flux harmonique maximum dépend de la longueur du milieu en raison de la relation entre ces deux longueurs.

En somme, la variation temporelle de la longueur de déphasage et sa dépendance en la longueur de milieu expliquent aisément la perte du contraste des franges observé par notre code unidimensionnel. Toutefois, cela ne permet pas de comprendre pourquoi le signal expérimental présente des franges aussi contrastées. La prise en compte des effets tridimensionnels et temporels à une échelle plus fine devrait donner l'explication ainsi que le suggère la référence [4] qui prédit

également des franges. Toutefois, l'interprétation du changement de comportement observé au passage du foyer, et les conditions nécessaires d'observation des franges en termes de chemins quantiques restent valides et nous ont permis de mieux comprendre les mécanismes d'accord de phase.

Une assurance complémentaire de la validité de notre interprétation des franges en termes de longueur de déphasage est apportée par l'étude du lien avec la longueur d'absorption et son influence sur le contraste.

#### 4.5. Influence de la longueur d'absorption sur le contraste

L'argon présente une grande variation de sa longueur d'absorption pour les ordres harmoniques les plus efficaces de son spectre. On rappelle que cette longueur passe de 0,61 mm pour l'harmonique 17 à 15 torr à 2,74 mm pour l'harmonique 25 dans les mêmes conditions. L'étude de la variation du signal harmonique en fonction de la longueur de milieu pour plusieurs ordres harmoniques successifs permet de montrer l'influence de cette longueur sur le contraste des franges.

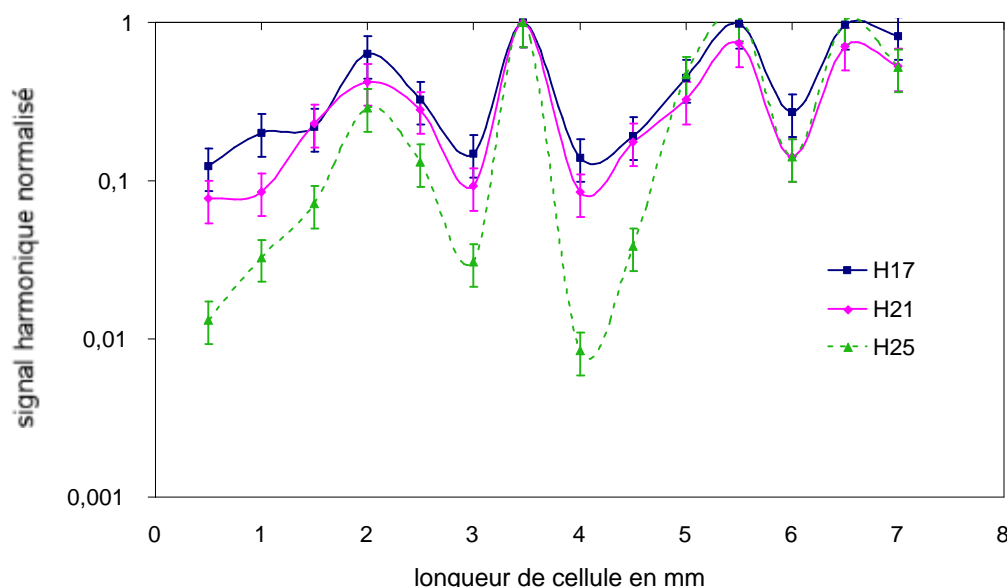


Figure 4.16 : Variation expérimentale du signal de trois harmoniques dans l'argon en fonction de la longueur de cellule. Les ordres harmoniques intermédiaires (19-23) ne sont pas représentés pour une plus grande lisibilité, mais font apparaître le même phénomène. Les conditions de mesure sont les suivantes : cellule de longueur variable dont l'entrée est placée 2 mm avant le foyer du laser, pression de 15 torr d'argon et diaphragme de 12 mm.

On observe sur ce graphique que le contraste des franges d'accord de phase augmente avec la longueur d'absorption. Si l'on considère que la longueur de déphasage est la même pour les trois ordres harmoniques étudiés, ainsi que les suggère la figure (même période pour les trois harmoniques), on peut calculer aisément le contraste à partir de la formule intégrée du flux de photons :

$$N_{out} \propto 1 + \exp(-l_{med}/l_{abs}) - 2 \cos(\mathbf{p}l_{med}/l_p) \exp(-l_{med}/2l_{abs}) \quad (4.5)$$

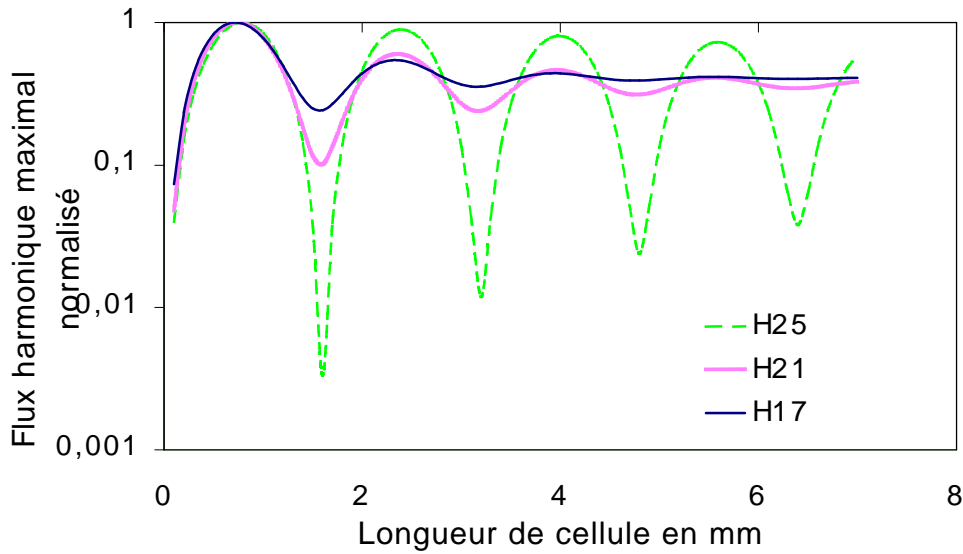


Figure 4.17 : Franges d'accord de phase calculées par la formule 4.5 pour une longueur de déphasage de 0,8 mm et pour les ordres harmoniques 17,21,25 correspondant respectivement à 0,61 mm,0,95 mm et 2,74 mm de longueur d'absorption pour 15 torr d'argon.

Le premier maximum de signal est obtenu pour  $l_{med} = l_{\pi}$ , et le premier minimum pour  $l_{med} = 2l_{\pi}$ , ce qui donne pour expression du contraste C, rapport du signal maximum sur le signal minimum:

$$\begin{aligned}
 Max(N_{out}) &= 1 + \exp(-l_p / l_{abs}) + 2 \exp(-l_p / 2l_{abs}) \\
 Min(N_{out}) &= 1 + \exp(-2l_p / l_{abs}) - 2 \exp(-l_p / l_{abs}) \quad (4.6) \\
 C &= \frac{1 + x + 2\sqrt{x}}{1 + x^2 - 2x} = \left( \frac{1 + \sqrt{x}}{1 - x} \right)^2; \text{ avec } x = \exp(-l_p / l_{abs})
 \end{aligned}$$

On démontre ainsi l'augmentation du contraste avec x, lui-même fonction croissante de  $l_{abs}$ . En effet, pour l'harmonique 17, x vaut 0,26 ce qui donne un contraste de 4. Pour l'harmonique 21, x vaut 0,43 est le contraste est de 8. Enfin, x vaut 0,76 pour l'harmonique 25 et le contraste prédit est d'au moins 60. L'accord entre notre modèle et l'expérience est très satisfaisant et permet d'expliquer la grande différence de comportement entre les harmoniques 25 et 17.

L'étude des franges d'accord de phase a permis d'approfondir les notions généralement utilisées pour décrire l'accord de phase. Nous avons notamment évoqué les paramètres qui expliquent la variation de la longueur de déphasage en temps et en espace. La spécificité de la configuration longue focale a été soulignée, de même que l'influence du gradient de phase atomique.

#### 4.6. Conclusion du chapitre

Cette étude détaillée des variations spatio-temporelles de la longueur de déphasage a permis de mettre en évidence l'importance de ce paramètre dans l'accord de phase. Nous avons



montré la première mesure directe de cette longueur par l'observation de franges de Maker en faisant varier la longueur du milieu. Les conditions nécessaires d'existence de franges nous ont permis une nouvelle fois d'insister sur la nouveauté et les caractéristiques spécifiques de la configuration longue focale. Il reste cependant des mécanismes non expliqués qui permettraient de comprendre pourquoi le contraste expérimental est meilleur que le contraste prédit par notre code unidimensionnel. Une généralisation au cas tridimensionnel ainsi qu'une étude plus détaillée de la variation des taux d'ionisation à l'échelle de temps de la période optique pourraient apporter la réponse.

#### **4.7. Références du chapitre 4**

- [1] L'Huillier et al., Phys. Rev. Lett. **68** 166 (1992)
- [2] Balcou et al., Phys. Rev. A, **47** 1447 (1993)
- [3] Durfee et al., Phys. Rev. Lett. **83** 2187 (1999)
- [4] Delfin et al., J. Phys. B **32** 5397 (1999)
- [5] Constant et al., Phys. Rev. Lett., **82** 1668 (1999)

## 5. Du rôle de la diaphragmation du faisceau

De nombreuses équipes ont constaté que le nombre de photons harmoniques en sortie de milieu peut être expérimentalement amélioré par l'ajout d'un diaphragme sur le faisceau infrarouge avant de le focaliser dans la cellule de gaz [1],[2]. Si cette modification est très simple à mettre en œuvre expérimentalement, et aussi très efficace, la compréhension complète de l'influence de la diaphragmation du faisceau sur la génération d'harmoniques est beaucoup plus délicate. La raison la plus souvent invoquée est l'accroissement du volume de génération par extension de la zone focale. Elle demeure cependant incomplète. L'objectif de ce chapitre est de présenter une étude exhaustive de l'influence de la diaphragmation du faisceau infrarouge sur la génération d'harmoniques. Nous verrons que les raisons invoquées ci-dessus ne sont qu'une part de la réalité et qu'il convient d'y ajouter des considérations allant du processus de génération du dipôle harmonique de l'atome unique à l'accord de phase dépendant du temps et aux effets de répartition transverse de l'énergie.

Nous avons réalisé une étude expérimentale complète de l'influence de la diaphragmation du faisceau sur la génération d'harmoniques en faisant varier la nature du gaz, l'énergie contenue dans l'impulsion laser ainsi que la position et la longueur de la cellule. L'optimum de taille de diaphragme observé correspond à un diaphragme relativement fermé et ce, quelles que soient les conditions de génération. Dans l'argon par exemple, la figure (5.1) montre deux spectres harmoniques enregistrés dans des conditions de générations identiques exceptée la taille du diaphragme. Le fait de diminuer le diamètre de ce dernier de 40 mm (pleine ouverture) à 10 mm nous a permis d'augmenter d'un facteur 10 le nombre de photons par harmonique en centre de spectre.

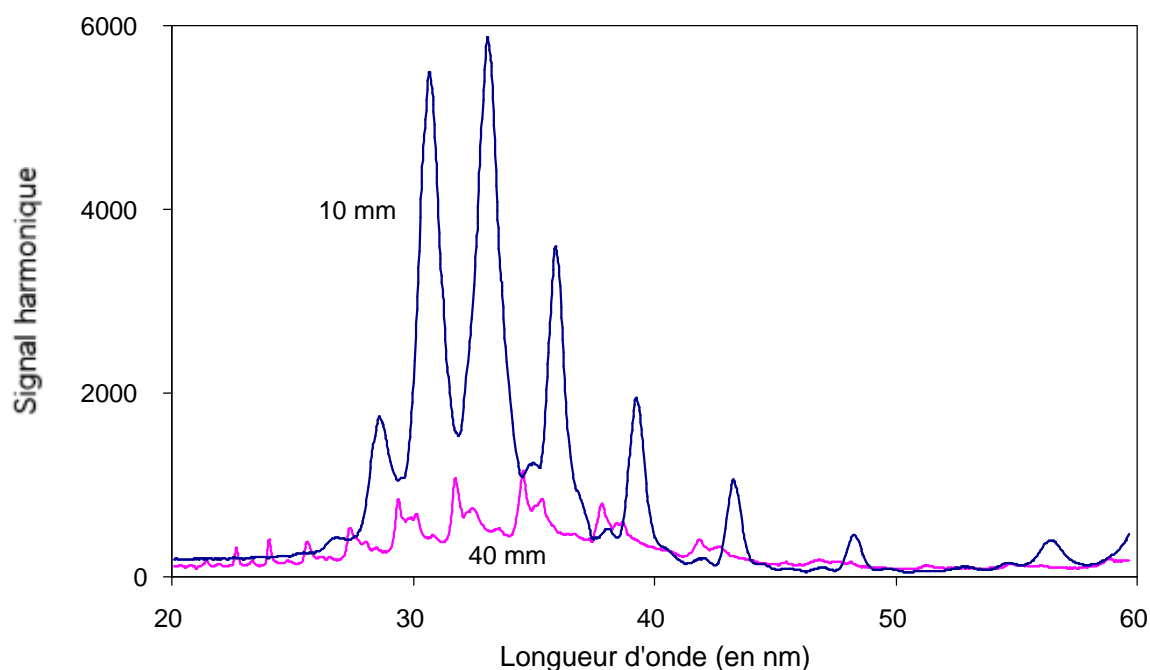


Figure 5.1 : Allures typiques de spectres harmoniques mesurés dans l'argon pour deux ouvertures caractéristiques de diaphragme. La cellule de 2 mm est placée au foyer du laser, la

*pression est de 10 torr. L'énergie laser avant diaphragmation est constante et le rapport des intensités au foyer est d'environ 40.*

Les mécanismes permettant un accroissement aussi considérable des flux de photons méritent donc d'être étudiés. Ainsi cette étude comportera dans sa première partie la caractérisation de l'influence du diaphragme sur la géométrie d'un faisceau gaussien. La deuxième partie sera consacrée à l'adaptation du code de calcul de l'accord de phase dépendant du temps aux conditions expérimentales. L'accord entre les résultats issus des simulations et les données est très satisfaisant et nous permet de comprendre l'influence de la diaphragmation du faisceau laser sur la génération d'harmoniques.

### **5.1. Rappels sur les faisceaux gaussiens et étude de la géométrie focale d'un faisceau diaphragmé**

Nous commencerons cette partie par un bref aperçu des propriétés de base des faisceaux gaussiens avant de nous concentrer sur les propriétés géométriques des faisceaux gaussiens diaphragmés.

#### 5.1.1. Équations de base pour les faisceaux gaussiens

Le faisceau en sortie de chaîne laser est supposé gaussien. L'équation qui donne l'intensité d'un faisceau en coordonnées cylindriques ( $r, z$ ) comptées par rapport au foyer est la suivante [2] :

$$I(r, z) = \frac{2P}{\pi w^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2}\right)$$

avec :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + (z/z_0)^2}$$

$w(z)$  caractérise la taille du faisceau,  $r$  est la distance du point considéré à l'axe de propagation du laser,  $z$  est la distance du point au foyer sur l'axe de propagation du laser,  $P$  est la puissance du laser et  $2P/\pi w^2$  l'éclairement sur l'axe.

Un faisceau gaussien est défini par sa longueur de Rayleigh  $z_0$  qui caractérise la taille longitudinale de sa zone focale. En effet,  $z_0$  est la distance qui sépare le foyer du point sur l'axe de propagation pour lequel l'intensité sur l'axe est divisée par deux. Le waist  $w_0$  (dit « col du faisceau » en Français) est la distance à l'axe pour laquelle l'intensité est divisée par  $1/e^2$ . Si  $z=0$ , il caractérise la taille latérale du foyer (c'est un rayon d'après la formule précédente). Il existe une relation valable uniquement pour les faisceaux gaussiens qui relie  $z_0$  et  $w_0$  :

$$I_{z_0} = \pi w_0^2 \quad (5.2)$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde du laser.

Le faisceau à étudier étant complètement caractérisé, on peut désormais en étudier le comportement en présence d'un diaphragme suivi d'une lentille. Le premier effet évident de la

diaphragmation du faisceau sur les caractéristiques du faisceau laser est la diminution de l'énergie transmise, mais la diffraction du faisceau par les bords de l'ouverture induit des effets géométriques non moins essentiels qui influencent la focalisation du faisceau.

### 5.1.2. Transmission d'un diaphragme

On suppose un diaphragme circulaire centré sur l'axe de propagation du faisceau, de rayon  $a$ . L'énergie du laser transmise par ce diaphragme est l'intégrale de l'intensité entre 0 et  $a$  et vaut :

$$T = \frac{2}{\pi w^2} \int_0^a 2\pi r \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2}\right) dr = 1 - \exp(-2a^2 / w^2) \quad (5.3)$$

Le waist du faisceau laser de la « salle rouge » a ainsi été mesuré par adéquation entre la formule précédente et les données expérimentales de transmission présentées sur la figure 5.2.

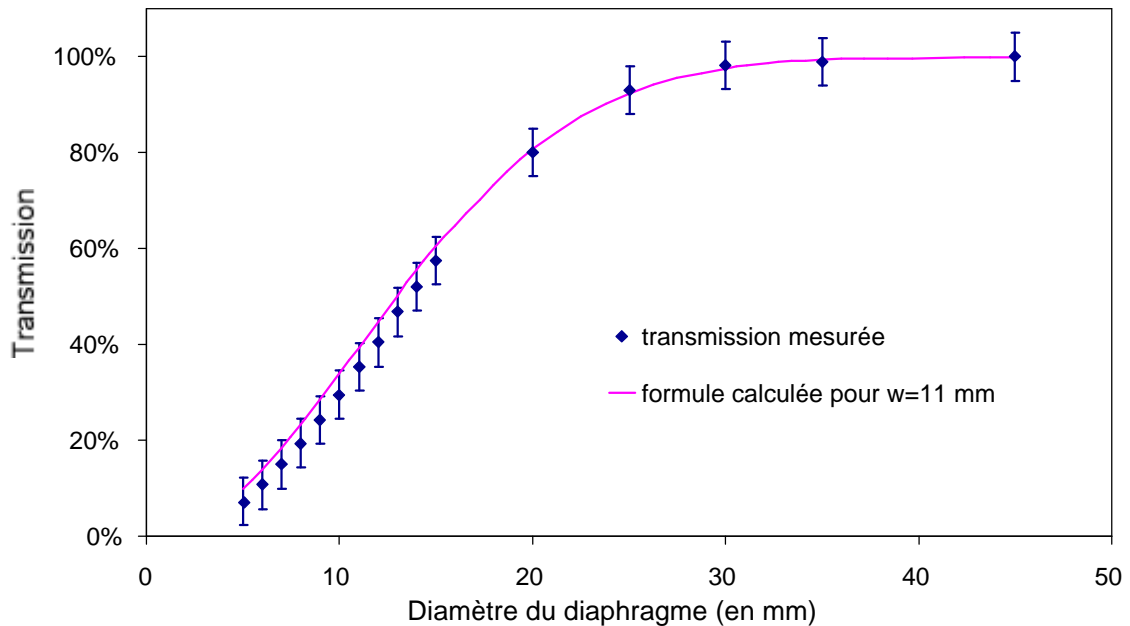


Figure 5.2 : Détermination expérimentale du waist du laser de la salle rouge au moyen d'un wattmètre. L'énergie transmise est mesurée à diaphragme variable et le waist du laser est le rayon du diaphragme qui transmet 86 % de l'énergie ; il vaut ici 11 mm.

La valeur obtenue est de 11 mm, elle correspond au rayon du diaphragme qui transmet 86% de l'énergie du laser. Cette valeur est bien inférieure à la valeur intuitive qui découle de l'observation du faisceau à l'œil nu. En effet, la valeur du diamètre du diaphragme qui transmettrait 99 % de l'énergie est  $\pi w$  soit ici près de 33mm. Cette dernière valeur est par exemple celle qu'il convient de considérer comme valeur strictement minimale des diamètres des optiques se trouvant sur le trajet d'un tel faisceau, si l'on veut pouvoir négliger tout effet de diaphragmation. Dans le cas que nous étudions, les ouvertures de diaphragme sont bien inférieures à cette valeur et les effets de la diaphragmation se font ressentir fortement.

### 5.1.3. Focalisation d'un faisceau diaphragmé

Dans le cas général, pour un faisceau gaussien non diaphragmé, la taille du faisceau, au foyer d'une lentille de focale  $f$ , est inversement proportionnelle à son diamètre initial  $w$  sur la lentille.

$$w_0 = \frac{fI}{pw} \quad (5.4)$$

on en déduit aisément la nouvelle distance de Rayleigh :

$$z_0 = pw_0^2 / I = \frac{If^2}{pw^2} \quad (5.5)$$

Le cas des faisceaux diaphragmés est plus délicat car un faisceau gaussien diaphragmé par un iris de rayon  $a$  n'est pas un faisceau gaussien de rayon  $a$ .

Dans ce cas précis, il faut recourir à une intégrale de diffraction de Fresnel. En symétrie cylindrique, cette intégrale bidimensionnelle se réduit à une intégrale unidimensionnelle dans le plan transverse contenant le diaphragme suivant la variable sans dimension du rayon  $r_0/a$  (de 0 à 1). La transformation donnant le champ diffracté en tout point  $(r,z)$  de l'espace s'appelle transformée de Hankel, et est donnée par [3] :

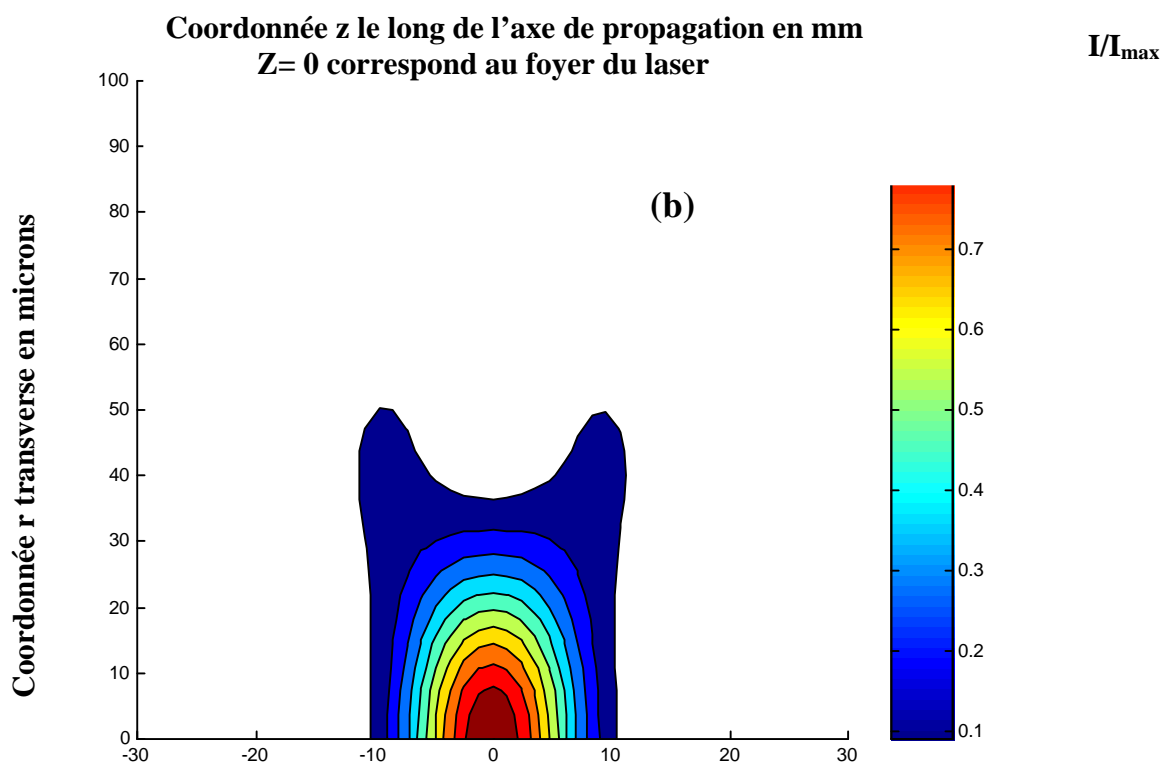
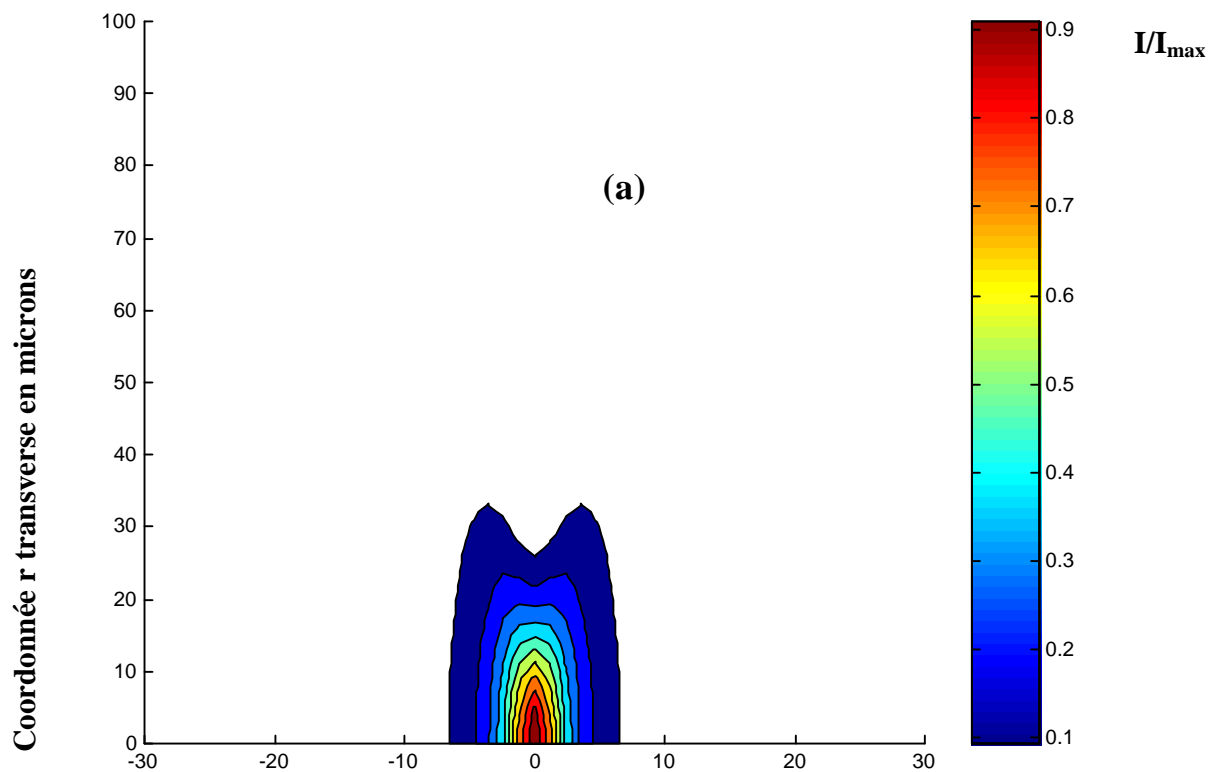
$$u(r, z) = i2pNe^{-ipN\left(\frac{r}{a}\right)^2} \int_0^1 r_0 \frac{u_0(r_0)}{a} e^{-ipN\left(\frac{r_0}{a}\right)^2} J_0\left(\frac{2pNrr_0}{a^2}\right) d\left(\frac{r_0}{a}\right) \quad (5.6)$$

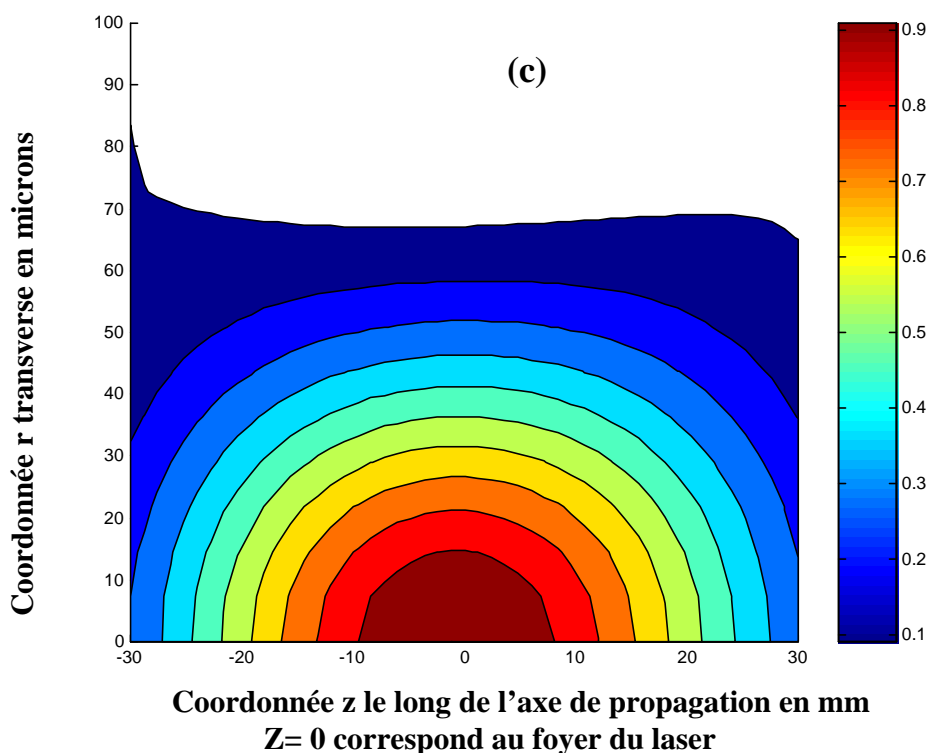
avec  $N = \frac{a^2}{zI} = \text{nombre de Fresnel}$

$u_0(r_0)$  est le champ du laser non diaphragmé et contient le terme de focalisation :  $\exp(-ikr^2 / 2f)$ .

Cette intégrale est calculée par un programme Matlab et permet de visualiser la zone focale du laser. On s'intéresse ici à la répartition de l'énergie au voisinage du foyer. Les trois figures suivantes sont à la même échelle et représentent la zone focale d'un faisceau gaussien de waist 11 mm, valeur mesurée pour le laser de la « salle rouge », pour différentes diaphragmations. La figure (a) correspond à un faisceau non diaphragmé, (b) à un faisceau diaphragmé par un iris de taille égale au waist du laser. Enfin, la figure (c) représente un faisceau diaphragmé par un iris de taille égale à la moitié du waist du laser.

Les éclaircissements sont normalisés à 1 au foyer et l'échelle de couleur distingue 10 zones dont le contour délimite des valeurs de l'éclaircissement séparées d'un dixième de la valeur maximale.





*Figure 5.3 : Représentations en fausses couleurs de l'intensité au voisinage du foyer d'un faisceau gaussien de waist 11 mm diaphragmé par un iris de rayon infini (figure (a)), de rayon 11 mm (figure (b)) et enfin de rayon 5.5 mm (figure (c)) puis focalisé par une lentille de focale 1 mètre. La longueur de Rayleigh est définie comme la coordonnée sur l'axe de propagation pour laquelle l'intensité est divisée par deux. (zone en jaune-vert si la figure est en couleur).*

La juxtaposition de ces trois figures permet d'illustrer de façon concrète les modifications induites sur la géométrie du foyer par la diaphragmation du faisceau. On observe un élargissement très important de la zone de Rayleigh, dont l'étendue est accrue d'un facteur six quand le faisceau est diaphragmé par un iris d'ouverture égale à la moitié de son waist. La même constatation peut être faite pour l'extension transverse du faisceau et l'éclairement s'en trouve très diminué par la diaphragmation, d'une part par l'effet de la transmission du diaphragme, d'autre part, par les effets géométriques induits au foyer.

Pour la suite de nos études, il est important de déterminer les deux paramètres intensité et longueur de Rayleigh pour les faisceaux gaussiens diaphragmés et qui serviront de conditions initiales au code présenté en détail au chapitre 3. On considérera que la détermination de ces deux valeurs permet de définir complètement la géométrie du foyer d'un faisceau diaphragmé. Ceci n'est toutefois qu'une approximation car la propagation d'un faisceau fortement diaphragmé s'éloigne de la configuration purement gaussienne comme le montrent les figures ci-dessus. En particulier la relation  $\lambda z_0 = \pi w_0^2$  n'est plus valide. C'est pourquoi l'intensité est obtenue par le

calcul de l'extension transverse du faisceau ( $w_0$ ), alors que la longueur de Rayleigh est déterminée par l'étude de la répartition longitudinale de l'énergie.

#### 5.1.4. Intensité sur l'axe et longueur de Rayleigh

En appliquant cette étude au cas du laser de la salle rouge, on obtient la figure (5.4), qui donne l'intensité au foyer et la longueur de Rayleigh d'un faisceau diaphragmé de waist initial 11 mm

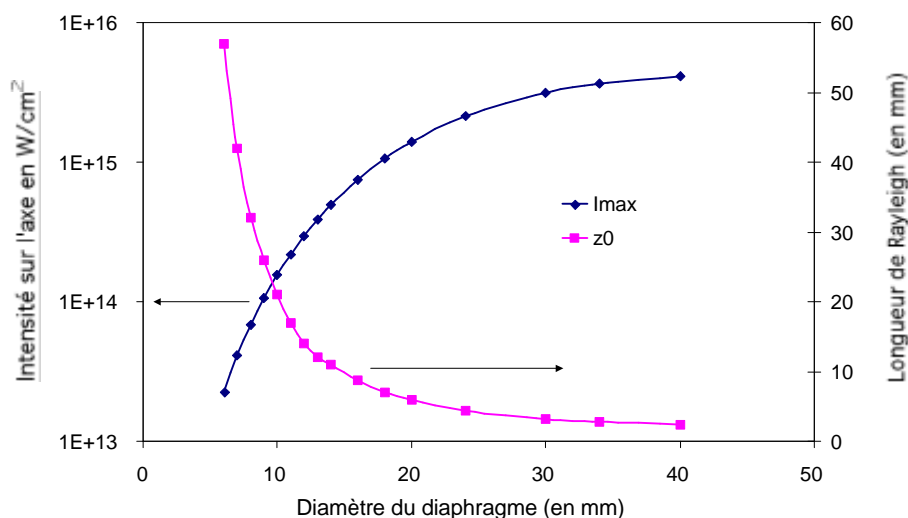


Figure 5.4 : Variation de l'intensité sur l'axe au foyer, et de la longueur de Rayleigh en fonction de la taille du diaphragme pour un faisceau de waist 11 mm (diamètre 22mm) focalisé par une lentille de focale 1m.

Le tableau suivant récapitule les valeurs de la figure (5.4) obtenues pour la longueur de Rayleigh par le calcul sur un faisceau de diamètre 22 mm, focalisé par une lentille de focale 1 m :

Diamètre du diaphragme (en mm)	Longueur de Rayleigh en mm	Imax en W/cm <sup>2</sup>
6	57	2,29E+13
7	42	4,14E+13
8	32	6,85E+13
9	26	1,06E+14
10	21	1,55E+14
11	17	2,18E+14
12	14	2,95E+14
13	12	3,87E+14
14	11	4,94E+14
16	8,7	7,52E+14
18	7	1,06E+15
20	5,94	1,40E+15
24	4,42	2,15E+15
30	3,23	3,16E+15
34	2,8	3,65E+15
40	2,43	4,10E+15



On remarque immédiatement que la valeur de l'intensité au foyer d'un faisceau diaphragmé est extrêmement sensible à la taille du diaphragme. En effet, les deux effets de transmission d'une part, et de répartition de l'énergie d'autre part vont dans le même sens : pour un diaphragme assez fermé l'énergie laser est moindre et moins concentrée.

Ces deux effets ne varient cependant pas de façon identique suivant le paramètre  $z$  et il est intéressant de remarquer qu'à une certaine distance finie non nulle du foyer, l'intensité n'est plus une fonction purement croissante de la taille du diaphragme. La figure (5.5) présente la variation de l'intensité laser sur l'axe à différentes distances du foyer en fonction de la taille du diaphragme. On note tout d'abord sans surprise qu'à ouverture de diaphragme donnée l'intensité décroît avec la distance au foyer mais que la variation de l'intensité avec la taille du diaphragme à  $z$  fixé présente un optimum suivi d'une décroissance douce. Cette décroissance vient du fait que la dimension de la zone de Rayleigh diminue pour un diaphragme ouvert et qu'un point sur l'axe défini par son abscisse  $z$  se retrouve hors de cette zone (dite de champ proche) pour un diaphragme ouvert. Dans ces conditions de champ intermédiaire, l'intensité décroît plus vite à travers le terme en  $1/(1 + z/z_0)^2$  qu'elle ne croît grâce à l'augmentation de la transmission :

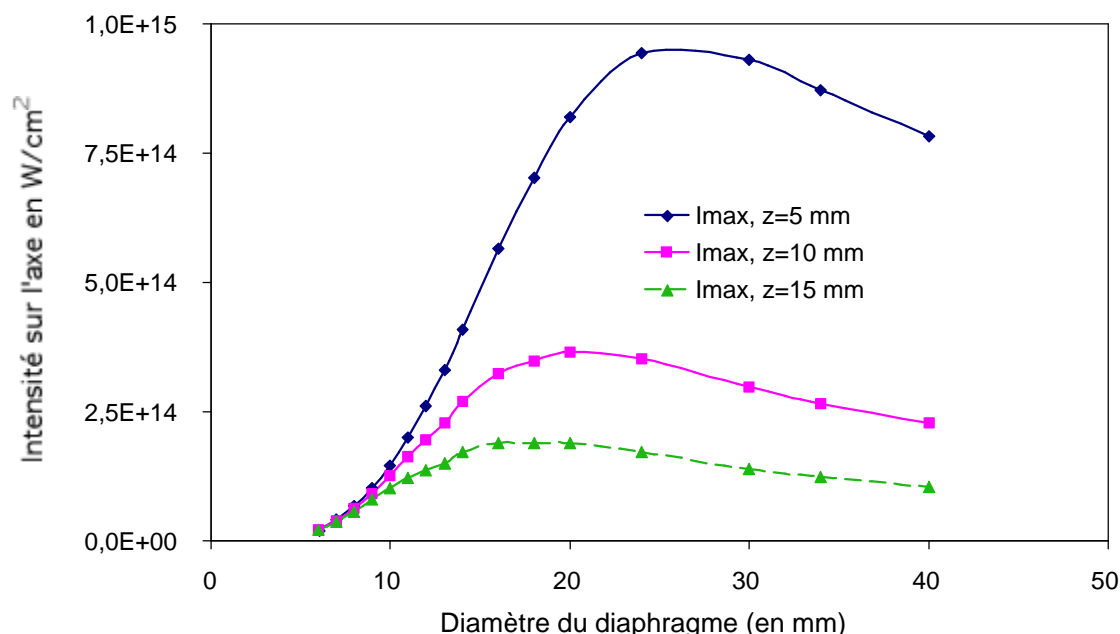


Figure 5.5 : Evolution de l'intensité sur l'axe à une distance non nulle du foyer en fonction de la taille du diaphragme

### 5.1.5. Extension transverse du faisceau

Le code de calcul de l'accord de phase présenté dans le chapitre 3 considère la génération et la propagation d'harmoniques le long d'une seule dimension et permet de comprendre de nombreux résultats expérimentaux. Dans le cas de l'étude de l'influence de la diaphragmation du faisceau, il convient de rendre correctement compte du fait que l'extension transverse du faisceau est fortement influencée par la taille du diaphragme. Le modèle présenté dans ce paragraphe considère que le nombre de photons prédit par le code unidimensionnel doit être pondéré par la variation de la surface transverse de la source d'harmoniques. Cette approximation est assez radicale car elle néglige tout effet d'accord de phase tridimensionnel et suppose que l'accord de

phase ne dépend pas de la coordonnée radiale  $r$ . Elle permet cependant de mettre en évidence simplement un des intérêts majeurs de la diaphragmation du faisceau : le facteur multiplicatif introduit est la surface transverse de faisceau qui garantit une intensité suffisante pour générer une harmonique donnée. Pour la suite, on assimilera un faisceau gaussien diaphragmé à un faisceau gaussien dont les paramètres sont ceux que nous avons obtenus par le calcul complet de l'intégrale de diffraction. Cette hypothèse permet de calculer analytiquement la taille de la zone émissive, c'est-à-dire la surface transverse du faisceau pour laquelle l'intensité est supérieure à l'intensité minimale requise pour qu'une harmonique soit dans le plateau. Cette intensité seuil est notée  $I_q$  car elle varie avec l'ordre harmonique, d'après la loi dite de coupure présentée au début du chapitre 3. On note également  $I_{\max}$  l'intensité au foyer du faisceau.

D'après la formule (5.1), le rayon  $r$  tel que  $I(r,z)=I_q$  est :

$$r = \frac{w}{\sqrt{2}} \sqrt{\ln \frac{I(z,0)}{I_q}} \quad (5.7)$$

avec  $w = w_0 \sqrt{1 + (z/z_0)^2}$

La surface émissive pour une harmonique  $q$  donnée est alors :

$$S = \pi r^2 = \frac{I z_0}{2} \left( 1 + \left( \frac{z}{z_0} \right)^2 \right) \ln \left( \frac{I_{\max}}{I_q (1 + (z/z_0)^2)} \right) \quad (5.8)$$

La variation de  $S$  avec la taille du diaphragme au premier ordre est liée à  $z_0$ . Cette valeur sera utilisée pour les simulations ultérieures, sauf mention contraire. La diaphragmation du faisceau permet donc d'accroître la zone émissive d'harmoniques en réalisant un élargissement de la zone focale dans le plan transverse. Cet élargissement n'a d'intérêt que tant que l'intensité reste suffisamment élevée dans le milieu pour que la réponse atomique soit importante. Dans le cas contraire,  $S$  devient négatif et l'harmonique étudiée ne se trouve plus dans le plateau.

L'étude géométrique de la focalisation des faisceaux gaussiens tronqués a permis de mettre en évidence l'influence de la taille du diaphragme sur l'extension de la zone focale. Cette extension est caractérisée par la longueur de Rayleigh qui croît très rapidement à mesure que le diaphragme est fermé. Allié à la diminution de la transmission, ce phénomène contribue à la diminution de l'intensité laser. Cependant si cette dernière reste supérieure à un certain seuil, le volume émissif d'harmoniques sera plus important.

Maintenant que l'effet de la fermeture du diaphragme sur la géométrie du faisceau infrarouge est totalement explicité, on se propose de détailler dans le paragraphe suivant, l'effet de la taille du diaphragme sur la génération d'harmoniques proprement dite.

## **5.2. Influence de la diaphragmation du faisceau sur la génération d'harmoniques**

### **5.2.1. Simple dépendance en paramètre confocal**

Nous avons vu que le paramètre caractérisant l'effet de la diaphragmation d'un faisceau gaussien focalisé était la longueur de Rayleigh de ce faisceau, égale par définition à la moitié du

paramètre confocal, communément noté  $b$ . Il est connu depuis longtemps que la génération d'harmoniques dépend fortement de  $b$ , ainsi dans la référence [4], l'influence de ce paramètre sur le nombre de photons harmoniques émis dans le xénon a été étudiée numériquement dans des conditions laser très différentes des nôtres (régime picoseconde et focalisation forte). Les résultats numériques sont présentés dans la figure (5.6). Le comportement global des flux harmoniques avec  $b$  est très caractéristique.

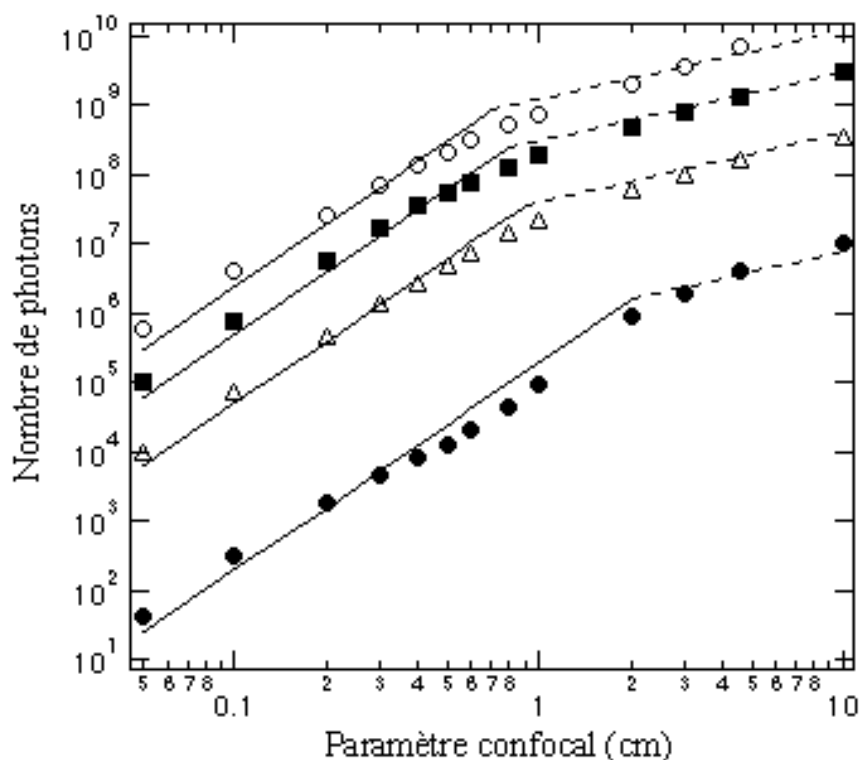


Figure 5.6 : Variation en fonction du paramètre confocal du nombre de photons des harmoniques 7 (cercles vides), 13 (carrés pleins), 19 (triangles vides), et 25 (cercles pleins) générées dans le xénon. La pression est de 15 torr et la longueur de milieu de 0,8 mm, tandis que l'intensité atteinte par le laser de durée 1,2 ps est de  $4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Les points obtenus sont le résultat d'un calcul numérique.

Deux zones sont clairement distinctes sur la figure ci-dessus. Pour des valeurs du paramètre confocal assez limitées, le signal harmonique varie comme la puissance troisième de  $b$ . Un phénomène de saturation du signal est observé pour des  $b$  plus élevés pour lesquels le signal ne croît plus que linéairement avec  $b$ . Cette étude est valable dans le cas où la longueur de déphasage ( $l_\pi$ ) dépend uniquement du gradient de phase de Gouy (régime de forte focalisation:  $l_\pi \propto b$ ). Pour une longueur de milieu inférieure à  $l_\pi$ , l'accord de phase impose une dépendance quadratique avec  $b$  (voir chapitre 3) suivie d'une saturation. La dépendance supplémentaire en  $b$  est la dépendance linéaire de la surface de la zone émissive (équation 5.2).

Cette étude ne s'applique pas à nos résultats expérimentaux qui correspondent à un régime de focalisation douce pour lequel l'accord de phase dépend également des termes de dispersion, eux-mêmes fonction du temps (chapitre 3). De plus, les simulations sont faites en considérant uniquement le paramètre confocal à intensité constante, ce qui n'est pas le cas dans une expérience

de diaphragmation du faisceau. Or, l'intensité laser a des conséquences importantes sur la réponse atomique du milieu (terme de dipôle), tout comme sur sa réponse macroscopique (l'ionisation influence notablement le déphasage). Les deux effets cités peuvent avoir de plus une dépendance temporelle assez complexe. Ainsi, l'effet de la diaphragmation du faisceau sur la génération d'harmoniques couple des phénomènes spatio-temporels au niveau de l'atome unique et de la réponse collective du milieu par l'accord de phase. C'est pourquoi une étude plus complète est requise pour rendre compte correctement des données que nous présentons dans le paragraphe suivant.

### 5.2.2. Allure générale des courbes nombre de photons harmoniques en fonction de la taille du diaphragme

Les mesures que nous avons réalisées du nombre de photons harmoniques collectés en fonction de la taille du diaphragme nous permettent de mettre en évidence un comportement assez général quelle que soit la nature du gaz étudié (figures (5.7), (5.8), (5.9) et (5.12)). Tant que le diaphragme est trop fermé pour que l'éclairement atteigne l'intensité de coupure pour une harmonique donnée, il n'y a pas de signal. Ensuite, le maximum est atteint très rapidement et correspond à un diaphragme dont la taille est environ la moitié du waist du laser dans nos conditions expérimentales. La décroissance est plus douce par la suite et la valeur du nombre de photons harmoniques tend vers une asymptote quand la taille du diaphragme est grande devant le waist du laser. Ce comportement général est parfaitement illustré dans le cas du néon par la figure (5.7).

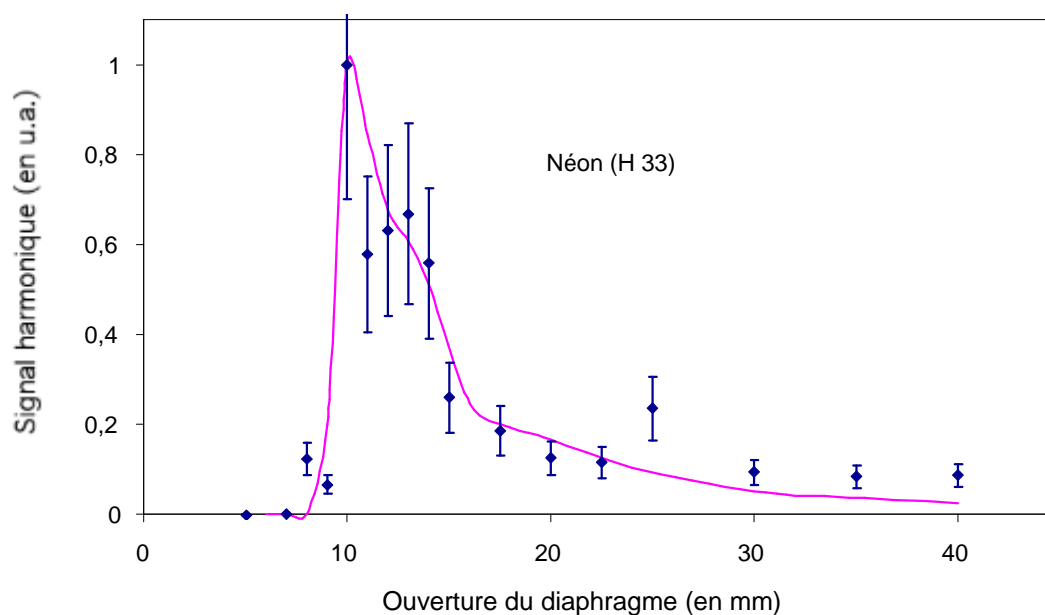


Figure 5.7 : Variation du signal de l'harmonique 33 observée dans le néon pour une énergie laser incidente de 6 mJ. Cellule de 2 mm, 10 torr de néon, foyer en entrée de cellule. Les carrés pleins correspondent aux mesures expérimentales et la ligne continue aux résultats du code.

Les conditions de génération d'harmoniques ont été choisies ici pour insister sur l'effet pur du diaphragme en minimisant d'autres effets parasites tels que la propagation par exemple. C'est pourquoi la cellule est prise assez courte et la pression assez faible. On se place de plus au foyer

pour s'affranchir de l'effet de la phase atomique (gradient d'intensité nul en ce point). Dans ces conditions le code unidimensionnel donne de très bons résultats en accord avec les données. Les calculs ont été réalisés par intégration du flux harmonique en fonction du temps. Les paramètres variables avec la taille du diaphragme, à savoir l'intensité au foyer et la longueur de Rayleigh, sont ceux calculés par l'intégrale de diffraction de Fresnel et sont introduits comme conditions initiales du code. Il est intéressant de remarquer que si on raisonnait en termes d'efficacité de conversion au lieu de nombre de photons, la courbe serait encore plus piquée autour de son maximum étant donné que le dénominateur (l'énergie sur cible) augmente avec la taille du diaphragme.

Dans le cas de la génération d'harmoniques dans l'argon, le comportement est tout à fait semblable. On note également sur la figure (5.8) que l'ordre harmonique au voisinage du centre de spectre a peu d'influence sur la valeur de l'ouverture du diaphragme qui donne le maximum de signal. On observe seulement un très léger décalage, logique en vertu de la loi de coupure, vers les diaphragmes plus ouverts pour les harmoniques plus élevées. Cette relative invariance provient du fait que l'intensité au foyer varie extrêmement rapidement avec l'ouverture du diaphragme et qu'ainsi 1 mm supplémentaire permet de faire entrer simultanément plusieurs harmoniques dans le plateau. Le comportement serait très différent pour des harmoniques d'ordre réellement très élevé, que nous n'avons pu détecter dans notre expérience. En effet, la transition plateau - coupure imposerait un diaphragme optimum bien plus ouvert.

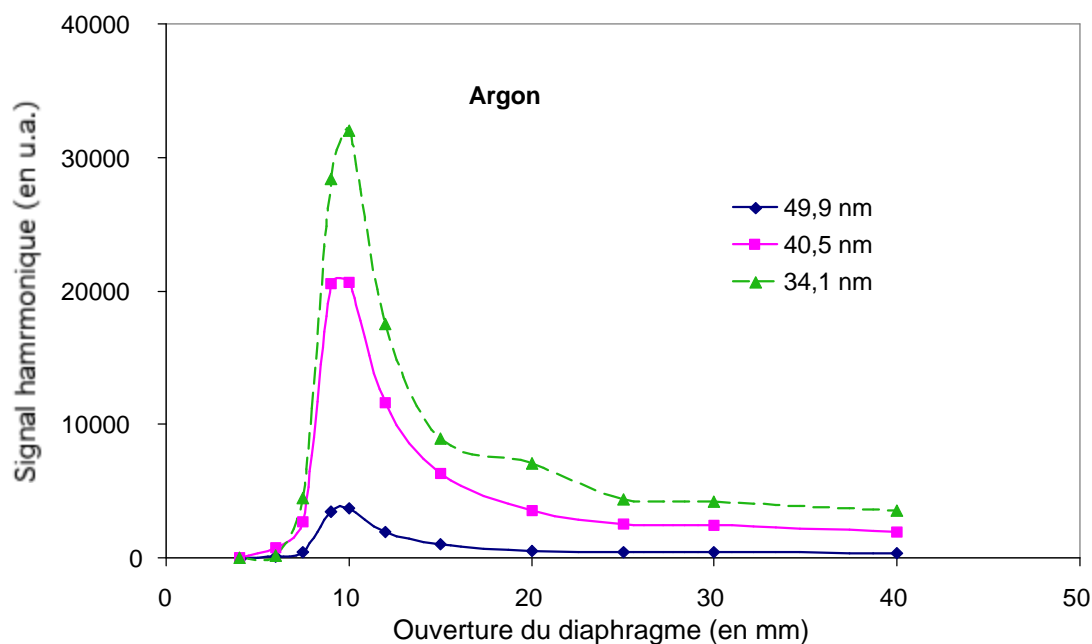


Figure 5.8 : Variation expérimentale du signal de trois harmoniques correspondant l'une à une harmonique basse du spectre (49,9 nm symbolisée par des losanges), l'autre à une harmonique centrale (40,46 nm symbolisée par des carrés) et la troisième à une harmonique haute (34,1 nm symbolisée par des triangles). Le spectre est observé dans l'argon pour une énergie laser incidente de 6 mJ. Conditions de génération : cellule de 2 mm, 10 torr d'argon, foyer en entrée de cellule.

### 5.2.3. Aspect temporel de l'optimisation

Le code unidimensionnel permet de regarder plus finement ce qui se passe temporellement quand le diaphragme est fermé. On prendra comme exemple le cas de l'harmonique 21 dans l'argon qui correspond aux conditions de génération de la figure (5.9).

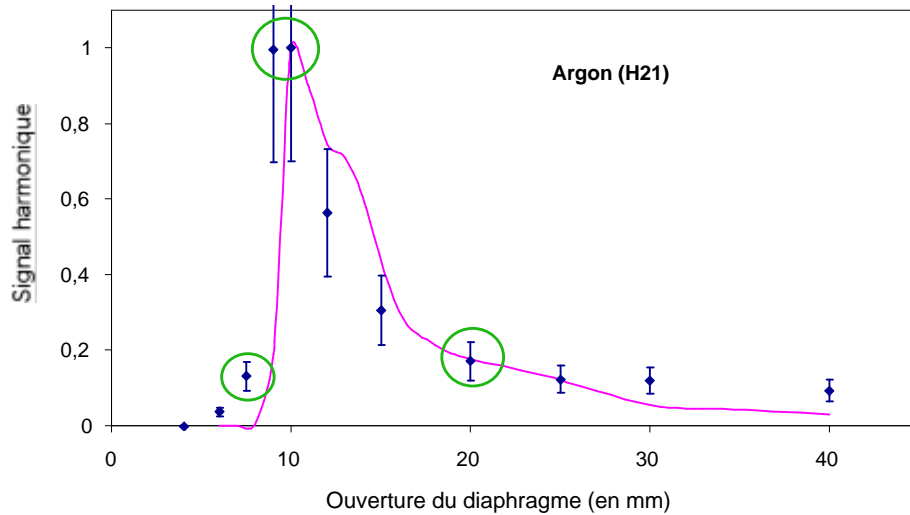


Figure 5.9 : Variation du signal de l'harmonique 21 observée dans l'argon pour une énergie laser incidente de 6 mJ. Cellule de 2 mm, pression de 10 torr, foyer en entrée de cellule. Les carrés pleins correspondent aux valeurs expérimentales et la ligne continue aux résultats du code.

On sélectionne dans cette courbe trois valeurs de taille de diaphragme caractéristiques : 9 mm de diamètre c'est-à-dire juste avant le maximum de signal, 10 mm qui correspond au maximum et enfin 20 mm qui correspond à un diaphragme trop ouvert pour avoir une bonne efficacité de conversion. La figure (5.10) représente l'évolution temporelle du flux dans chacune de ces conditions.

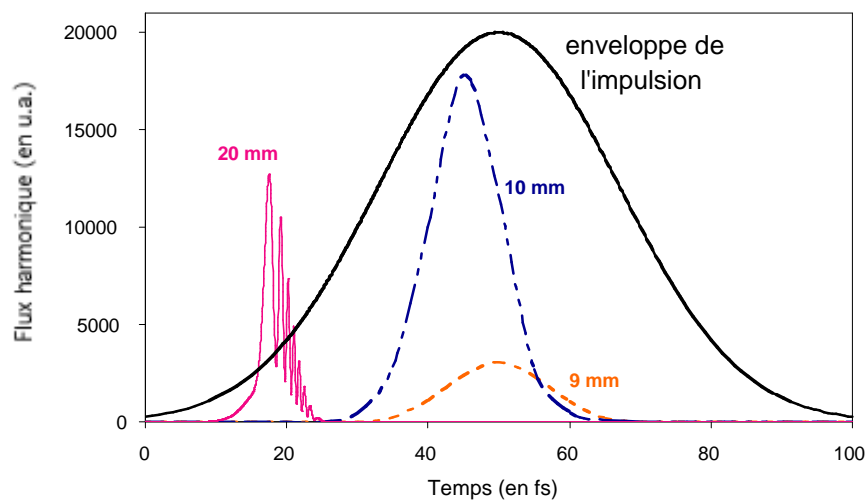


Figure 5.10: Evolution temporelle des flux harmoniques pour différentes tailles de diaphragme. L'impulsion est repérée par son enveloppe, elle est centrée sur 50 fs et de largeur à mi-hauteur 40 fs.

Le flux harmonique pour un diaphragme « trop » fermé est centré sur le maximum de l'impulsion, ce qui montre que l'ionisation n'est pas suffisamment importante pour dépeupler le niveau atomique ou détériorer l'accord de phase. En revanche l'intensité du dipôle est très faible. Il convient de rappeler qu'on l'a prise égale à la puissance cinquième de l'intensité laser. Si le diaphragme est encore plus fermé, l'intensité est si faible que l'harmonique n'est plus dans le plateau et le signal est nul.

Lorsque le diaphragme est plus ouvert, l'intensité au foyer devient plus importante (diaphragme 10 mm). Elle permet d'induire une ionisation non négligeable sur le front montant de l'impulsion, ce qui dégrade l'accord de phase. Le maximum de flux harmonique, résultat du compromis entre l'accord de phase et la réponse atomique, est légèrement décalé vers l'avant du front montant. Le dipôle est cependant assez important compte tenu de l'augmentation globale de l'intensité. On obtient plus de signal que dans le cas précédent.

Si la taille de diaphragme est augmentée jusqu'à 20 mm, l'ionisation induite est si forte que l'émission harmonique survient très tôt dans l'impulsion, lorsque la valeur du dipôle n'est pas encore très importante. De plus, dès le début de l'impulsion, la valeur de la longueur de déphasage est inférieure au cas de diaphragmes plus fermés à cause du gradient de la phase de Gouy qui varie comme  $1/z_0$  au premier ordre. Les nombreuses oscillations observées proviennent du fait que la longueur de déphasage évolue très rapidement avec le taux d'ionisation et que sa valeur passe plusieurs fois par des sous-multiples pairs de la longueur du milieu. Cela conduit par interférences destructives à un flux harmonique presque nul à cet instant (voir § 4.4.3).

On peut donc conclure que l'optimisation du flux harmonique en fonction de la taille du diaphragme est le résultat d'un compromis entre les processus microscopiques qui sont prédominants au maximum de l'impulsion (dipôle) et les processus d'ionisation qui ont tendance à ramener le flux vers l'avant de l'impulsion pour des raisons macroscopiques d'accord de phase (longueur de déphasage). Le graphique suivant montre l'évolution temporelle de ces paramètres pour le cas d'un diaphragme de 10 mm, c'est-à-dire le meilleur compromis :

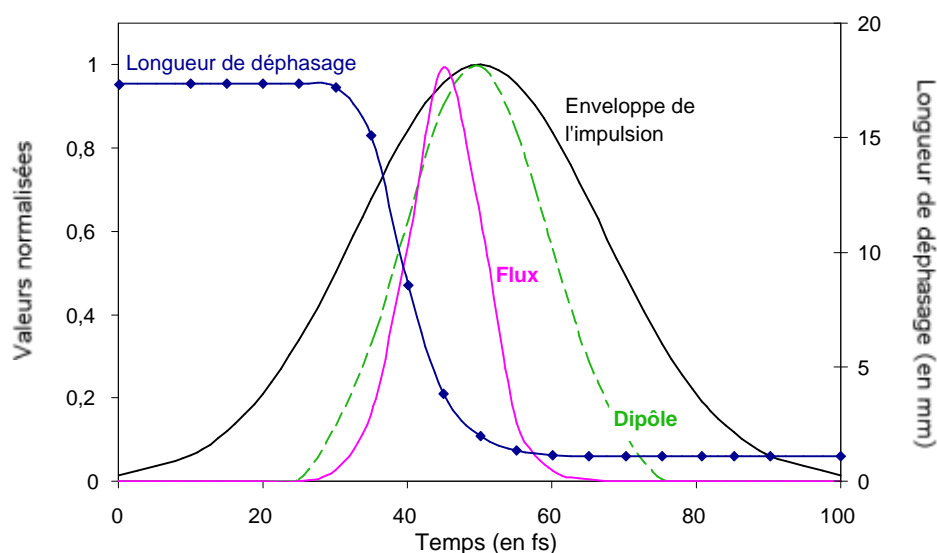


Figure 5.11 : Evolution temporelle des paramètres microscopiques (dipôle) et macroscopiques (longueur de déphasage) menant à l'optimisation du flux harmonique. Le cas

étudié correspond au diaphragme de taille optimale pour le nombre de photons produits (10 mm de diamètre).

Le résultat du compromis est un diaphragme qui garantit une énergie suffisante pour avoir un dipôle assez élevé qui reste proche du maximum de l'impulsion malgré la chute de la valeur de la longueur de cohérence.

#### 5.2.4. Le cas du xénon : la dispersion atomique

Le comportement des harmoniques générées dans le xénon est assez paradoxal. Ce gaz est plus facile à ioniser que les gaz légers et l'intensité seuil pour qu'une harmonique soit dans le plateau ( $I_q$ ) est plus faible. On s'attend à ce que les diaphragmes optimaux soient plus fermés. Or, dans le cas de l'harmonique 19 du xénon, la courbe du nombre de photons en fonction de la taille du diaphragme est légèrement décalée vers les diaphragmes plus ouverts (cf. figure (5.12)). Le même comportement est observé pour les autres ordres harmoniques visibles dans le spectre.

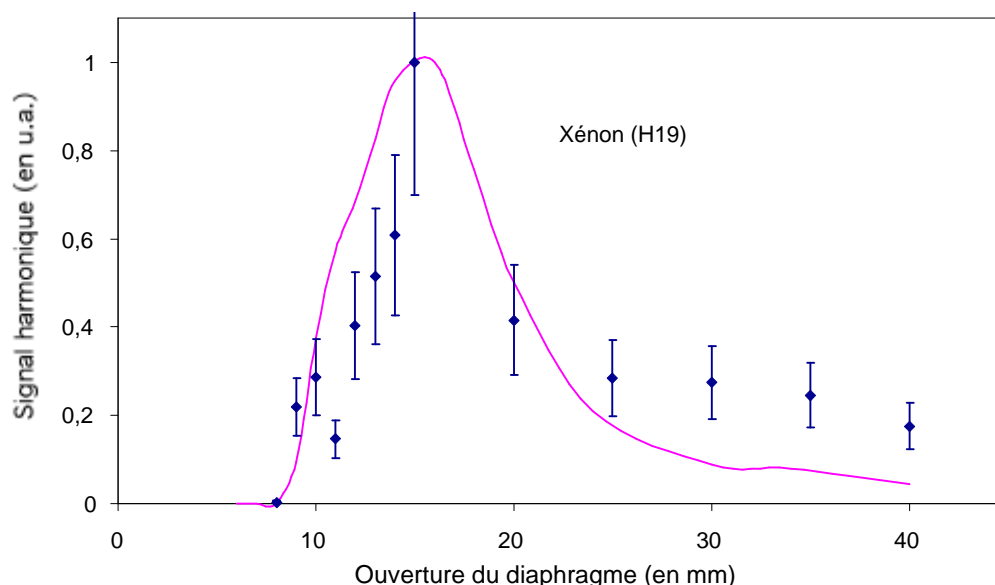


Figure 5.12 : Variation du signal de l'harmonique 19 observée dans le xénon pour une énergie laser incidente de 6 mJ. Cellule de 2 mm de long, 10 torr de xénon, foyer en entrée de cellule. Les cercles pleins correspondent aux mesures expérimentales et la ligne continue aux résultats du code.

On a vu que l'intérêt de la fermeture du diaphragme était d'améliorer l'accord de phase par réduction du gradient de phase de Gouy et des taux d'ionisation. Dans les cas de l'argon et du néon, cet effet l'emporte sur l'amélioration de la réponse atomique par augmentation de l'intensité laser, obtenue en ouvrant le diaphragme. Le cas du xénon est particulier en raison de la forte dispersion atomique de ce gaz. A longueur de Rayleigh et pression équivalentes, l'accord de phase est meilleur au début de l'impulsion pour le xénon que pour l'argon ou le néon, et des taux d'ionisation plus élevés sont acceptables tout en maintenant une valeur raisonnable de la longueur de déphasage. L'amplitude du dipôle atomique s'en trouve accrue et joue un rôle prédominant dans l'optimisation du flux harmonique, favorisant ainsi les diaphragmes plus ouverts.



L'utilisation du code permet de bien reproduire ce comportement spécifique et de comprendre comment il est lié à la dispersion atomique, 10 fois plus importante dans le xénon que dans le néon. On observe sur la figure suivante la variation de la longueur de déphasage en fonction du temps, donc de l'ionisation, pour le cas où l'on prend en compte la dispersion atomique et pour le cas où elle est négligée. A longueur de déphasage fixée, l'intensité laser est plus grande pour le cas avec dispersion. L'amélioration du signal par la réponse dipolaire est possible jusqu'à des diaphragmes plus ouverts que pour les deux autres gaz étudiés.

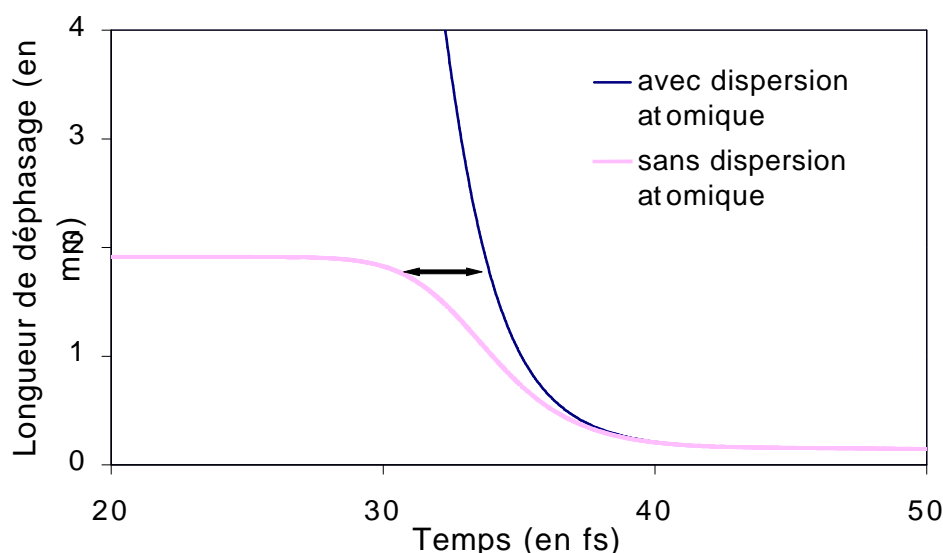


Figure 5.13 : Variation temporelle de la longueur de déphasage pour l'harmonique 19 générée dans le xénon. L'impulsion laser est centrée sur 50 fs et la durée d'impulsion est de 30 fs. Cellule de 2 mm de long, 10 torr, placée au foyer du laser.

Cette étude permet d'insister une nouvelle fois sur l'intérêt de générer des harmoniques au plus près du maximum de l'impulsion avec à ce moment un accord de phase correct. Dans le cas du xénon, la dispersion atomique permet de décaler de quelques cycles optiques le maximum de flux harmonique et donc d'améliorer les efficacités de conversion.

### 5.2.5. Étude du paramètre énergie

On a vu que l'influence du paramètre taille de diaphragme sur la génération d'harmoniques était en partie liée à des questions d'intensités au foyer. Afin de mieux séparer les problèmes énergétiques des questions géométriques, l'étude de l'influence du diaphragme à énergie laser variable est très instructive. Par utilisation d'une lame demi-onde d'angle variable placée avant les réseaux du compresseur (voir chapitre 2), nous avons pu fixer l'énergie laser à 60 % et 40 % de sa valeur nominale, et faire la même étude que précédemment. Les conditions de génération étaient légèrement modifiées : nous avons généré les harmoniques dans une cellule de plus grande longueur et située après le foyer, ce qui rend la modélisation du phénomène plus délicate que dans les cas précédents.

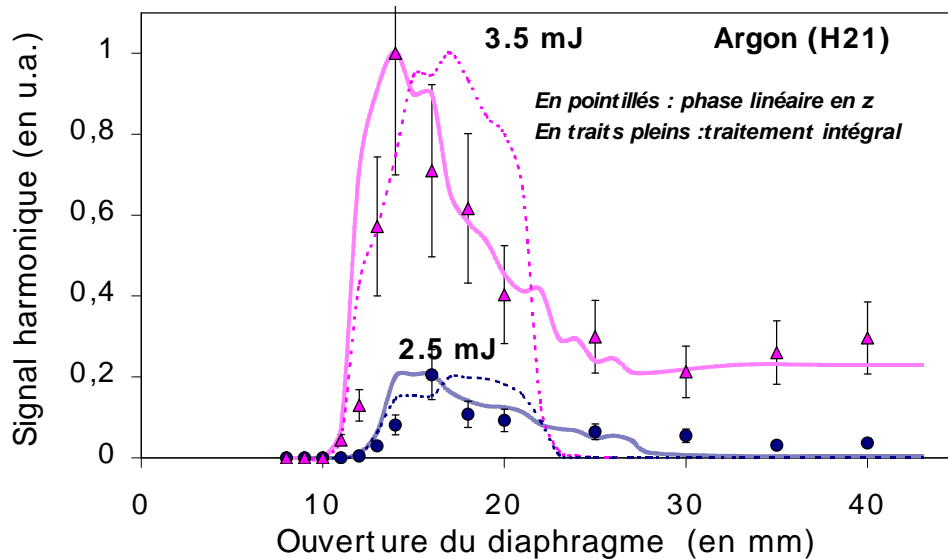


Figure 5.14 : Variation du signal de l'harmonique 21 observée dans l'argon pour une énergie laser incidente de 3,5 mJ (triangles) et 2,5 mJ (cercles). Cellule de 5 mm de long, 15 torr d'argon, foyer à 8 mm de l'entrée de la cellule. Les lignes en pointillés correspondent à une simulation supposant une phase linéaire pour les harmoniques, les lignes continues correspondent au résultat du calcul intégral de la phase.

Comme on s'y attend, le maximum de signal représenté sur la figure (5.14) est obtenu pour des diaphragmes de plus en plus ouverts à mesure que l'énergie laser est diminuée, et le maximum de signal est moindre. L'utilisation du code unidimensionnel utilisant l'intégration analytique de la phase supposée linéaire en  $z$  (voir chapitre 3) n'a pas permis de rendre compte des données expérimentales (courbes en pointillés). Ni la position du maximum de la courbe, ni l'allure asymptotique à grands diaphragmes ne sont correctement reproduits. On envisage deux approches plus élaborées pour améliorer l'accord entre les résultats expérimentaux et ceux du code : d'une part la prise en compte de l'influence du front d'onde expérimental sur la variation de l'intensité en fonction de l'ouverture du diaphragme, et d'autre part la prise en compte de la variation non purement linéaire de la phase des harmoniques.

### 5.2.5.1. Répartition de l'énergie laser autour du foyer

Nous avons vu dans le paragraphe « focalisation des faisceaux diaphragmés » que la répartition de l'intensité en fonction de la taille du diaphragme était plus complexe lorsque le point étudié était placé à une distance finie non nulle du foyer. Il était donc important d'introduire comme conditions initiales du code des valeurs proches de la réalité expérimentale. Nous avons pour cela mesuré le front de phase du faisceau à l'aide d'un analyseur de front d'onde de type Shack Hartmann comme cela a été présenté au chapitre 2. Si ce front de phase n'est pas plan comme pour un faisceau gaussien idéal, l'intensité effective au voisinage du foyer risque d'être fortement diminuée. Cette intensité est calculée en  $z=8$  mm pour différentes tailles de diaphragme par le programme Comnod Pro à partir des valeurs mesurées de la phase spatiale du faisceau laser parallèle, et sert alors de condition initiale au code.

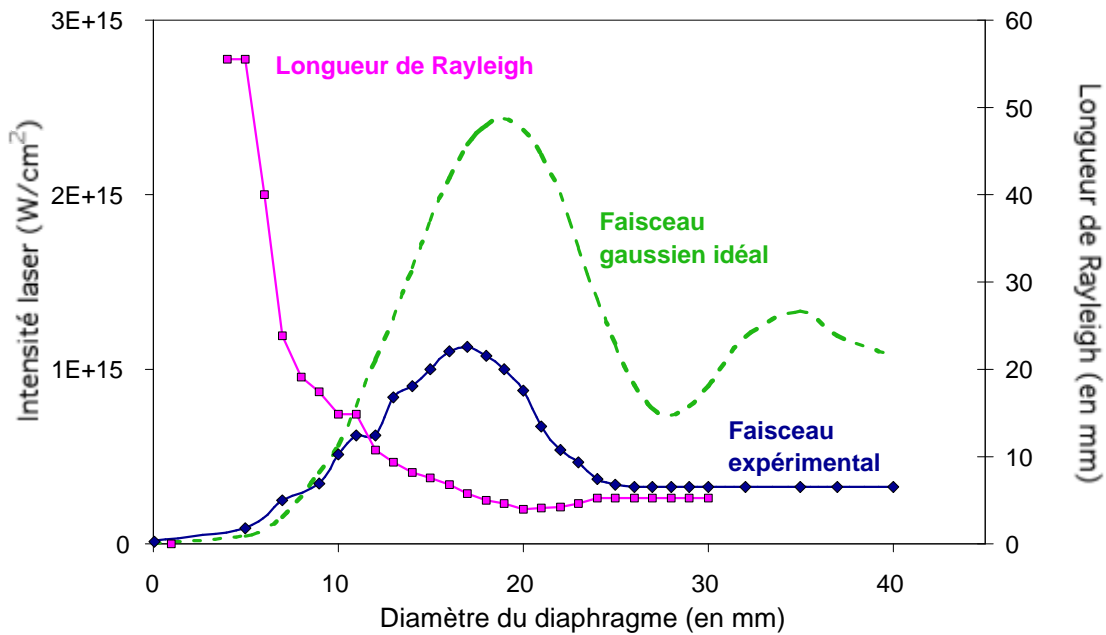


Figure 5.15 : Variation de l'intensité à 8 mm du foyer du faisceau laser réel d'énergie totale 6mJ (losange bleus pleins) en fonction de la taille du diaphragme et comparaison avec la valeur obtenue pour un faisceau gaussien de phase spatiale homogène (pointillés). La longueur de Rayleigh est représentée par des cercles pleins.

La première remarque importante issue de la figure (5.15) est que la longueur de Rayleigh calculée par le programme à partir de données réalistes du front de phase est pratiquement identique à celle d'un faisceau gaussien idéal. Par contre, l'intensité est différente, notamment pour les diaphragmes assez ouverts. On constate que le rapport de Strehl, défini comme le rapport de l'intensité réelle sur l'intensité idéale (voir chapitre 2), est d'environ 1 pour des diaphragmes assez fermés et tend vers 1/2 en l'absence de diaphragmation. Cela tend à prouver que la phase spatiale du faisceau est plus propre en centre de tache qu'à la périphérie, l'effet du diaphragme est donc d'éliminer les parties du faisceau qui ne sont pas correctement focalisables. Enfin, le rebond observé dans le cas d'une phase plate pour des diaphragmes grand ouverts est attribué à des interférences de type Fresnel qui résultent d'une très grande cohérence de phase au sein du faisceau. Ce n'est bien sûr pas le cas pour un faisceau réaliste.

Cette modification du code à l'aide des mesures Shack Hartmann n'a cependant pas permis de reproduire correctement les données expérimentales. Le problème de l'accord théorie - expérience est donc lié aux conditions de générations d'harmoniques elles-mêmes.

### 5.2.5.2. La variation de la longueur de déphasage

La version du code utilisée pour reproduire les données présentées jusqu'à présent faisait l'hypothèse que la longueur de déphasage est homogène sur tout le milieu à un instant donné (hypothèse de linéarité de la phase). Cela permet de faire analytiquement le calcul du flux de photons instantané. Cette approximation est valable dans le cas d'une cellule courte devant les longueurs de Rayleigh considérées et placée au foyer pour lequel le gradient de phase atomique est nul. Cette configuration expérimentale était celle des figures ((5.7), (5.9) et (5.12)). Dans le cas de

l'étude en énergie, la cellule est placée à 8 mm du foyer et mesure 5 mm. Cette longueur est deux fois plus importante que la longueur de Rayleigh pour le faisceau non diaphragmé. Les taux d'ionisation tout comme le gradient de la phase atomique ne sont alors plus les mêmes en début et en fin de cellule ce qui implique une variation de la longueur de déphasage au sein du milieu à un instant donné. Le code a donc été modifié pour prendre en compte la variation spatiale de la longueur de déphasage et faire l'intégrale rigoureuse qui permet d'aboutir au flux instantané (voir chapitre 3). L'accord théorie - expérience est alors très satisfaisant moyennant un temps de calcul légèrement accru (cf. figure (5.14) et les courbes continues issues du traitement intégral comparées aux courbes en pointillés issues de l'approximation linéaire de la phase). On remarque que notamment les résultats correspondant à des diaphragmes très ouverts, donc des longueurs de Rayleigh faibles sont bien plus proches des données expérimentales. Cela confirme expérimentalement ce que nous avons montré au chapitre 3 : la condition de linéarité de la phase est effectivement liée à la valeur relative de la longueur de Rayleigh par rapport à la longueur du milieu.

Enfin, un dernier ajustement a été nécessaire pour assurer le passage entre le maximum du flux de photons calculé pour les deux valeurs de l'énergie. Jusqu'à présent, le code utilisait pour reproduire les données, la pondération du signal par la variation de l'extension transverse de la zone émissive d'harmoniques en fonction de la taille du diaphragme ( $S$  défini au § 5.1.5). Or,  $S$  dépend aussi explicitement de l'énergie laser totale à travers le terme  $\ln(I_{\max})$ . Pour la figure (5.14), la détermination de ce coefficient de pondération en énergie est issue d'une mesure expérimentale du nombre de photons à diaphragme identique mais à énergie variable. Le rapport des maxima des deux courbes issues des calculs est parfaitement rétabli et cette expérience montre l'importance de l'énergie en termes d'extension transverse de la zone susceptible de générer des harmoniques.

### **5.3. Conclusion du chapitre**

Cette étude complète des effets de la diaphragmation du faisceau a permis d'éclaircir l'influence distincte des paramètres géométriques et énergétiques du laser dans la génération d'harmoniques [5]. On a ainsi pu montrer que l'efficacité de conversion peut être considérablement augmentée malgré une diminution de l'énergie transmise du laser de pompe, grâce à la fermeture du diaphragme qui induit des modifications notables sur la répartition de l'énergie au voisinage du foyer et améliore l'accord de phase tout en reculant l'instant du maximum de flux harmonique par rapport au maximum de l'impulsion laser. Une bonne efficacité de conversion est obtenue par un compromis entre les termes microscopiques dipolaires qui exigent une intensité importante et les considérations d'accord de phase, qui peut être gravement dégradé par l'ionisation. Nous avons également vérifié expérimentalement que les conditions qui permettent de garantir un accord de phase homogène sur toute la longueur de la cellule (condition de linéarité de la phase) consistent effectivement en une longueur de Rayleigh grande devant la longueur du milieu. Cette condition est remplie en fermant suffisamment le diaphragme.

### **5.4. Références**

- [1] Descamps et al., Phys.Rev. A, **64**, 031404 (2001)
- [2] Tamaki et al. ; Phys. Rev. A **62**, 063802 (2000)
- [3] Siegman, Lasers (The University of California, 1986) chapitres 17 et 18
- [4] Balcou et al., J ;Phys. B **25**, 4467 (1992)
- [5] Kazamias et al., Eur. Phys. Journal D, online (septembre 2002)



# Synthèse des chapitres précédents

Ces quatre premiers chapitres ont été consacrés à la description expérimentale et théorique de l'optimisation de la génération d'harmoniques en configuration longue focale. Cette configuration est permise par le développement continu des techniques laser qui aboutit à des chaînes d'énergie élevées à une cadence également élevée. On peut alors focaliser le faisceau pompe de façon très douce, ce qui permet d'obtenir un paramètre confocal très supérieur à la longueur du milieu d'interaction.

Après avoir montré que cette configuration a permis de mesurer les efficacités de conversion les plus élevées publiées pour la génération d'harmonique d'ordres élevés dans l'argon, nous avons décrit un cadre théorique unidimensionnel d'accord de phase dépendant du temps parfaitement adapté à la configuration longue focale pour laquelle l'accord de phase se fait essentiellement sur l'axe. Nous avons ainsi pu montrer que la variation du déphasage au sein du milieu est aussi homogène que celle rencontrée dans la configuration capillaire avec de surcroît l'importance du deuxième chemin quantique dans l'optimisation des flux harmoniques, qui n'est pas présent en géométrie guidée.

La détection de franges d'accord de phase et l'étude complète de l'optimisation du flux par diaphragmation du faisceau sont également liées à l'approche longue focale et permettent de compléter l'étude de cette géométrie très intéressante en mettant en évidence des cas pour lesquels l'homogénéité de l'accord de phase sur tout le milieu générateur d'harmoniques peut se démontrer expérimentalement et théoriquement.

En conclusion de cette partie, on se propose de donner un critère de détermination de l'aspect longue focale de la génération d'harmoniques. Nous avons vu qu'au moment de l'accord de phase dans ces conditions, la longueur de déphasage est homogène sur tout le milieu. En considérant les termes susceptibles d'induire une non-linéarité du déphasage, à savoir le taux d'ionisation non constant au sein du milieu à un instant donné et le gradient de phase de Gouy, on obtient une valeur minimale pour la longueur de Rayleigh qui garantit que si l'accord de phase en limite d'absorption est atteint en extrémité de milieu, il est également atteint en entrée de cellule. On prend pour longueur de cellule 3 fois la longueur d'absorption, ce qui permet de s'assurer que le flux de photons ne sera pas limité par la longueur du milieu. La condition d'accord de phase est déterminée par la relation  $l_{\pi} > 5l_{abs}$ . et aboutit à :

$$z_0 > \sqrt{\frac{45}{p} l_{abs}^3 \frac{qW}{c} n P_{ionis} \left( \frac{N_0}{2n_c} + dn_{at} \right)}$$

On suppose ici que le taux d'ionisation varie comme la puissance  $v$  de l'intensité (on prend  $v=5$  dans la suite des calculs). Les autres notations utilisées sont compatibles avec les formules définies au chapitre 3 ((3.28) et (3.44) notamment).  $P_{ionis}$  a également été définie en (3.37), c'est le taux d'ionisation qui garantit une longueur de déphasage infinie à un instant donné, en un point donné du milieu.

D'un point de vue plus quantitatif, si l'on remplace  $P_{\text{ionis}}$  par son expression analytique et que l'on considère  $z_0$  très grand a priori, on obtient la formule numérique suivante,  $q$  est l'ordre harmonique considéré :

$$z_0^{\text{Ar}}(\text{mm}) \geq \sqrt{\frac{45}{p} l_{\text{abs}}^3(\text{mm}) \cdot qn \cdot 2,6 \cdot 10^{-3} \cdot r(\text{torr})}$$

$$z_0^{\text{Ne}}(\text{mm}) \geq \sqrt{\frac{45}{p} l_{\text{abs}}^3(\text{mm}) \cdot qn \cdot 6,94 \cdot 10^{-4} \cdot r(\text{torr})}$$

$$z_0^{\text{Xe}}(\text{mm}) \geq \sqrt{\frac{45}{p} l_{\text{abs}}^3(\text{mm}) \cdot qn \cdot 6,43 \cdot 10^{-3} \cdot r(\text{torr})}$$

Pour l'harmonique 23 qui nous a permis de mettre en évidence la plus grande efficacité de conversion dans l'argon à 30 torr,  $z_0^{\text{Ar}}$  vaut 7 mm. Pour l'harmonique 41 dans le néon à une pression de 30 torr,  $z_0^{\text{Ne}}$  vaut 14 mm ; tandis que  $z_0$  vaut 16 mm dans 15 torr de xénon pour l'harmonique 19. Lors de nos expériences, la longueur de Rayleigh la plus efficace était de 17 mm, ce qui confirme bien qu'on se situe dans tous les cas en configuration longue focale pour laquelle l'accord de phase présente les mêmes conditions d'homogénéité que dans le cas de la génération d'harmoniques en propagation guidée.

## 6. Contrôle spectral actif des harmoniques

En tant que source de photons XUV ultracourte en vue d'applications, les harmoniques présentent l'avantage sur le laser X par exemple de couvrir une large bande spectrale, à travers les différents ordres harmoniques du plateau. Or, les ordres harmoniques nominaux correspondent à des fréquences qui sont des multiples impairs de la fréquence du laser excitateur. Pour le laser infrarouge que nous avons utilisé, les énergies de photons d'harmoniques consécutives sont séparées d'environ 3eV. L'intérêt de la démonstration du contrôle spectral des harmoniques est de montrer qu'on peut jouer sur la longueur d'onde des harmoniques et idéalement être capable de déplacer une harmonique donnée de 1,55 eV dans un sens et dans l'autre pour pouvoir couvrir ainsi toutes les longueurs d'ondes du domaine XUV, comme le peuvent déjà les installations synchrotron.

Comme nous l'avons vu précédemment, l'optimisation des harmoniques est relativement complexe en ce sens qu'elle implique des phénomènes couplés spatialement et temporellement, tant au niveau macroscopique que microscopique. De nombreux auteurs ont déjà souligné l'importance de l'élargissement spectral des harmoniques dû entre autres, au rôle de la phase atomique et de l'ionisation progressive du milieu [1],[2],[3]. Des démonstrations expérimentales de la possibilité de réduire cet élargissement ont été réalisées en vue d'obtenir des harmoniques distinctes les unes des autres, et brillantes spectralement, y compris dans la gamme spectrale proche de la coupure. Dans les références [2] et [3] notamment, ce contrôle de l'émission harmonique est obtenu en pré-compensant le chirp induit lors de la génération des harmoniques, par un chirp sur le laser infrarouge. Enfin, le groupe de H. Kapteyn et M. Murnane aux Etats-unis a obtenu des résultats importants de contrôle de l'émission harmonique, par utilisation d'un algorithme génétique pilotant un contrôle spectral du laser excitateur [4] et [5]. Ils ont ainsi été capables d'optimiser de façon préférentielle une seule harmonique du spectre : la brillance spectrale de l'harmonique 27 est augmentée d'un facteur 8 alors que pour les ordres harmoniques adjacents l'augmentation est seulement de 2. Ce résultat est toutefois assez controversé car il n'a pu être redémontré expérimentalement par les équipes concurrentes.

Les études précédentes se concentrent essentiellement sur la brillance spectrale ou le caractère discret des spectres, mais assez peu sur la valeur effective de la longueur d'onde centrale d'une harmonique. Notre optimisation de la génération d'harmoniques s'est fixé cet objectif en utilisant un algorithme génétique pilotant un contrôle actif de la phase et l'amplitude spectrales du laser infrarouge.

Dans une première partie, nous exposerons les processus physiques qui peuvent induire une modification spectrale de l'émission harmonique. Nous présenterons ensuite le dispositif expérimental qui nous a permis d'obtenir un contrôle spectral des harmoniques, pour conclure par une comparaison des résultats expérimentaux avec les prédictions de notre code, ayant ici pour conditions initiales les formes temporelles de l'impulsion laser infrarouge correspondant à l'optimisation.

### 6.1. Physique des décalages spectraux des harmoniques

De nombreux effets entrant dans la génération d'harmoniques sont susceptibles d'induire une variation temporelle de la phase du champ qui se construit progressivement dans le milieu



gazeux. Cette variation temporelle a des conséquences dans le domaine spectral et explique l'élargissement ou le décalage spectral des harmoniques.

Dans le cas de la configuration longue focale définie au chapitre 3, un champ qui se propage peut s'écrire sous la forme (convention Siegman):

$$E(z,t) = |E| \exp(i \mathbf{j}(z,t)) = |E| \exp(-ik(t)z + i \mathbf{w}(t)t) + c.c. \quad (6.1)$$

$\mathbf{j} = -kz + \mathbf{w}t$  est la phase spatio-temporelle du champ ;  $\frac{\mathbf{j}}{t}$  définit localement la pulsation du champ.

Dans les cas pour lesquels  $k$  dépend du temps, on observe un décalage spectral par rapport à la fréquence centrale  $\omega$  tel que :

$$d\mathbf{w} = -\frac{\mathbf{j}}{t}(kz) \quad (6.2)$$

Ce décalage peut s'ajouter à un éventuel décalage dû à la variation en temps de la fréquence centrale du laser, appelée également « chirp ».

C'est ainsi qu'on peut exprimer le décalage spectral d'une harmonique à partir de l'expression du champ. En reprenant les conclusions du chapitre 3, on peut écrire localement la phase du champ harmonique résultant de la propagation sur une longueur  $z$  de la polarisation à la fréquence  $q\omega$  :

$$\begin{aligned} \mathbf{j}_q &= d\mathbf{k} \cdot z + q\mathbf{w}t \\ \mathbf{j}_q &= \mathbf{a}l(z,t) + \frac{q\mathbf{w}}{c} z \left( \frac{n_e}{2n_c} - d n_{at} \right) + q \arctan(z/z_0) + q\mathbf{w}t \quad (6.3) \\ \text{il suit : } d\mathbf{w} &= \mathbf{a} \frac{\mathbf{j}l}{t} + \frac{q\mathbf{w}(t)}{c} z \left( \frac{1}{2n_c} \frac{\mathbf{j}n_e}{t} - \frac{\mathbf{j}}{t} d n_{at} \right) \end{aligned}$$

Nous allons par la suite expliciter chacun des termes apparaissant dans l'équation (6.3) et montrer son influence sur les spectres harmoniques obtenus. En pratique, le champ harmonique en sortie résulte de l'intégrale des termes de propagation sur toute la longueur du milieu. On obtient le spectre harmonique total en faisant la transformée de Fourier du champ harmonique dépendant du temps. Les résultats théoriques présentés sont issus du code de propagation 1D adapté de la sorte au domaine spectral.

### 6.1.1. Importance de la pulsation instantanée du laser

Les harmoniques étant par nature des sous-multiples impairs de la longueur d'onde du laser, la méthode la plus évidente pour contrôler la longueur d'onde des harmoniques est d'accorder le laser infrarouge, ou tout au moins de faire varier au cours de l'impulsion, la valeur de sa fréquence centrale. C'est le premier effet d'un contrôle de l'amplitude et de la phase spectrales du laser.

Les impulsions ultracourtes utilisées pour générer des harmoniques sont caractérisées par un spectre relativement large lié à la grande largeur spectrale du gain du cristal de Titane Saphir. Le laser que nous utilisons est centré sur 800 nm avec une largeur totale d'environ 30 nm comme le montre la figure suivante.

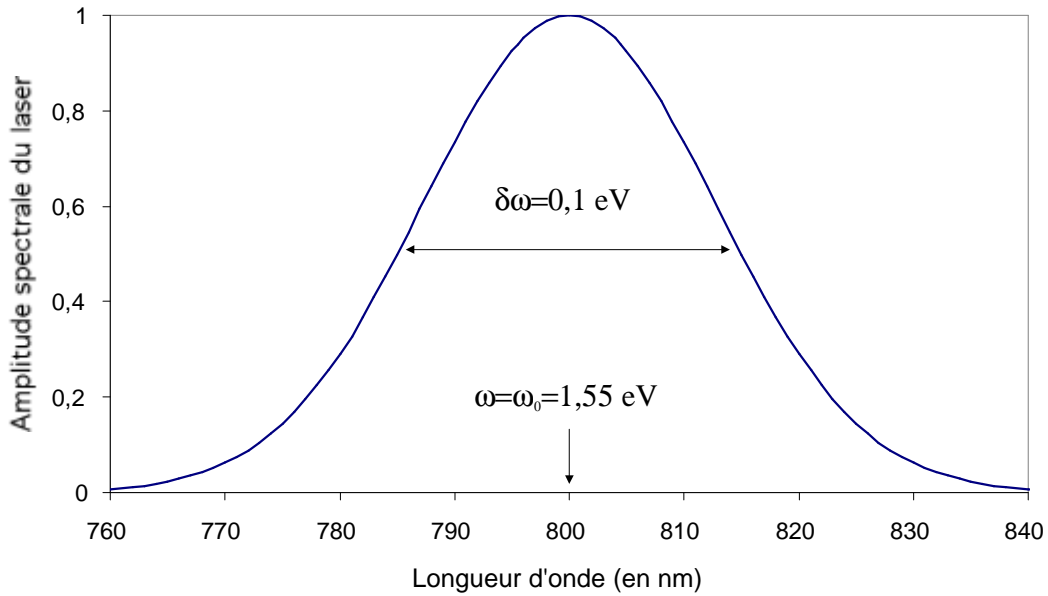


Figure 6.1 : Amplitude spectrale caractéristique d'un laser femtoseconde basé sur l'amplification par un cristal de Titane:Saphir.

Les figures suivantes montrent alors l'excursion par rapport à l'ordre harmonique à la fréquence nominale, comptée en unité d'ordre harmonique, qu'il est possible d'atteindre en générant les harmoniques successives par les différentes fréquences présentes dans l'impulsion laser de pompe. Le zéro de l'axe des abscisses correspond à la longueur d'onde centrale de 800 nm soit 1,55 eV, tandis que le maximum de décalage vaut  $\delta\omega/2=0,05$  eV et correspond aux deux longueurs d'onde extrêmes du spectre c'est-à-dire 785 et 815 nm.

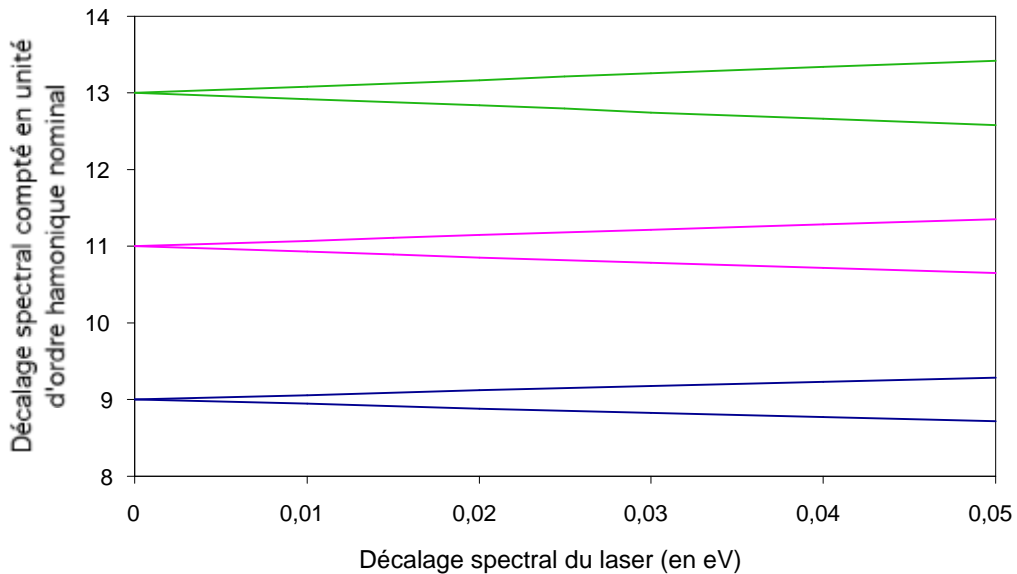


Figure 6.2 : Variation de la fréquence des harmoniques 9, 11, 13 générées par les différentes fréquences présentes dans l'impulsion laser, en unité d'ordre harmonique nominal.

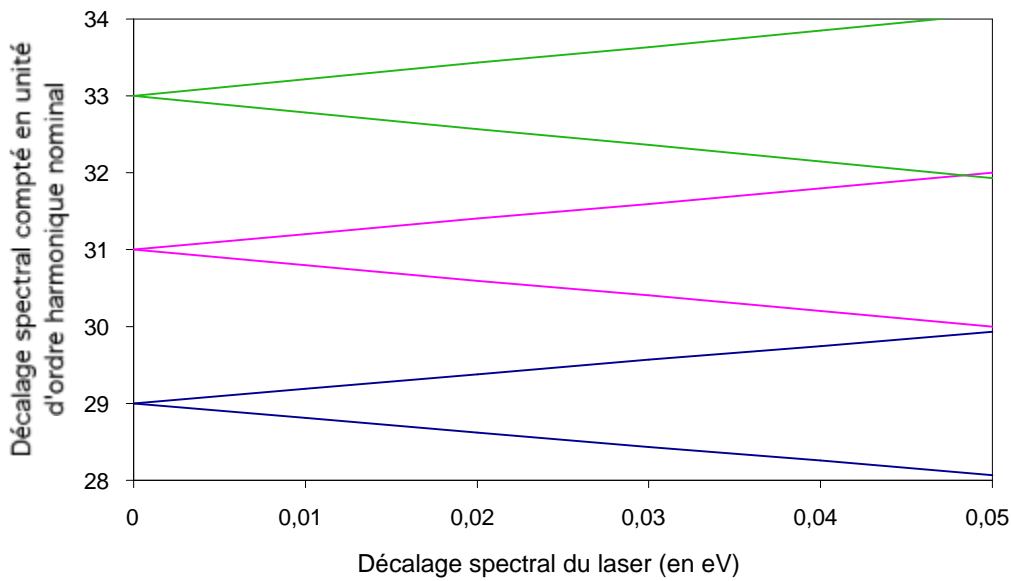


Figure 6.3 : Variation de la fréquence des harmoniques 29, 31, 33 générées par les différentes fréquences présentes dans l'impulsion laser, en unité d'ordre harmonique nominal.

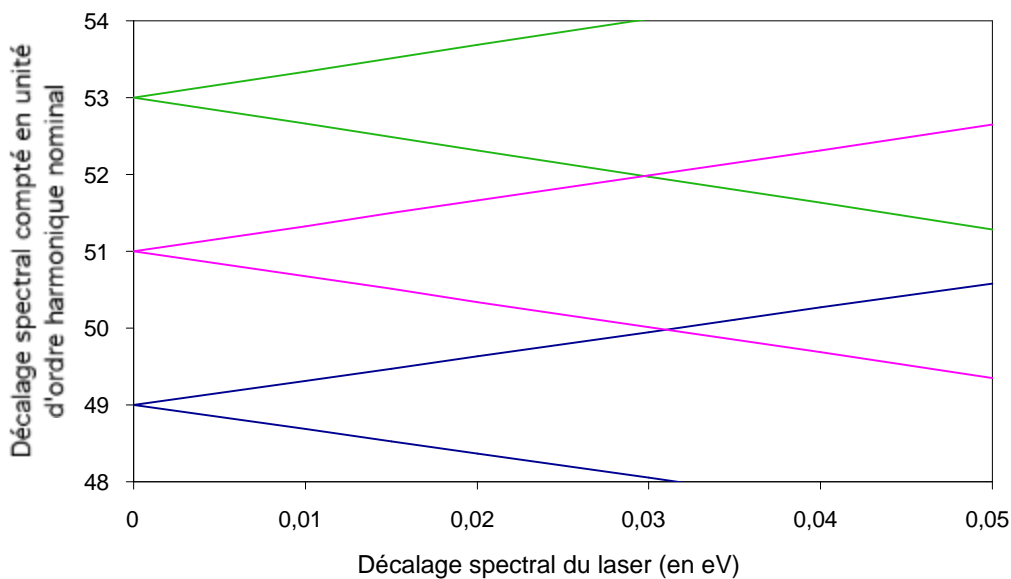


Figure 6.4 : Variation de la fréquence des harmoniques 49, 51, 53 générées par les différentes fréquences présentes dans l'impulsion laser, en unité d'ordre harmonique nominal.

Les trois figures précédentes permettent de comprendre qu'il peut y avoir accordabilité totale des harmoniques si deux harmoniques successives peuvent aboutir à la même longueur d'onde, l'une en étant décalée vers le bleu et l'autre vers le rouge. Cette accordabilité sera d'autant plus facile à atteindre que l'ordre harmonique sera élevé et que la largeur spectrale du laser sera importante.

En effet, si l'on note  $\omega_0$  la fréquence centrale du laser et  $\delta\omega$  sa largeur spectrale à mi-hauteur, il y aura recouvrement de deux harmoniques successives d'ordre  $q$  et  $q+2$  si :

$$q(\omega_0 + d\omega/2) = (q+2)(\omega_0 - d\omega/2) \quad (6.4)$$

c'est-à-dire si :

$$q + 1 = 2 \frac{w}{d\omega_0} \quad (6.5)$$

Dans nos conditions expérimentales, la valeur de  $q$  qui permettrait un recouvrement vaut 29. Nous pouvons donc conclure dès à présent qu'un simple chirp du laser ne sera pas capable de permettre l'accordabilité totale des harmoniques les plus intenses générées dans l'argon (ordres 21,23,25), alors que ce sera plus aisé dans le néon et pratiquement impossible dans le xénon. Cependant, on peut amplifier cet effet de décalage spectral dû au laser par un jeu sur les conditions de génération d'harmoniques elles-mêmes qui induisent également des décalages spectraux.

### 6.1.2. Influence de l'ionisation sur le spectre harmonique

Comme nous l'avons vu dans le chapitre sur l'accord de phase, l'indice d'un gaz est modifié par l'ionisation progressive du milieu :  $n$  diminue et avec lui le module de  $k$ . Ceci induit un « décalage vers le bleu » ( $\delta\omega > 0$ ), de la fréquence d'un faisceau laser se propageant dans un milieu en cours d'ionisation [6]. En présence d'une intensité suffisante pour ioniser le milieu, le spectre des harmoniques présente donc une forme caractéristique très asymétrique avec un élargissement vers les fréquences élevées. La figure (6.5) présente les résultats du code utilisé pour prédire les spectres harmoniques produits à différentes intensités laser : pour  $I=10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> dans l'argon, le taux d'ionisation maximal sera quasiment nul alors que pour une intensité de  $5 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, pratiquement tous les atomes seront ionisés au maximum de l'impulsion. Les autres conditions de génération ont été choisies pour minimiser l'influence des autres effets de décalages spectraux : pression assez faible, pas de phase atomique et faible longueur de cellule.

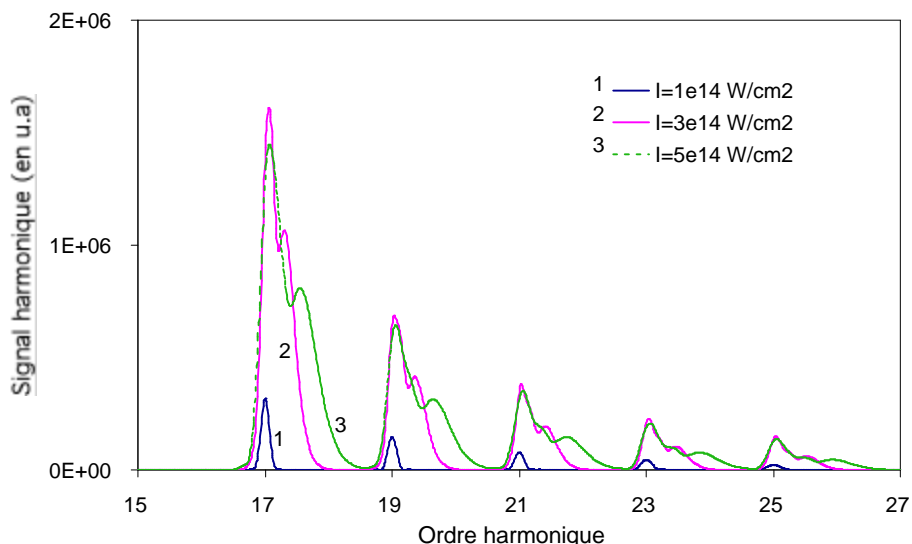


Figure 6.5 : Etude théorique de l'effet de l'intensité sur un spectre harmonique généré dans l'argon (pression 10 torr, chemin 1, longueur de cellule placée au foyer : 1 mm, longueur de Rayleigh 15 mm et une durée d'impulsion de 30 fs.)

### 6.1.3. Rôle de la phase du dipôle suivant le chemin quantique

Les deux effets évoqués dans les parties ci-dessus sont liés aux caractéristiques du laser infrarouge et à son interaction avec le milieu gazeux, tandis que l'effet du chemin quantique est intimement lié au processus même de génération d'harmoniques. Il provient de la variation temporelle de la phase du paquet d'onde électronique dans son parcours dans le continuum. Le rôle de la phase atomique dépendra du fait que l'émission harmonique aura lieu sur le front montant ou descendant de l'impulsion [1] : sur le front montant le décalage induit sera vers le bleu tandis que sur le front descendant, on observera un décalage vers le rouge si toutefois le milieu n'est pas trop ionisé à ce moment. Cet effet est visible dans l'équation (6.3) : le décalage vers le bleu sera observé pour  $dI/dt > 0$  et un décalage vers le rouge sera observé dans le cas contraire. Cette remarque est valable pour la contribution au rayonnement harmonique provenant du deuxième chemin quantique. En revanche les harmoniques issues du premier chemin quantique et dont la phase atomique est négligeable ne seront pas élargies par ce phénomène (représentées en bleu sur les figures suivantes). La figure (6.6) représente le spectre harmonique généré par une impulsion de faible intensité ( $10^{14} \text{ W/cm}^2$ ), de telle sorte que l'argon n'est pas ionisé : on observe comme on s'y attend un élargissement symétrique du rayonnement harmonique provenant du deuxième chemin quantique.

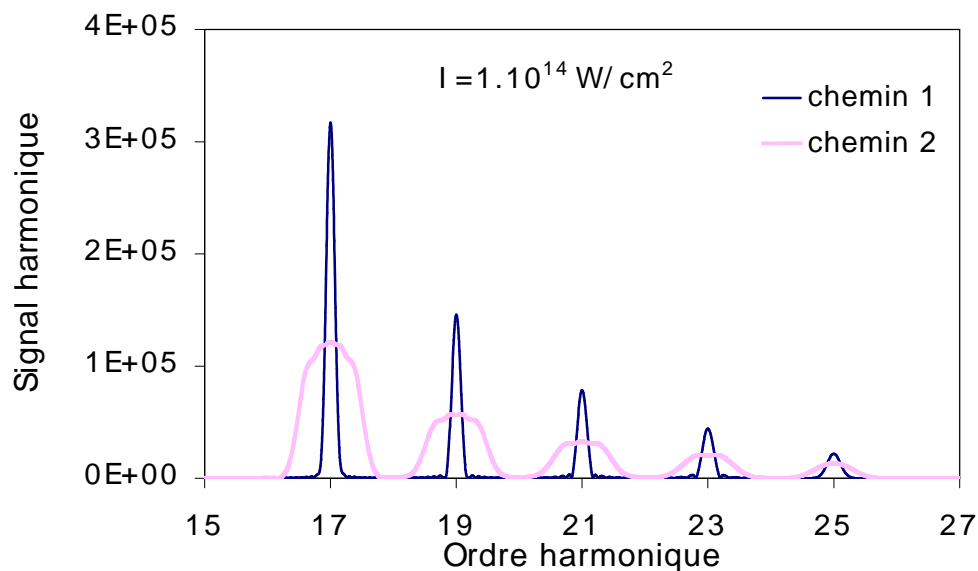


Figure 6.6: Etude théorique de l'importance de la phase atomique sur l'allure du spectre résultant dans l'argon (pression 10 torr,  $I=1.10^{14} \text{ W/cm}^2$ , longueur de cellule 1 mm, au foyer du laser)

En revanche, dans le cas de la figure (6.7), l'élargissement n'est plus symétrique et le décalage vers le bleu est plus important. Les harmoniques sont alors générées essentiellement sur le front montant. Avec une intensité de  $2.10^{14} \text{ W/cm}^2$ , choisie comme condition de la figure, l'impulsion est capable d'induire une forte ionisation du milieu, et lors du passage du front descendant de l'impulsion dans le milieu, le nombre d'émetteurs d'harmoniques (les atomes neutres) a diminué, tandis que l'accord de phase s'est dégradé, ce front contribuera donc peu à l'émission harmonique totale.

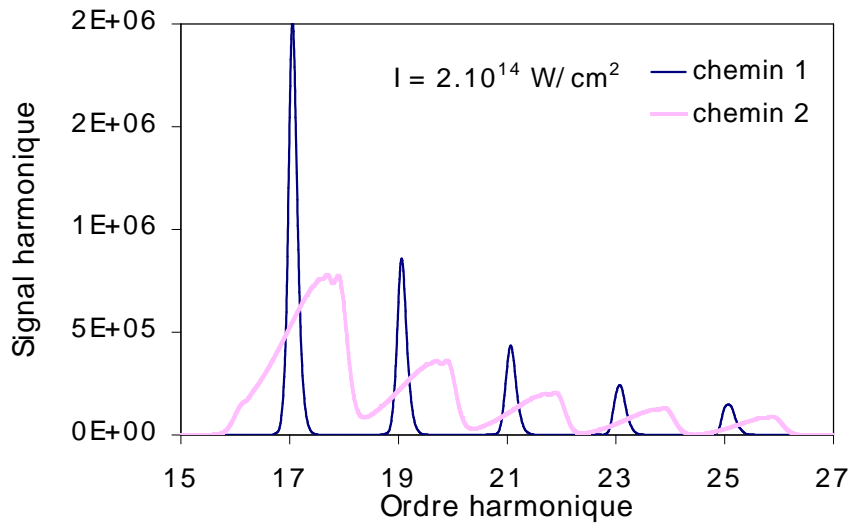


Figure 6.7: Etude de l'importance de la phase atomique sur l'allure du spectre résultant dans l'argon (pression 10 torr,  $I=2.10^{14} \text{ W/cm}^2$ , longueur de cellule 1 mm, au foyer du laser)

On a ainsi pu montrer que l'importance du décalage spectral est liée non seulement à la phase spectrale du laser mais aussi aux conditions de génération d'harmoniques elles-mêmes dans un milieu en cours d'ionisation. De plus, le deuxième chemin quantique, par la dépendance de sa phase avec l'intensité permet d'atteindre une plus grande gamme spectrale. Cela explique certainement pourquoi notre expérience de génération d'harmoniques en propagation libre du laser se prête mieux à la démonstration de l'accordabilité des harmoniques que l'expérience faite en capillaires par l'équipe de Bartels et al. [4]. Dans leur cas de figure, l'intensité est assez faible et la propagation guidée du laser interdit la présence d'un gradient de phase atomique privilégiant le chemin 2. Nous avons choisi de notre côté de démontrer l'accordabilité des harmoniques de l'argon qui présentent le nombre de photons le plus important. L'étude précédente montre qu'un simple chirp n'est pas capable d'obtenir complètement cette accordabilité, c'est pourquoi nous avons utilisé un algorithme génétique qui s'est révélé très efficace pour la recherche de conditions laser adaptées à notre étude et aux conditions de génération d'harmoniques que nous avons choisies.

## 6.2. Montage expérimental en vue de l'accordabilité des harmoniques

Nous présentons sur le schéma de principe de la figure suivante (6.8) le dispositif expérimental que nous avons utilisé. Un dispositif de contrôle actif de la phase spectrale du laser infrarouge « dazzler » est placé dans la chaîne laser après l'étireur et avant les étages d'amplification. Le faisceau laser ainsi modifié est focalisé dans notre cellule de gaz. Nous avons choisi une courte longueur de cellule et une faible pression de gaz afin de pouvoir mieux interpréter les résultats expérimentaux. Le diaphragme est fermé pour optimiser les flux de photons comme cela a été présenté dans le chapitre 5. Les spectres harmoniques ainsi produits sont recueillis après le spectrographe à transmission sur une caméra CCD et l'analyse de ces spectres par le logiciel qui contrôle l'algorithme génétique permet d'évaluer la progression vers la solution du problème initialement posé. Des ordres sont alors renvoyés sur le dispositif de contrôle spectral du laser et une nouvelle boucle d'optimisation peut commencer.

Avant de présenter les résultats de l'optimisation par algorithme génétique, nous allons exposer le principe de fonctionnement du dispositif de contrôle spectral du laser ainsi que la philosophie sur laquelle repose l'algorithme génétique proprement dit.

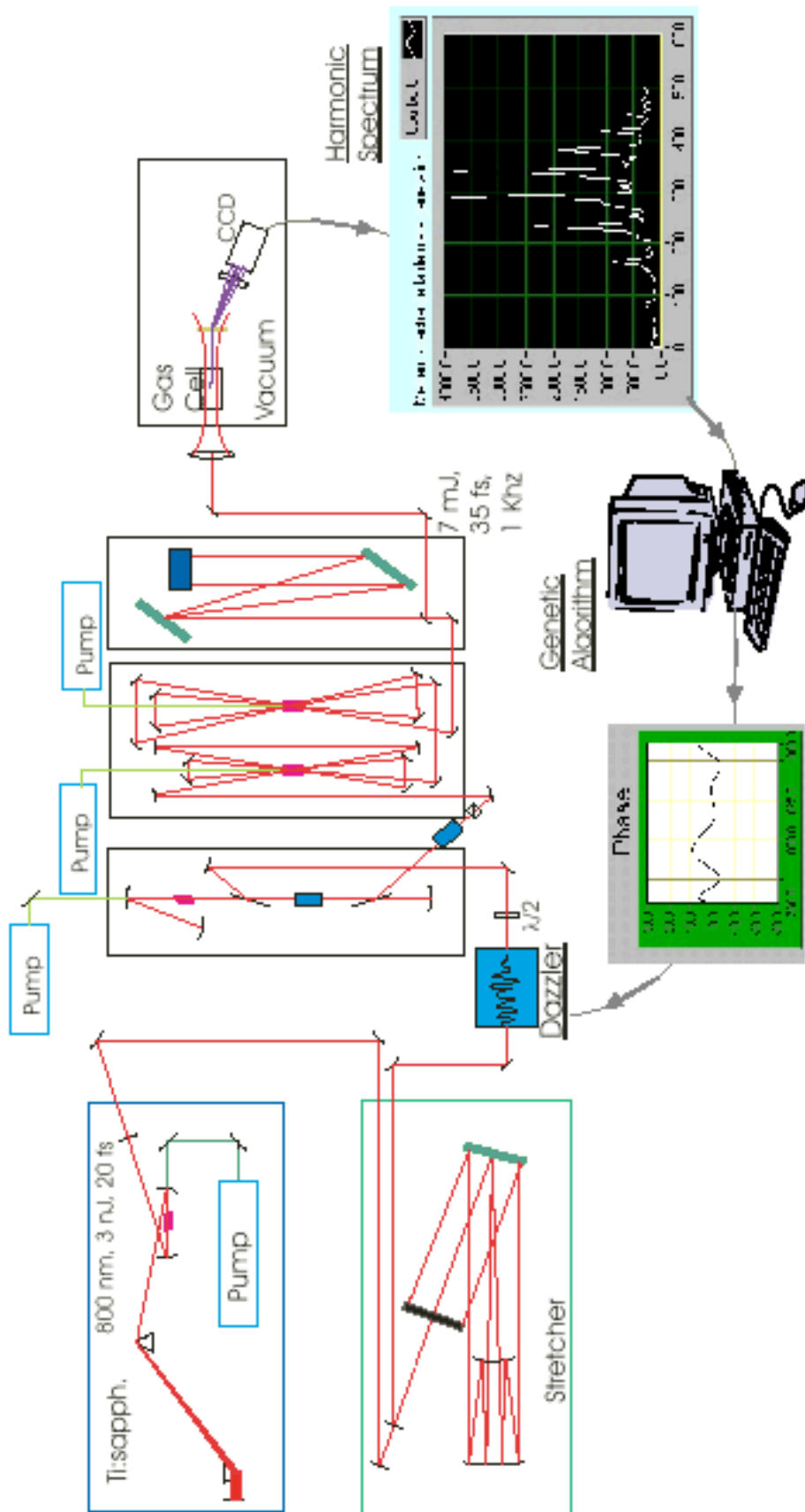


Figure 6.8 : Schéma de principe de la boucle expérimentale d'optimisation des harmoniques par l'algorithme génétique image issue de la référence [7]



### 6.2.1. Le dazzler : ou comment contrôler la phase spectrale du laser

Le dazzler est un appareil mis au point par la société Fastlite [8], c'est un « filtre acousto-optique dispersif programmable », de sigle AOPDF en Anglais. Cet appareil permet d'induire efficacement des modifications sur la phase et l'amplitude spectrales d'un laser. Il est très utilisé sur les chaînes très hautes puissances basées sur le principe de l'amplification à dérives de fréquences (CPA) car il permet d'en améliorer les caractéristiques spectrales et donc temporelles [9], [10].

#### 6.2.1.1. Principe de fonctionnement

Concrètement, le dazzler se compose d'un cristal biréfringent de  $\text{TeO}_2$  (dioxyde de Tellure) sur lequel est disposé un transducteur capable d'induire des ondes acoustiques se propageant dans le cristal. Ces ondes peuvent être totalement contrôlées par voie électronique en amplitude et en phase via le transducteur.

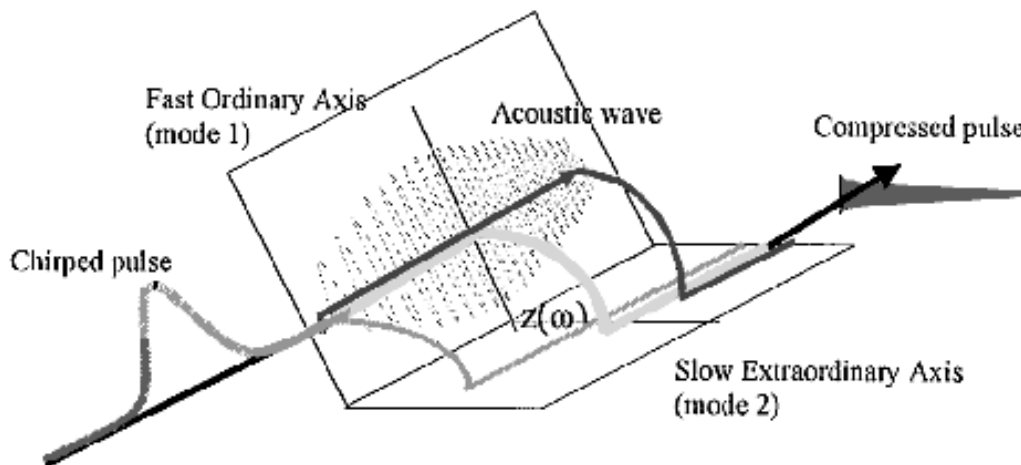


Figure 6.9 : schéma de principe du fonctionnement d'un dazzler (image Fastlite extraite de la référence [9]).

Une impulsion laser étirée en fréquence se propage alors dans le cristal suivant l'axe rapide (indice ordinaire), les ondes acoustiques forment un réseau de Bragg capable de diffracter l'onde lumineuse vers l'axe extraordinaire (lent). L'endroit du cristal pour lequel se produit la diffraction est lié à l'accord de phase entre l'onde lumineuse et l'onde acoustique et sera différent pour chaque longueur d'onde du spectre du laser car la période de l'onde acoustique n'est pas homogène dans le cristal. En sortie de milieu, la phase acquise par une longueur d'onde donnée dépendra de la proportion de trajet qu'elle aura parcouru sur l'axe extraordinaire : si la polarisation est passée très tôt sur l'axe lent, on observera un plus fort retard spectral. On comprend ainsi qu'un bon contrôle de l'onde acoustique se propageant dans le cristal permet d'induire n'importe quelle forme de phase spectrale. L'amplitude spectrale est quant à elle liée à l'amplitude de l'onde acoustique au moment de l'accord de phase pour une longueur d'onde donnée. Ce contrôle de la phase et l'amplitude spectrale du laser a des applications pratiques très intéressantes pour la qualité de l'émission laser en sortie des chaînes de très haute puissance et explique pourquoi de très nombreux laboratoires dans le monde ont fait l'acquisition de ce dispositif.

### 6.2.1.2. Utilisation sur les chaînes de puissance CPA

Une des particularités des chaînes de puissance CPA est leur très large bande spectrale qui autorise ainsi la formation d'impulsions ultracourtes dans le domaine femtoseconde. De nombreuses distorsions de la phase et de l'amplitude spectrales dues au passage dans les cristaux (rétrécissement par le gain) et les optiques auront des conséquences très néfastes sur les intensités crêtes atteintes par ces lasers. Une possibilité très puissante d'améliorer les caractéristiques temporelles de l'impulsion en sortie est de précompenser les effets de la chaîne d'amplification sur les dépendances spectrales de l'impulsion.

La figure suivante montre la régularisation et l'élargissement du spectre d'un laser haute puissance par un dazzler, comme on s'y attend la traduction de cet effet sur la durée de l'impulsion est très satisfaisant car un spectre élargi donnera une impulsion plus courte par simple transformée de Fourier.

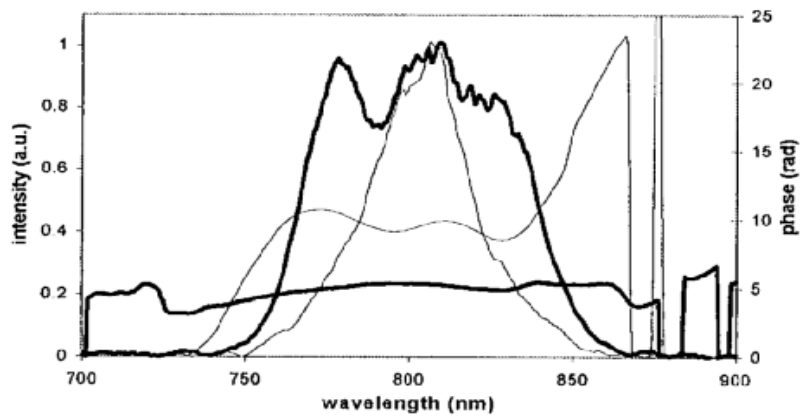


Figure 6.10 : En gris, amplitude et phase spectrale d'un laser de puissance non retravaillé par dazzler. En noir, effet du dazzler sur la phase et l'amplitude (image Fastlite extraite de la référence [9]).

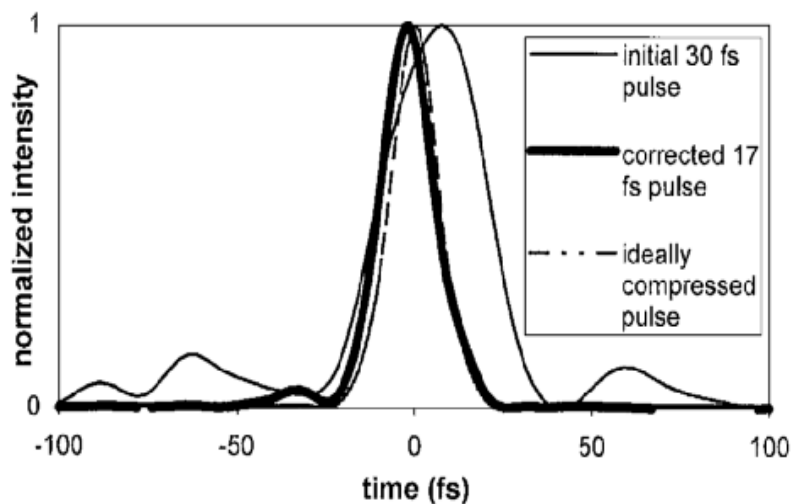


Figure 6.11 : Résultat de l'action du dazzler sur la forme temporelle de l'impulsion (image Fastlite extraite de la référence [9]).

Le laser très haute puissance du LOA (salle jaune) comporte un dispositif de ce type placé en permanence entre l'étireur et le premier étage d'amplification. Par contre, l'utilisation d'un dazzler pour contrôler la phase et l'amplitude spectrales du laser kHz du LOA (salle rouge) est plus récente et l'appareil n'est pas installé en permanence sur la chaîne. Lors de l'installation, nous avons d'abord constaté une légère amélioration de la durée d'impulsion (2 à 3 fs) donc une augmentation de la puissance du laser due à un bon réglage du dazzler. Aucune perte d'énergie n'a été constatée.

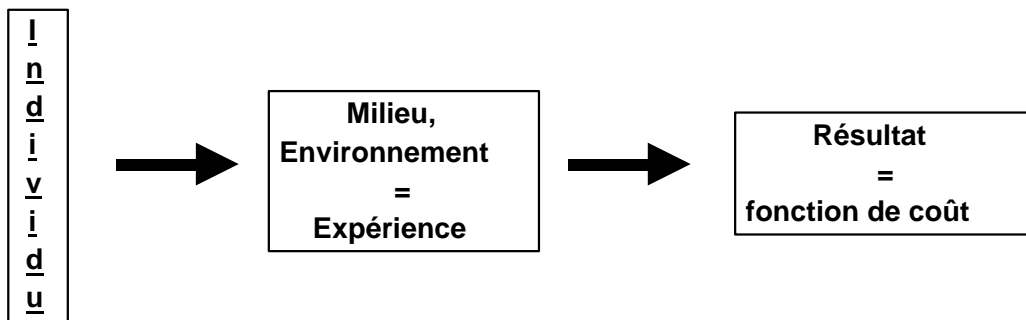
Dans le but de contrôler spectralement les harmoniques, le dazzler a été utilisé comme moyen simple et efficace de modifier la phase et l'amplitude spectrale du laser avant sa focalisation dans la cellule. Nous verrons ultérieurement que l'allure spectro-temporelle des solutions proposées par l'algorithme n'a plus de raison particulière de ressembler à celle d'une impulsion en limite de Fourier.

## 6.2.2. L'algorithme génétique

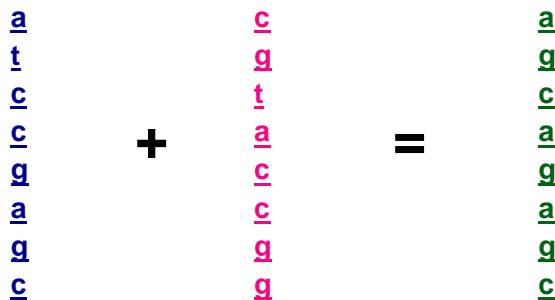
### 6.2.2.1. Principe général

L'algorithme génétique est un algorithme très efficace de recherche de paramètres d'optimisation pour un problème complexe [11]. Il est basé sur une analogie avec la théorie de l'évolution dans la nature : seuls les individus qui possèdent un patrimoine génétique qui leur permet de bien s'adapter au milieu qui les entoure pourront se reproduire et propager leur code génétique, les autres étant amenés à disparaître. L'analogie va même plus loin puisque des « mutations » génétiques sont introduites en vue d'explorer aléatoirement d'éventuelles autres solutions.

Concrètement, on considère un problème complexe non soluble analytiquement et l'on définit un espace à  $n$  dimensions contenant l'ensemble des variables du problème, on cherchera alors le vecteur à  $n$  composantes qui va constituer la meilleure solution du problème. Ce vecteur sera un « individu » et ses  $n$  composantes seront chacune un « gène ». À chaque individu, on pourra attribuer un scalaire (une note), dit aussi « variable d'adaptation » ou « fonction de coût » qui traduira sa capacité à produire de bons résultats dans le milieu qui l'entoure. Il sera alors facile de comparer plusieurs individus entre eux suivant les notes qu'ils auront obtenues au test d'adaptation au milieu.



La première étape de l'algorithme consiste à générer une première population, c'est-à-dire un ensemble d'individus répartis aléatoirement sur tout l'espace. Chacun de ses individus est testé sur le problème (expérimentalement ou numériquement) pour lui attribuer une valeur qui permet un classement et la sélection des meilleurs candidats. On forme une deuxième génération de la même taille que la première en ne retenant que les individus qui ont atteint une certaine valeur de la variable d'adaptation et en les reproduisant entre eux. La reproduction de deux individus pour en donner un troisième se fait en attribuant aux « enfants » le gène de l'un de leurs parents : chaque composante du vecteur « enfant » sera aléatoirement la composante du vecteur « père » ou celle du vecteur « mère ».

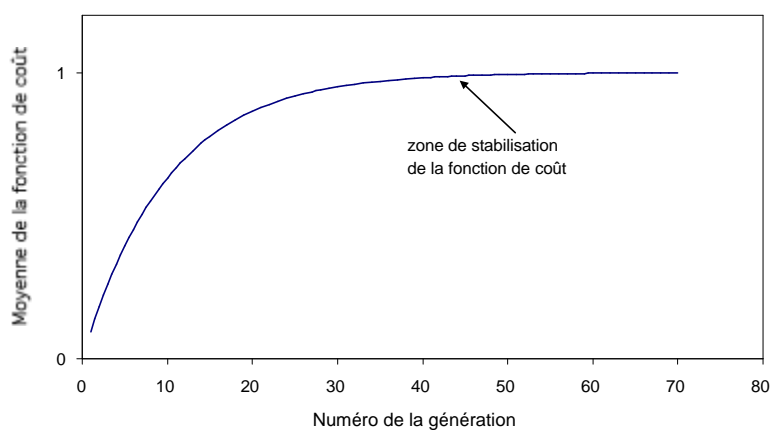


Normalement, on forme ainsi une génération mieux adaptée au problème, et l'on renouvelle l'opération de sélection autant de fois que nécessaire.

Il est possible qu'un tel algorithme converge vers une solution seulement localement optimisée et ignore des parties de l'espace qui pourraient apporter une meilleure réponse au problème. On évite ce travers en allant explorer de nouvelles régions de l'espace, tout en continuant à converger vers une solution. En pratique on introduit à doses très faibles (un pour

mille par exemple), des mutations génétiques, c'est-à-dire qu'on attribue à un gène d'un individu choisi au hasard dans la population (un mutant), une valeur aléatoire et non plus une valeur issue de ses parents. Si ce mutant s'avère mieux adapté au milieu, ses propres enfants auront des chances d'appartenir à la même zone de l'espace des solutions et la population migrera en quelques générations vers le maximum global.

Suivant la complexité du problème et le nombre de variables à optimiser, cet algorithme peut converger en quelques dizaines de générations pour les cas de physique expérimentale que nous étudions. La boucle d'optimisation étant théoriquement infinie, il faut définir une condition de sortie et choisir le meilleur individu de la dernière génération comme solution. On peut par exemple calculer la valeur moyenne de la fonction de coût et imposer que celle-ci ne varie pas plus de quelques pour cents en dix générations. Ce sera alors la condition de sortie de boucle.



*Figure 6.12 : Evolution typique de la valeur moyenne de la fonction de coup par génération calculée par un algorithme génétique, on voit la convergence du signal et la nécessité de définir une condition de sortie de boucle.*

Si le principe de cet algorithme est relativement simple et utilise un vocabulaire intuitif emprunté à la biologie, le choix de la variable d'adaptation est très important et sa pertinence aura un effet notable sur la rapidité de convergence du programme et le résultat obtenu.

Cet algorithme a été appliqué expérimentalement à la génération d'harmoniques par l'équipe de H. Kapteyn et M.Murnane [4] pour améliorer sélectivement le flux d'une harmonique par rapport à ses voisines. Cette expérience a été modélisée par Christov et collaborateurs dans la référence [5] par l'utilisation d'un algorithme génétique théorique permettant de comprendre les raisons de l'optimisation expérimentale démontrée dans la référence [4]. Enfin, L. Roos et collaborateurs dans la référence [12] ont utilisé un algorithme génétique exclusivement théorique pour rechercher des conditions de génération d'harmoniques optimales pour certaines caractéristiques de l'émission (brillance spectrale, nombre de photons...) en faisant varier la pression, la longueur du milieu, la nature du gaz, etc. Ces derniers paramètres ne seraient pas très aisés à inclure dans une boucle d'algorithme génétique expérimental, contrairement à des paramètres contrôlables de façon totalement électronique.

### 6.2.2.2. Conception de la boucle d'algorithme génétique pour notre expérience

Nous pouvons désormais présenter le concept de la boucle d'optimisation basée sur un algorithme génétique qui nous a permis de montrer l'accordabilité des harmoniques dans notre configuration. Ainsi que nous l'avons vu précédemment, la définition de la fonction de coût est le point crucial dans la conception d'une boucle d'algorithme génétique.

La condition initiale du processus d'optimisation correspond à une impulsion en limite de Fourier, c'est-à-dire de durée minimale. Les réglages optimaux du dazzler sont déterminés par une mesure de l'impulsion au moyen d'un SPIDER (voir chapitre 2). Une première génération est ensuite fabriquée aléatoirement et testée sur les harmoniques. Les spectres correspondant à chaque forme d'impulsion sont enregistrés par la caméra CCD. On a accès au nombre de coups par pixel, un pixel représentant une longueur d'onde harmonique calibrée. Le pixel 300 correspond à l'harmonique 25 et l'ordre harmonique croît avec le numéro de pixel.

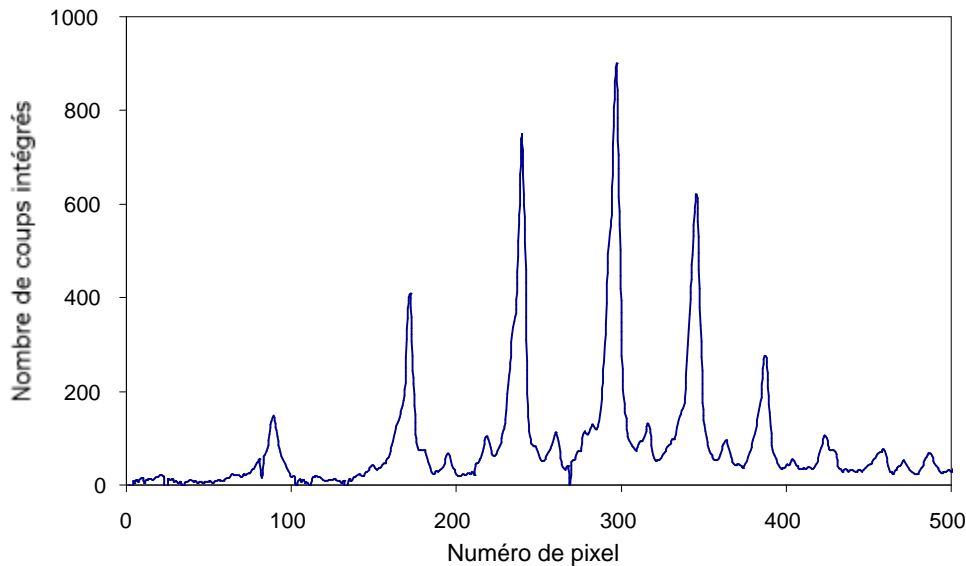


Figure 6.13 : Allure typique de spectre harmonique en fonction du numéro de pixel

La fonction de coût la plus rudimentaire qui se puisse imaginer consiste à prendre pour valeur le nombre de coups intégrés sur un pixel et à chercher à optimiser cette valeur. Les résultats obtenus ne sont pas très satisfaisants. Le flux a pu être multiplié par 1,5 au plus. De plus, cette définition ne se prête pas idéalement au contrôle spectral.

La fonction de coût qui a finalement permis d'obtenir les résultats les plus satisfaisants est la suivante, (les lettres C et P représentent respectivement des coûts et des poids relatifs) :

$$C = P_{total} C_{total} + P_{finesse} C_{finesse} + P_{amplitude} C_{amplitude} + P_{position} C_{position}$$

Cette définition très générale de la fonction de coût permet d'optimiser avec le même algorithme différentes caractéristiques du rayonnement harmonique. Le nombre de photons compris dans tout le spectre d'une part, la finesse et l'amplitude spectrale d'une harmonique donnée

d'autre part, et enfin sa longueur d'onde. Il suffit pour cela de donner un poids relatif différent à chaque terme de la fonction de coût totale. On note donc P le degré de priorité associé à chacun des paramètres efficacité totale, finesse, amplitude, position. Par exemple, si  $P_{\text{finesse}}$  est grand par rapport à  $P_{\text{amplitude}}$  ou  $P_{\text{position}}$ , on cherchera plutôt à améliorer la finesse (la largeur spectrale) du pic harmonique étudié (donc sa brillance spectrale si le nombre de photons maximal est maintenu), en accordant moins d'importance à l'amplitude de celui-ci ou sa position précise. Un contrôle spectral des harmoniques reviendra à prendre  $P_{\text{position}}$  très grand. Remarquons aussi qu'il n'est pas raisonnable d'imposer des degrés de priorité importants et égaux à tous les paramètres. Le code n'a alors aucune chance de converger convenablement.

- Le terme  $C_{\text{total}}$  est simplement l'addition du nombre de coups intégrés sur tout le spectre. Il permet de ne pas prendre en considération des spectres « aberrants » présentant uniquement du bruit et qui seraient le fruit d'instabilités du laser par exemple.

- Le terme  $C_{\text{finesse}}$  permet de caractériser la brillance, on s'intéresse à la largeur spectrale d'une harmonique. Il est défini comme suit :

$$C_{\text{finesse}} = \frac{1}{1 + \frac{(\text{finesse fit} - \text{finesse cible})^2}{\sigma_{\text{finesse}}}}$$

Les coefficients finesse cible et  $\sigma_{\text{finesse}}$  sont imposés à l'avance. Le premier traduit l'objectif de finesse imposé et le deuxième caractérise l'écart-type toléré. Si  $\sigma_{\text{finesse}}$  est grand, un écart non nul entre la finesse réelle et la finesse cible n'aura pas une grande influence sur la valeur de la fonction de coût associée. Par contre, si  $\sigma_{\text{finesse}}$  est très faible, l'écart à l'optimum sera très critique. Enfin, finesse fit est la mesure de la largeur spectrale à  $1/e^2$  d'une harmonique obtenue par un ajustement par une gaussienne sur une fenêtre du spectre centrée sur la longueur d'onde cible.

-Par analogie, la valeur de  $C_{\text{amplitude}}$  est :

$$C_{\text{amplitude}} = \frac{1}{1 + \frac{(\text{amplitude mesurée} - \text{amplitude cible})^2}{\sigma_{\text{amplitude}}}}$$

L'amplitude est ici tout simplement le nombre de coups intégrés par pixel.

-Enfin, la fonction de coût associée à l'accordabilité est :

$$C_{\text{position}} = \exp \left[ - \left( \frac{\text{position mesurée} - \text{position cible}}{\sigma_{\text{position}}} \right)^2 \right]$$

La position mesurée est la valeur du pixel central issue de l'ajustement gaussien également utilisé pour calculer la largeur spectrale. Dans le cas de la position, la fonction de coût a une forme gaussienne et non plus lorentzienne comme c'était le cas pour les fonctions de coût de l'amplitude et de la finesse. L'intérêt est que la fonction gaussienne décroît beaucoup plus rapidement que la lorentzienne pour des valeurs éloignées du maximum. On évite ainsi de donner trop d'importance à des pics qui correspondraient aux ordres harmoniques voisins de celle que l'on souhaite optimiser.

La série d'optimisation que nous allons aborder dans la suite du chapitre correspond aux valeurs suivantes :

- $P_{\text{total}}=10^{-2}$
- $P_{\text{finesse}}=40$ , finesse cible=0 pixel ,  $\sigma_{\text{finesse}}=5$  pixels
- $P_{\text{amplitude}}=25$ , amplitude cible=2000 coups,  $\sigma_{\text{amplitude}}=300$  coups
- $P_{\text{position}}=100$ , position cible variable pour chaque lancement du programme (run),  
 $\sigma_{\text{position}}=15$  pixels

Il apparaît donc clairement qu'elle était conçue pour « déplacer » un pic harmonique déterminé à l'avance.

La fonction de coût ayant été déterminée, l'algorithme génétique peut travailler en vue de son optimisation. L'espace des variables (les « gènes ») est ici de dimension 12. On représente en effet la phase spectrale du laser par 12 grandeurs : d'une part, les termes de deuxième et troisième ordres du développement de Taylor en fréquence de cette phase ainsi que 10 autres paramètres issus de l'interpolation polynomiale d'ordre 10 de la variation de la phase sur l'intervalle  $[-\pi, \pi]$ .

### 6.3. Résultats expérimentaux de contrôle spectral

Différentes configurations de la fonction de coût ont été étudiées en vue d'optimiser l'un des paramètres suivants : la finesse spectrale, l'amplitude spectrale et la position spectrale (la longueur d'onde centrale de l'harmonique). Les résultats les plus satisfaisants ont été obtenus pour le contrôle spectral. Nous présentons une série de 14 optimisations (des runs en anglais) correspondant à 14 longueurs d'onde centrales cibles séparées de 5 pixels sur la CCD.

#### 6.3.1. Gamme d'accordabilité

Nous avons ainsi montré que nous étions capables de déplacer l'harmonique 25 dans l'argon jusque pratiquement la longueur d'onde des harmoniques consécutives.

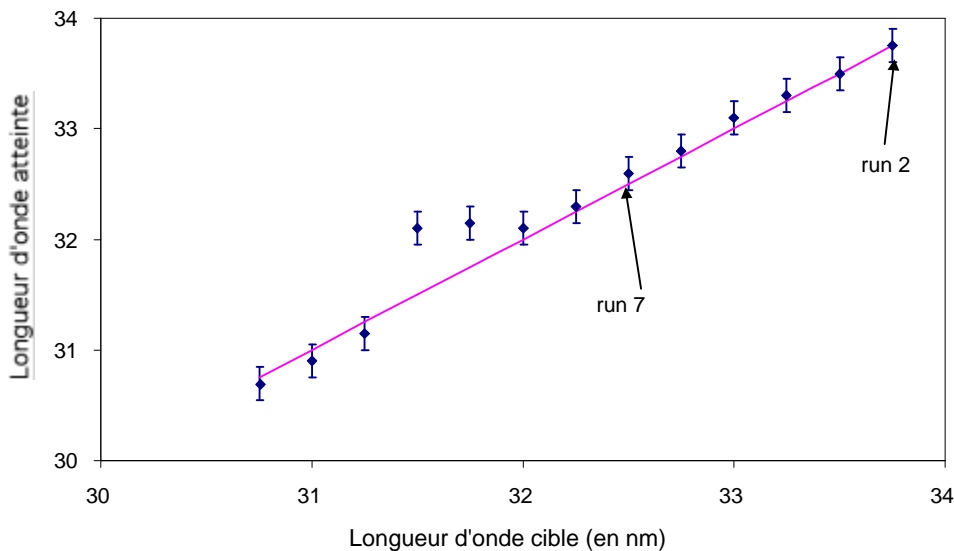


Figure 6.14 : Evolution de la longueur d'onde atteinte par une harmonique du spectre expérimental en fonction de la longueur d'onde cible imposée comme condition initiale à l'algorithme génétique, les runs 2 et 7 sont choisis comme exemple pour la suite de la présentation.



On observe que le contrôle spectral est très satisfaisant surtout si l'on considère que les conditions de générations d'harmoniques n'ont pas été modifiées en fonction de la longueur d'onde cible. Seules les modifications induites par le contrôle spectral du laser via le dazzler sont utilisées dans cette série. L'harmonique 25 nominale correspond à une longueur d'onde de 32,16 nm si l'on considère la longueur d'onde centrale du spectre du laser infrarouge (804 nm). On remarque dans la courbe présentée ci-dessus un léger désaccord (« gap ») entre les points expérimentaux et l'objectif fixé : certaines longueurs d'onde n'ont pas été atteintes par l'optimisation avec l'algorithme génétique. Ce gap se trouve vers des longueurs d'onde plus courtes que la longueur d'onde nominale de l'harmonique 25 (vers le bleu par rapport à H25). On suppose que les trois premiers points correspondent à un décalage vers le rouge de l'harmonique 27. Les points situés après le gap proviennent plutôt de l'harmonique 25 décalée vers le rouge.

### 6.3.2. Allure des spectres optimisés

Il est alors intéressant d'étudier les spectres correspondant aux meilleurs individus de la dernière génération de l'algorithme génétique d'optimisation de la position spectrale. On remarque d'abord que les amplitudes optimisées sont différentes et proviennent du fait que la boucle était lancée avec une priorité moindre accordée à l'amplitude par rapport au spectre. Il se trouve que l'amplitude maximale est obtenue pour l'harmonique nominale (32 nm). Il n'est pas étonnant que le fait de déplacer une harmonique par rapport à sa position nominale ne se fasse pas sans perte d'efficacité. En effet, la phase spectrale induite est susceptible de rallonger la durée d'impulsion et donc de diminuer l'intensité du dipôle atomique. On remarque aussi que les harmoniques correspondant à des longueurs d'onde assez éloignées de la longueur d'onde nominale sont plus larges spectralement que celles qui s'en rapprochent. La brillance spectrale (nombre de photons compris dans une largeur spectrale déterminée) est donc réduite.

Les pics harmoniques présentent une forme triangulaire orientée vers le rouge. Cela explique probablement pourquoi les longueurs d'onde décalées vers le bleu sont assez difficiles à atteindre par l'algorithme génétique dans nos conditions laser. Nous avons montré dans le paragraphe 6.1 qu'un décalage vers le bleu traduit une ionisation forte et rapide du milieu et/ou une forte phase atomique, or l'intensité laser est assez peu importante dans les conditions de diaphragmation fortes utilisées ici (ouverture 11 mm). Un fort décalage vers le bleu par rapport à l'harmonique nominale aurait pu être observé pour des intensités laser plus importantes et une longueur de Rayleigh diminuée. Rappelons que les différents runs ont été lancés pour des conditions de génération d'harmoniques semblables à chaque fois, ceci pouvant expliquer la présence du « gap » présenté ci-dessus.

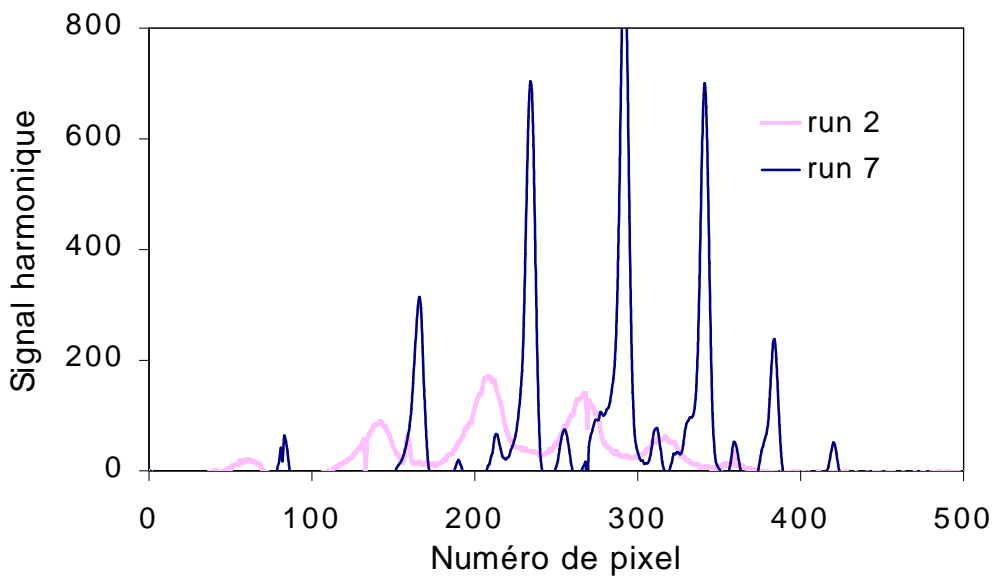


Figure 6.15 : Deux spectres harmoniques correspondant à des conditions d'optimisation de positions spectrales différentes : le run 2 correspond à 33,8 nm tandis que le run 7 correspond à 32,7 nm. Les nombres de pixels croissants correspondent à des ordres harmoniques croissants.

### 6.3.3. Évaluation de l'optimisation au cours des générations successives

On peut avoir des renseignements supplémentaires sur le fonctionnement de l'algorithme génétique dans ces deux conditions en regardant l'évolution de la fonction de coût au cours des générations (figure (6.16)).

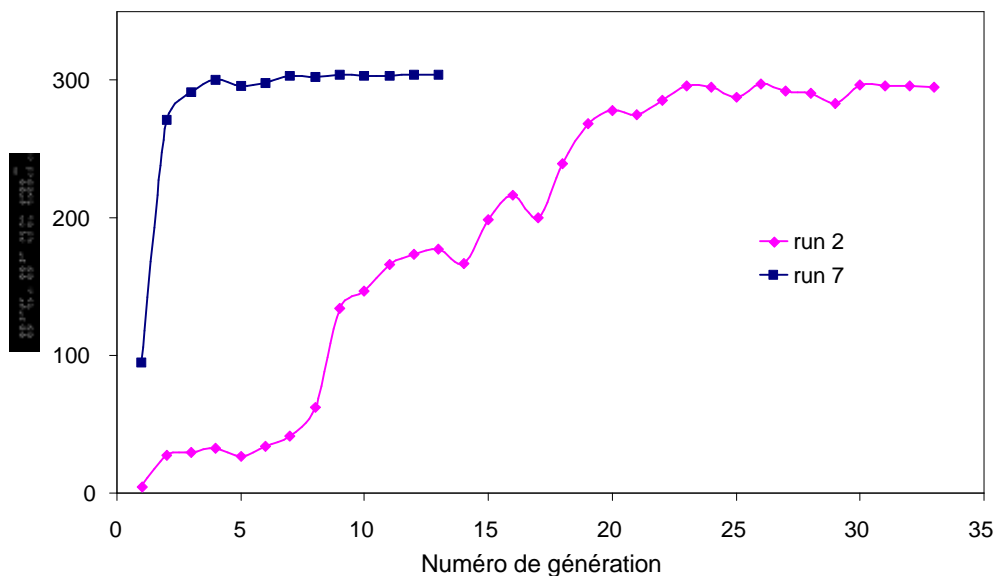


Figure 6.16 : Evolution de la valeur de la fonction de coût au cours des générations successives pour deux conditions d'optimisations différentes. Le run 7 correspond à une longueur d'onde harmonique proche de la valeur nominale tandis que le run 2 correspond à un fort décalage vers le rouge.

On remarque immédiatement sur la figure précédente, que les deux conditions d'optimisation imposées à la boucle aboutissent à la même valeur de la fonction de coût mais en des temps différents. Pour le run 7 qui correspond à une longueur d'onde très proche de l'harmonique nominale, la valeur initiale de la fonction de coût est déjà élevée et la valeur maximale est atteinte en moins de 10 générations. Pour le run 2 qui correspond à un décalage fort vers le rouge, l'optimisation se fait sur un nombre de générations plus grand (plus de 30) car la valeur initiale de la fonction de coût est très faible. Les conditions initiales, c'est-à-dire une impulsion en limite de Fourier, de durée 30 fs, sont très éloignées de la configuration finale et les modifications à induire par le dazzler sont plus complexes comme le montre le paragraphe suivant.

#### 6.3.4. Modifications induites par le dazzler sur la phase et l'intensité temporelles du laser infrarouge

On s'intéresse alors aux « gènes » des meilleurs individus de la dernière génération des runs 7 et 2. Les deux conditions d'optimisation correspondent à des impulsions laser très différentes dans le domaine spectral et temporel.

Les formes temporelles de l'impulsion laser sont reconstruites à partir des données de commandes du dazzler, traitées par un programme basé sur les transformées de Fourier qui permet de passer du domaine spectral au domaine temporel.

Comme on s'y attend le run 2 donne lieu à une forme temporelle de l'impulsion très complexe alors que l'impulsion du run 7 est de durée moindre avec une forme plus régulière. Nous remarquons sur la figure (6.17) que la durée d'impulsion laser est dans tous les cas beaucoup plus grande que celle couramment utilisée (30 fs).

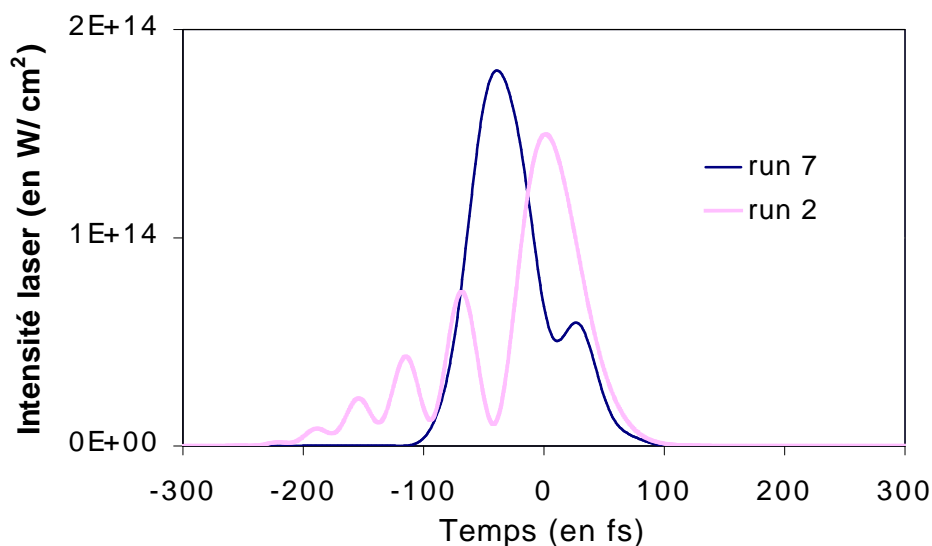


Figure 6.17 : Variation de l'intensité laser pour deux impulsions type correspondant aux runs 7 et 2 d'optimisation de l'algorithme génétique.

L'allure de la phase temporelle du laser est représentée figure (6.18) pour les runs 2 et 7.

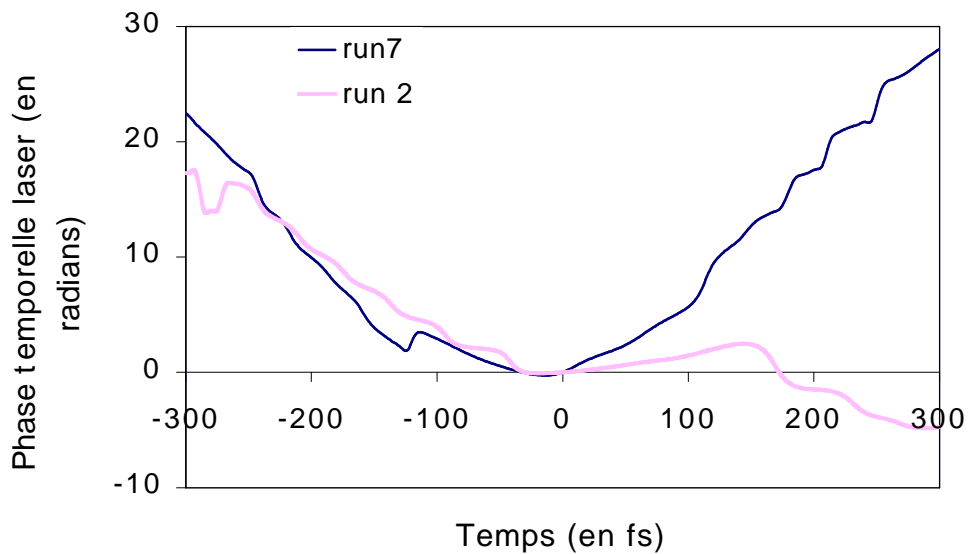


Figure 6.18: Variation de la phase temporelle du laser pour deux impulsions type correspondant aux runs 7 et 2 d'optimisation de l'algorithme génétique.

### 6.3.5. Comparaison avec les prédictions du code

Le code unidimensionnel est alors adapté pour être capable de donner le spectre harmonique correspondant à ces conditions laser différentes. La variation en temps de l'intensité permet d'évaluer les taux d'ionisation ainsi que l'importance du dipôle et de la phase atomique. La phase temporelle du champ laser infrarouge entre dans le calcul de la phase temporelle du champ harmonique déduite des considérations précédentes, cette dernière est représentée pour les runs 2 et 7 sur les deux figures suivantes :

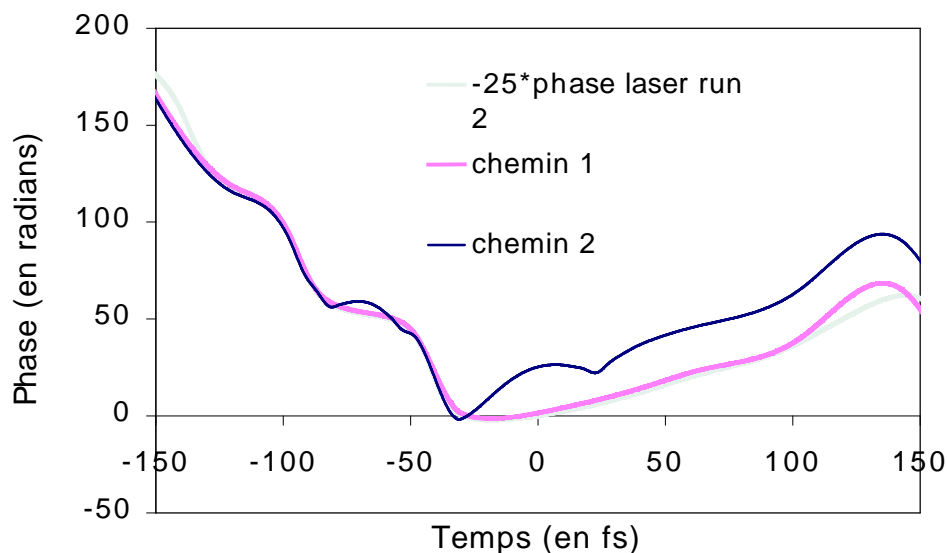


Figure 6.19 : Variation de la phase temporelle du champ de l'harmonique 25 induite par les conditions laser du run 2. On différencie la contribution des deux chemins quantiques et on compare avec la phase temporelle du laser infrarouge.

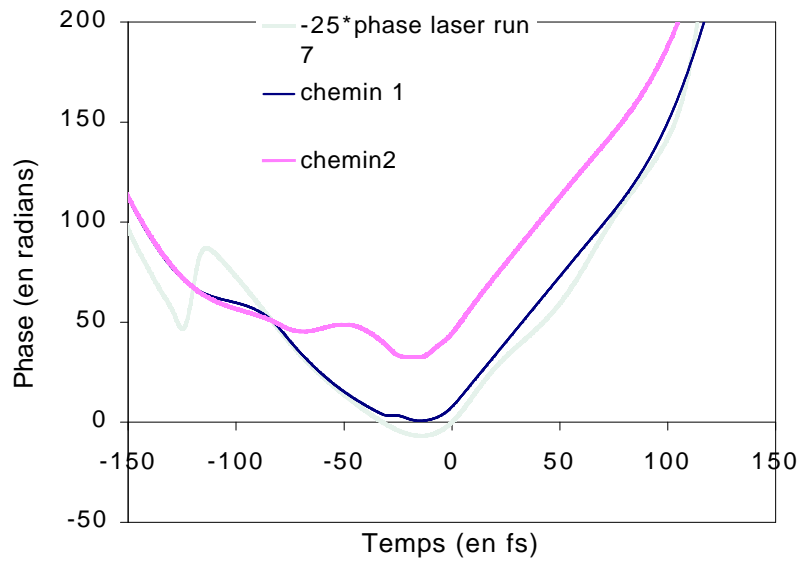


Figure 6.20 : Variation de la phase temporelle du champ de l'harmonique 25 induite par les conditions laser du run 7. On différencie la contribution des deux chemins quantiques et on compare avec la phase temporelle du laser infrarouge.

Finalement le spectre harmonique est la transformée de Fourier du champ comme fonction du temps (voir figure (6.21)).

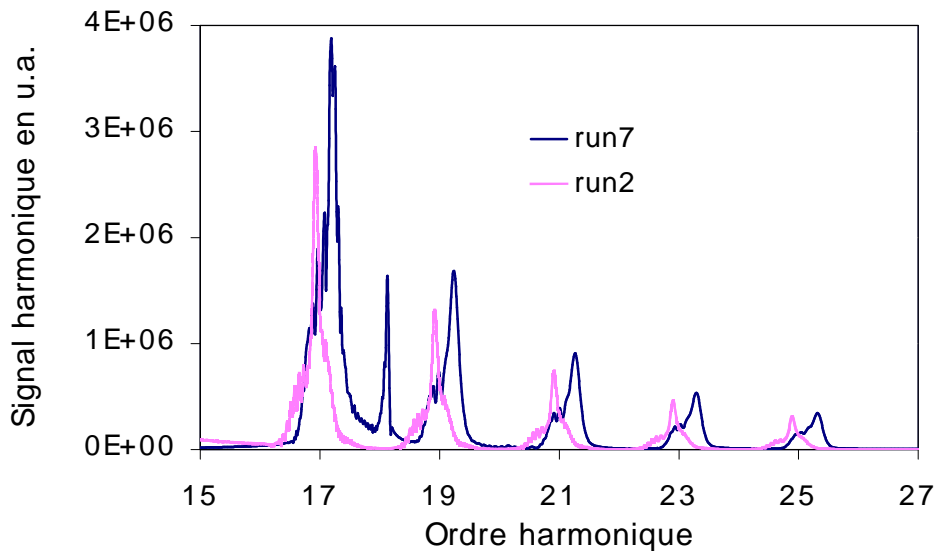


Figure 6.21 : Spectres harmoniques obtenus par le calcul pour deux formes particulières du champ laser incident présentées sur la figure précédente. Les conditions de génération étaient une cellule de 1mm remplie d'argon à une pression de 10 torr et placée 10 mm après le foyer du laser. La longueur de Rayleigh était de 17 mm et correspondait à une diaphragme de 11 mm d'ouverture.

Le code permet de reproduire assez fidèlement la forme globale des pics harmoniques, en particulier leur élargissement vers le rouge caractéristique d'une impulsion assez peu intense. Il existe cependant un léger décalage des valeurs précises des harmoniques nominales. Ceci est probablement lié à la grande largeur spectrale des lasers femtoseconde, notamment lors de leur propagation dans un milieu en cours d'ionisation, ainsi qu'à la difficulté de calibration en longueur d'onde des spectres présentés. Enfin, les autres runs réalisés aboutissaient à des conditions laser différentes qui ne permettaient pas toujours de reproduire aussi fidèlement le résultat au moyen du code unidimensionnel. C'est là tout l'intérêt d'un algorithme génétique qui permet de trouver les solutions optimales malgré la très grande complexité du problème, difficilement modélisable par un code.

#### **6.4. Conclusion du chapitre**

Nous avons démontré dans ce chapitre la possibilité de modifier à volonté la longueur d'onde des harmoniques générées en configuration longue focale dans une courte cellule d'argon (1 mm). L'utilisation d'un algorithme génétique s'est révélée un moyen très efficace et rapide d'obtention de la meilleure solution au problème posé. Il est donc possible d'obtenir une source de rayonnement harmonique accordable dans la gamme spectrale XUV, moyennant un contrôle spectral du laser infrarouge et éventuellement une modification des conditions de génération d'harmoniques. Nous avons cependant mis en évidence le fait que la brillance spectrale d'une harmonique est d'autant meilleure que sa longueur d'onde est proche de la longueur d'onde nominale. De même l'optimisation des conditions laser en sera considérablement facilitée.

Cette méthode relativement aisée de contrôle spectral de la génération d'harmoniques semble une solution technologique très prometteuse dans le cadre de l'optimisation des caractéristiques de la source harmonique en vue des spécifications d'applications ultérieures.

#### **6.5. Références**

- [1] Salières et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 5544 (1998)
- [2] Chang et al., Phys. Rev. A Rapid Communications **58**, R30, (1998)
- [3] Lee et al., Phys. Rev. Lett. **87**, 243902 (2001)
- [4] Bartels et al., Nature, **406** 164 (2000)
- [5] Christov et al., Phys. Rev. Lett., **86** 5458 (2001)
- [6] Wahlström et al., Phys. Rev. A, **49** , 4709 (1993)
- [7] Reitze et al., Compte-rendus de la conférence Ultrafast 2002
- [8] Documentation de la société Fastlite disponible sur le site <http://www.fastlite.com/>
- [9] Verluise et al., Optics Letters, **25** 8, 575 (2000)
- [10] Verluise et al. J. Opt. Soc. Am. B, **17** 1, 138 (2000)
- [11] Albert et al., Optics Letters, **25** 1 , 52 (2000)
- [12] Roos et al., J. Phys.B.,**34** (2001)



## 7. La focalisation des harmoniques

Ce dernier chapitre est consacré à la focalisation des faisceaux harmoniques, étape capitale en vue d'atteindre des éclaircissements intéressants pour les applications en optique non linéaire dans le domaine XUV. Des faisceaux de rayonnement XUV issus de la génération d'harmoniques ont déjà été focalisés pour observer des phénomènes d'ionisation multiphotonique de gaz rares par exemple [1], [2]. Cependant, comme nous le verrons, les problèmes technologiques posés par la focalisation du rayonnement XUV sont très importants, ce qui explique que la caractérisation précise de la taille de la zone focale d'un faisceau harmonique a été réalisée seulement récemment.

Des expériences de focalisation du rayonnement harmonique ont déjà été réalisées par les équipes du CEA-Saclay [3] et de Vienne [4] durant l'année 2000. Pour la référence [3], l'optique de focalisation est une lentille de Bragg-Fresnel multicouche qui présente l'avantage d'une bonne réflectivité pour un angle d'incidence fixé par les caractéristiques de l'optique multicouche, en contrepartie, les impulsions se verront étalées temporellement par diffraction. De plus, chacun des ordres harmoniques compris dans la bande passante de la lentille aura un foyer distinct des ordres contigus. Ces propriétés sont intéressantes dans le cas d'expériences nécessitant une grande finesse spectrale de la source, mais peuvent considérablement diminuer les intensités maximales atteignables en un point cible. L'intensité évaluée après focalisation de 70 % du rayonnement compris dans l'harmonique 37 générée dans le néon sur une tache de 1,2 microns est de  $5.10^8$  W/cm<sup>2</sup>. Pour le cas de l'harmonique 21 générée dans l'argon, donc plus énergétique, l'intensité estimée au foyer est de  $2.10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>.

Nos choix technologiques sont très différents et répondent à l'objectif d'atteindre des intensités focalisées plus importantes. Notre optique de focalisation étant un miroir torique essentiellement achromatique, nous focalisons tous les ordres harmoniques présents dans le spectre en un même point, sans étalement temporel des impulsions. On peut même raisonnablement concevoir que des ordres harmoniques consécutifs interfèrent constructivement dans le domaine spectral pour produire des trains d'impulsions encore plus courts, de l'ordre de la centaine d'attosecondes, comme cela a été démontré dans l'expérience de l'équipe de P. Agostini [5] sur l'installation laser de la salle rouge du LOA où était également utilisé un miroir torique pour focaliser les harmoniques.

Dans une première partie, nous rappellerons les propriétés géométriques et optiques des miroirs toriques. Nous aborderons dans une seconde partie la caractérisation de la zone focale des harmoniques pour conclure ensuite sur l'estimation des intensités réellement atteintes dans nos conditions expérimentales.

### **7.1. Propriétés du miroir torique utilisé pour focaliser les harmoniques**

#### 7.1.1. Problèmes techniques liés à l'optique dans la gamme spectrale XUV

La réalisation et l'utilisation d'optiques adaptées au rayonnement XUV est très délicate en raison de nombreux problèmes liés à la longueur d'onde considérée. Tout d'abord, l'utilisation d'optiques en transmission, telles que les lentilles par exemple, est rendue impossible par la forte absorption des composés usuels à ces longueurs d'onde. Les optiques en réflexion doivent quant à elles être utilisées en incidence quasi rasante pour obtenir des réflectivités acceptables : elles sont



de l'ordre de 70 à 90 % pour des métaux comme l'or et le platine. Enfin, la longueur d'onde étant plus faible que celles des lasers couramment utilisés (30 nm contre 800nm), la qualité de surface des optiques doit être plus importante : les défauts potentiels sont en effet mesurés par rapport à la longueur d'onde utilisée. On comprend alors le prix très élevé de ces optiques adaptées aux harmoniques et au rayonnement XUV en général.

Il est également important de préciser que cette gamme spectrale exige de travailler entièrement sous vide pour éviter l'absorption du rayonnement par l'air ambiant, ce qui rend les réglages nettement plus délicats.

Nous avons choisi de caractériser la zone focale d'un faisceau harmonique focalisé par un miroir torique recouvert de platine. Ce miroir nous a été prêté par l'équipe d'optique XUV du Laboratoire d'Interaction du rayonnement X Avec la Matière (LIXAM) d'Orsay et était utilisé précédemment sur le rayonnement synchrotron. Ce type de miroir présente l'avantage sur les miroirs sphériques de focaliser le rayonnement dans deux directions donc de réduire la surface du foyer.

### 7.1.2. Principe optique du miroir torique

Un miroir torique est en fait l'association de deux surfaces focalisantes correspondant à deux plans d'incidence perpendiculaires. Elles sont caractérisées par deux rayons de courbure distincts ( $r, R$ ) qui peuvent être très différents l'un de l'autre. Chacune de ces surfaces est localement assimilable à un miroir sphérique et focalise le rayonnement dans une direction. Pour un faisceau incident quelconque sur le miroir, l'image correspondant au petit rayon de courbure n'a en général aucune raison d'être confondue avec l'image correspondant au grand rayon de courbure. Si l'angle d'incidence n'est pas réglé très précisément, on observe deux foyers successifs, appelés foyers sagittal et tangentielle, comme le montre la figure suivante (7.1).

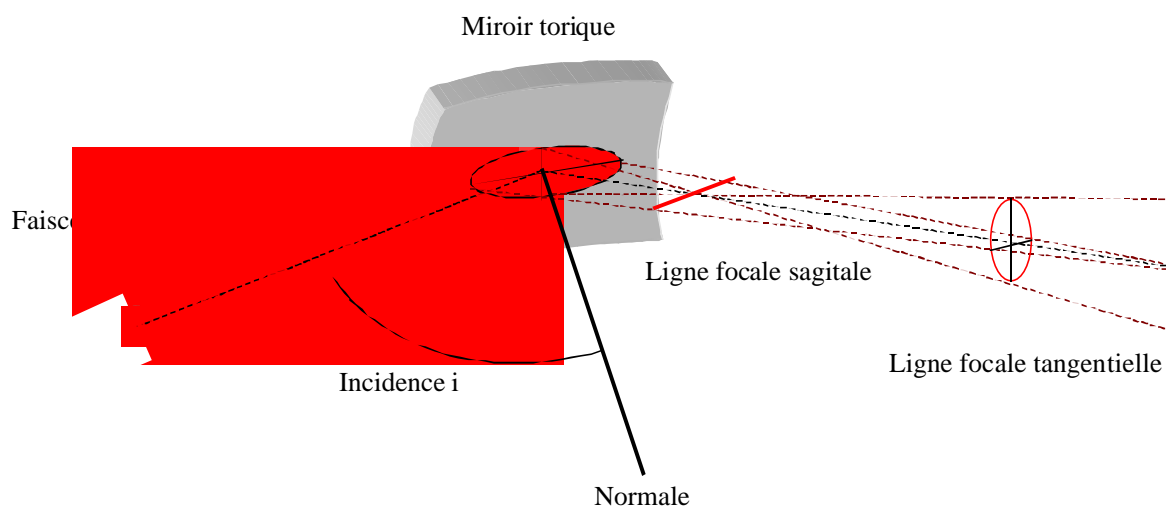


Figure 7.1 : Schéma d'optique géométrique d'un miroir torique.

Les relations de conjugaison d'optique géométrique appliquées à la surface sagittale sont d'après la référence [6] :

$$\frac{1}{s'} = \frac{1}{s} - \frac{2 \cos i}{r} \quad (7.1)$$

s est la distance objet, s' la distance image, i l'angle d'incidence et r le rayon de courbure sagittal.

Pour la surface tangentielle la relation de conjugaison est :

$$\frac{1}{t'} = \frac{1}{t} - \frac{2}{R \cos i} \quad (7.2)$$

t est la distance objet, t' la distance image et i l'angle d'incidence, R le rayon de courbure tangentiel.

Il existe une valeur de l'angle d'incidence pour laquelle les deux images sont confondues (t'=s') :

$$\frac{2}{R \cos i} = \frac{2 \cos i}{r} \Rightarrow \cos^2 i = \frac{r}{R} \quad (7.3)$$

Dans le cas où l'angle d'incidence est fixé par la relation (7.3), les deux foyers sont confondus et le rayonnement est bien focalisé dans les deux directions. Le réglage d'un miroir torique est une opération très délicate qui consiste à confondre les deux foyers sagittal et tangentiel. Dans nos conditions expérimentales, l'angle d'incidence correspondant est de 83,53° ce qui fait un angle de rasance de 6,5°.

On peut également obtenir par le calcul la valeur de la focale f du miroir dans ces conditions, elle est donnée par :

$$f = \frac{1}{2} \sqrt{rR} \quad (7.4)$$

Dans nos conditions, (r=2,6cm, R=2m), elle vaut 11,4 cm.

### 7.1.3. Configuration expérimentale de focalisation

Le miroir torique est placé à 1m50 en aval de la source harmonique. On peut donc considérer que la source harmonique est ponctuelle et située à l'infini dans l'espace objet du miroir. Le foyer du faisceau XUV sera alors situé environ 10 cm après le miroir. La figure ci-dessous représente le montage expérimental :

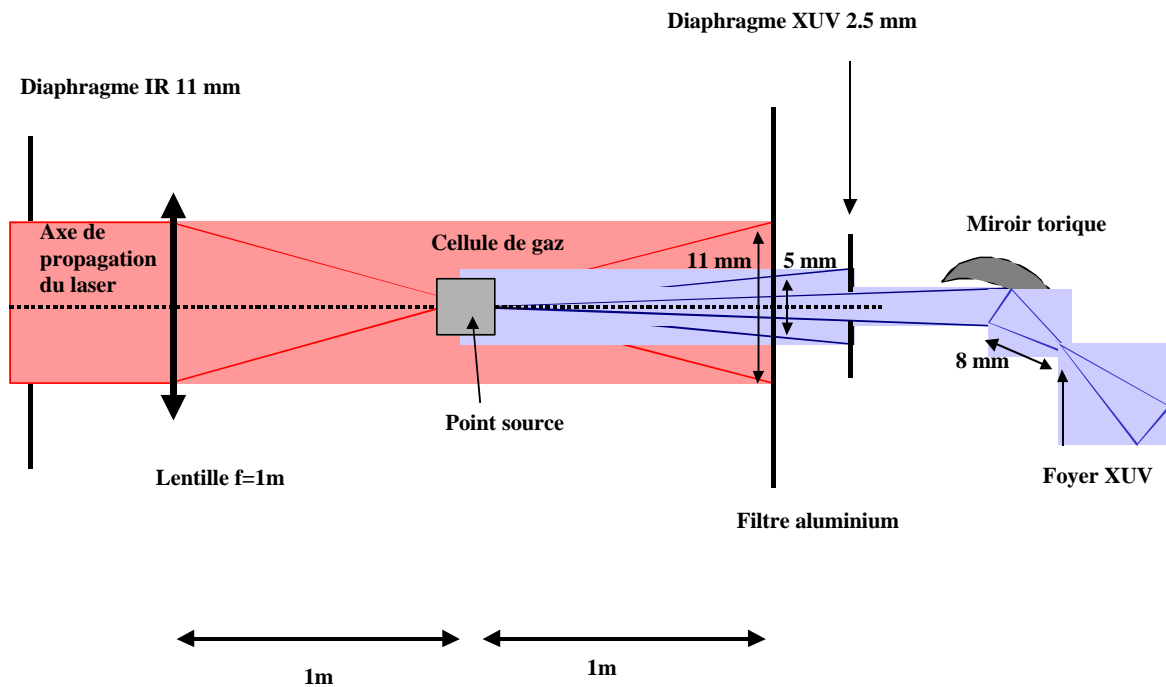


Figure 7.2 : Schéma du dispositif de focalisation des harmoniques par le miroir torique.

Le faisceau infrarouge est éliminé avant le miroir torique par un filtre en aluminium (voir chapitre 2). Cette méthode d'élimination présente l'inconvénient de ne transmettre que 20 à 40 % du rayonnement harmonique. En revanche, on s'assure ainsi qu'il n'y a pas de rayonnement infrarouge résiduel incident sur le miroir. Lors de l'élimination du rayonnement harmonique par d'autres méthodes telles que la diffraction par un réseau [1] ou l'utilisation de faisceaux annulaires pour générer les harmoniques [3], [5], une infime partie de ce faisceau peut éventuellement être focalisée par le miroir torique en même temps que les harmoniques et les intensités atteintes dans le domaine infrarouge sont susceptibles de perturber considérablement les résultats d'expériences de caractérisation du foyer ou d'application dans le domaine XUV.

La figure précédente permet également de caractériser les divergences des faisceaux et leur taille caractéristique au niveau du miroir. Le faisceau infrarouge est diaphragmé (voir chapitre 5) jusqu'à un diamètre de 11 mm, puis focalisé par une lentille de focale 1 mètre. Par symétrie, son diamètre sera identique 1 mètre après le foyer de la lentille, si l'on suppose que l'ionisation n'induit pas de modification trop importante sur la propagation du faisceau. L'étude des spectres harmoniques enregistrés à partir du spectrographe en transmission nous a permis de montrer que dans nos conditions expérimentales, la divergence du faisceau harmonique est deux fois plus faible que celle du faisceau infrarouge (2 mrad). Cela conduit à une taille du faisceau harmonique incident sur le miroir d'environ 7 à 8 mm. Ce diamètre de tache n'est plus négligeable devant le plus petit rayon de courbure du miroir torique ( $r = 26$  mm) et l'approximation de Gauss n'est plus vérifiée (taille transverse des objets petite devant le rayon de courbure). Dans ce cas, des effets d'aberrations sont susceptibles de survenir. C'est pourquoi, une focalisation de bonne qualité exige que le faisceau harmonique soit assez fortement diaphragmé, malgré la perte supplémentaire d'énergie XUV induite par cette diaphragmation. Nous vérifierons ce résultat expérimentalement dans le paragraphe (7.3).

## 7.2. Dispositif d'imagerie et de calibration de la zone focale

La taille de la zone focale attendue est d'environ quelques microns au maximum, ce qui est plus petit que la taille caractéristique des pixels de la caméra CCD que nous utilisons. Un dispositif d'imagerie devra donc comprendre un objectif de grossissement de l'image du foyer. De tels objectifs sont impossibles à mettre en œuvre dans le domaine XUV par manque d'optiques adaptées. L'imagerie d'un foyer d'harmoniques n'est pas chose aisée et les méthodes de calibration utilisées doivent être indirectes.

Dans le cas de la référence [3], l'équipe du CEA-Saclay a utilisé une technique de Foucaultage qui consiste à mesurer l'énergie transmise par une fente placée au niveau du foyer et dont on varie la position progressivement. La forme du foyer suivant les trois dimensions est alors recalculée à partir des mesures réalisées par motorisation de la lame suivant les trois directions (x,y,z). Cette technique est difficile à mettre en œuvre car elle exige des pas de motorisation submicroniques pour garantir une précision suffisante à la mesure de la taille réelle du foyer.

### 7.2.1. Dispositif expérimental

Nous avons choisi quant à nous une technique d'imagerie directe du foyer harmonique. Une caméra CCD 16 bits visible recueille l'image de la fluorescence induite par le faisceau harmonique sur un cristal de YAG dopé au Cérium, habituellement utilisé pour le rayonnement synchrotron. Le montage expérimental est représenté sur le dessin 3D ci-dessous :

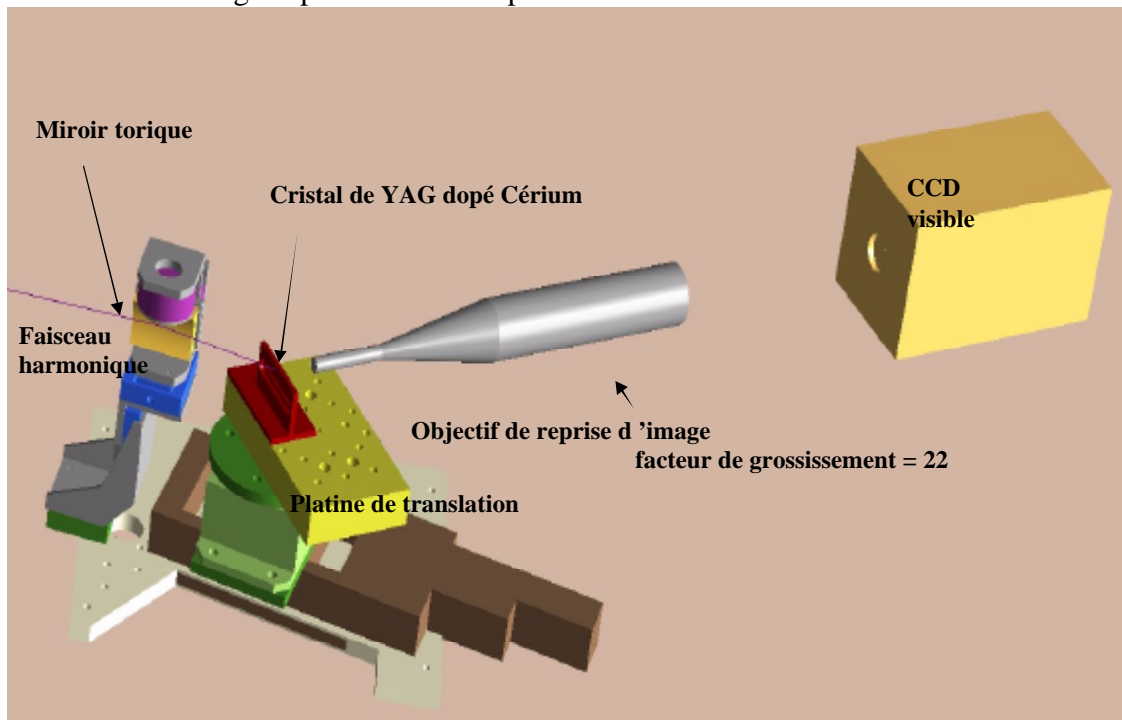
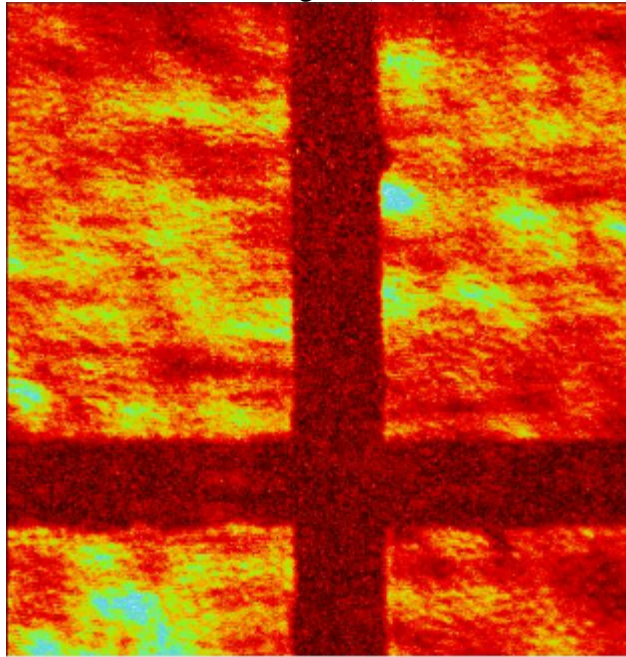


Figure 7.3 : Schéma tridimensionnel du dispositif d'imagerie du foyer des harmoniques (image D. Douillet).

On notera que le cristal de YAG est motorisé sous vide, ce qui permet d'étudier l'extension de la zone focale le long de l'axe de propagation.

### 7.2.2. Calibration des images

La fluorescence induite sur le cristal par le faisceau harmonique est dans le domaine visible, ce qui permet d'utiliser des systèmes de reprise d'image et de grossissement adaptés à cette gamme de longueur d'onde plus habituelle. L'objectif utilisé induit un facteur de grossissement de 22, ce qui permet à l'image recueillie sur la CCD d'occuper plusieurs pixels de la caméra. La calibration des images a été permise par l'imagerie d'une grille placée sur la surface amont du cristal de YAG comme le montre la figure (7.4):



*Figure 7.4 : Observation en transmission d'un laser He-Ne par la grille de calibration.*

Les dimensions de cette grille ont été déterminées de façon précise grâce à un microscope à balayage (MEB), le résultat de la mesure est présenté sur la figure suivante :

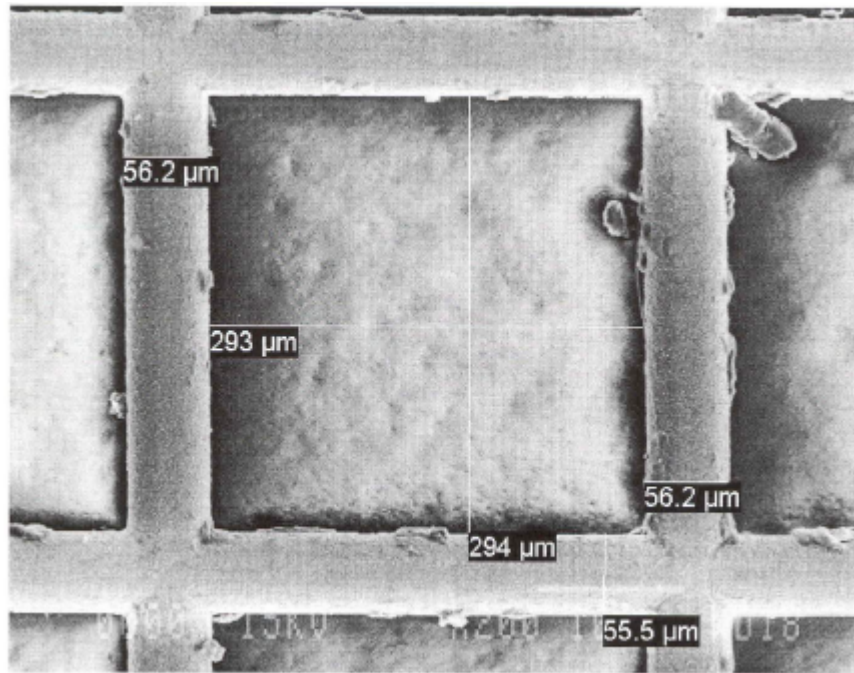


Figure 7.5 : Observation de la grille de calibration au microscope électronique à balayage (MEB)

La correspondance pixel/micron ainsi obtenue est de 1 pixel pour 0,8 micron.

### 7.3. Exploration et calibration de la zone focale des harmoniques

#### 7.3.1. Importance des effets d'aberration

Pour les raisons que nous avons exposées dans la partie 2, de nombreux effets d'aberration ont été observés et nous ont obligés à considérablement diaphragmer le faisceau harmonique avant son arrivée sur le miroir.

L'ouverture de diaphragme que nous avons sélectionnée expérimentalement a un rayon de 2,5 mm. Les effets d'aberration sont considérablement diminués bien que subsiste encore une sorte de double queue, dont la forme fait penser à une aberration de type coma. Ces données expérimentales sont bien confirmées par les résultats d'un code de propagation de faisceau (logiciel Oslo), utilisé en supposant que le faisceau harmonique est issu d'une source ponctuelle de divergence 2 mrad placée à 1m50 du miroir. La taille attendue de la tache focale est d'environ 2,5 microns de diamètre et un bon accord avec les résultats de mesure expérimentaux est obtenu (figure (7.8)).

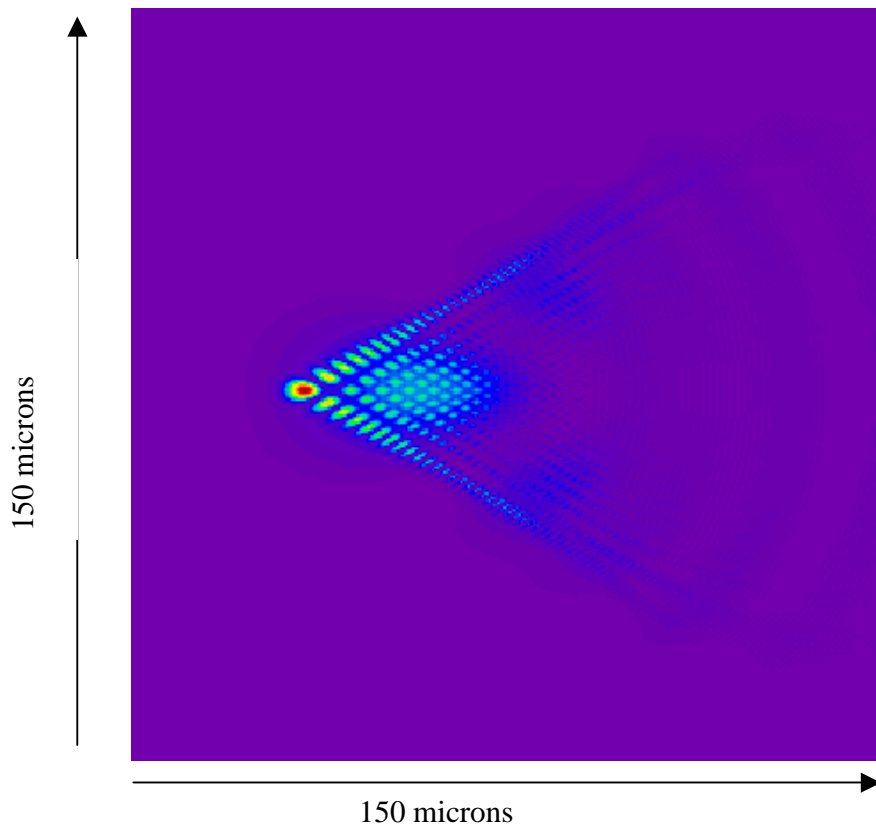


Figure 7.6 : Allure du foyer d'un faisceau harmonique de diamètre 2,5 mm focalisé par un miroir torique (calculs Oslo P. Mercère).

Dans le cas d'une taille de faisceau encore plus faible, comme dans la figure (7.7) pour laquelle le diamètre vaut 1 mm, la qualité de la tache est encore améliorée. Cependant, il n'est pas raisonnable de trop diaphragmer le faisceau harmonique car la diminution de l'énergie harmonique incidente est considérable. Pour le cas de la figure 7.6, la transmission du diaphragme tombe déjà à 15 % environ, tandis qu'elle ne serait plus que de 3 % pour un diaphragme fermé à 1 mm comme représenté sur la figure 7.7.

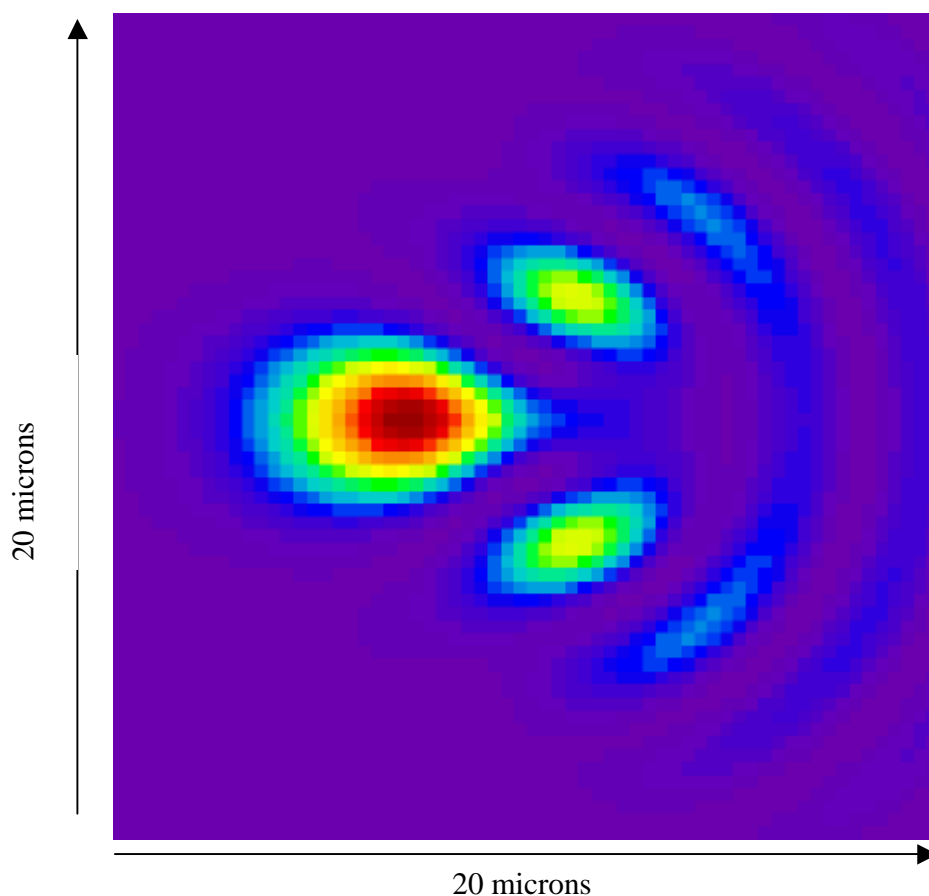


Figure 7.7 : Allure du foyer d'un faisceau harmonique de diamètre 1 mm focalisé par un miroir torique (calculs Oslo P. Mercère).

Nous remarquons que la taille de la tache centrale est très peu influencée par la taille du faisceau harmonique incident sur le miroir, en revanche la fraction d'énergie dans les zones périphériques est plus importante dans le cas d'un faisceau peu diaphragmé.

### 7.3.2. Évolution de l'allure de la tache en fonction de la distance au foyer ( $z$ )

Nous avons réalisé une série de mesures de la zone focale d'un faisceau d'harmoniques générées dans l'argon, dont la longueur d'onde centrale est d'environ 30 nm. La figure suivante présente le meilleur foyer ainsi que l'allure du faisceau 100 microns avant et après ce foyer :

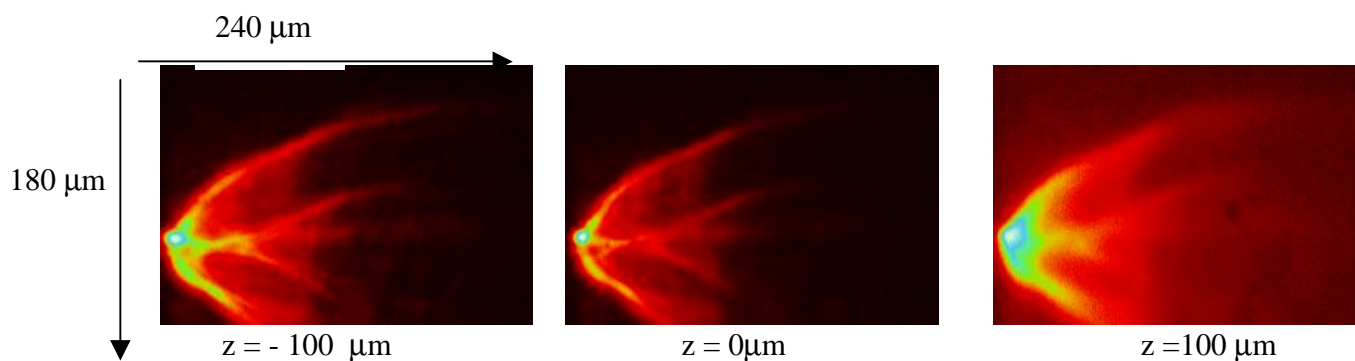




Figure 7.8 : Images du faisceau harmonique 100 microns avant le foyer, au foyer et 100 microns après.

La taille des taches harmoniques est déterminée par ajustement du profil d'intensité des images par une gaussienne, on s'intéresse ici à la largeur à mi-hauteur de l'intensité. La figure suivante montre cette procédure adaptée au meilleur foyer dans la direction horizontale puis verticale :

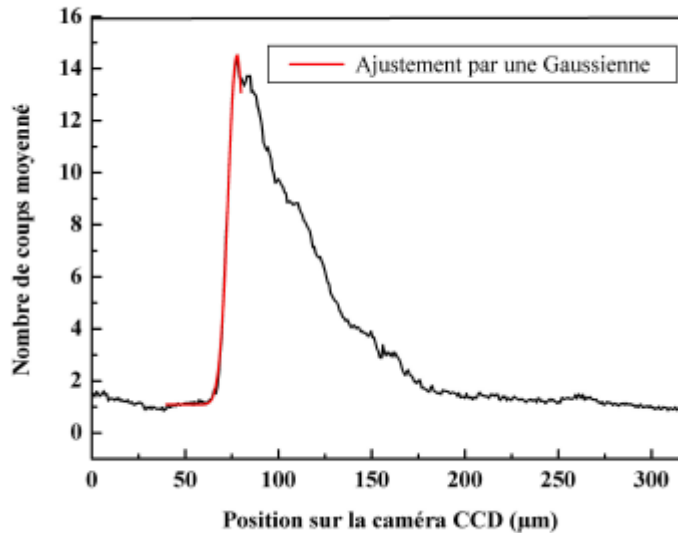


Figure 7.9 : Illustration de la calibration de la taille du foyer harmonique par ajustement du profil en intensité suivant l'axe horizontal.

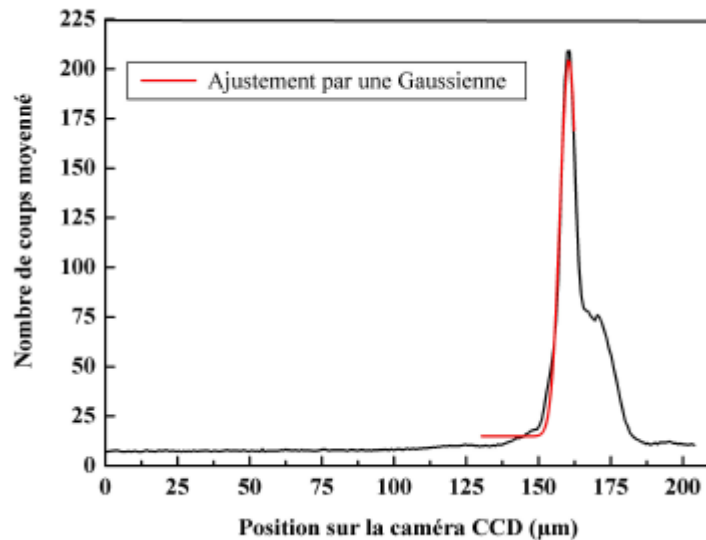


Figure 7.10 : Illustration de la calibration de la taille du foyer harmonique par ajustement du profil en intensité suivant l'axe vertical.

On constate que les deux directions ne sont pas strictement identiques, ceci était déjà visible sur les images brutes. La dimension horizontale du foyer est de 3,8 microns alors que la dimension verticale est de 2,9 microns. Cet écart est compatible avec l'angle entre la normale au cristal de YAG et le faisceau harmonique qui est de  $45^\circ$ . On peut considérer que les deux dimensions réelles dans le sens horizontal et vertical sont de 3 microns de diamètre à mi-hauteur. La surface transverse du foyer est alors de 7 microns carrés environ.

On observe également sur la figure 7.10, un léger astigmatisme provenant de l'extrême sensibilité du réglage de l'angle d'incidence sur le torique. Les dimensions minimales suivant chacune des directions horizontale et verticale ne sont pas observées pour la même valeur de  $z$ , comme le montre la figure suivante :

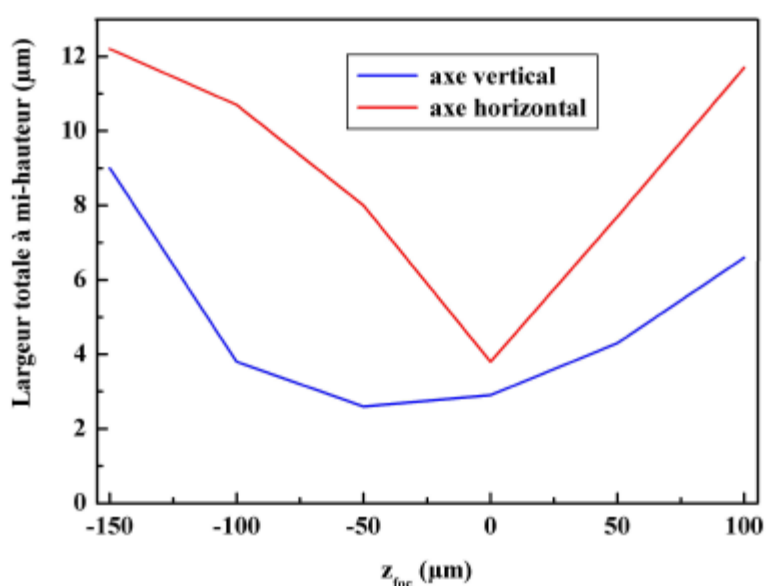


Figure 7.11 : Evolution de la largeur horizontale et verticale de la tache focale en fonction de la position  $z$  suivant l'axe de propagation.

L'écart observé entre les deux foyers est d'environ 50 microns.

### 7.3.3. Phénomène de saturation

Un autre effet qui pourrait justifier une taille de foyer légèrement inférieure à celle que nous avons mesurée est la saturation de la fluorescence du cristal de YAG induite par les harmoniques. Nous confirmons cette hypothèse en représentant sur la figure (7.12) l'évolution du nombre de coups intégrés sur toute l'image en fonction du paramètre  $z$ . On observe que pour le meilleur foyer, le nombre de coups intégrés est plus faible que pour des taches plus étendues. On s'attend au contraire à ce que le nombre de photons total compris dans le faisceau incident soit constant et que seule soit modifiée la façon dont ils sont répartis transversalement au voisinage du foyer. Cet effet est la signature d'un phénomène de saturation qui a tendance à surestimer la taille de la tache effective.

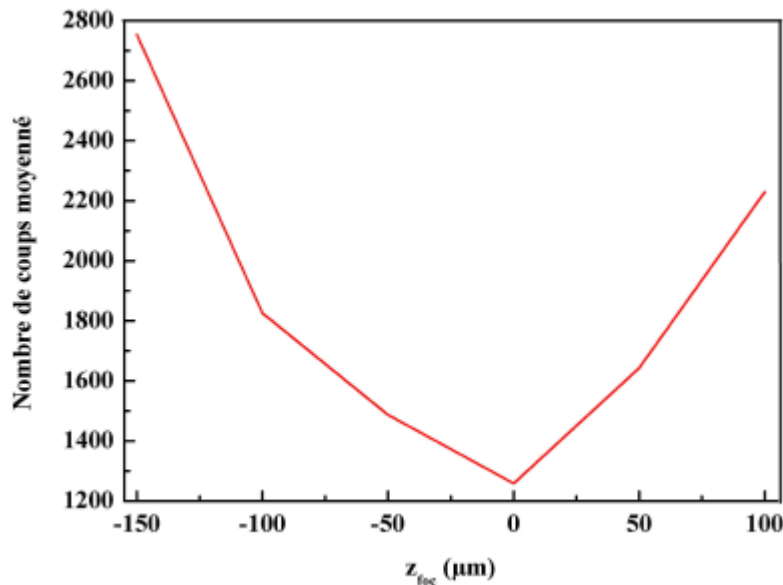


Figure 7.12 : Evolution du nombre total de coups intégrés sur toute l'image de la zone transverse du foyer en fonction de la coordonnée  $z$  sur l'axe de propagation.

#### 7.3.4. Rapport de qualité de la focalisation des harmoniques

Les mesures précédentes permettent de conclure quant à la taille du foyer, mais un paramètre très important est la quantité d'énergie qui se trouve dans ce foyer, comparée à l'énergie totale incidente. Par analogie avec les faisceaux laser dont la focalisation est caractérisée par un rapport de Strehl (voir chapitre 2), on peut définir ici un rapport  $\rho$  caractérisant la focalisation des harmoniques :  $\rho = \text{énergie dans la tache centrale} / \text{énergie totale}$ .

Ce rapport ne doit cependant pas être confondu stricto sensu avec le rapport de Strehl, car pour un faisceau gaussien parfait,  $\rho$  ainsi défini vaut 50 % et non 1 comme c'est la définition pour le rapport de Strehl. Quoi qu'il en soit, dans notre cas  $\rho$  vaut 4 % seulement, car une grande partie du rayonnement harmonique n'est pas focalisable, même après diaphragmation. La première raison provient des effets d'aberration, la deuxième étant que le front d'onde des harmoniques n'est probablement pas plan, si l'on considère la complexité du phénomène de génération et les effets de propagation dans le milieu gazeux en cours d'ionisation (voir chapitre 3).

Ce facteur de qualité de focalisation permet toutefois d'estimer l'intensité au foyer de façon plus réaliste que la simple mesure de la taille de la tache focale.

#### **7.4. Intensités réellement atteintes au foyer - perspectives**

Les efforts de caractérisation précise de la zone focale nous permettent de déterminer les intensités maximales atteintes au foyer du miroir torique et de comprendre les paramètres limitant susceptibles d'être encore améliorés.

#### 7.4.1. Cas de figure théorique

L'approche idéale de calcul de l'intensité focalisée consiste à prendre le nombre de photons maximum contenu dans tout le spectre harmonique. Dans le cas d'harmoniques générées dans l'argon, ce nombre s'élève à  $3,5 \cdot 10^{10}$  photons par tirs. Il suffit alors de considérer que ces photons sont concentrés sur une tache de 7 microns carrés, pour atteindre une intensité maximale de  $3 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> si l'on considère que la durée des impulsions harmoniques est de 10 femtosecondes. La valeur de cette intensité est encore accrue si l'on imagine que les harmoniques interfèrent pour produire des trains d'impulsions attosecondes. Dans ce cadre d'étude, nos conditions d'optimisation de la génération d'harmoniques en configuration longue focale, donc avec une phase spatiale homogène sur tout le milieu et un accord de phase essentiellement unidimensionnel (voir chapitre 3) semblent en bon accord avec les conditions imposées par la référence [8] pour garantir un blocage en phase des harmoniques qui permette d'amener la durée des trains d'impulsions harmoniques à quelques centaines d'attosecondes. Cela ouvre la voie à une méthode simple pour améliorer encore les intensités crête. Avec les valeurs issues de la référence [5], qui correspondent à des conditions expérimentales proches des nôtres, on calcule que l'intensité atteinte par des trains d'impulsions de durée 250 attosecondes serait de  $2 \cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>.

Cette approche est bien entendue très éloignée des réalités expérimentales, de nombreux facteurs viennent limiter ces intensités crête très attractives.

#### 7.4.2. Cas de figure concret

En premier lieu, nous devons prendre en compte la transmission des filtres aluminium qui est d'environ 20 % vers 30 nm. La réflectivité du miroir est elle aussi limitée à environ 40 % pour un angle d'incidence de 6°. Ces deux paramètres limitants semblent assez incontournables compte tenu de nos conditions expérimentales. Les deux suivants, que sont la transmission du diaphragme et le rapport de qualité de focalisation, semblent être potentiellement améliorables par une nouvelle géométrie de focalisation ou l'utilisation de systèmes optiques sans aberrations, avec éventuellement un contrôle du front d'onde harmonique par les conditions de génération ou le contrôle actif du front d'onde infrarouge en amont. Pour l'heure, ils valent 15 et 4% respectivement. Cela donne pour les intensités focalisées expérimentales  $I=1,4 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> pour des impulsions de 10 fs, et  $I=10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> pour des trains attosecondes.

Ces intensités sont bien moindres que les « valeurs théoriques » et permettent d'expliquer pourquoi nous n'avons à ce jour pas encore observé d'effet d'optique non linéaire dans le domaine XUV en remplaçant le cristal de YAG par des matériaux divers connus pour avoir des propriétés non linéaires dans le domaine visible. Les valeurs des constantes non linéaires dans le domaine XUV sont pour l'instant pratiquement inconnues tant expérimentalement que théoriquement, et ne sont en particulier pas tabulées.

### **7.5. Conclusion du chapitre**

Nous avons présenté dans ce chapitre une étude originale et complète de la focalisation d'un faisceau harmonique par un miroir torique. L'utilisation d'une telle optique permet de concentrer toutes les harmoniques du spectre et n'introduit pas d'allongement de la durée d'impulsion, contrairement aux optiques diffractives, plus couramment utilisées. Nous avons ainsi

pu mettre en évidence les facteurs expérimentaux qui limitent les intensités maximales atteintes de telle sorte que l'obtention d'intensités focalisées dans la gamme des  $10^{13}$ - $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> semble un objectif raisonnable à relativement court terme. Ces valeurs sont suffisantes d'après les prédictions théoriques pour commencer à observer de nouveaux processus physiques dans cette gamme spectrale [7].

### **7.6. Références du chapitre 7 :**

- [1] Descamps et al., PRA **64**, 031404 (2001)
- [2] Kobayashi et al., Opt. Lett. **23** (1998)
- [3] Thèse de doctorat de l'université Paris XI de J.F. Hergott (17 Septembre 2001)
- [4] Schnürer et al., Applied Physics B, **70**, 227 (2000)
- [5] Paul et al., Science **292**, 1689 (2001)
- [6] J. Burcher, « Les combinaisons optiques », Editions de la revue Théorique et instrumentale, page 309, (1967)
- [7] Milosevic et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 093905 (2002)
- [8] M. Gaarde et K. Schaffer, PRL **89**, 213901 (2002)

## 8. Conclusion

Ce travail de thèse s'inscrit après une série d'articles publiés en 1999 qui affirment avoir atteint la limite d'absorption pour l'efficacité de conversion du processus de génération d'harmoniques. Certains auteurs utilisent une configuration de propagation guidée pour le laser infrarouge (référence [1]), ce qui leur assure des conditions homogènes d'accord de phase mais requiert des intensités laser assez peu élevées donc une réponse atomique relativement faible. D'autres, au contraire, utilisent une configuration de forte focalisation du laser dans un milieu gazeux à très haute pression (référence [2]), la réponse atomique est alors très importante, mais l'accord de phase n'est que transitoire, tant d'un point de vue spatial que temporel, ce qui limite les efficacités de conversion.

Depuis, d'autres équipes dont la nôtre (référence [3]), ont mis en évidence des efficacités de conversion supérieures d'au moins un ordre de grandeur aux valeurs publiées à cette époque. Nous avons par exemple mesuré expérimentalement une efficacité de conversion de  $(3 \pm 1) \cdot 10^{-5}$  dans l'argon vers 30 nm et de près de  $10^{-7}$  dans le néon vers 13 nm. Le point commun entre toutes ces expériences est la « focalisation douce » du laser, autorisée par l'énergie des lasers de pompe infrarouges qui ne cesse de croître, de même que le taux de répétition de ces lasers.

En effet, la focalisation forte requise pour des lasers d'énergie moindre induit une forte phase de focalisation sur le laser et dégrade l'accord de phase entre le laser et le rayonnement harmonique produit. En outre, la zone d'interaction est très réduite tant transversalement que longitudinalement. Une focalisation douce du laser, donc un accroissement de la zone focale est obtenu de diverses manières : d'une part, par l'utilisation de lentilles de plus grandes focales, (jusqu'à 5 m pour les références [4] et [5]) et d'autre part par l'effet d'auto focalisation du faisceau dû probablement à l'ionisation du milieu. Les zones d'interaction obtenues peuvent atteindre le cm (jusque 10 cm dans le cas de la dernière expérience du RIKEN au Japon), avec toutefois une énergie suffisante pour garantir une réponse atomique élevée. La technique que nous avons utilisée pour notre part est une diaphragmation du faisceau qui permet d'étendre la zone focale et de diminuer l'intensité jusqu'à ce que le maximum de signal harmonique soit produit au maximum de l'impulsion laser et non sur le front montant. Nous avons étudié de façon complète les effets de ce dispositif ainsi que l'énergie du laser incident sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés et obtenu un très bon accord entre notre modèle et les expériences que nous avons réalisées.

La configuration « longue focale » nous a alors permis d'étudier de façon plus approfondie l'accord de phase et le rôle qu'y jouent les deux principaux chemins quantiques, en mettant pour la première fois en évidence des franges de Maker présentant un fort contraste (jusque 100 pour l'harmonique 25 dans l'argon). La période de ces franges, quand elle est visible, nous permet d'évaluer précisément la longueur de déphasage, c'est-à-dire la distance dans le milieu gazeux séparant deux points émettant un rayonnement harmonique déphasé de  $\pi$ , donc qui interféreront destructivement. Cette mesure nous a alors permis de trouver les conditions qui permettent de garantir que la longueur de déphasage est bien plus grande que la longueur de notre milieu. Ces conditions sont une cellule placée plusieurs millimètres après le foyer du laser. La phase atomique du deuxième chemin quantique peut dans ce cas jouer un rôle positif pour l'accord de phase et retarder le moment dans l'impulsion pour lequel on observera la plus forte émission harmonique.

Cette « configuration longue focale », que nous nous sommes attachés à décrire le plus complètement possible, tant du point de vue expérimental que théorique, est donc une configuration très efficace du point de vue du nombre de photons harmoniques produits. Elle se situe entre les deux configurations extrêmes présentées en début de cette conclusion, en garantissant à la fois un accord de phase homogène sur de grandes distances et une réponse atomique élevée grâce au fait que l'accord de phase peut être maintenu pour des taux d'ionisation assez importants. Cette propriété est liée à l'accroissement notable des distances de Rayleigh des lasers et au rôle majeur que joue le deuxième chemin quantique dans l'accord de phase, y compris sur l'axe de propagation du laser.

Un total contrôle du rayonnement harmonique implique que l'on puisse contrôler la longueur d'onde des harmoniques qui normalement est un sous-multiple impair de la longueur d'onde instantanée du laser. Cette propriété est très importante pour les applications. Nous avons montré qu'un contrôle de la phase spectrale du laser de pompe réalisé au moyen d'une boucle d'optimisation basée sur un algorithme génétique permettait une accordabilité quasi parfaite du rayonnement harmonique. La configuration haute énergie laser et propagation libre permet cette accordabilité par l'implication des processus d'ionisation et de phase atomique dans la variation temporelle de la phase des harmoniques. Les formes d'impulsion optimisées peuvent être très irrégulières et n'auraient probablement pas pu être trouvées manuellement. L'algorithme génétique converge assez rapidement et il faut moins de 10 minutes pour obtenir la forme de spectre désirée.

Nous concluons cette thèse sur une manière originale de mesurer la taille de la zone focale d'un faisceau harmonique focalisé par un miroir torique de courte focale (8 cm). Les diamètres obtenus sont de 3 à 4 microns au maximum et permettent d'atteindre dès à présent des éclairagements au foyer dans la gamme des  $10^{11}$  à  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. Des efforts supplémentaires dans la conception optique du système de focalisation et le contrôle du front d'onde harmonique aboutiraient à un gain d'au moins un ordre de grandeur sur les précédentes valeurs. Ce travail ouvre donc la possibilité d'obtenir de hautes intensités focalisées dans le domaine XUV et avec des durées d'impulsion probablement très courtes [6], de l'ordre de quelques centaines d'attosecondes (1 as =  $10^{-18}$  s).

Nous démontrons donc l'intérêt et la fiabilité de la source harmonique en vue d'expériences d'optique non-linéaire dans la gamme spectrale XUV, d'après les prédictions théoriques, les intensités atteintes sont tout juste suffisantes pour observer des transitions en couches internes des atomes par absorption de deux photons dans la gamme 20-30 nm [2], [7]. La spécificité des harmoniques en termes de durée d'impulsion fait d'elles la seule source XUV intense de résolution temporelle si précise qu'on peut également imaginer étudier le mouvement des électrons sur leur orbite atomique.

### **8.1. Références**

- [1] Bartels et al., Science, **297**, 376 (2002)
- [2] Schnürer et al. Phys. Rev. Lett. **83**, 722 (1999)
- [3] Kazamias et al., Eur. Phys. Journal D (2002)
- [4] Hergott et al., Phys. Rev. A (2002) (Rapid Communications)
- [5] Tamaki et al. Phys. Rev. A **62**, 063802 (2000)
- [6] M. Gaarde et K. Schaffer, PRL à paraître (2002)
- [7] Milosevic et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 093905 (2002)

## 9. Bibliographie générale classée par ordre alphabétique d'auteur

- Agostini et al., IEEE J. Quantum Electron. **QE-4**, 667 (1968), *chapitre 3*.  
Albert et al., Optics Letters, **25** 1, 52 (2000), *chapitre 6*.  
Ammosov, Delone et Krainov (ADK) JETP **64**, 1991 (1986), *chapitre 3*.
- Balcou et al., J. Phys. B **25**, 4467 (1992), *chapitre 5*.  
Balcou et al., Phys. Rev. A, **47** 1447 (1993), *chapitre 4*.  
Balcou et al., Phys. Rev. A **55**, 3204 (1997), *chapitre 3*.  
Balcou et al., J. Phys. B, **32**, 2973 (1999), *chapitre 3*.  
Bartels et al., Nature, **406** 164 (2000), *chapitre 6*.  
Bartels et al., Science, **297**, 376 (2002), *chapters 2 et 3*.  
Burcher, «les combinaisons optiques», Editions de la revue Théorique et instrumentale, page 309, (1967), *chapitre 7*.
- Chang et al., Phys. Rev. Lett., **79**, 2967 (1997), *chapitre 1*.  
Chang et al., Phys. Rev. A Rapid Communications **58**, R30, (1998), *chapitre 6*.  
Chériaux et al., Optics Letters, **21** 414 (1996), *chapitre 2*.  
Christov et al., Phys. Rev. Lett., **86** 5458 (2001), *chapitre 6*.  
Constant et al. Phys. Rev. Lett. **82**, 1668 (1999), *chapters 2 et 4*.  
Corkum et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993), *chapitre 3*.
- Delfin et al., J. Phys. B **32** 5397 (1999), *chapitre 4*.  
Delone et al., Physics Uspekhi **41**, 469 (1998), *chapitre 3*.  
Descamps et al., PRA **64**, 031404 (2001), *chapters 5 et 7*.  
Ditmire et al., Phys. Rev. A, **51** R902 (1995), *chapitre 1*.  
Dorrer et al., Optics Letters, **24**, n°21 (1999), *chapitre 2*.  
Durfée et al., Phys. Rev. Lett. **83** 2187 (1999), *chapitre 4*.
- Gaarde et Schafer, PRL **89**, 213901 (2002), *chapitre 7*.
- Haroutunian, thèse de doctorat de l'école Polytechnique (2001), *chapitre 3*.  
Hergott, thèse de doctorat de l'université Paris XI (17 Septembre 2001), *chapitre 7*.  
Hergott et al., Phys. Rev. A **66**, 021801(R) (2002), *chapters 2 et 3*.
- Ilkov et al., J. Phys. B **25**, 4005 (1992), *chapitre 3*.
- Kazamias et al., Eur. Phys. Journal D, sur le site de edpscience (septembre 2002), *chapitre 5*.  
Kobayashi et al., Opt. Lett. **23** (1998), *chapitre 7*.  
Kulander et al., in Proceedings of the super intense laser atom physic III workshop, vol. 316 of NATO, Advanced study institute, series B/Physics, edited by B. Piraux (Plenum Press, New York, 1993), *chapitre 3*.
- Leblanc, Thèse de doctorat de l'école Polytechnique (1993), *chapitre 2*.  
Lee et al., Phys. Rev. Lett. **87**, 243902 (2001), *chapitre 6*.  
Lewenstein et al., Phys. Rev. A, **49**, 2117 (1994), *chapitre 3*.



Lewenstein et al., Phys. Rev. A, **52**, 4747 (1995), *chapitre 3*.  
L'Huillier et al., Phys. Rev. Lett. **68** 166 (1992), *chapitre 4*.  
L'Huillier et al., Phys. Rev. Lett. **70**, 774 (1993), *chapitre 1*.  
Lompré et al., J. Opt. Soc. Am. **7**, 754 (1990), *chapitre 1*.

Milosevic et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 093905 (2002), *chapitre 7*.  
Müller et al., Phys. Rev. Lett., **81**, 1207 (1998), *chapitre 3*.

New and Ward, Phys. Rev. Lett. **19**, 556 (1967), *chapitre 1*.

Paul et al., Science **292**, 1689 (2001), *chapitre 7*.

Reintjes et al., Phys. Rev. Lett. **37**, 1540 (1977), *chapitre 1*.  
Reitze et al., Compte rendus de la conférence Ultrafast 2002, *chapitre 6*.  
Roos et al., J. Phys.B., **34** (2001), *chapitre 6*.  
Rundquist et al. Science, **280**, 1412 (1998), *chapitre 2*.

Salières et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 5544 (1998), *chapitre 6*.  
Salin et al., Optics Letters, **23** , 718 (1998), *chapitre 2*.  
Schnürer et al. Phys. Rev. Lett. **83**, 722 (1999), *chapitre 2*.  
Schnürer et al., Applied Physics B, **70**, 227 (2000), *chapitre 7*.  
Siegman, Lasers (the university of California, 1986) chapitres 17 et 18, *chapitre 5*.

Taïeb et al., Phys. Rev. Lett. **87** (2001), *chapitre 3*.  
Takahashi et al., Phys. Rev. A **66**, 021802 (2002) (Rapid Communications), *chapitre 2*.  
Tamaki et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1422 (1999), *chapitres 2 et 3*.  
Tamaki et al. Phys. Rev. A **62**, 063802 (2000), *chapitres 2, 3 et 5*.  
Tyson, « Adaptive optics engineering handbook », (Marcel Dekker, Inc., 2000) 123, *chapitre 2*.

Verluisse et al., Optics Letters, **25** 8, 575 (2000), *chapitre 6*.  
Verluisse et al. J. Opt. Soc. Am. B, **17** 1, 138 (2000), *chapitre 6*.

Wahlström et al., Phys. Rev. A, **48**, 4709 (1993), *chapitres 1, 3 et 6*.

# **ANNEXES**