



HAL
open science

Sources de rayonnement X ultrabref générées par interaction laser-matière et leurs applications

Antoine Rousse

► **To cite this version:**

Antoine Rousse. Sources de rayonnement X ultrabref générées par interaction laser-matière et leurs applications. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2004. tel-00009576

HAL Id: tel-00009576

<https://theses.hal.science/tel-00009576>

Submitted on 23 Jun 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.

Université d'Orsay Paris XI

Mémoire de soutenance pour l'

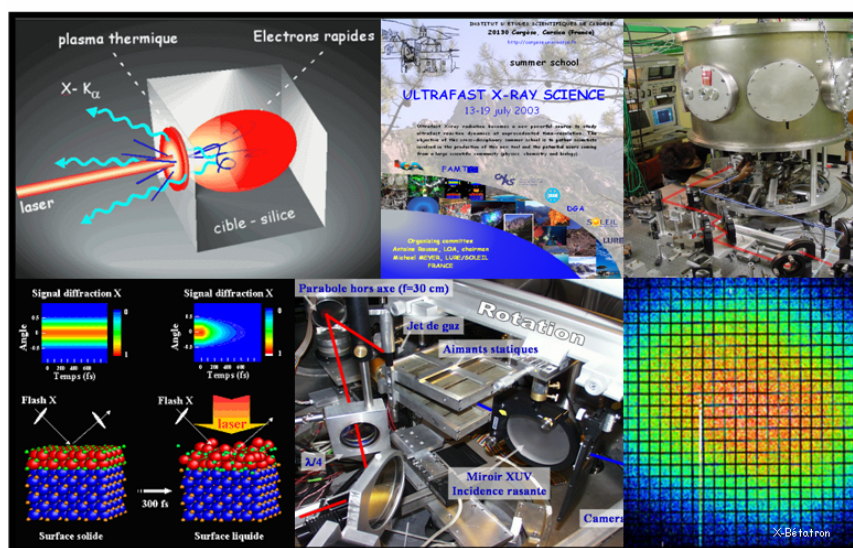
Habilitation à Diriger des Recherches

de

Antoine ROUSSE

Laboratoire LOA, CNRS-Ecole Polytechnique-ENSTA

« Sources de rayonnement X ultrabref générées par interaction laser-matière et leurs applications »



<http://loa.ensta.fr/pxf/>

Soutenu publiquement le 26 avril 2004 devant la commission d'Examen composée de :

P. Audebert, D. Batani, M. Wulff : rapporteurs
A. Tadjeddine : Président
S. Jacquemot, D. Hulin

A Cathy, Hana et Basile,

Remerciements

C'est avec un grand plaisir que je profite de cette occasion pour remercier chaleureusement les personnes qui ont accompagné ce travail de recherche et contribué au succès des expériences.

Je souhaite commencer par André Antonetti, le directeur « spirituel » et passionné du LOA de l'ère moderne... Je lui suis infiniment reconnaissant de m'avoir donné ma chance après ma thèse ainsi qu'une autonomie et une liberté d'action idéale au laboratoire. Si je peux maintenant prendre quelque fois plaisir à me retourner, André y est pour beaucoup.

C'est avec Christian Rischel que nous avons commencé la belle aventure de la diffraction X femtoseconde. On se rappellera longtemps tous les deux de cette première courbe et l'excitation générale qui en a suivi, avec le sentiment -pour la première fois- d'avoir fait un peu avancer le « schmilblick ». Tartes au thon-salades-gâteaux de Cathy en salle de manip à toutes heures et dégustés avec enthousiasme aux sons des pompes et au rythme des acquisitions, petits déjeunés aller-retour aux Eaux-Vives, boulot acharné, bref que du bon temps. Christian : de la graine de champion.

Si j'ai de bonnes histoires à raconter aux futurs thésards, c'est grâce à Kim Ta Phuoc, Sylvain Fourmaux et Davide Boschetto, mes premiers cobayes. Kim (grand consommateur de CCD X) et Sylvain (monsieur « pourquoi moi ? ») ont débarqué un jour dans le bureau après avoir voulu ouvrir l'enceinte expérimentale de la salle verte, restée sous vide malheureusement... c'était notre tremblement de Terre à nous où on a pu tester la résistance des alignements d'une manip de diffraction X femtoseconde (cela n'a pas empêché un super article à la fin). Davide restera célèbre pour son fameux « good morning » sincère de 15h00 au début de sa présentation dans une conférence internationale. Je veux insister sur les qualités scientifiques remarquables de chacun de ces trois compères, sans qui les manips et les résultats n'auraient pas été à ce niveau de réussite. Je les remercie d'avoir tenté l'aventure des sujets « à haut risque » et d'avoir supposé que le plaisir était (aussi) certainement quelque part par là. Et en plus, ils sont sympas !

J'ai été amené à collaborer avec des scientifiques d'horizons divers que cela soit en physique ou en bio-chimie. A chacun d'entre eux appartient des pierres du travail qui a pu ainsi être réalisé. Ingo Uschmann (Jena) qui nous a gratifié de son cristal X magique, Alexander Pukhov (Duesseldorf) et Erik Lefebvre (CEA) pour le rayonnement X-bétatron et de l'interaction en régime relativiste, Don Umstadter (Michigan) pour ces suggestions judicieuses de manips, Simone Techert (Göttingen), nos amis Rennais : Eric Collet et Hervé Cailleau les pros des structures ultrarapides en physique du solide, Michael Wulff (ESRF), Pierre-Antoine Albouy le magicien du Langmuir-Blodgett.

Plus près du LOA et au jour le jour, Georges Grillon a été le grand manitou et l'homme providentiel vers qui on se tourne avec espoir. Rien ne faisait peur à Georges : optique, mécanique, laser, plasma, manips,... sauf peut être l'informatique avec cette imprimante qui n'a jamais voulu se faire dompter. Georges m'a rendu une multitude de services saupoudrés de quelques coups de colères sans conséquence. Bref, que des bons moments ! (son bureau est super).

Nos amis les laséristes, on n'aime bien les faire raller... On se le permet car pouvoir travailler à la fois avec des systèmes au top-niveau mondial grâce aux développements laser et être assuré d'un bon fonctionnement général tout au long de l'année est simplement génial. Guy, Fréd., Jean-Philippe, Pascal, Jean-Paul, Gilles(s), Armino ont tous une partie importante dans la réussite de ce travail de recherche. Je n'ai pas encore beaucoup expérimenté Laura et Frédérika avec la salle rouge, mais c'est sur, cela sera du même topo.

L'arrivée de Philippe puis de Stéphane au LOA a permis de passer en royale et très agréable compagnie ces années de recherche. Victor, Constance et un deuxième Philippe sont venus s'ajouter à la liste. Cela manque de place dans les bureaux, mais c'est bon d'être merveilleusement bien entouré. Vive l'émulation. C'est sur, le labo a grandi...

Un petit bonjour tous les jours à nos amies les secrétaires qui bataillent avec nos commandes et prennent soins de nos contrats. Elle se méfient maintenant quand j'arrive avec un grand sourire et se demandent ce qu'il va leur tomber dessus ! Cathy, Dolorès, Sandrine et Octavie, désolé mille fois quand les commandes sont urgentes ou quand l'ordre de mission se fait attendre... C'est bien agréable d'aller grignoter quelques chocolats, bonne habitude.

Depuis l'arrivée de Denis et Thierry, c'est sur, l'expérimentation au LOA n'est plus la même. C'est bon d'avoir des pros pas loin (pas pour le foot bien sur). Jean-lou, alias Charly, nous a permis de réaliser à façon les pièces, parfois tordues (pas les pièces, les schémas) comme les chercheurs aiment bien faire. C'est le Georges de la mécanique, indispensable. Merci à Yves-Bernard, Alain, Pierre et Arnaud pour le « débuggage » électronique et informatique en temps réel, un combat de tous les jours parfois.

Merci à l'ensemble des personnes qui ont participé de loin ou de près à ce travail. Patrick et Jean-Paul bien sur, Jean-Claude, Jean-Raphaël et Claude (la spécialiste des prêts CCD dernière minute) du LULI. Moana, Sven et Serge qui, outre l'aspect scientifique, assure un bon vivre permanent. Sophie, Romain, Nikolay, Aurélie, Amandine, David, Olivier (ce n'est pas trop tard pour faire des X...), les compagnons de tous les jours.

Je suis également reconnaissant à la direction du LOA, Danièle et Philippe, pour avoir contribué à la pérennisation de (plus) jeunes au labo, et dans le groupe plus particulièrement. Jo et Danièle m'ont également permis de découvrir un peu de Physique du solide, et moi essayé de les allécher quand aux retombées des X ultrabrefs...si le flux est suffisamment grand...

Je souhaite bien évidemment remercier les membres du Jury de l'HDR pour avoir accepté d'évaluer ces travaux de recherche : Sylvie Jacquemot, Danièle Hulin, son président Abderrahmane Tadjeddine et ses trois rapporteurs, Patrick Audebert, Dimitri Batani et Michael Wulff.

Enfin, mes derniers mots reviennent à ma famille ; mes parents bien sur pour qui je suis toujours un petit peu fier quelque part (pardon) à chaque article « non standard » publié ; Basile et Hana les deux petits bijoux de la maison qui ont trouvé absolument normal (sic) que le papa soit si souvent absent, qui adorent les frites et le coca de la cantine ou visiter le LOA et se faire raconter l'histoire du petit caillou qui fait de la lumière.

Hors norme, c'est Cathy.

PLAN

PLAN

A. Introduction	A-13
B. Production de sources de rayonnement X ultrabrèves	B-19
B.1. Introduction	B-19
B.2. Rayonnement X-K_α	B-21
B.2.1. Principe de la source	B-21
B.2.2. Optimisation du flux de la source X- K_α	B-22
B.2.3. Conclusion sur la source X- K_α	B-23
B.3. Source X-γ	B-24
B.4. Rayonnement X-Larmor (diffusion Thomson non-linéaire)	B-26
B.4.1. Principe de la source	B-26
B.4.2. Caractéristiques de la source X-Larmor (Thomson non-linéaire)	B-29
B.4.3. Démonstration expérimentale de la source X-Larmor (Thomson non-linéaire)	B-33
B.4.4. Conclusion sur la source X-Larmor (Thomson non-linéaire)	B-38
B.5. Rayonnement X-Bétatron	B-38
B.5.1. Principe de la source	B-38
B.5.2. Caractéristiques de la source X-Bétatron	B-40
B.5.3. Démonstration expérimentale de la source X-Bétatron	B-40
B.5.4. Conclusion sur la source X-Bétatron	B-44
B.6. Conclusions et perspectives sur les sources X	B-45
C. Démonstration de la potentialité des sources X ultrabrèves	C-55
C.1. Introduction	C-55
C.2. Diffraction X femtoseconde	C-55
C.2.1. Principe de la technique	C-55
C.2.2. Démonstration expérimentale	C-56
C.2.3. Conclusion	C-60
C.3. Cristallographie X femtoseconde	C-61
C.3.1. Géométrie pour sources X divergentes	C-61
C.3.2. Réalisation expérimentale	C-63
C.3.3. Conclusion	C-64
C.4. Conclusions et perspectives	C-64
D. Applications des sources X ultrabrèves	D-69
D.1. Introduction	D-69
D.2. Transition de phase solide-liquide ultrarapide	D-72

D.2.1.	La fusion non-thermique	D-72
D.2.2.	Observation expérimentale	D-74
D.2.3.	Caractérisation	D-77
D.2.4.	Conclusion	D-80
D.3.	Phonons optiques et transitions de phases	D-81
D.3.1.	Dynamique des vibrations atomiques élémentaires	D-81
D.3.2.	Observation expérimentale	D-84
D.3.3.	Conclusion	D-88
D.4.	Conclusions et perspectives sur les applications	D-89
E.	Accompagnement des projets de recherche	E-95
E.1.	Introduction	E-95
E.2.	Structures locales	E-95
E.2.1.	Création de 2 groupes de recherche au LOA	E-95
E.2.2.	Encadrement d'étudiants	E-95
E.3.	Projets européens	E-96
E.3.1.	RTD FAMTO (1999-2004)	E-96
E.3.2.	RTN XPOSE (1999-2004)	E-96
E.4.	Organisations d'évènements scientifiques	E-97
E.4.1.	Ecole d'été "La Science X ultrarapide"	E-97
F.	Conclusions générales	F-103
G.	Liste des Figures	G-107
H.	Liste des Tables	H-111
I.	Articles de référence	I-113
I.1.1.	Production of a keV X-Ray Beam from Synchrotron Radiation in Relativistic Laser-Plasma Interaction,, Phys. Rev. Lett. 93, 135005 (2004)	I-113
I.1.2.	X-Ray Radiation from Nonlinear Thomson Scattering of an Intense Femtosecond Laser on Relativistic Electrons in a Helium Plasma, Phys. Rev. Lett. 19(91) , 195001- 4 (2003)	I-113
I.1.3.	Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution, Nature 410 (6824), 65-68 (2001)	I-113
I.1.4.	Femtosecond x-ray crystallography, Rev. Mod. Phys. 73 (1), 17-31 (2001)	I-113
I.1.5.	Femtosecond time-resolved x-ray diffraction from laser-heated organic films, Nature 390 , 490 (1997)	I-113

INTRODUCTION

A. Introduction

Le travail que j'ai réalisé au Laboratoire d'Optique Appliquée depuis 1996 s'inscrit dans la thématique de la « science X* ultrarapide ». Cette discipline est jeune et connaît un formidable essor depuis quelques années dans de nombreuses communautés scientifiques que cela soit en physique, en biologie ou en chimie. L'objectif est de produire des sources de rayonnement X de durée d'impulsion femtoseconde ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$), et les appliquer à l'étude de matériaux soumis à des intensités de rayonnement X élevées ou sonder la dynamique de la matière jusqu'à des résolutions temporelles ultimes.

Si l'on prend l'exemple des études de la dynamique de structures atomiques, les échelles de temps ultimes sont de l'ordre de la période de vibration des atomes, c'est à dire quelques dizaines de femtosecondes. La forte activité autour de cette thématique^{1,2,3,4,5,6,7,8,9,10,11} est motivée par les applications novatrices que l'utilisation de telles sources permet de réaliser^{12,13,14,15,16}. Les processus aussi fondamentaux que la dissociation, l'isomérisation, les phonons, les transferts de charges, etc., évoluent à ces échelles de temps. Cela a été mis en évidence depuis une vingtaine d'années grâce à la spectroscopie visible qui permet d'avoir une information temporelle en analysant la signature des modes de vibration par émission ou absorption. Malheureusement, aucune information spatiale ne peut être directement obtenue. L'utilisation de rayonnement X ultrabref permet de combler cette lacune, en permettant de zoomer temporellement sur les structures transitoires à l'origine d'une chaîne de réaction pouvant être, quant à elle, dans la gamme temporelle de la seconde.

D'une manière générale, le but de ces études est de franchir la barrière des quelques picosecondes ($1 \text{ ps} = 10^{-12} \text{ s}$). Cette frontière délimite le régime des processus dits « thermiques » et « non-thermiques » correspondant à deux types de dynamique réactionnelle. Les processus les plus lents (« thermiques ») sont gouvernés par la diffusion aléatoire des atomes et des molécules. Les états intermédiaires occupent des conformations autour du minimum local de la surface d'énergie potentielle avec une distribution de Boltzmann. Le taux de réaction est déterminé par la probabilité d'atteindre la conformation avec l'énergie la plus élevée sur le chemin de la transition vers le minimum le plus profond. Les processus les plus rapides (« non-thermiques ») sont quant à eux gouvernés par des déplacements déterministes et non diffusifs des atomes sur la surface d'énergie potentielle, sans être gouvernés par une distribution de Boltzmann. Le rayonnement X ultrabref ouvre la porte vers l'étude « en direct » (résolution spatiale et temporelle simultanée) de ces processus.

Outre une contribution de plus en plus importante dans les conférences internationales bien établies, de nombreux « workshops », écoles et conférences ont vu le jour ces dernières années, soulignant l'intérêt grandissant aussi bien des « producteurs » que des « utilisateurs » multidisciplinaires de ce nouveau type de rayonnement. Les plus récentes sont : “New opportunities of ultrafast x-rays”, Napa (USA), 2002 (<http://www-esg.lbl.gov/esg/meetings/ultrafast/>), “ultrafast x-rays”, Hamburg (Allemagne), 2002 (<http://www-hasylab.desy.de/conferences/Xray-Course/>), “Ultrafast science with electrons and x-rays” Montreux (Suisse), 2003 (<http://sls.web.psi.ch/view.php/science/events/uscience03>), “Ultrafast x-ray science with lasers and accelerator sources” Cargèse (France), 2003 (<http://loa.ensta.fr/ufx/>), “Ultrafast x-rays 2004”, San Diego (USA) (<http://ultrafast2004.lbl.gov/>).

* X désigne le rayonnement électromagnétique dans le domaine spectral de l'ordre du keV jusqu'à quelques centaines de keV

De même, différents programmes de développement technologique et de réseaux thématiques se sont constitués au niveau international. Des « cas scientifiques » ont également été édités pour supporter les projets de construction de très grands instruments (Laser à Electron Libre) ayant pour but de mettre à disposition des lignes de lumière de rayonnement X femtoseconde.

Deux communautés « laser » et « accélérateur » sont engagées dans la production de sources X ultrabrèves.

La communauté « accélérateur » développe des techniques basées sur l'utilisation de faisceaux d'électrons très énergétiques (de l'ordre du GeV) accélérés dans des modules radiofréquence linéaire (LINAC). L'utilisation du rayonnement « synchrotron » produit dans les éléments d'insertion du type « aimant de courbure » ou « onduleur » est l'application la plus remarquable compte tenu du nombre d'utilisateurs que de tels instruments rassemblent. Les durées d'impulsion X correspondent à la durée des paquets d'électrons circulant dans l'anneau synchrotron. Les plus courtes atteignent quelques dizaines de picosecondes.

Deux stratégies sont suivies afin de réduire la durée d'impulsion. La première consiste à réduire la durée des paquets d'électrons jusqu'à 100 fs dès la phase d'accélération, et de les injecter dans les onduleurs pour produire du rayonnement du type synchrotron. Le Stanford Linear Accelerator (SLAC-SPPS) aux Etats-Unis a produit en mai 2003 les premiers photons X par cette méthode. Des flux X beaucoup plus élevés seront obtenus en mode « Laser à Electron Libre » pour lequel les électrons oscillants dans l'onduleur s'auto-structurent spatialement pour interagir de manière cohérente avec les photons X qu'ils produisent. Ces techniques nécessitent la construction de grandes installations (plusieurs dizaines de km). Une autre solution judicieuse qui pourrait utiliser les anneaux synchrotrons existants, mais qui limite le nombre de photons X produit*, est le découpage temporel du paquet d'électrons picoseconde par un faisceau laser femtoseconde. Des micro paquets d'une durée correspondant à la durée de l'impulsion laser sont séparés du paquet principal grâce à leur excès (défaut) d'énergie acquis suite à leur interaction avec l'onde électromagnétique. La seconde stratégie est de tirer profit de la communauté « laser » en utilisant les systèmes laser intenses femtosecondes pour produire, par exemple, la source de rayonnement X par diffusion Thomson. Dans ce cas, le faisceau laser est focalisé sur le paquet d'électrons issu de l'accélérateur et subit un fort décalage « Doppler » vers les courtes longueurs d'onde. La durée d'impulsion X correspond au temps de transit du faisceau laser dans le paquet d'électrons, et peut être limitée à celle de l'impulsion laser (femtoseconde) même si la durée du paquet d'électrons est picoseconde.

Des perspectives « tout optique » se présentent maintenant grâce aux intensités laser de plus en plus élevées disponibles. Dans ce cas, le rayonnement X ultrabref est uniquement produit à partir d'une expérience d'interaction laser-matière. Je vais traiter en détail ce type de sources au chapitre B, mais il est d'ores et déjà intéressant de noter deux particularités remarquables. La première concerne la durée d'impulsion X, qui est limitée à la durée de l'impulsion laser. Les systèmes actuels permettant d'atteindre quelques dizaines de femtosecondes, des impulsions X de l'ordre de 100 femtosecondes sont obtenues. La deuxième est la parfaite synchronisation entre le faisceau X et une deuxième partie du faisceau laser car ces deux rayonnements sont issus du même système. Cette synchronisation est cruciale pour la réalisation d'une expérience résolue en temps où le rayonnement X femtoseconde vient sonder un échantillon à différents instants de la réaction excitée par un faisceau laser qui joue le rôle de « trigger ». Grâce à ces propriétés, les premières applications en

* La comparaison du nombre de photons produits par les différentes sources « Laser » et/ou « accélérateur » sera donnée au chapitre B.6.

« science X ultrarapide » ont été réalisées avec une source de ce type, dont deux expériences pionnières seront présentées au chapitre C.2 et D.2.

Les deux communautés « Laser » et « Accélérateur » se rassemblent actuellement, que ce soit pour la production des sources X que pour réaliser les premières expériences d'application. Elles ont besoin de combiner leurs compétences pour développer les nouvelles générations de sources X ultrabrèves (Thomson, découpage de faisceau d'électrons, photo-injecteur femtoseconde des LINAC, injection d'harmoniques dans les cavités « Laser à Electron Libre » par exemple), pour élaborer les techniques de caractérisation de faisceau X ultrabref « accélérateur » à partir des sources « Laser » déjà existantes, ou pour s'appuyer sur les expériences d'application « Laser » déjà réalisées qui serviront d'expériences tests des nouvelles machines « accélérateur ». De même, ce rapprochement permet de fédérer une communauté « utilisateur » qui doit être en contact privilégié avec les physiciens des sources dans cette phase de développement et des premières applications.

J'ai organisé mon activité de recherche dans cet esprit, en étendant les études de production de sources de rayonnement X ultrabref à partir de la physique de l'interaction laser-matière jusqu'à la réalisation d'expériences d'applications innovantes pour démontrer les potentialités et l'intérêt des sources laser-plasma développées. La Figure A-1 représente de manière synoptique les objectifs clefs et les outils scientifiques utilisés dans ce projet.

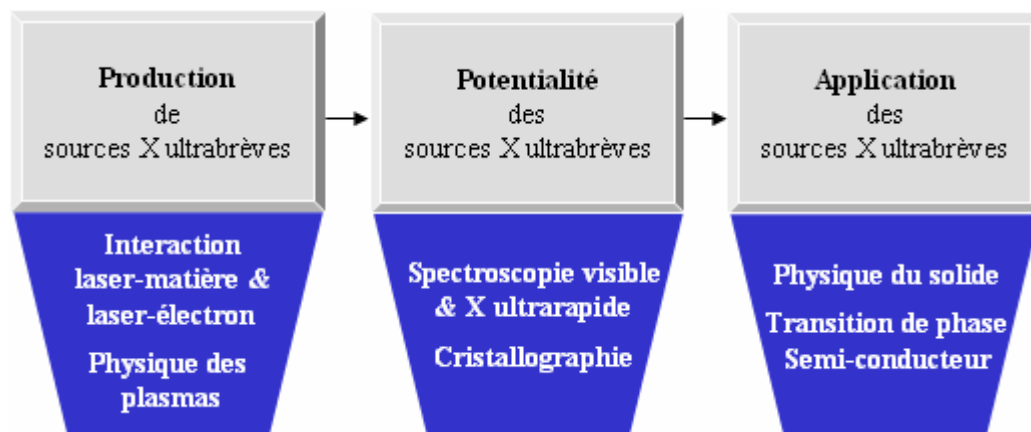


Figure A-1 Synoptique du projet de recherche

Le **chapitre B** se concentre sur les sources de rayonnement X ultrabref que je développe actuellement et qui ont déjà donné des résultats significatifs : La source K_{α} , la source Thomson, la source Bétatron et la source X- γ . L'évolution vers un nouveau type de source traduit le besoin de produire du rayonnement X aux caractéristiques de plus en plus performantes : collimation plus forte, flux plus élevé et domaine spectral plus étendu. Je ne mentionnerai volontairement pas deux types de sources en développement avec la communauté « accélérateur » : découpage de faisceau d'électrons et source Thomson sur LINAC femtoseconde. Ces sources sont en cours d'évaluation et leurs études expérimentales n'ont pas encore débuté.

Le **chapitre C** présente les études ayant pour objectif la démonstration des capacités des sources X ultrabrèves (présentées au chapitre B) à être utilisées pour des expériences d'application. En particulier, le résultat le plus marquant a

été la démonstration de la technique de diffraction X femtoseconde. Nous avons montré qu'une expérience du type pompe-sonde, où la pompe est une excitation laser et la sonde le rayonnement X- K_{α} ultrabref, peut être utilisée pour l'étude de la dynamique de structure de matériaux simples avec une résolution temporelle de 100 fs.

Le **chapitre D** détaille deux applications qui ont été réalisées en physique du solide en utilisant la technique de diffraction X résolue en temps à l'échelle femtoseconde (chapitre C.2). La première expérience a permis, pour la première fois et de manière directe grâce au rayonnement X ultrabref, l'observation et la caractérisation de la transition de phase solide-liquide à la surface d'un semi-conducteur. La deuxième expérience s'est concentrée sur l'étude des phonons optiques dans les matériaux absorbants et de leur rôle en tant que processus précurseur du mécanisme de fusion non-thermique.

Le **chapitre E** rappelle les actions conduites en marge de mes travaux de recherche scientifique afin de mener à bien ces projets : encadrement d'étudiants en thèse, lancement de projets européens et organisation d'événements scientifiques nationaux ou internationaux.

Enfin, le **chapitre F** conclut et donne les perspectives sur la direction que je souhaite suivre pour mes recherches futures.

¹ Srjajer et al, *Science* **274**, 1726 (1996)

²C. Rischel, A. Rousse et al., *Nature* **390**, 490 (1997)

³Perman et al, *Science* **279**, 1946 (1998)

⁴C. Rose-Petruck et al, *Nature* **398**, 310 (1999)

⁵C. Siders et al, *Science* **286**, 1340 (1999)

⁶R. Neutze et al, *Nature* **406**, 752 (2000).

⁷A. Rousse et al., *Rev. Modern. Phys.* **73**, 17 (2001)

⁸A. Rousse, C. Rischel et al., *Nature* **410**, 65 (2001)

⁹R.F. Service, *Science* **298**, 1356 (2002)

¹⁰K. Sokolovski-Tinten et al., *Nature* **422**, 287 (2003)

¹¹F. Schotte et al, *Science* **20**, 300 (2003)

¹² *Ultrafast Phenomena proceedings, Springer series in Chemical Physics, Springer, Berlin (1992-2002)*

¹³A.H. Zewail, *World Scientifique, Singapore, (1996)*

¹⁴A. H. Zewail, *J. Phys. Chem. A* **104**, 5660(2000)

¹⁵N. Bloembergen et al., *Rev. Modern. Phys.* **71**, S283 (1999)

¹⁶Y. Bhattacharjee *Femtochemistry : measuring the immeasurable, Nature* **412** (6846), 477 (2001)

PRODUCTION DE RAYONNEMENT X ULTRABREF

B. Production de sources de rayonnement X ultrabrèves

B.1. Introduction

Des programmes de recherche importants sont actuellement mis en œuvre au niveau international pour produire des sources X ultrabrèves. Le rayonnement X a été, depuis sa découverte il y a plus d'un siècle, un des outils les plus puissants pour explorer les propriétés de la matière au sein d'une très large communauté scientifique. Pour continuer à délivrer des faisceaux de rayonnement aux propriétés de plus en plus compétitives, plusieurs générations de Synchrotron et de Laser à Electron Libre ont été développées. Malgré des progrès remarquables, il existe toujours un besoin de sources de rayonnement X capables de délivrer des impulsions de plus en plus brèves afin de fournir les résolutions temporelles requises pour suivre la dynamique de la matière. La résolution femtoseconde permet d'avoir accès à la dynamique élémentaires des changements de structures (dynamique atomique). La résolution attoseconde ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) permettrait de suivre l'évolution temporelle des électrons des couches internes des atomes. La résolution zeptoseconde ($1 \text{ zs} = 10^{-21} \text{ s}$) représente quant à elle les échelles de temps caractéristiques des interactions nucléaires fortes. La possibilité d'utiliser de telles sources offrirait ainsi à des utilisateurs multidisciplinaires une opportunité unique pour effectuer un formidable zoom spatial et temporel sur la matière, et observer puis caractériser de manière directe les processus transitoires élémentaires en physique, biologie et chimie.

La communauté « accélérateur » liée aux synchrotrons est très active et lance des projets de grande échelle : laser à électron libre XFEL à DESY (Allemagne)¹ et au SLAC (USA)² ; découpage de faisceaux d'électrons 100 fs à Berkeley (USA)³ et à SLS (Swiss Light Source) ; diffusion Thomson à Livermore (USA)⁴, Brookhaven (USA), Saclay, Tsukuba (Japon) ; LINAC à récupération d'énergie à Berkeley⁵, à Saclay⁶ par exemple.

En marge de ces projets et grâce au développement de la technologie des lasers ultrabrefs et intenses, des sources X « laser » de dimensions beaucoup plus réduites peuvent être développées. Ces sources de rayonnement produites par interaction laser-matière peuvent jouer un rôle déterminant, avec pour objectif de se rapprocher le plus possible de la source X idéale si l'on prend le point de vue des applications en « science X ultrarapide ». Les caractéristiques d'une telle source sont présentées dans la Table 1 pour les applications de dynamique structurale ultrarapide. Bien évidemment, si l'objectif est l'étude de la matière sous forte irradiation X, les flux les plus élevés sont requis ainsi qu'une meilleure focalisabilité pour produire des intensités X supérieures à 10^{12} W/cm^2 . Cette source idéale serait polychromatique, de longueur d'onde comprise entre 1 keV et 100 keV, d'une durée d'impulsion inférieure à 10 fs, collimatée ($< 1 \text{ mrad}$) et produisant un flux de l'ordre de 10^{11} photons par tir dans une bande spectrale de 10 %. Ces caractéristiques permettraient d'avoir accès à l'ensemble des informations permettant de reconstituer une structure transitoire ultrabrève sans endommager les échantillons et quelque soit la nature de ces derniers (cristaux, liquides, éléments lourds ou légers qui interagissent plus ou moins efficacement avec le rayonnement X).

J'ai développé au LOA 3 types de sources avec pour objectif de se rapprocher le plus possible des caractéristiques données dans la Table 1. La première est la source X- K_{α} , qui a été mise en évidence sur les systèmes laser du LOA durant mon travail de Thèse⁷ sous la direction de J.P. Geindre (LULI).

Longueur d'onde (keV)	polarisation	Spectre	Durée (fs)	Divergence (mrad)	Flux ph./tir/mrad/0.1%BW	Cadence (Hz)
1 – 100	Oui (vert/horiz)	polychromatique	5-10	1	10^9	5-10000
dimension	cohérence	focalisibilité				
<10 μm	oui	<10 μm				

Table 1 Caractéristiques de la source X idéale pour application en « science X ultrarapide »

L'optimisation du flux X de cette source a constitué la première partie de mon travail⁸. Il s'est effectué au retour de mon séjour postdoctoral d'une année au Japon en collaboration avec le LULI. Bien que cette source m'ait permis de lancer les premières applications en « science X ultrarapide »⁹, son désavantage le plus marquant est sa divergence angulaire. Elle émet dans tout l'angle solide comme cela est indiqué dans la Table 2 et l'utilisation d'une optique de Bragg est nécessaire pour collecter et focaliser ce rayonnement sur un échantillon. Les dimensions de ces optiques étant réduites (voir chapitre C.2), le flux X atteignant l'échantillon est ainsi sévèrement limité.

Type	Longueur d'onde (keV)	Spectre	Durée (fs)	Divergence	Flux ph./tir/str/0.1%BW	Cadence (Hz)
X-K α	1 – 10	Monochromatique	100	4π str	10^9	10
Larmor	0.06 - 2	Polychromatique	30	400 mrad	10^9	10
Bétatron	1 - 4	Polychromatique	30	20 mrad	$2.5 \cdot 10^8$	10

Table 2 Caractéristiques générales des 3 sources de rayonnement X ultrabref développées dans mon projet de recherche.

Pour répondre à ce problème et produire un véritable faisceau de rayonnement X, il a fallu développer des sources de conception totalement nouvelle par rapport à ce qui était étudié expérimentalement à cette période. En effet, une solution était de focaliser le faisceau laser sur des films minces de 100 Å (plastique) pour produire un plasma thermique de très haute température dont le refroidissement rapide assurait une durée d'impulsion inférieure à la picoseconde. Cette source n'a jamais été utilisée pour les applications. L'épaisseur extrême des films, une divergence inchangée par rapport à la source X-K α existante ainsi que la nécessité d'utiliser un système laser de haute puissance limite sévèrement son intérêt malgré le gain potentiel en flux X.

Dans ce contexte, nous avons développé la source Larmor¹⁰ qui a fait l'objet de la Thèse de K. Ta Phuoc (1999 – 2002). Comme nous pouvons le remarquer dans la Table 2, la collimation du rayonnement X a été largement améliorée, mais le domaine spectral reste inférieur à 1 keV avec les intensités laser disponibles actuellement.

La troisième source, appelée Bétatron, a été ensuite étudiée¹¹ pour obtenir des longueurs d'onde plus courtes et du rayonnement beaucoup plus collimaté. Le domaine spectral de quelques keV est atteint et la collimation devient telle que l'on peut commencer à parler de faisceau de rayonnement X.

Les perspectives associées à chacune de ces trois sources seront présentées plus en détail dans le chapitre.

B.2. Rayonnement X- K_α

B.2.1. Principe de la source

Cette source est produite à partir de l'interaction entre une impulsion laser 100 mJ/100 fs avec une cible solide^{12,13}. Le schéma de principe est présenté sur la Figure B-1. L'énergie laser absorbée dans l'épaisseur de peau par le processus collisionnel bremsstrahlung inverse produit un plasma à la surface de la cible. La température de ce plasma thermique peut atteindre 300 eV et sa densité est proche de la densité du solide car l'expansion hydrodynamique reste faible (100 Å) pendant la durée de l'impulsion laser. Une fraction de l'énergie de l'impulsion laser est absorbée à la densité électronique critique (n_c) par le mécanisme d'absorption résonnante, ce qui génère une population d'électrons rapides. Ces électrons sont bien caractérisés par une température supérieure à la température électronique du plasma (quelques centaines d'eV). Elle atteint quelques dizaines de keV pour des intensités laser autour de 10^{17} W/cm². Les électrons rapides sont éjectés à l'extérieur de la cible ou pénètrent de manière balistique à l'intérieur du solide (10 000 Å), et au-delà du plasma thermique car leur libre parcours moyen est supérieur à l'épaisseur de la zone chauffée par conduction thermique (1000 Å). Ils perdent leur énergie principalement par ionisation en couche interne des atomes, qui est suivie de l'émission de rayonnement de fluorescence X, appelé K_α , lorsque le trou en couche interne K est comblé par les électrons des couches supérieures. La fraction de l'énergie qui n'est pas émise de manière radiative est thermalisée et chauffe cette zone d'interaction jusqu'à une température d'une vingtaine d'eV.

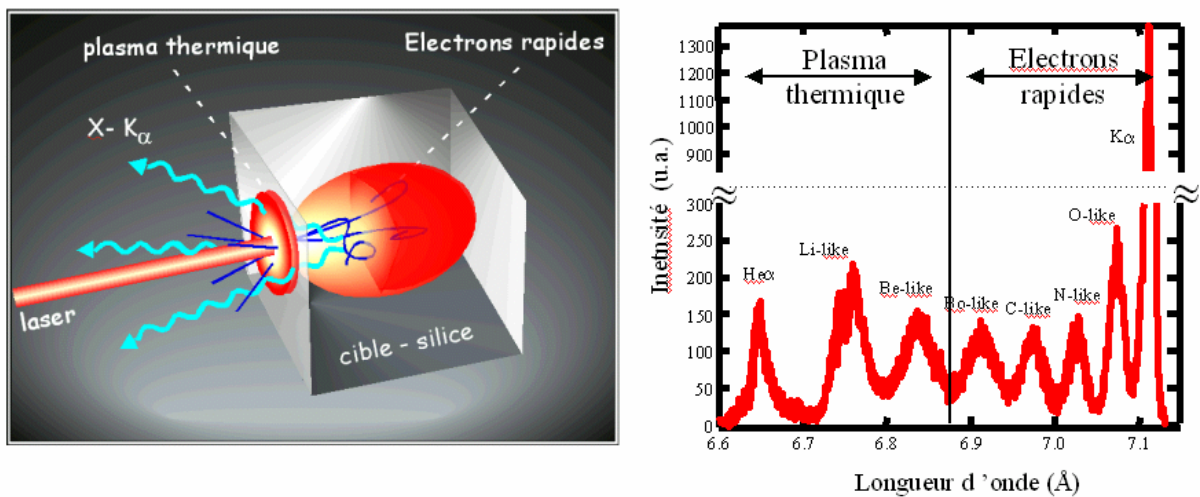


Figure B-1 Principe de la source X- K_α et spectre de l'émission X produite par le plasma dans le cas d'une cible de silicium.

Le principe de cette source est équivalent à un tube à rayons X classique, avec la différence que les électrons accélérés sont produits via le laser et non de manière thermoélectrique. La durée d'impulsion est directement liée à la durée du paquet d'électrons et au temps nécessaire pour déposer toute leur énergie dans la cible solide. Des impulsions X de 100 fs peuvent être produites dans le cas de la source laser si les intensités n'excèdent pas quelques 10^{17} W/cm².

En vue d'une expérience d'application, la présence des raies d'émission X du plasma thermique dans le spectre montre que le rayonnement X-K_α doit être isolé avec un monochromateur avant d'être focalisé sur un échantillon.

B.2.2. Optimisation du flux de la source X-K_α

Le transfert de l'énergie du laser vers la cible solide par le mécanisme non-linéaire d'absorption résonnante est contrôlé par le paramètre T présenté dans l'Eq. (B-1). Il est maximum pour T = 0.8 et dépend de manière très critique de l'angle d'incidence θ par rapport à la surface de la cible, de la polarisation et du gradient de densité électronique L avec lequel le faisceau laser de longueur d'onde λ interagit en face avant de la cible. Pour un angle d'incidence de 50° et un laser de longueur d'onde de 800 nm, on remarque que la longueur de gradient de densité électronique optimale en face avant de la cible doit être égale à 1500 Å. Cette longueur caractéristique est d'un ordre de grandeur supérieure à l'expansion naturelle du plasma (100 Å) qui est produit durant l'interaction.

Eq. (B-1)
$$T = (2\pi L/\lambda)^{1/3} \sin\theta = 0.8$$

Eq. (B-2)
$$E_{cr} = 2.2 \cdot 10^{-7} (I_{[W/cm^2]})^{0.5} (L\lambda_{[\mu m]})^{0.5} \phi(T)$$

L'optimisation de l'absorption de l'énergie laser peut ainsi être obtenue en corrigeant le gradient de densité électronique, et les caractéristiques de la surface sur laquelle le laser va interagir. Nous avons utilisé une première impulsion laser, focalisée sur la cible avant l'impulsion principale, pour générer ce gradient de densité L/λ. Le retard temporel entre les deux impulsions permet alors d'interagir avec un gradient plus ou moins raide. La Figure B-2 résume les résultats obtenus en fonction de l'angle d'incidence, l'intensité laser et le retard entre les deux impulsions en gardant une température d'électrons rapides autour de 10 keV. Cette condition est nécessaire pour assurer une durée d'impulsion du flashe X qui ne dépasse pas la durée de l'impulsion laser (100 fs). L'élargissement temporel est de 10 fs dans le cas d'électrons monoénergétiques de 10 keV dans une cible de Si.

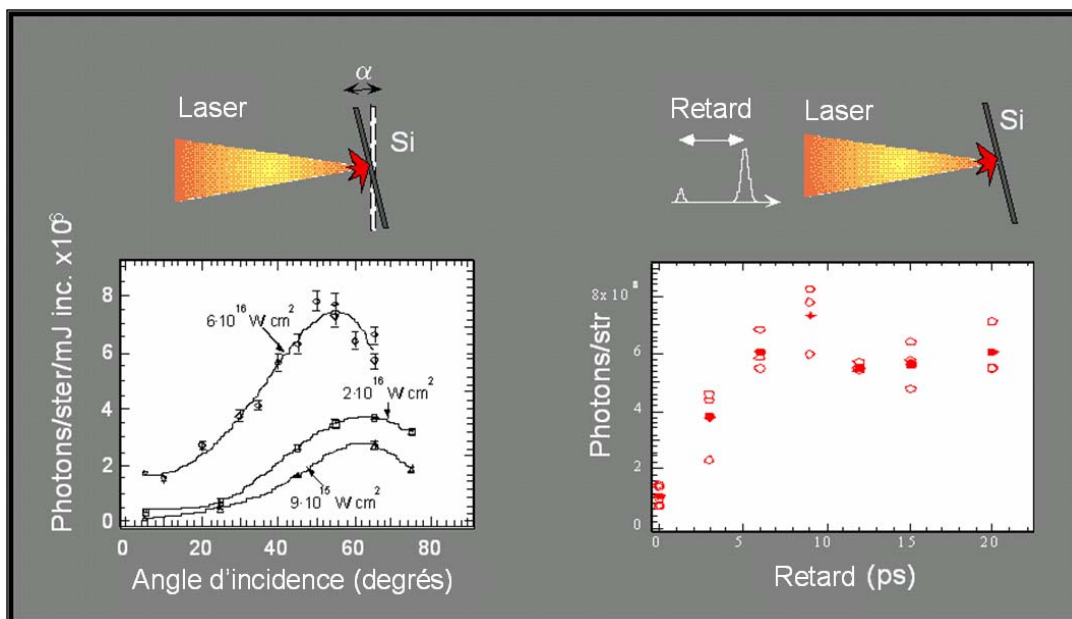


Figure B-2 Optimisation du signal X en fonction de l'angle d'incidence du laser sur la cible, l'intensité laser du faisceau principal et le retard suivant la pré-impulsion.

L'optimisation du gradient de densité électronique en face avant de la cible a permis d'augmenter par un facteur 7 le nombre de photons émis par la source. Les paramètres optimaux sont : un retard de 7 ps, une intensité laser de 10^{17} W/cm² et un angle d'incidence autour de 55° dans le cas du rayonnement X-K_α du silicium. L'intensité laser typique de la pré-impulsion utilisée pour modifier les caractéristiques du gradient de densité est de l'ordre de $4 \cdot 10^{14}$ W/cm². Le retard de 7 ps correspond à la formation d'un gradient de densité électronique $L/\lambda=0.4$, qui est en bon accord avec la théorie classique de l'absorption résonnante. Ces paramètres seront utilisés dans les expériences de démonstration et d'applications présentées au chapitre C.2 et D.2 afin de fournir un flux X maximal sur les échantillons.

Ces expériences ont été complétées par l'analyse des électrons rapides (20 keV - 200 keV) produits en face avant de la cible (éjectés dans le vide) à l'aide d'un spectromètre à champ magnétique statique. Une population plus énergétique est observée dans ce cas car l'énergie des électrons pouvant alors être détectée doit être suffisamment élevée pour franchir la barrière de charge d'espace générée à la surface de la cible¹⁴.

B.2.3. Conclusion sur la source X-K_α

Le flux X obtenu après optimisation de la source est devenu suffisamment élevé pour envisager la réalisation des premières expériences d'application. La démonstration de la technique de diffraction X femtoseconde qui est présentée au chapitre C.2, puis ensuite la première observation « en direct » d'une transition de phase solide-liquide ultrarapide, a parfaitement montré les potentialités de cette source X-K_α pour suivre l'évolution de la dynamique des atomes avec une résolution temporelle de 100 femtosecondes.

Ces études ont également mis en évidence les limitations d'une telle source :

- sa monochromaticité interdit la possibilité de suivre plusieurs pics de diffraction de Bragg de manière simultanée durant une expérience de diffraction. Cela limite sévèrement les informations accessibles sur la structure¹⁵. Nous verrons au chapitre C.3 comment cette difficulté peut être contournée.
- la source est totalement divergente. Une optique de rayons X doit donc être utilisée pour collecter et focaliser le rayonnement sur un échantillon. Cette étape incontournable réduit de plusieurs ordres de grandeur le flux X disponible pour sonder un processus, ce qui confine le domaine des applications de la source aux échantillons ayant une structure simple, une maille élémentaire petite et des atomes de forte charge électronique afin de maximiser le flux X diffracté et optimiser le rapport signal/bruit.
- la source X-K_α est limitée aux expériences de diffraction. Sa largeur spectrale ($\Delta E/E=10^{-4}$) est trop étroite pour utiliser la technique d'absorption X (EXAF). L'étude des matériaux non cristallins ainsi que l'accès aux informations concernant l'ordre local d'un matériau est impossible.

Ces différents constats sont à l'origine du développement d'une nouvelle source de rayonnement X ultrabrève, de conception totalement nouvelle, permettant de produire un faisceau (collimaté) de rayonnement X polychromatique. Cela est présenté aux chapitres B.4 et B.5.

B.3. Source X- γ

Lorsqu'une impulsion laser ultrabrève interagit avec la surface d'une cible solide, nous avons vu au chapitre B.2.1 que des processus non collisionnels telle que l'absorption résonnante sont à l'origine de l'accélération d'électrons très énergétiques. Pour des intensités laser supérieures à 10^{18} W/cm², il a été montré que du rayonnement X très dur dans la gamme spectrale de plusieurs centaines de keV à plusieurs MeV peut être produit par émission « bremsstrahlung » lors de collisions inélastiques avec les atomes de la cible solide non perturbée située derrière le plasma thermique¹⁶. La durée d'impulsion de ce rayonnement est donnée par le temps nécessaire aux électrons pour déposer toute leur énergie. Au contraire de la source X-K α , qui utilise des électrons d'une température autour de 10 keV afin de limiter le flashe X à 100 fs, une durée de l'ordre de quelques picosecondes est ici attendue. Le principal avantage reste la production de rayonnement à spectre large dans un domaine spectral très énergétique.

Les expériences ont été réalisées¹⁷ avec le système laser de la « salle jaune » du LOA et pour des intensités laser focalisées sur des cibles solides de quelques 10^{18} W/cm². L'émission X est caractérisée à partir de techniques dosimétriques basées sur une détection passive de capteurs thermoluminescents et sur une chambre à ionisation¹⁸.

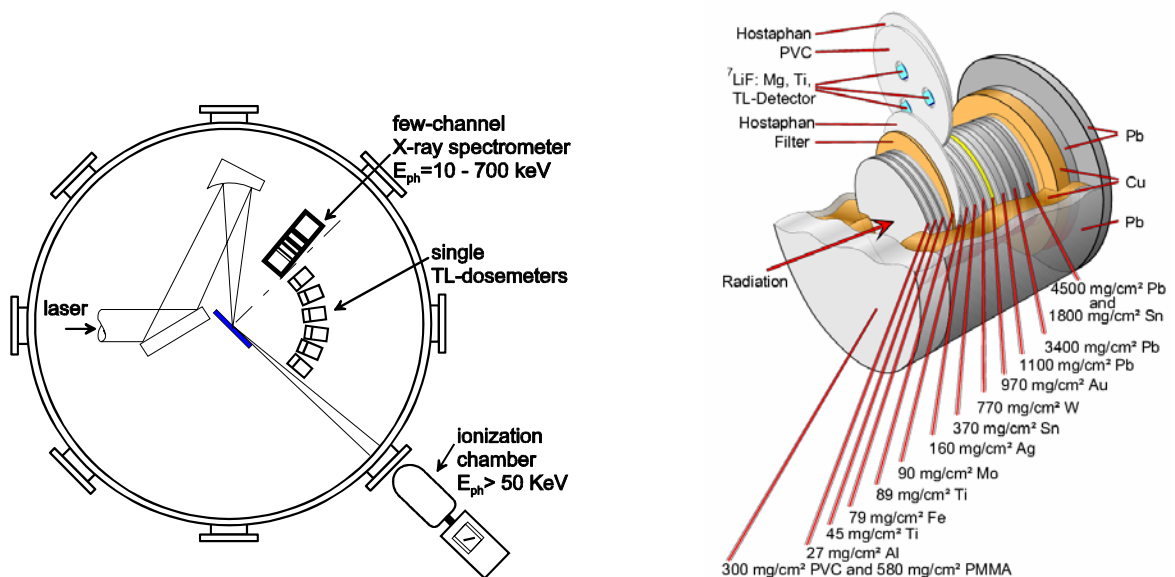


Figure B-3 : Système expérimental utilisé pour caractériser le rayonnement X-dur (15 -700 keV) produit à partir de l'interaction entre un laser intense avec une cible solide. (a) chambre d'interaction ; (b) principe du spectromètre X multicanaux construit à partir d'une superposition de filtres et de détecteurs thermoluminescents (TL).

La Figure B-3 présente le spectromètre X fonctionnant dans une gamme spectrale de 15 à 700 keV grâce à plusieurs canaux composés de jeux de filtres. Le spectromètre est protégé contre le rayonnement secondaire n'étant pas issu du plasma grâce par un blindage en plomb et en cuivre. Des filtres de PVC et de PMMA sont utilisés pour absorber les électrons énergétiques jusqu'à 1.5 MeV produits par le plasma. Le rayonnement bremsstrahlung généré par les électrons dans ces matériaux reste limité à 10 % du signal produit par les photons. En revanche, des électrons d'énergie supérieure à 1.5 MeV ne sont pas stoppés par ces filtres. Ils contribuent ainsi à une augmentation de la dose reçue par les premiers

étages de la pile de détecteurs et une correction doit être appliquée pour éviter une surestimation du flux de rayonnement X. Des dosimètres thermoluminescents uniques sont également placés autour du point source afin de déterminer la distribution angulaire du rayonnement X.

La Figure B-4 présente la distribution en énergie du rayonnement X produit sur une cible de Ta d'épaisseur de 500 μm (histogrammes) ainsi que les simulations obtenues à partir du code Monte-Carlo ESG4¹⁹. Ce code permet de calculer le rayonnement X émis par les électrons se propageant dans une cible solide non ionisée. Par comparaison avec les expériences, la distribution en énergie des électrons à l'origine de cette émission peut être déterminée. En utilisant cette méthode, nous avons trouvé que les résultats expérimentaux sont bien représentés par une distribution électronique maxwellienne à 2 températures de 30 keV et de 260 keV. Le pic de signal observé pour des énergies inférieures à 50 keV est attribué à la contribution des électrons d'énergie supérieure à 1.5 MeV directement détectés par le spectromètre. Cette partie du signal n'a pas été prise en compte dans l'analyse des résultats expérimentaux.

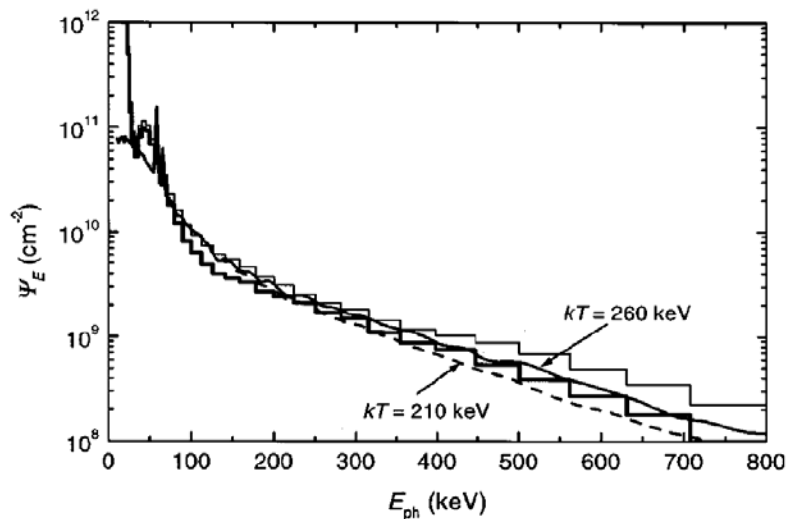


Figure B-4 : Distribution spectrale du rayonnement X produit par l'interaction d'un faisceau laser de 30 fs et 0.4 J sur une cible de Ta de 500 μm d'épaisseur. 3500 tirs laser ont été effectués. L'histogramme en trait fin (épais) correspond aux résultats expérimentaux sans (avec) correction de la contribution d'électrons énergétiques directement détectés par le spectromètre. La courbe en trait plein (pointillé) correspond aux calculs obtenus avec le code ESG4 pour deux distributions maxwelliennes en énergie des électrons de températures égales à 210 keV et 260 keV.

Les simulations Monte-Carlo ont été effectuées en supposant que le transport des électrons dans la cible solide non ionisée n'est pas influencé par les champs électromagnétiques générés par le faisceau d'électrons (neutralité des charges dans le matériau). L'existence de ces champs limite la profondeur de pénétration des électrons dans la cible. Pour les intensités laser considérées ici (10^{18} W/cm^2), une profondeur de pénétration de 10 μm est attendue à partir de ce modèle. Le spectre du rayonnement X produit par les électrons doit ainsi être indépendant de l'épaisseur du matériau pour des cibles d'une épaisseur supérieure à cette profondeur de pénétration. Afin de tester cette hypothèse, nous avons réalisé des expériences sur une cible de Ta de 2.5 μm d'épaisseur dans les mêmes conditions expérimentales que pour la cible de 500 μm . Nous avons observé que le flux X spectral obtenu avec cette cible mince est égal à celui obtenu avec la cible épaisse. Ceci semble indiquer que, dans nos conditions expérimentales, la limitation du transport électronique n'est pas effective.

Cependant, la correction plus élevée de la réponse des détecteurs due à la contribution des électrons absorbés directement par les filtres rend l'interprétation délicate dans nos conditions expérimentales et ne nous permet pas de conclure de manière définitive.

Les caractéristiques de cette source de rayonnement X sont les suivantes. Les mesures réalisées avec l'ensemble des détecteurs TL uniques ont montré que la distribution spatiale du rayonnement est isotrope. Les lois d'échelle ont été étudiées avec la chambre à ionisation, placée à l'extérieur de l'enceinte expérimentale derrière une fenêtre d'Al de 20 mm d'épaisseur. Le système est sensible à l'ensemble du rayonnement X supérieur à 50 keV. La Figure B-5 montre que le signal X mesuré (M) suit les lois d'échelle $M \propto E_l^{1.6}$, en bon accord avec de précédentes études²⁰. La variation en fonction de la durée d'impulsion montre clairement une saturation du signal pour des durées inférieures à 120 fs. L'origine de cette saturation n'est pas encore comprise. Une possibilité est que le rapport du signal M mesuré par la chambre à ionisation par l'énergie total X soit fonction du profil spectral du rayonnement X émis. Le changement de la température des électrons énergétiques produits durant l'interaction en fonction de la durée d'impulsion laser peut ainsi avoir un impact direct sur le signal observé par la chambre à ionisation.

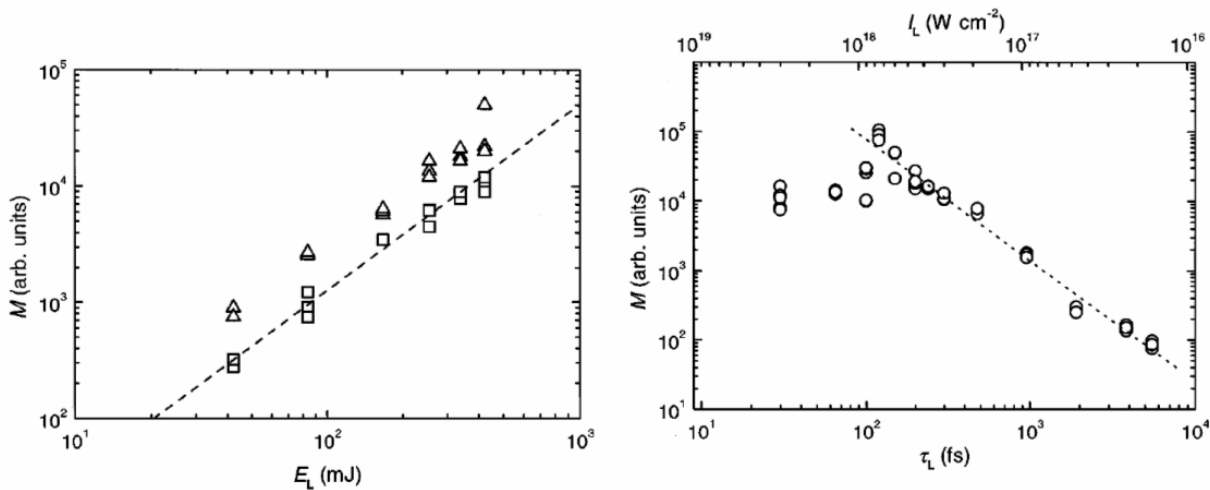


Figure B-5 : Signal X mesuré par la chambre d'ionisation en fonction de l'énergie laser (E_l) et la durée d'impulsion laser (τ_l). Triangle : 150 fs ; carré : 30 fs ; rond : $E_l = 0.4$ J. La ligne en pointillée indique la loi d'échelle $\propto E_l^{1.5}$ (énergie) et $\propto E_l^{1.7}$ (durée).

B.4. Rayonnement X-Larmor (diffusion Thomson non-linéaire)

B.4.1. Principe de la source

Le rayonnement de Larmor est l'onde électromagnétique que toute particule chargée émet lorsqu'elle subit une accélération²¹. Lorsqu'un faisceau laser est focalisé dans un jet de gaz, le front avant du faisceau va rapidement ioniser les atomes, laissant interagir le reste de l'impulsion avec un « bain » d'électrons libres. Ces électrons vont osciller dans le champ électrique du laser et émettre ce type de rayonnement élémentaire^{22,23} (Figure B-6). Pour un électron libre, les

caractéristiques spectrales et spatiales sont entièrement déterminées par le paramètre de force* $a_0 = eA_0/m_e c^2$ associé au laser. Le paramètre de force est relié à l'intensité laser I_0 par :

$$\text{Eq. (B-3)} \quad a_0 = 0.85 \times 10^{-9} \lambda_0 [\mu\text{m}] I_0^{0.5} [\text{W}/\text{cm}^2]$$

où λ_0 est la longueur d'onde incidente. L'interaction entre un électron et une onde électromagnétique a fait l'objet de nombreuses études et est souvent décrite sous le terme de diffusion Thomson. Pour $a_0 < 1$, la diffusion Thomson est linéaire et le rayonnement est émis à la fréquence fondamentale du laser incident.

Plusieurs solutions peuvent être suivies pour atteindre le domaine spectral du rayonnement X. Les systèmes laser disponibles aujourd'hui permettent d'atteindre des intensités supérieures à 10^{19} W/cm² pour lesquelles $a_0^2 \gg 1$. Les électrons oscillent alors à des vitesses proches de la célérité de la lumière et leur dynamique devient relativiste, fortement non-linéaire, et produit des harmoniques de la longueur d'onde fondamentale par diffusion Thomson non-linéaire^{24,25,26}. La longueur d'onde critique au delà de laquelle le spectre chute brutalement est donnée par :

$$\text{Eq. (B-4)} \quad \lambda_c [\text{eV}] = 1.24 n_c / \lambda_0 [\mu\text{m}]$$

où $n_c \sim a_0^3$ est le nombre critique d'harmoniques pouvant être atteint. Pour $a_0 = 10$, du rayonnement autour du keV peut ainsi être généré.

La deuxième solution consiste à exploiter le fort décalage Doppler qu'un faisceau laser peut subir sur des faisceaux d'électrons initialement accélérés à des facteurs relativistes γ^\dagger (Figure B-6 b). Pour $a_0 < 1$, la longueur d'onde critique est donnée par

$$\text{Eq. (B-5)} \quad \lambda_c = (\lambda_0 / 2\gamma^2) (1 + \gamma^2 \theta^2) / (1 - \cos\phi)$$

où θ et ϕ sont les angles entre le laser et le rayonnement émis avec le faisceau d'électrons. Les longueurs d'ondes les plus courtes sont obtenues dans l'axe lorsque le paquet d'électrons et le faisceau laser interagissent de manière contre-propagative. Cette technique est déjà utilisée dans le domaine des « accélérateurs » avec des faisceaux d'électrons issus de LINAC²⁷. Des énergies d'électrons de plusieurs dizaines de MeV suffisent à produire du rayonnement X autour de quelques dizaines de keV. Si a_0 devient supérieur à 1 pour atteindre le régime non-linéaire, la génération d'harmoniques vient alors s'ajouter au décalage Doppler en étendant le domaine spectral vers les plus courtes longueurs d'onde. Si l'objectif est de produire un rayonnement X femtoseconde, des géométries particulières²⁸ doivent être utilisées ($\phi \gg 0^\circ$) pour ne pas être limité par la durée picoseconde des paquets d'électrons issus de ces systèmes. La principale conséquence est une réduction significative du flux X produit (le temps de transit du faisceau laser dans le paquet d'électrons étant minimisé, le nombre d'électrons interagissant avec le faisceau laser est réduit).

Une solution séduisante pour contourner cette difficulté est d'utiliser un faisceau d'électrons fortement chargé dont la durée est égale à la durée de l'impulsion laser femtoseconde. De nombreuses études ont montré que de tels faisceaux peuvent être obtenus dans un plasma durant l'interaction laser-matière en régime relativiste. Au LOA, des faisceaux d'électrons de quelques nC et d'énergie de quelques MeV à 200 MeV peuvent être produits dans des jets de gaz

* Amplitude normalisée du potentiel vecteur A_0 du champ laser

† $\gamma = 1/(1 - v_0^2/c^2)^{1/2}$

d'Hélium²⁹. L'utilisation de cette nouvelle génération de faisceaux d'électrons serait très efficace pour le développement de cette source de rayonnement X Thomson.

Les expériences que j'ai réalisées avec Kim Ta Phuoc dans le cadre de sa thèse ont consisté à démontrer expérimentalement la production de ces deux types de rayonnement. Leurs principes sont équivalents à celui du rayonnement synchrotron. Une source de rayonnement Synchrotron conventionnelle utilise en effet des faisceaux d'électrons très énergétiques qui sont injectés dans des aimants de courbure ou dans des onduleurs (Figure B-6 c).

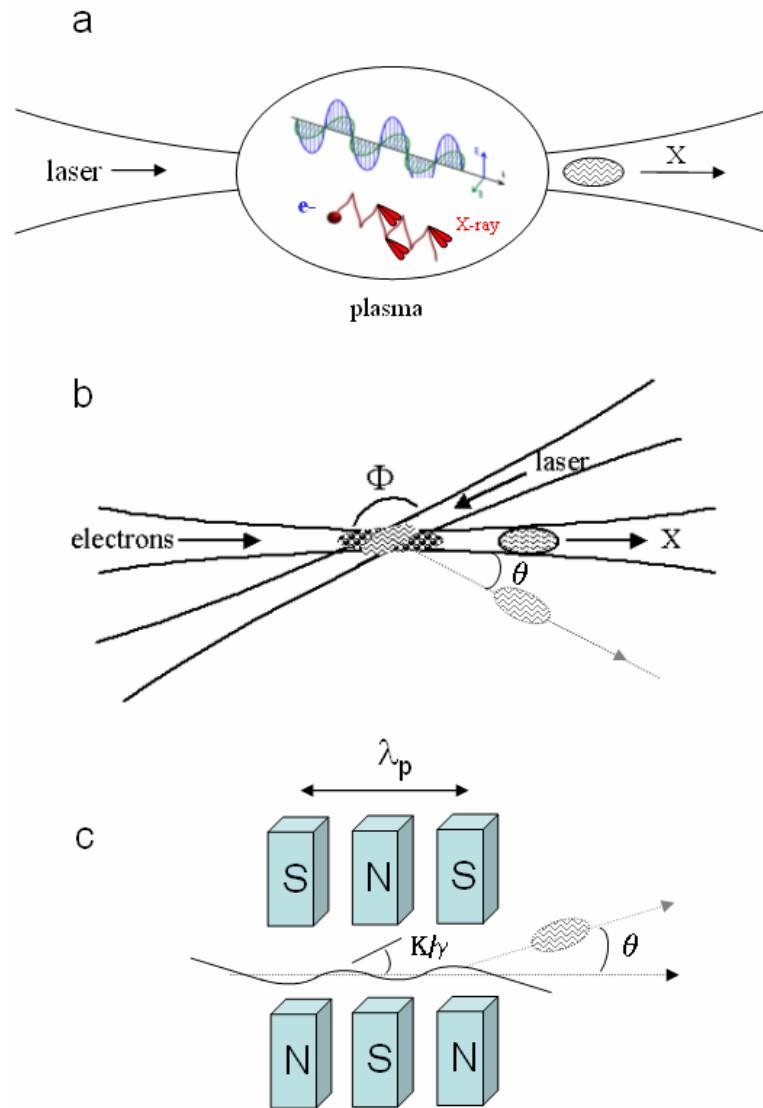


Figure B-6 Principe de la source X « Larmor ». a. Rayonnement X émis par l'oscillation relativiste des électrons du plasma dans les champs électromagnétiques périodiques du laser : diffusion Thomson sur un électron initialement au repos; b : Rayonnement X émis par diffusion Thomson d'un faisceau laser sur un faisceau d'électrons initialement accéléré; c : Analogie avec le rayonnement X du type « synchrotron ».

Les fortes accélérations effectuées par les électrons dans ces structures magnétiques périodiques statiques de champs B_0 et de nombre d'onde k_p sont caractérisées par le paramètre de force $K=eB_0/k_p m_e c$, qui est l'équivalent du paramètre a_0 par

analogie à l'oscillation des électrons dans un champ électromagnétique laser. Dans la limite où $\gamma^2 \gg 1$ et $K^2 \ll 1$, la longueur d'onde critique est alors définie par $\lambda_c = \lambda_p / 2\gamma^2$. Les structures magnétiques statiques utilisées étant de l'ordre du cm, des électrons d'énergie de l'ordre du GeV sont ainsi nécessaires pour atteindre le domaine spectral du rayonnement X. Ces énergies sont de trois ordres de grandeur plus élevées que si le champ électromagnétique d'un laser est utilisé comme structure périodique oscillante. Outre la production de rayonnement X femtoseconde que rend possible l'utilisation d'un laser, des systèmes beaucoup plus compacts et d'un coût réduit pourraient être développés.

B.4.2. Caractéristiques de la source X-Larmor (diffusion Thomson non-linéaire)

Les caractéristiques du rayonnement X-Larmor sont entièrement gouvernées par le mouvement de l'électron; c'est-à-dire sa position, sa vitesse et son accélération au cours du temps. Le calcul des trajectoires et du rayonnement est bien connu dans le cas d'un électron libre sans vitesse initiale. Les expressions analytiques simples de l'équation du mouvement prenant en compte la force de Lorentz, de l'équation de l'évolution de l'énergie et de la puissance rayonnée peuvent être utilisées. L'Eq. (B-6) donne dans ces conditions les coordonnées de l'électron oscillant dans l'onde électromagnétique de fréquence ω à chaque instant t . La distribution spatiale est donnée par l'amplitude du vecteur de Poynting \vec{S} dans une direction donnée \vec{n} (Eq. (B-7)) où \mathbf{E} et \mathbf{B} sont les champs émis par la particule en mouvement à une distance R .

La Figure B-7 résume ces caractéristiques dans le cas d'une onde plane polarisée linéairement. Pour des intensités laser non relativiste ($a_0 < 1$), le mouvement de l'électron est transverse et le rayonnement produit est caractéristique d'un dipôle oscillant. Pour $a_0 \sim 1$, la composante longitudinale de la trajectoire est accompagnée par l'apparition de deux lobes principaux vers l'avant et d'une diminution de la composante arrière. Dans le régime fortement relativiste ($a_0 \gg 1$), le rayonnement est fortement collimaté vers l'avant de part et d'autre du plan de propagation du laser. Dans ce cas, le rayonnement reste confiné dans le plan perpendiculaire au plan de polarisation du laser.

$$\text{Eq. (B-6)} \quad x(\tau) = \frac{ca_0^2}{2} \left[\frac{\tau}{2} + \frac{1}{4\omega} \sin(2\omega\tau) \right], \tau = t - \frac{x(t)}{c}$$

$$y(\tau) = \frac{ca_0}{\omega} \sin(\omega\tau), z(\tau) = 0$$

$$\text{Eq. (B-7)} \quad \vec{S} = \frac{1}{\mu_0} (\vec{E} \wedge \vec{B}) \cdot [\vec{S} \cdot \vec{n}]_{ret} = \frac{e^2}{(4\pi)^2 \xi_0 c R^2} \frac{1}{(1 - \vec{\beta} \cdot \vec{n})^6} \left(\vec{n} \wedge \left((\vec{n} - \vec{\beta}) \wedge \dot{\vec{\beta}} \right)^2 \right)$$

$$\text{Eq. (B-8)} \quad \vec{A}(\omega) = \left(\frac{e^2}{32\pi^3 \xi_0 c} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\omega t} \left[\frac{\vec{n} \times \left((\vec{n} - \vec{\beta}) \times \dot{\vec{\beta}} \right)}{(1 - \vec{\beta} \cdot \vec{n})^3} \right]$$

La distribution spatiale du rayonnement s'obtient en calculant l'amplitude du vecteur de Poynting dans une direction donnée \vec{n} (Eq. (B-7)). Le résultat est présenté dans la Figure B-8 pour le cas d'une polarisation circulaire. L'angle $\theta = 0$ correspond à l'axe de propagation du faisceau laser. La divergence est mesurée dans le plan de polarisation du laser pour différentes valeurs de a_0 .

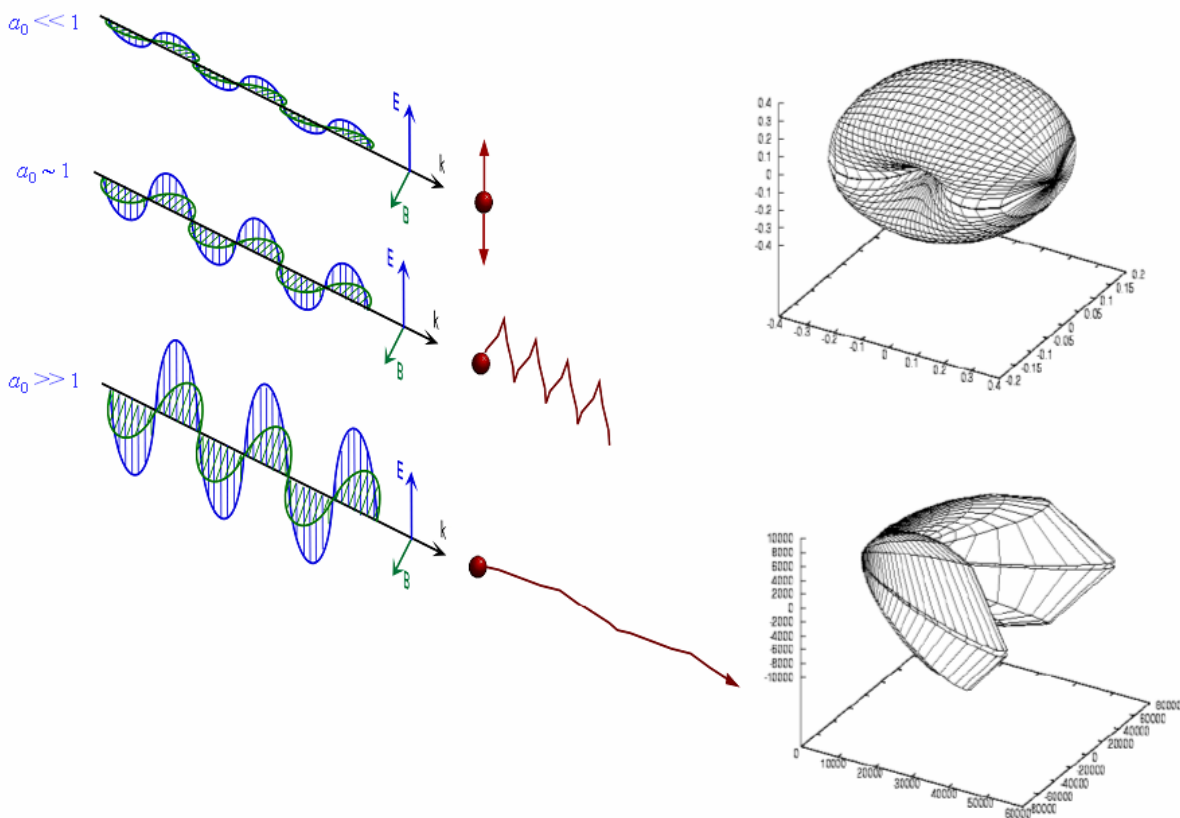


Figure B-7 : Evolution des trajectoires d’un électron libre dans le champ électromagnétique laser, et du vecteur de Poynting associé, en fonction du paramètre a_0 .

Lorsque a_0 augmente, le rayonnement devient de plus en plus collimaté vers l’axe laser. Pour la valeur de $a_0 = 5$ qui correspond à l’intensité laser disponible actuellement au LOA, la distribution spatiale est un cône centré autour de 23° dans la direction de propagation du faisceau laser.

Cette distribution spatiale peut être plus simplement estimée en considérant la trajectoire de l’électron comme une succession de sections sur lesquelles la particule est linéairement accélérée. Chaque zone d’accélération résulte en l’émission d’un cône de lumière (Figure B-8) dont la divergence est donnée par $\varphi = 1/2\gamma = 4/a_0^2$ pour $a_0 \gg 1$ en polarisation linéaire. L’influence de la « forme » de la trajectoire (angle entre deux sections) est donné par $\theta = \tan^{-1}(p_\perp/p_x) = \tan^{-1}(2/a_0) \sim 2/a_0$ pour $a_0 > 1$ et $\sim 2\sqrt{2}/a_0$ en polarisation circulaire. Pour $a_0=5$, un électron d’énergie initiale égale à 1 MeV produit donc du rayonnement de divergence $\varphi = 0.3^\circ$ sur chacune des sections accélératrices de sa trajectoire, et un cône bien centré autour de 30° comme cela a été estimé précédemment.

Les caractéristiques spatiales (collimation) de ce type de rayonnement sont un atout important pour l’identifier parmi les autres processus radiatifs ayant lieu dans un plasma créé par laser. La prise en compte d’une vitesse initiale non nulle de l’électron peut de plus modifier de manière significative l’émission angulaire. La Figure B-9 montre que la composante longitudinale de la trajectoire de la particule augmente dans ce cas. Le rayonnement produit devient alors plus collimaté, de la même manière que pour des valeurs de a_0 croissantes.

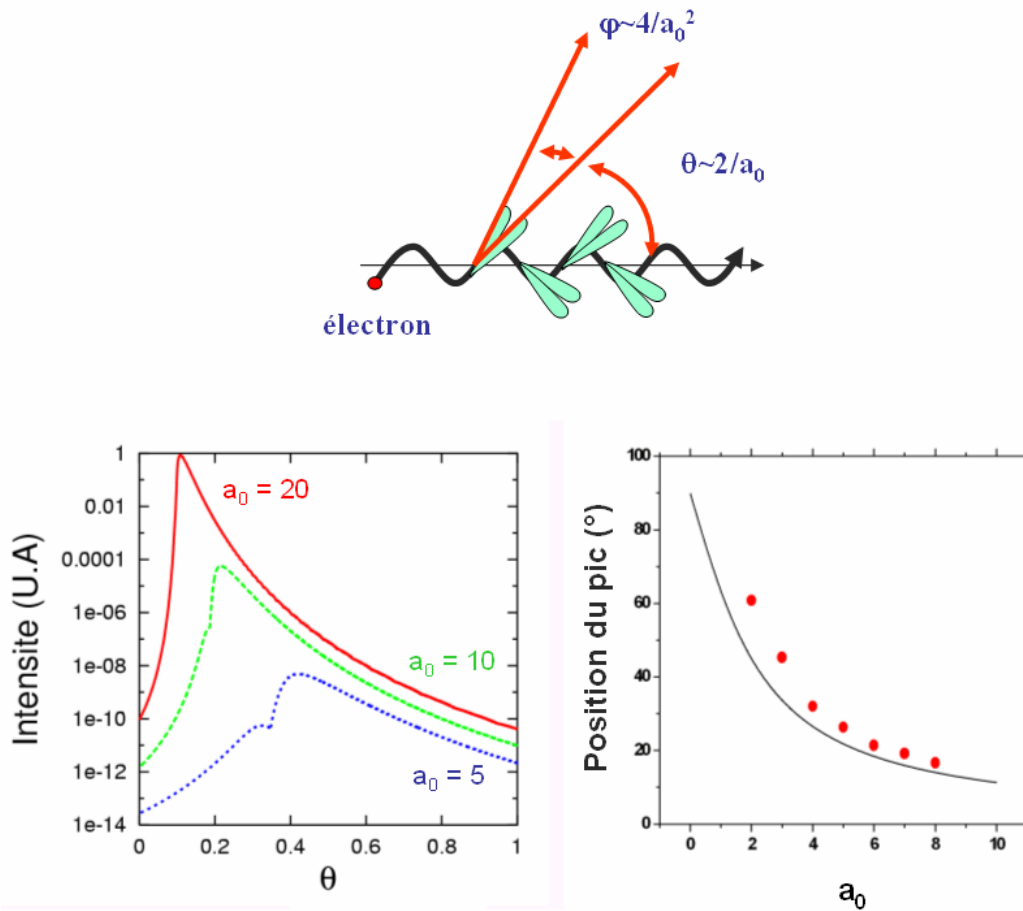


Figure B-8 : Caractéristiques de la distribution angulaire du rayonnement X-Larmor dans le cas d'un électron libre et d'un faisceau laser en polarisation circulaire. Les résultats ne sont présentés que pour le demi-plan $\theta > 0$. Une distribution similaire est obtenue pour le demi-plan $\theta < 0$.

Les distributions spatiales obtenues pour des vitesses initiales de 0.72 MeV à 1.6 MeV sont présentées dans la Figure B-9. Le pic de la distribution se décale de plus de 20° par rapport à la position du pic de la distribution obtenue sans vitesse initiale. Pour 1.6 MeV, le cône d'émission se rapproche à 4° de l'axe laser. Dans les conditions d'une expérience, la présence d'une distribution en énergie d'électrons peut ainsi élargir la distribution angulaire de manière significative (plusieurs dizaines de degrés), et recentrer son maximum vers l'axe laser.

Les caractéristiques spectrales du rayonnement de Larmor -dans une direction \mathbf{n} - sont obtenues en calculant la transformée de Fourier du vecteur de Poynting (Eq. (B-8)).

Une conséquence de la trajectoire en « 8 » obtenu pour $a_0 \geq 1$, est la production d'harmoniques $\omega_n = n\omega_0$ de la longueur d'onde fondamentale du laser (ω_0). Un nombre important d'harmoniques n est généré pour $a_0^2 \gg 1$, qui s'étend jusqu'à l'harmonique critique $n_c \sim a_0^3$ au-delà duquel l'intensité du rayonnement chute brutalement. La longueur d'onde critique, exprimée en eV, est donnée par l'Eq. (B-4)³⁰.

Aux courtes longueurs d'onde, les harmoniques deviennent très proches spectralement et forment un quasi-continuum. La très courte durée d'impulsion laser utilisée dans nos expériences contribue également à détruire cette structure harmonique.

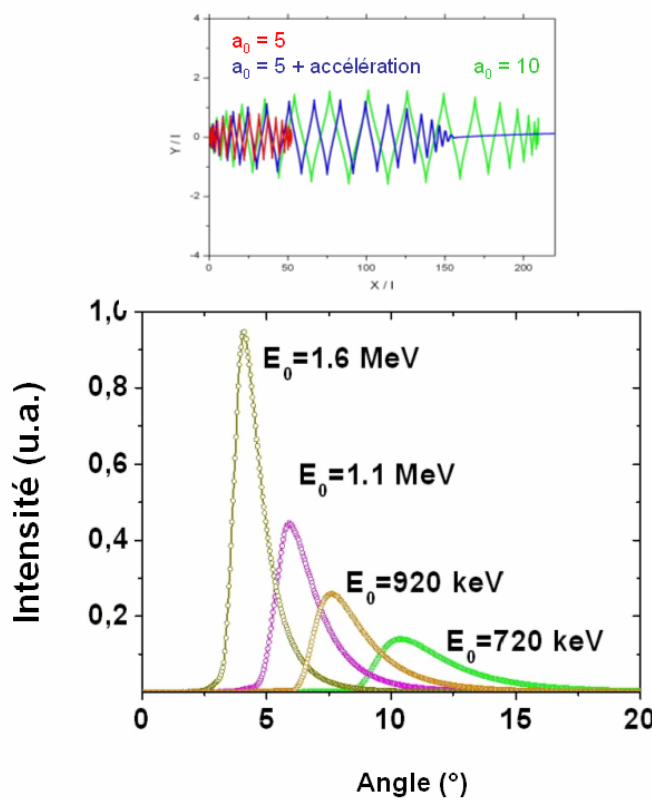


Figure B-9 : Effet d’une vitesse initiale électronique non nulle sur la composante longitudinale de la trajectoire électronique et sur la distribution angulaire du rayonnement X-Larmor.

Cet effet est clairement visible sur la Figure B-10 qui présente le rayonnement produit par un faisceau laser de 30 fs et 300 fs. Dans le cas d’une impulsion longue, l’oscillation non-linéaire des électrons est faiblement modulée dans l’enveloppe de l’impulsion laser. Ces modulations sont en revanche plus importantes dans le cas d’une impulsion plus courte, générant du rayonnement en dehors de la structure harmonique.

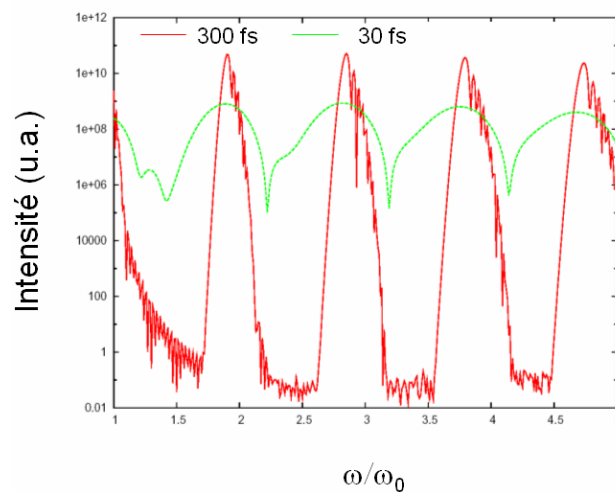


Figure B-10 : Effet de la durée d’impulsion du faisceau laser sur la distribution spectrale du rayonnement X-Larmor.

La Figure B-11 présente le spectre obtenu pour un faisceau laser de 30 fs polarisé circulairement (calculé à partir de l'Eq. (B-8)). Il s'étend de quelques eV à 400 eV pour $a_0=5$ et jusqu'à quelques keV lorsque $a_0=10$. Le spectre est large et piqué. Son maximum se décale vers les longueurs d'onde plus courtes (suivant a_0^3) lorsque a_0 augmente. On peut également noter que la distribution spectrale n'est pas uniforme en fonction de l'angle d'observation. Pour $a_0=5$, la Figure B-11 montre que de part et d'autre du maximum centré à 30° , la distribution spectrale devient de moins en moins énergétique et les bords de la distribution spatiale ne comportent que du rayonnement de faible énergie autour de 10 eV.

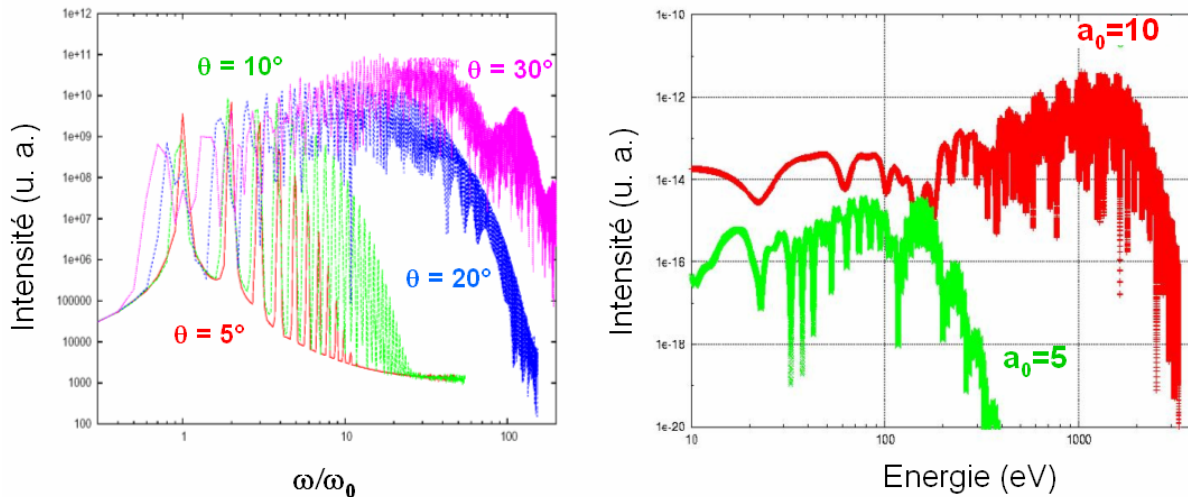


Figure B-11 : Distribution spectrale théorique du rayonnement X-Larmor en fonction de a_0 et de la direction d'observation θ ($a_0=5$).

B.4.3. Démonstration expérimentale de la source X-Larmor (diffusion Thomson non-linéaire)

Ce type de rayonnement a été observé il y a quelques années par la détection du 2^{ème} et 3^{ème} harmonique de la longueur d'onde fondamentale³¹ et plus récemment jusqu'au 30^{ème} harmonique³². Les expériences réalisées dans le cadre de ce projet de recherche ont quant à elle permis d'atteindre le domaine spectral du rayonnement X, qui est crucial pour les applications. Les trois propriétés principales de ce rayonnement mentionnées au chapitre B.4.2 vont nous permettre d'identifier clairement ce processus parmi l'ensemble des processus radiatifs générés dans le plasma durant l'interaction laser-matière : génération d'harmoniques d'ordre élevé d'ensemble atomique, rayonnement de freinage (bremsstrahlung) ou bien rayonnement de recombinaison du plasma thermique par exemple. Tout d'abord, l'intensité du rayonnement X est linéairement proportionnel au nombre d'électrons oscillants dans le champ électromagnétique laser, c'est-à-dire à la densité électronique du plasma. Le spectre est continu, large et piqué. Enfin, la distribution spatiale est fortement anisotrope et faiblement collimaté vers l'avant dans la direction de propagation du faisceau laser.

L'expérience a été réalisée au LOA avec le système laser 30 fs, 1.5 J (50 TW) de la « salle jaune ». Le système expérimental est présenté sur la Figure B-12. Le faisceau laser, de diamètre égal à 55 mm, est focalisé par un miroir parabolique de 300 mm de longueur focale sur le front avant d'un jet de gaz supersonique d'hélium. Des densités électroniques de 10^{18} cm^{-3} à quelques 10^{19} cm^{-3} ont été utilisées durant l'expérience. Les profils de densité des jets de gaz ont été caractérisés par des mesures interférométriques Mach-Zender. La tache focale du laser est de $6 \mu\text{m}$ à mi-hauteur et contient 60 % de l'énergie laser. L'intensité laser maximale a été de $7 \cdot 10^{19} \text{ W/cm}^2$, ce qui correspond un paramètre $a_0 =$

5.6 en polarisation linéaire. Pour de telles intensités, le gaz d'hélium est totalement ionisé par le front avant de l'impulsion laser et le pic de l'impulsion interagit avec un bain d'électrons libres. Le rayonnement X est collecté dans un angle solide de $1.5 \cdot 10^{-2}$ str autour de l'axe laser par un miroir métallique en incidence rasante, et est focalisé sur une caméra CCD sensible au rayonnement X. Des filtres sont placés entre le plasma et le détecteur afin de bloquer le faisceau laser. Des aimants permanents sont également positionnés pour dévier, en dehors de la zone de détection, les électrons énergétiques accélérés suivant l'axe laser.

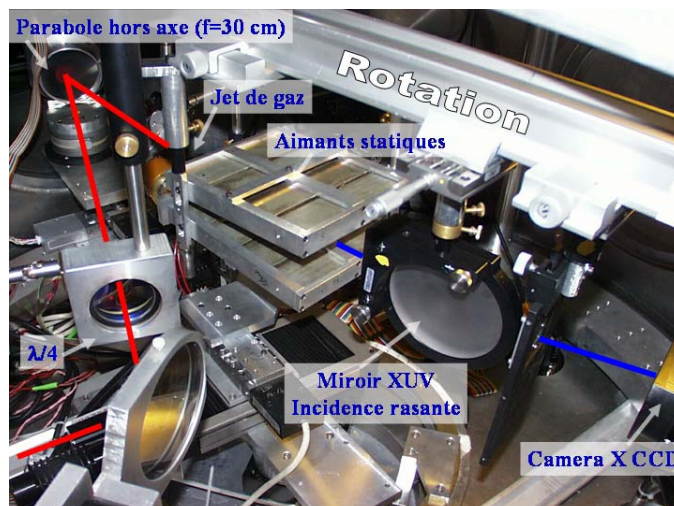
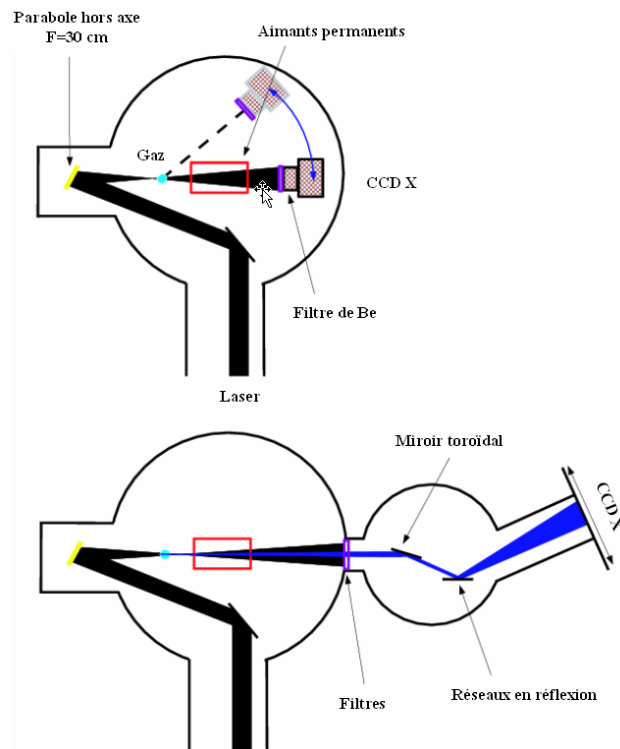


Figure B-12 Système expérimental utilisé pour l'expérience X-larmor. La photographie zoome sur les éléments principaux à l'intérieur de l'enceinte d'interaction.

Dans un premier temps, le spectre du rayonnement émis est estimé grâce à une série de filtres (Be, Al, Ti, Zr) et à la réponse spectrale de la réflectivité des miroirs. Cette détection est sensible de 20 eV à 2 keV par bandes spectrales larges (plusieurs dizaines de %). La distribution angulaire, pour chacune des bandes spectrales, est alors obtenue par la rotation de l'ensemble de ce dispositif (miroir, filtres et détecteur). La distribution spectrale précise est quand à elle obtenue (uniquement dans l'axe de propagation du faisceau laser) grâce à un spectromètre XUV positionné à l'extérieur de l'enceinte d'interaction. Un second bras du laser est utilisé pour sonder, à chaque tir, la propagation du faisceau laser dans le jet de gaz. Enfin, les électrons accélérés dans l'axe (100 keV à quelques MeV) sont caractérisés à l'aide de films radiochromiques et d'un spectromètre à électrons sensible aux plus hautes énergies (10 MeV – 200 MeV).

Le spectre du rayonnement X observé ainsi que la distribution spatiale et l'évolution de l'intensité X mesurée en fonction de la densité électronique pour une bande spectrale centrée à 350 eV sont présentés sur la Figure B-13, la Figure B-14 et Figure B-15. Pour une intensité laser égale à $a_0 = 5.6$, le signal X augmente de manière linéaire avec la densité électronique, son spectre est large et piqué à 100 eV, son émission angulaire est anisotropique et faiblement collimatée dans la direction de propagation du laser.

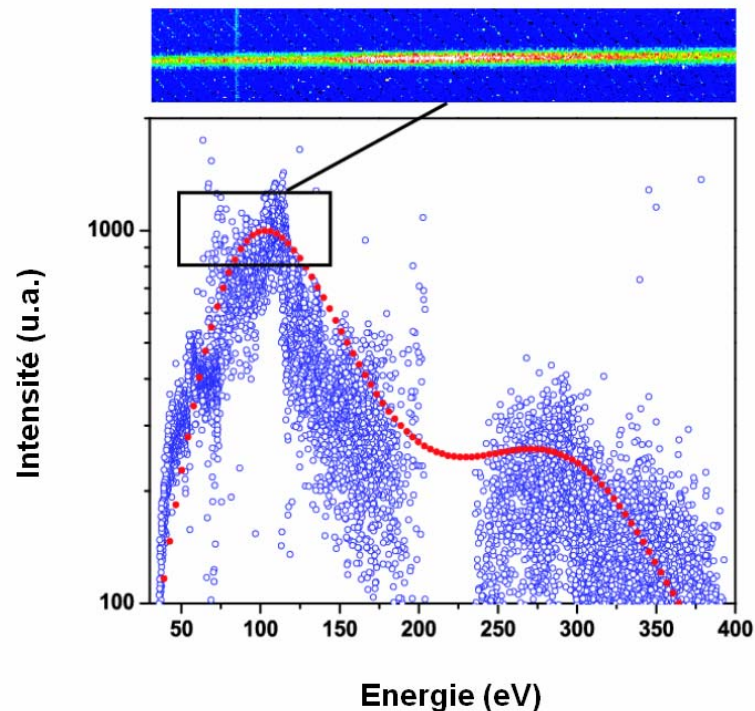


Figure B-13 : Distribution spectrale du rayonnement X observé (avec le spectromètre placé à l'extérieur de l'enceinte) dans l'axe de propagation du faisceau laser ($\theta = 0$) pour l'intensité laser maximale $a_0 = 5.6$ (bleu). L'encart représente une sélection spectrale du signal enregistrée par le détecteur. La densité électronique est égale à $5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. La courbe (rouge) correspond au modèle de l'électron libre pour des électrons d'énergie initiale de 1.5 MeV, un angle d'observation de 3° et une intensité laser $a_0 = 6$.

Ces caractéristiques sont en accord avec les trois propriétés attendues du rayonnement X-Larmor qui ont été présentées au chapitre B.4.2. En revanche, le modèle simple d'un électron libre avec une vitesse initiale nulle oscillant dans le champ électromagnétique laser est insuffisant pour décrire ces résultats expérimentaux.

Tout d'abord, la distribution spectrale montre que du signal (faible) autour de 2 keV est observé dans nos conditions d'interaction (non montré sur la figure). Ce signal est très sensible à la position du point de focalisation du laser par rapport au front avant du jet de gaz. De plus, il n'est observé que pour des densités électroniques élevées supérieures à 10^{19} cm^{-3} .

Dans notre expérience, la puissance laser excède la puissance critique P_c d'autofocalisation relativiste ($P_c = 17n_e/n_c$) de plus d'un ordre de grandeur. Les images d'ombroscopie et de diffusion Thomson du plasma ont confirmé la présence d'autoguidage du laser. Dans ce régime, le diamètre du faisceau diminue, ce qui provoque une augmentation du paramètre a_0 (>10) et pourrait expliquer l'origine du signal observé autour de 2 keV.

On peut remarquer que la distribution angulaire obtenue aux angles les plus élevés (35° à 55°) devient isotrope. Cela indique que d'autres processus deviennent à l'origine de l'émission X. Afin d'identifier ces autres mécanismes, l'intensité du rayonnement X obtenue à ces grands angles d'observation a été étudiée en fonction de la densité électronique sans modifier l'intensité laser ($a_0 = 5.6$). Les résultats présentés dans la

Figure B-15 montrent qu'une dépendance quadratique en densité électronique est obtenue dans ce cas ($\theta = 40^\circ$). Un processus radiatif collisionnel devient alors prédominant dans ces conditions. Les simulations - effectuées en prenant en compte le chauffage ATI et le bremsstrahlung inverse ainsi que la relaxation spatiale et temporelle du plasma - montrent d'une part qu'une température électronique de 150 eV est attendue après 150 ps, et d'autre part que le processus radiatif dominant est le bremsstrahlung³³. On peut également noter que cette émission thermique et isotrope reste moins intense que le signal collimaté X-Larmor. Il ne devient détectable que pour les grands angles d'observation où le rayonnement X-Larmor est alors suffisamment faible.

Des tests supplémentaires ont également été réalisés afin de confirmer l'origine X-Larmor du signal X collimaté observé dans l'axe, et à forte intensité laser ($a_0 = 5.6$). Lorsque l'intensité laser est diminuée ($a_0 \leq 1$), les caractéristiques du signal X mesuré sont modifiées de manière significative. Le spectre devient plat et la dépendance en densité électronique devient quadratique (

Figure B-15) quelque soit les angles d'observation (notamment proche de l'axe laser à $\theta = 0$). Aux intensités laser faibles, les processus radiatifs collisionnels et thermiques deviennent prédominants. Des expériences ont également été réalisées dans l'argon aux mêmes densités électroniques que dans l'hélium pour les intensités laser les plus élevées. Aucune modification de l'intensité du signal X observé dans l'axe n'a été obtenue alors qu'un processus du type collisionnel aurait dû produire une augmentation de signal variant avec le carré du numéro atomique.

Le rayonnement bremsstrahlung relativiste génère quant à lui un signal de plusieurs ordres de grandeur plus faible. Les harmoniques d'ordre élevé d'ensemble atomique peuvent être produits dans les pieds de l'impulsion laser pour lesquels l'intensité laser est plus faible ($a_0 < 1$). En revanche, les expériences réalisées avec un faisceau laser en polarisation circulaire montrent une augmentation de l'intensité X, éliminant de manière certaine ce type de processus.

Une différence marquante entre les caractéristiques du signal X-Larmor attendues et observées durant l'expérience concerne la distribution spatiale. En effet, la Figure B-14 montre que sa largeur à mi-hauteur est plus grande que la valeur théorique (10°) et que le cône d'émission est centré sur l'axe laser à $\theta = 0^\circ$ au lieu de $\theta = 23^\circ$. Le système expérimental ne permet pas un balayage complet du plan horizontal. Par contre, l'incertitude sur le positionnement du spectromètre X par rapport à l'axe laser est meilleure que 5° , excluant ce type d'erreur systématique dans l'analyse des résultats. Comme cela a été mentionné au chapitre B.4.2, l'angle caractéristique d'émission est en fait déterminé par les moments électroniques

p_{\perp} et p_x . Ces deux paramètres peuvent être modifiés de manière significative si l'on considère que l'électron n'est pas libre, mais immergé dans un plasma, et soumis à la dispersion des vecteurs k du laser incident due à la focalisation, à la propagation et aux trajectoires électroniques perturbées dans cet environnement.

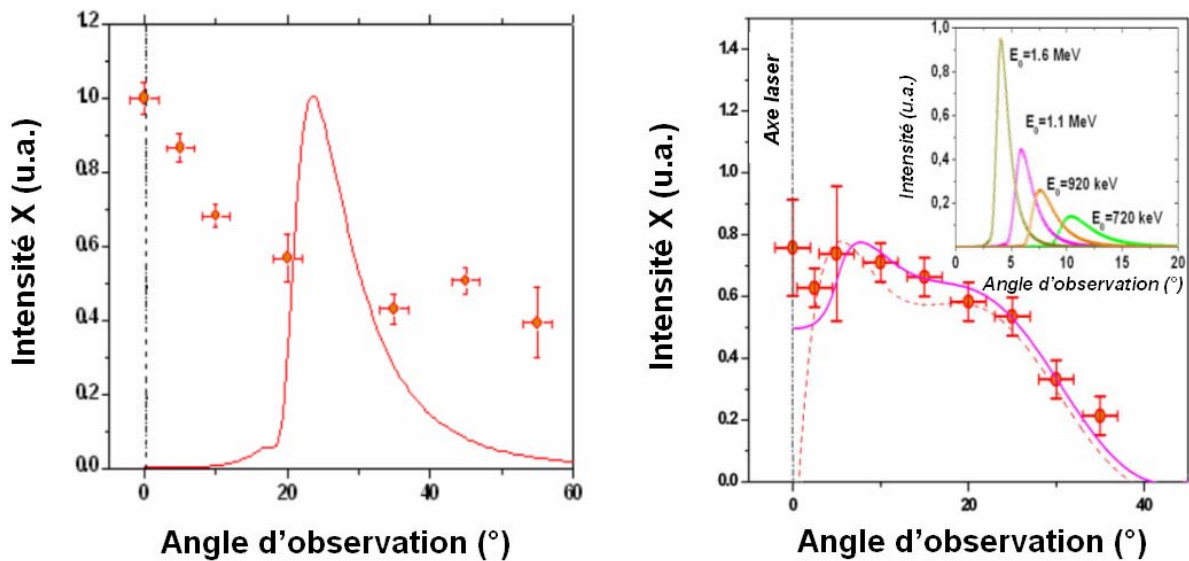


Figure B-14 : Distribution spatiale du rayonnement X pour une densité électronique de $5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et $a_0 = 5.6$. La courbe en trait plein correspond au modèle de l'électron libre (a). La figure (b) représente une seconde série d'expérience pour laquelle la simulation numérique obtenue en considérant une fonction de distribution électronique de température égale à 0.9 MeV est utilisée pour reproduire les résultats expérimentaux. La courbe en pointillé ne tient pas compte de l'effet d'une dispersion en k de 5° .

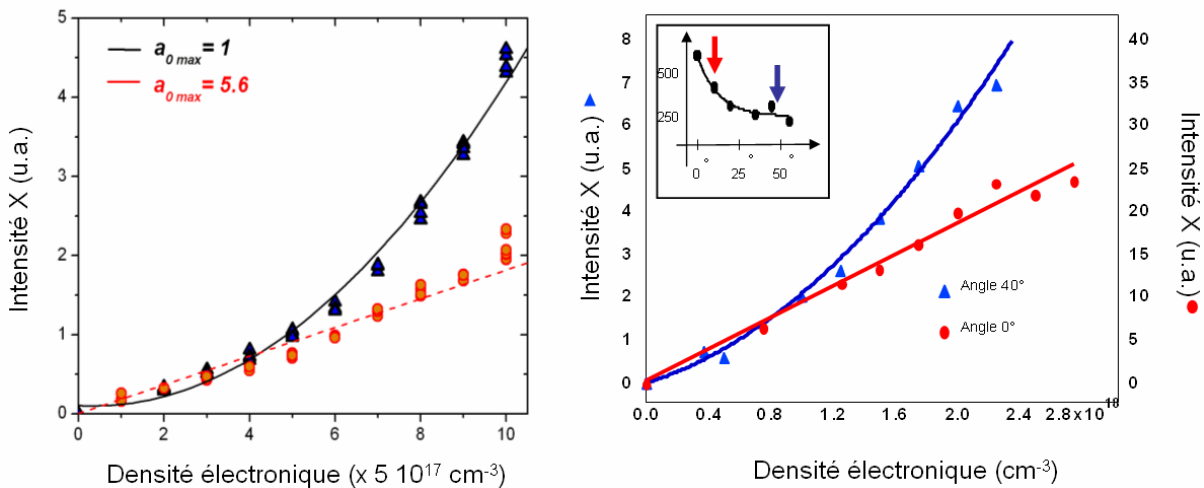


Figure B-15 : Evolution de l'intensité du rayonnement X en fonction de la densité électronique du plasma. En rouge sont représentés les résultats pour l'intensité laser maximale ($a_0 = 5.6$) et pour un angle d'observation $\theta = 0^\circ$ dans l'axe de propagation du faisceau laser. Les résultats obtenus dans l'axe laser pour $a_0 = 1$, et hors axe laser pour $a_0 = 5.6$ sont représentés en bleu.

La Figure B-14 montre que les résultats expérimentaux sont bien représentés par la prise en compte d'une fonction de distribution électronique caractérisée par une température de $0.9 \text{ MeV} \pm 0.3 \text{ MeV}$. Cette valeur est en accord avec les énergies électroniques détectées expérimentalement si une valeur de dispersion en k de 5° est également considérée. De

même, des électrons accélérés suivant l'axe laser ont été observés et caractérisés durant les expériences à l'aide des films radiochromiques et une série de filtres de cuivre. Les mesures indiquent une forte population d'électrons d'énergies autour de quelques centaines de keV à quelques MeV. Cette population d'électrons, qui est également observée dans les simulations PIC, peut provenir de l'accélération par le processus de sillage ou bien du désaccord de phase des électrons dans le champ laser du aux collisions dans le plasma. Cette accélération peut être considérée comme une énergie longitudinale venant s'ajouter à l'énergie d'oscillation acquise dans le champ électromagnétique laser, ce qui peut fortement faire croître le rapport p_x/p_\perp . Les simulations numériques effectuées au chapitre B.4.2 ont montré l'impact de ce mécanisme sur la distribution spatiale du rayonnement X-Larmor.

B.4.4. Conclusion sur la source X-Larmor (diffusion Thomson non-linéaire)

Nous avons démontré la possibilité de produire une source de rayonnement X à partir du processus de diffusion Thomson non-linéaire. Les électrons du plasma oscillent dans le champ électromagnétique périodique du laser et émettent un faisceau de rayonnement X faiblement collimaté dans la direction de propagation du faisceau laser. L'image simple d'un électron libre interagissant dans l'onde électromagnétique sans vitesse initiale est insuffisante pour décrire l'interaction électron-photon. En particulier, l'accélération additionnelle des électrons du plasma par le mécanisme de sillage doit être prise en compte et est à l'origine du décalage angulaire ainsi que de l'élargissement spatial de l'émission X observée.

Le nombre de photons X intégré spatialement et spectralement est de l'ordre de $5 \cdot 10^{10}$ par tir laser, ce qui est proche de l'estimation théorique (10^{11}). La possibilité d'augmenter l'intensité laser dans les prochaines expériences va permettre de d'augmenter le flux, l'énergie et la collimation du rayonnement X produit. La durée de l'impulsion X est principalement contrôlée par la durée de l'impulsion laser. Cependant, la vitesse de propagation du laser dans le canal de plasma étant inférieure à la célérité de la lumière, un élargissement temporel de l'impulsion X (qui se propage à la vitesse de la lumière) peut être produit sur les 3 mm du jet de gaz. Cet élargissement est estimé à 10 fs. La durée du laser (30 fs) représente ainsi bien la durée de ce flash X. La mesure expérimentale de cette durée reste nécessaire pour confirmer cette hypothèse avant d'envisager les applications de cette source. La réalisation d'une expérience de diffraction X résolue en temps (voir chapitre C.2.1) pour laquelle un changement de structure ultrarapide d'un matériau est utilisé comme « échantillonneur temporel femtoseconde » va nous permettre sonder les caractéristiques temporelles de ce rayonnement.

B.5. Rayonnement X-Bétatron

B.5.1. Principe de la source

Le rayonnement X-Bétatron est produit lorsqu'un faisceau d'électrons se propage dans un canal ionique^{34,35}. Le faisceau d'électrons subit un fort gradient focalisant transverse électrique et magnétique centré sur l'axe du canal, et un gradient longitudinal électrique uniforme. L'amplitude de ces forces transversales est très élevée. Elle atteint par exemple 10^8 Tesla/m pour une densité ionique de 10^{19} cm^{-3} . Les électrons effectuent ainsi des oscillations, appelées bétatroniques, suite à la force de rappel s'appliquant de part et d'autre de l'axe, et émettent du rayonnement du type synchrotron. Ce processus radiatif a été mis en évidence³⁶ dans le domaine des accélérateurs lors des études de propagation de faisceaux d'électrons très énergétiques (GeV) dans des modules plasmas. Il a été montré qu'un canal ionique peut jouer le rôle d'onduleur de

manière très efficace sur un faisceau d'électrons de 28.5 GeV et de durée de 5 ps pour produire du rayonnement X. Le front avant du paquet d'électrons éjecte les électrons du plasma, laissant le reste du paquet se propager dans le canal ionique.

Une approche similaire, totalement basée sur l'interaction entre un laser et un plasma, a été proposée récemment³⁷ afin de réduire la taille de l'infrastructure produisant une telle source de rayonnement X, mais surtout pour tirer profit des très courtes durées des paquets d'électrons (~100 fs) que ce type d'expérience permet de générer. L'objectif est de produire une nouvelle génération de rayonnement X ultrabref, plus brillant et/ou plus énergétique que les sources actuellement disponibles (voir chapitres B.2 et B.4), et avec une collimation telle que l'on peut commencer à parler de faisceau.

Trois conditions importantes doivent être réalisées dans ce but. Les électrons doivent tout d'abord être accélérés dans le plasma à des énergies relativistes pour lesquelles $\gamma \gg 1$. Ils doivent ensuite se propager dans un canal d'ions, appelé « onduleur plasma », sur de longues distances (plusieurs millimètres). Enfin, le paramètre de force K associé à l'onduleur plasma doit excéder l'unité afin de générer efficacement des harmoniques de la longueur d'onde fondamentale du rayonnement. Ces conditions sont satisfaites dans le régime de déferlement fortement non-linéaire observé dans des simulations particulières PIC 3D³⁸. Dans ce régime, lorsqu'un faisceau laser intense est focalisé dans un plasma, la force pondéromotrice peut expulser les électrons du plasma et créer un canal ionique dans son sillage. Ces électrons sont complètement chassés durant la première période de l'onde plasma excitée derrière l'impulsion laser, laissant une zone ionique se propageant à la vitesse de groupe de l'impulsion laser proche de la vitesse de la lumière. Des électrons du plasma sont piégés et accélérés dans cette « bulle » ionique jusqu'à des énergies de plusieurs centaines de MeV. Ils effectuent des oscillations bétatroniques dans le champ transverse associé au canal ionique et émettent du rayonnement X du type synchrotron. La Figure B-16 représente de manière simplifiée le principe de cette source de rayonnement.

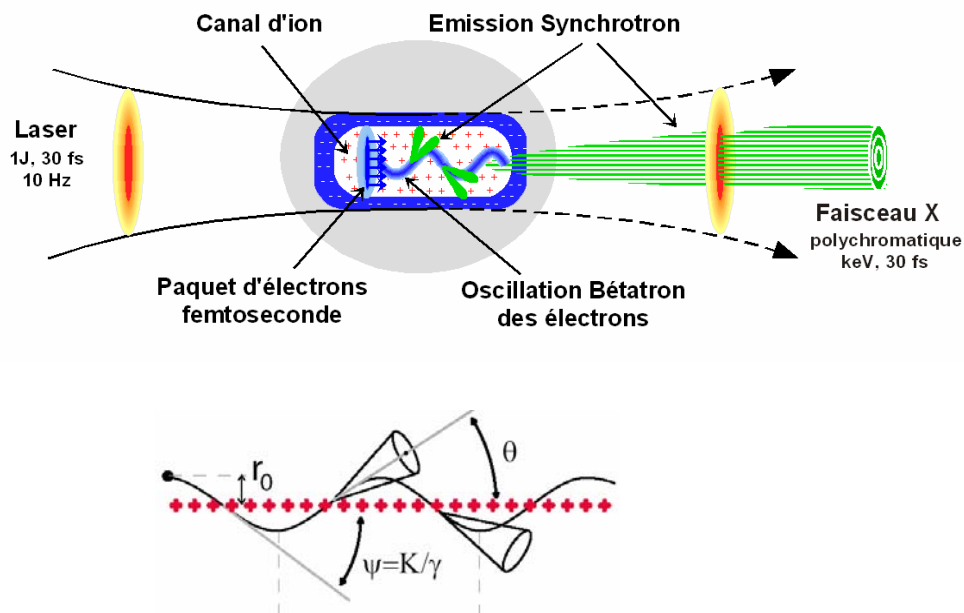


Figure B-16 : Principe simplifié de la source de rayonnement X-Bétatron produite à partir de l'interaction laser-matière. Ce « mini » Synchrotron femtoseconde utilise les paquets ultrabréves d'électrons accélérés dans le sillage du faisceau laser où un canal ionique, vierge d'électrons du plasma, est formé. Ils effectuent des oscillations bétatroniques et émettent du rayonnement du type synchrotron dans ce canal. r_0 est l'amplitude d'oscillation de l'électron, K le paramètre de force de « l'onduleur » plasma.

B.5.2. Caractéristiques de la source X-Bétatron

Pour des petites amplitudes d'oscillations ($r_0 k_b \ll 1$, où r_0 est l'excursion radiale de l'électron par rapport à l'axe du canal) l'oscillation bétatronique est bien représentée par un mouvement harmonique de fréquence $\omega_b = c/k_b = \omega_p/\sqrt{2\gamma}$. La longueur d'onde de l'émission associée à ces oscillations est donnée par $\lambda = \lambda_b/(2\gamma^2)$ où $\lambda_b = 2\pi/k_b$. Si l'amplitude d'oscillation devient large, les électrons émettent des harmoniques de cette longueur d'onde fondamentale. Si le paramètre de force de l'onduleur plasma donné par l'Eq. (B-9) :

$$\text{Eq. (B-9)} \quad K = \gamma k_b r_0 = 1.33 \cdot 10^{-10} \gamma^{0.5} n_e^{0.5} [\text{cm}^{-3}] r_0 [\mu\text{m}]$$

est tel que $K \gg 1$, alors le rayonnement devient quasi-continu et large spectralement. De la même manière que pour le rayonnement X-Larmor présenté au chapitre B.4.1, ces caractéristiques deviennent similaires au rayonnement synchrotron. Le spectre s'étend jusqu'à la fréquence critique ω_c , puis chute de manière exponentielle. La fréquence critique pour un électron relativiste dans un canal d'ions est donnée par l'Eq. (B-10) :

$$\text{Eq. (B-10)} \quad \hbar\omega_c [\text{eV}] = (3/2) \gamma^3 \hbar c r_0 k_b^2 \sim 5 \cdot 10^{-21} \gamma^2 n_e [\text{cm}^{-3}] r_0 [\mu\text{m}]$$

Ce rayonnement est collimaté dans un cône angulaire caractéristique $\theta \sim K/\gamma$ du fait du mouvement fortement relativiste de la particule. La puissance totale moyenne émise par un électron est $P \sim e^2 c \gamma^2 k_p^4 r_0^2 / 12$ et est proportionnelle à la racine carrée de la densité ionique dans le canal. Le nombre moyen de photons N est donné par l'Eq. (B-11) où N_0 est le nombre d'oscillations bétatroniques effectuées par l'électron :

$$\text{Eq. (B-11)} \quad N \sim (2\pi/9) (e^2/\hbar c) N_0 K \sim 5.6 \cdot 10^{-3} N_0 K$$

$$\text{Eq. (B-12)} \quad \frac{dI}{d\omega} = \frac{4\sqrt{3}e^2}{c} N_0 K \gamma F\left(\frac{\omega}{\omega_c}\right)$$

La Figure B-17 présente les résultats obtenus à partir des simulations particulières PIC³⁹ pour une intensité laser correspondant à $a_0 = 10$, une durée d'impulsion laser de 22 fs et une densité électronique du plasma de 10^{19} cm^{-3} . Les électrons du plasma piégés et accélérés jusqu'à quelques centaines de MeV se propagent dans la bulle ionique. Pour ces paramètres d'interaction, le paramètre de force K de cet « onduleur plasma » est de l'ordre de 89 et $N_0 = 8.6$ oscillations bétatrons sont effectuées. L'intensité I du rayonnement X est calculée (Figure B-17) sur chacune des trajectoires des électrons à partir de l'Eq. (B-12) qui dépend de la fonction « universelle » $F(\omega/\omega_c)$ associée au rayonnement synchrotron⁴⁰. Le spectre s'étend jusqu'à quelques dizaines de keV et le faisceau est collimaté dans 100 mrad autour de l'axe de propagation du laser. La durée de l'impulsion X est principalement limitée par la durée du paquet d'électrons, qui reste inférieure à la durée de l'impulsion laser⁴¹. La différence de vitesse de propagation entre le rayonnement X produit et le paquet d'électrons n'élargit pas temporellement le flashe X de manière significative (10 fs après 3 mm de propagation).

B.5.3. Démonstration expérimentale de la source X-Bétatron

L'expérience a été réalisée à l'aide du même système expérimental déjà présenté au chapitre B.4, mais avec des paramètres d'interaction laser-plasma différents. Le faisceau laser a été focalisé à l'aide d'un miroir parabolique hors axe,

d'ouverture F/18 (F est la longueur focale), sur le front avant du jet de gaz supersonique. Durant cette expérience, 50 % de l'énergie laser totale (1 J) est contenue dans une tache focale de $18 \mu\text{m}$ à mi-hauteur. L'intensité laser sur cible est de $3 \cdot 10^{18} \text{ W/cm}^2$, ce qui correspond à un paramètre $a_0 = 1.2$. De la même manière que pour l'expérience X-Larmor (voir B.4), la difficulté expérimentale principale est de s'affranchir du bruit généré par le plasma (radiatif ou particulaire) qui se superpose au signal et qui paralyse le système d'acquisition électronique.

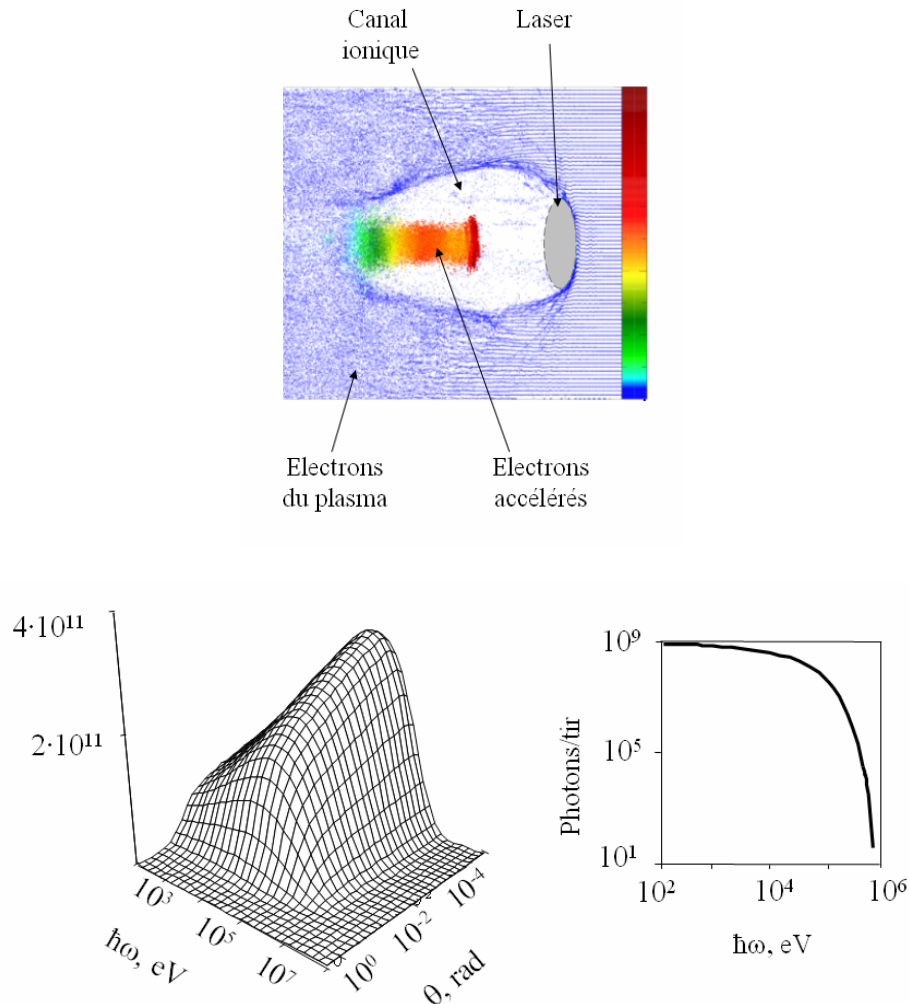


Figure B-17 : Simulation PIC de la propagation du faisceau laser dans le plasma et de l'émission X produite par les électrons relativistes se propageant dans le canal ionique (photons/tir/0.1%BW/srad).

Grâce à une caméra CCD sensible au rayonnement X dans la gamme d'énergie du keV, placée directement dans l'axe de propagation du faisceau laser et sans aucune optique de collection X, nous avons observé un signal fortement collimaté comme le montre l'image de la Figure B-18. Le rayonnement d'énergie inférieure à 0.8 keV est bloqué par le filtre de béryllium de $25 \mu\text{m}$ placé devant le détecteur. Les lignes verticales et horizontales correspondent à l'absorption du signal par une grille de Nickel de $41 \mu\text{m}$ d'épaisseur et de 80 % de surface ouverte. Cette grille permet de discriminer le signal X du bruit résiduel : elle est transparente pour les électrons d'énergie supérieure à 100 keV (les électrons d'énergie inférieure sont déviés par les aimants statiques et ne peuvent être détectés par la caméra CCD) et bloque le rayonnement X inférieur à 10 keV.

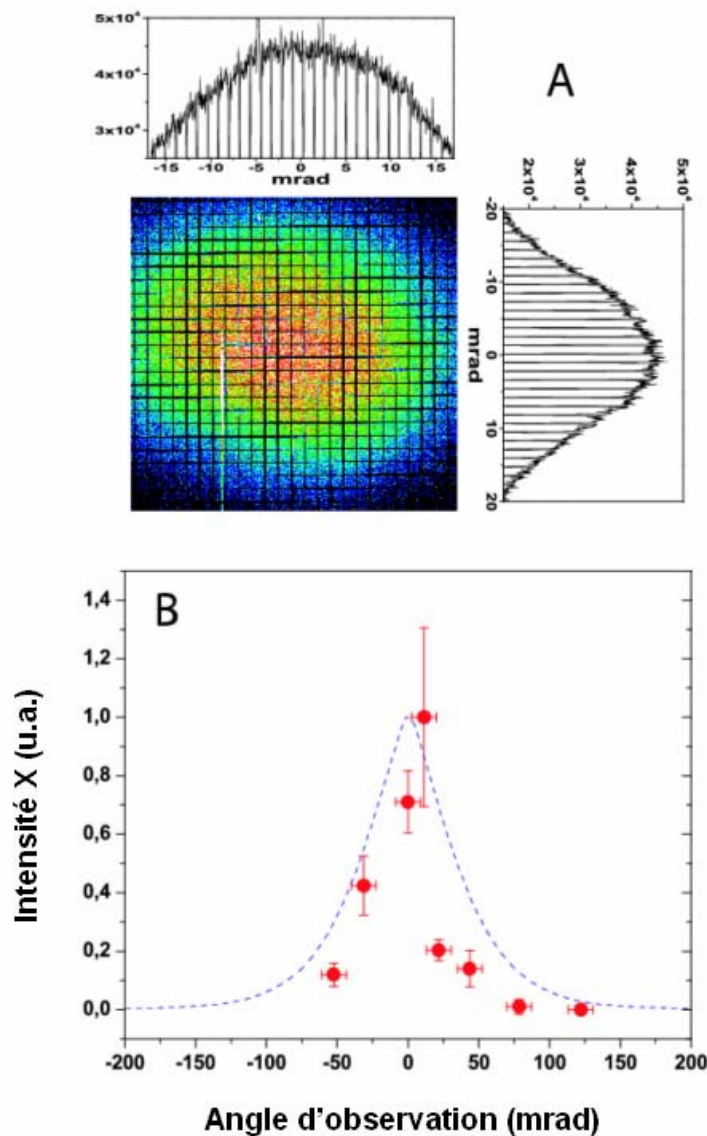


Figure B-18 : Distribution spatiale du rayonnement X-Bétatron pour des longueurs d'onde X supérieures à 1 keV. A : Empreinte du faisceau X directement observé sur la caméra CCD sans optique de rayonnement X et pour une densité électronique plasma de $8 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. La grille de nickel placée en amont du détecteur est à l'origine de l'ombre portée visible sur le détecteur. B : distribution dans le plan horizontal. Chaque point expérimental est moyenné sur 10 tirs. La courbe en trait pointillé correspond aux simulations PIC réalisées avec les mêmes paramètres que l'expérience. La densité électronique est égale à 10^{19} cm^{-3} .

Des tests réalisés à l'aide d'optiques réfléchives (miroir métallique utilisé en incidence rasante) et d'aimants permanents additionnels ont permis de s'assurer que le signal mesuré n'est pas d'origine électronique. La divergence du faisceau de rayonnement X moyennée sur plusieurs tirs est égale à $50 \text{ mrad} \pm 20 \text{ mrad}$ à mi-hauteur, ce qui est en accord avec les simulations PIC réalisées pour les mêmes paramètres que les expériences. Des fluctuations importantes de la divergence ont été enregistrées durant les expériences. Le faisceau le plus collimaté a été observé avec une divergence de 20 mrad (Figure B-18 : A).

Le spectre du rayonnement X a été estimé grâce à une série de filtres d'aluminium, de nickel et de cuivre. Ce système nous a permis de détecter du rayonnement X entre 1 keV et 4 keV (Figure B-19). Le nombre de photons intégré spatialement et spectralement est de l'ordre de 10^8 /tir.

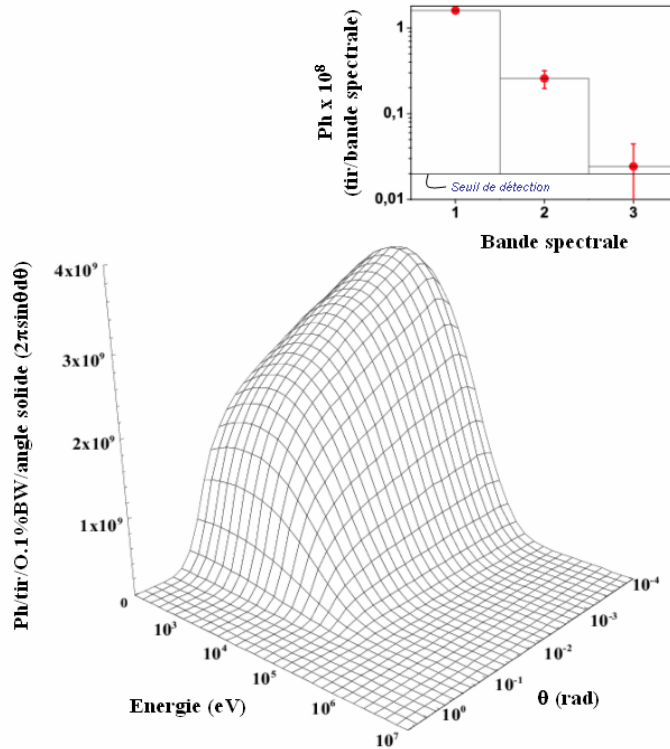


Figure B-19 : Distributions spectrale et spatiale du rayonnement X-Bétatron théoriques obtenues pour nos paramètres expérimentaux (densité électronique égale à $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, jet de gaz de 3 mm). L'insert indique les bandes spectrales observées durant nos expériences : 1 : $1 \text{ keV} < E < 10 \text{ keV}$, 2 : $4 \text{ keV} < E < 10 \text{ keV}$, 3 : $6 \text{ keV} < E < 10 \text{ keV}$.

Plusieurs facteurs nous indiquent que le rayonnement a pour origine les oscillations bétatroniques dans un canal ionique. Tout d'abord, on peut immédiatement écarter le rayonnement X-Larmor présenté en B.4. L'intensité laser est ici 10 fois plus faible, et du rayonnement à plusieurs keV ne peut être obtenu à de tels flux X. De même, le rayonnement bremsstrahlung produit par les électrons rapides accélérés dans le plasma par le mécanisme de sillage est beaucoup moins intense. Les faisceaux d'électrons générés durant l'interaction⁴² (charge de 1 nCb) ne peuvent contribuer qu'à hauteur de 10^6 photons, distribués sur une gamme spectrale allant jusqu'au MeV.

Les simulations présentées dans la Figure B-19 pour nos conditions d'interaction mettent clairement en évidence que la divergence du faisceau X, le domaine spectral et le nombre de photons observés sont en accord avec les prédictions théoriques du rayonnement Bétatron. Les électrons effectuent de l'ordre de 5 oscillations bétatroniques d'amplitudes $r_0 = 5 \mu\text{m}$ dans un canal ionique faisant office d'onduleur plasma de paramètre de force équivalent $K = 30$.

La Figure B-20 présente l'intensité du rayonnement X en fonction de la densité électronique du plasma. Contrairement à l'expérience X-Larmor (chapitre B.4), un pic d'intensité est obtenu à une densité électronique de $5 \pm 1 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Cette évolution est bien reproduite par les simulations numériques. Le signal chute rapidement pour des densités plus faibles

principalement parce que le nombre d'électrons piégés dans le canal ionique est trop bas. Cette situation est d'ailleurs bien confirmée durant les expériences pour lesquelles aucun électron ne peut alors être détecté. Pour des densités électroniques plus élevées, la période plasma s'éloigne de la résonance avec la durée de l'impulsion laser, ce qui provoque une nouvelle chute du signal.

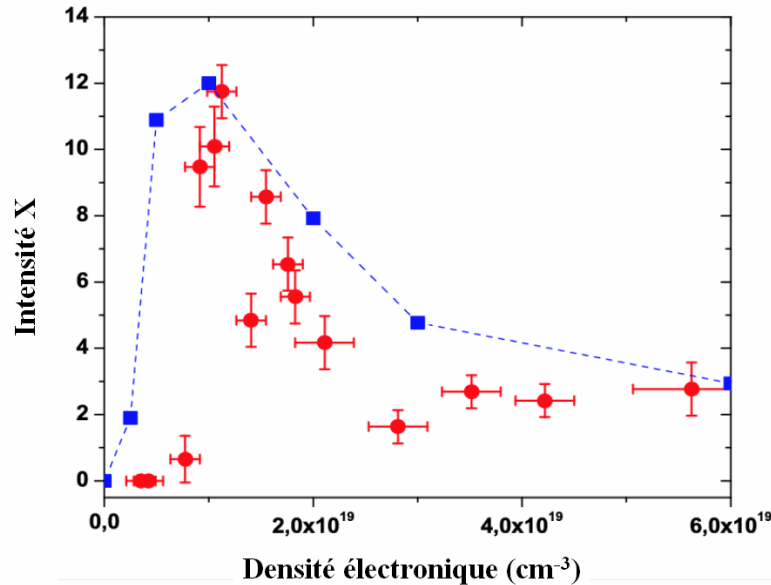


Figure B-20 : Evolution de l'intensité du rayonnement X en fonction de la densité électronique du plasma. La courbe en pointillé correspond aux résultats obtenus par les simulations numériques 3D PIC du rayonnement X-Bétatron avec les mêmes paramètres que les expériences.

B.5.4. Conclusion sur la source X-Bétatron

Cette nouvelle source obtenue à partir de l'interaction laser-plasma en régime relativiste offre des propriétés uniques : un faisceau collimaté de rayonnement X dans le domaine spectral du keV est obtenu pour la première fois à partir de l'interaction laser-matière ; son spectre est large, et sa durée d'impulsion est du même ordre de grandeur que la durée du paquet d'électrons se propageant dans le canal ionique (< 30 fs, à vérifier expérimentalement).

La taille de la source X, 20 μm x 20 μm , a été mesurée à l'aide de la méthode du couteau dans le plan perpendiculaire à l'axe de propagation du laser en utilisant les bords de la grille de Nickel. La brillance spectrale moyenne est de $5 \cdot 10^6$ ph/s/mm²/mrad²/0.1%BW et la brillance crête de $2 \cdot 10^{22}$ ph/s/mm²/mrad²/0.1%BW. Le flux X peut être accru en augmentant la longueur de propagation du paquet d'électrons dans le canal ionique, et donc le nombre d'oscillations bétatroniques. Dans l'expérience présente, les simulations montrent que le canal ionique subsiste uniquement sur 1 mm des 3 mm du jet de gaz. L'énergie du rayonnement X peut être étendue vers les plus courtes longueurs d'onde en augmentant le paramètre de force K de l'onduleur plasma. L'utilisation d'énergies laser plus élevées et d'électrons plus énergétiques est nécessaire dans ce but.

De même que chaque source produite par laser, elle est parfaitement synchronisée avec le système laser pour effectuer des expériences de type pompe-sonde, telles que les applications pionnières réalisées en « science X ultrarapide » par

diffraction X résolue en temps qui seront présentées aux chapitre C.2.2 et D.2.2. La polychromaticité et le flux X obtenu, $5 \cdot 10^6$ ph/tir/0.1%BW, rend également accessible la réalisation des premières expériences d'absorption X du type EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Spectroscopy) avec une résolution temporelle femtoseconde.

B.6. Conclusions et perspectives sur les sources X

Les deux points les plus marquants du développement effectué sur les sources X laser-plasma sont les suivants. Dans un premier temps, l'augmentation du flux X de la source X- K_α a été possible grâce à une maîtrise complète de la physique de l'interaction laser-solide pour des intensités de l'ordre de 10^{17} W/cm², et a permis de rendre cette source utilisable pour commencer les applications de diffraction X ultrarapide comme cela sera présenté au chapitre suivant.

Dans un second temps, il a été montré que la physique de l'interaction laser-matière en régime relativiste, c'est-à-dire pour des intensités supérieures à 10^{18} W/cm², permet de produire du rayonnement collimaté dans le domaine spectral du keV.

Ce résultat ouvre une nouvelle voie pour la production de rayonnement X par laser. En effet, trois types de source laser-plasma existaient jusqu'à présent. Elles ont été mis en évidence il y a une dizaine d'années. La génération d'harmonique d'ordre élevé dans les gaz⁴³ ou les solides⁴⁴ ainsi que le rayonnement laser XUV⁴⁵ permettent de produire du rayonnement collimaté. Cependant, ces sources sont limitées au domaine spectral VUV et XUV (<1 keV). Le rayonnement obtenu à partir de l'interaction laser-solide, et issu du plasma thermique ou bien des électrons rapides (source K_α), permet quant à lui d'atteindre le domaine spectral du keV, mais il est totalement divergent. Un nouveau concept a du ainsi être utilisé pour produire un faisceau X collimaté : l'interaction laser-faisceau d'électrons dans un plasma en régime relativiste. Ce type de source permet de combiner les caractéristiques du rayonnement synchrotron avec une durée ultrabrève. Cette particularité la rend très attractive car elle permet de compléter efficacement la source K_α et la technique de diffraction X femtoseconde par la possibilité de réaliser pour la première fois des études d'absorption X résolue en temps à l'échelle femtoseconde.

La Figure B-21 et la Figure B-22 présentent le flux (pour 1 tir) et la brillance moyenne des sources X- K_α et Betatron comparés aux sources existantes ou en projet dans le domaine spectral au dessus de 1 keV. Nous pouvons observer que le nombre de photons produits par interaction laser plasma reste faible par rapport aux sources dites de « 4^{ème} génération » issues de la communauté des accélérateurs tels que le laser à électron libre et les accélérateurs linéaires à récupération d'énergie. La production des premiers photons dans le domaine X avec ce type de source n'est par contre attendue que dans une dizaine d'année. Des verrous technologiques non résolus actuellement doivent être outrepassés telle que par exemple la production de faisceaux d'électrons (au stade du photo-injecteur) de très faible émittance.

Nous pouvons remarquer que la source X- K_α et Bétatron sont tout à fait compétitives avec les sources actuelles du type accélérateur. L'amélioration de l'optique X de collection dans le cas de la source K_α va nous permettre de réduire l'écart avec la source SPPS de Stanford. On peut remarquer que les très faibles divergences (μ rad) des sources issues des électrons de très haute énergie (20 GeV) rend leur brillance très élevée. Une meilleure maîtrise de l'interaction bétatronique pour la source Bétatron (augmentation de l'énergie laser notamment), doit nous permettre de gagner plusieurs ordres de grandeurs en flux et en brillance comme cela est présenté sur les figures (Projet PIXEL).

Enfin, il faut également rappeler que ces sources X femtosecondes plasma sont actuellement les seules utilisables pour les applications dans ce régime temporel ultrabref (c'est-à-dire sans défaut de « jitter » et/ou de synchronisation (picoseconde) entre le rayonnement X et le laser utilisé pour exciter l'échantillon).

Des faisceaux de rayonnement X ultrabref plus énergétiques (plusieurs dizaines de keV) sont actuellement en cours de réalisation au LOA. Nous proposons d'utiliser la diffusion Thomson entre un paquet d'électrons et un faisceau laser intense. Cette technique est bien connue dans le domaine des accélérateurs pour lequel le paquet d'électrons est issu des modules d'accélération Radio Fréquence. Une alternative séduisante est ici de tirer profit des paquets d'électrons ultrabrefs et intenses produits durant l'interaction laser matière. Un même système laser peut dans ce cas être utilisé pour générer à la fois le faisceau d'électrons et le faisceau X par diffusion Thomson. Ce type de source n'a jamais été démontré jusqu'à maintenant.

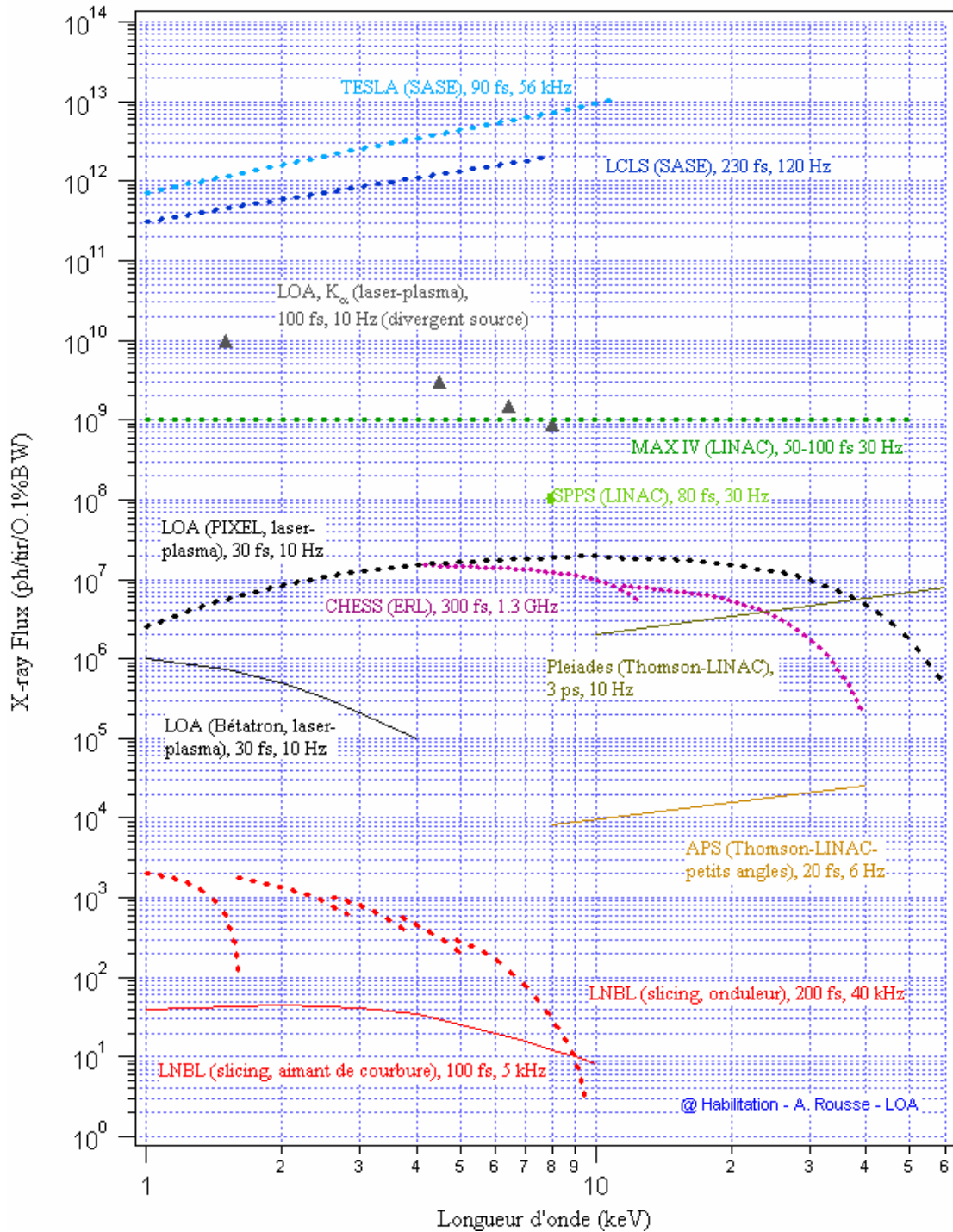


Figure B-21 : Flux des différentes sources ultrabrèves actuelles ou futures dans le domaine spectral supérieur au keV. La durée de l'impulsion et la cadence de répétition sont notées pour chacune des sources. TESLA⁴⁶ : projet (2015) de laser à électron libre dans le domaine du rayonnement X à DESY (Hambourg, Allemagne). LCLS⁴⁷ : projet (2010) de laser à électron libre dans le domaine du rayonnement X à SLAC (Stanford, USA). CHESSE⁴⁸ : projet de LINAC à récupération d'énergie à Cornell (USA). SPPS et MAX IV: source LINAC ultrabref associé à un onduleur en cours de réalisation à SLAC (Stanford, USA) et en projet à Lund (Suède). Les premières expériences résolues en temps (au moins picoseconde) devraient commencer durant l'année 2004. Slicing : source basée sur le « découpage laser » d'un micro paquet d'électrons issu du faisceau d'électrons circulant dans un synchrotron de troisième génération à LBNL (Berkeley, USA). Pléiades : source basée sur la diffusion Thomson d'un laser femtoseconde avec un LINAC de durée de quelques picosecondes. En pointillé sont notées les sources en projet.

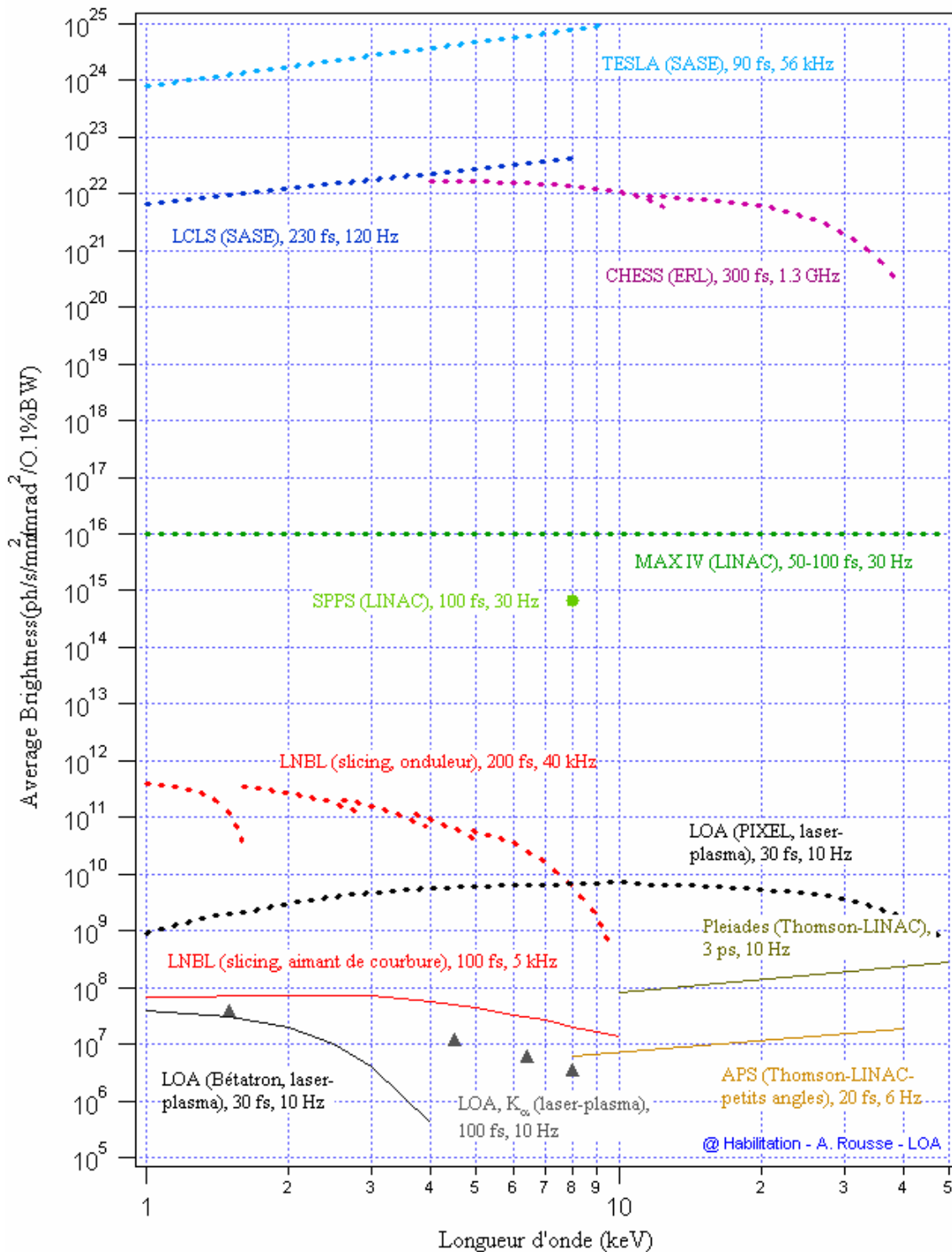


Figure B-22 : Brillance moyenne des différentes sources ultrabrèves actuelles ou futures dans le domaine spectral supérieur au keV. La durée de l'impulsion et la cadence de répétition sont notées pour chacune des sources. TESLA : projet (2015) de laser à électron libre dans le domaine du rayonnement X à DESY (Hambourg, Allemagne). LCLS : projet (2010) de laser à électron libre dans le domaine du rayonnement X à SLAC (Stanford, USA). CHES : projet de LINAC à récupération d'énergie à Cornell (USA). SPPS et MAX IV : source LINAC ultrabref associé à un onduleur en cours de réalisation à SLAC (Stanford, USA) et en projet à Lund (Suède). Les premières expériences résolues en temps (au moins picoseconde) devraient commencer durant l'année 2004. Slicing : source basée sur le « découpage laser » d'un micro-paquet d'électrons issu du faisceau d'électrons circulant dans un synchrotron de troisième génération à LBNL (Berkeley, USA). Pleiades : source basée sur la diffusion Thomson d'un laser femtoseconde avec un LINAC de durée de quelques picosecondes. En pointillé sont notées les sources en projet.

-
- ¹ Wiik, B. H., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A* **398**, 1 (1997)
- ² M. Cornacchia et al., *SLAC-PUB-8950, LCLS-TN-01-7* (August 2001)
- ³ Schoenlein et al, *Science* **274**, 236 (1996)
- ⁴ http://pbpl.physics.ucla.edu/Literature/_library/brown_2003_0531.pdf
- ⁵ <http://lux.lbl.gov>
- ⁶ <http://www.lure.u-psud.fr/congres/femto/>
- ⁷ A. Rousse et al., *Phys. Rev. E* **50**, 2200 (1994)
- ⁸ S. Bastiani et al, *Phys. Rev. E* **56**, 7179 (1997)
- ⁹ C. Rischel, A. Rousse et al., *Nature* **390**, 490 (1997)
- ¹⁰ K. Ta Phuoc, A. Rousse et al., *Phys. Rev. Lett.* **91**, 195001-1 (2003).
- ¹¹ A. Rousse, K. Ta Phuoc et al, *Phys. Rev. Lett.* (septembre 2004)
- ¹² M. Murnane et al., *Science* **251**, 531 (1991).
- ¹³ J. C. Kieffer et al., *Phys. Fluids B* **5**, 2676 (1993).
- ¹⁴ S. Bastiani, *Thèse Ecole Polytechnique* (1997)
- ¹⁵ A. Rousse et al., *Rev. Mod. Phys.* **73**, 17 (2001)
- ¹⁶ P.V. Nickles et al, *Quantum electronics.* **29** (5) , 444(1999)
- ¹⁷ M.Schnürer, R. Nolte, A. Rousse et al, *Phys. Rev. E* **61** (4), 4394 (2000)
- ¹⁸ E. Nolte R. , R. Behrens R. , Schnürer M. , A. Rousse et al., *Radiat. prot. dosim.* **84** (1-4), 367 (1999)
- ¹⁹ <http://www.slac.stanford.edu/egs/>
- ²⁰ J.D. Kmetec et al, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1527 (1992)
- ²¹ E.J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics* (John Wiley and Sons, Inc, New York, 1998 (3rd ed.)).
- ²² E.Y. Ueshima et al., *Laser and Particle Beams* **17**, 45 (1999).
- ²³ K. Lee et al., *Phys. Rev. E*, **67** 026502 (2003)
- ²⁴ E. S. Sarachik, G. T. Shappert, *Phys. Rev. D* **1**, 2738 (1970).
- ²⁵ E. Esarey, S. K. Ride, P. Sprangle, *Phys. Rev. E* **48**, 3003 (1993).
- ²⁶ Y. Salamin and F. H.M Faisal, *Phys. Rev. A* **54**, 4383 (1996)
- ²⁷ I.V. Pogorelsky et al, *Phys. Rev. ST Accel. Beams* **3**, 090702 (2000)
- ²⁸ Li et al, *Phys. Rev. Spec. Topics- Accelerators and beams* **5**, 044701 (2002)
- ²⁹ V. Malka et al, *Science* **298**, 1596 (2002)

-
- ³⁰ *idem* référence 24
- ³¹ S. Y. Chen, M. A., D. Umstadter, *Nature* **396**, 653 (1998).
- ³² S. Banerjee et al., *Phys. Plasm.* **9**(5), 2393 (2002).
- ³³ Kim. Ta Phuoc, *Thèse de l'Ecole Polytechnique* (2002).
- ³⁴ A. Pukhov and J. Meyer ter Vehn, *Appl. Phys. B.* **74**, 355 (2002).
- ³⁵ E. Esarey et al., *Phys. Rev. E.* **65**, 056505 (2002).
- ³⁶ S. Wang et al., *Phys. Rev. Lett.* **88**, 135004-1 (2002); C. Joshi et al., *Phys. of Plasmas* **9**, 1845 (2002).
- ³⁷ A. Pukhov and J. Meyer ter Vehn, *Appl. Phys. B.* **74**, 355 (2002)
- ³⁸ *idem* 37
- ³⁹ S. Kieselev, A. Pukhov, I. Kostyukov, *Phys. Plasma* **10**, 4818 (2003)
- ⁴⁰ *idem* reference 20
- ⁴¹ *Virtual Laser Plasma Laboratory PIC code.* A. Pukhov et al.
- ⁴² V. Malka et al., *Science* **298**, 1596 (2002).
- ⁴³ A. Th. Brabec and F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.*, **72**, 545 (2000).
- ⁴⁴ A. Tarasevitch et al., *Phys. Rev. A* **62**, 023816 (2000)
- ⁴⁵ H. Daido, *Rep. Prog. Phys.* **65**, 151 (2002)
- ⁴⁶ http://tesla.desy.de/new_pages/TDR_CD/PartV/fel.html
- ⁴⁷ <http://www-ssrl.slac.stanford.edu/lcls/>
- ⁴⁸ J. Arthur, *Coherent x-ray sources: synchrotron, ERL, XFEL, presented at ERL Science Workshop (Cornell University, December 2-3) (2000)*

POTENTIALITE DES SOURCES X ULTRABREVES

C. Démonstration de la potentialité des sources X ultrabrèves

C.1. Introduction

Les trois principales sources présentées au chapitre B.1 (K_{α} , Larmor, Bétatron) ont toutes pour objectif la production de rayonnement X ultrabref de quelques dizaines de femtosecondes. Cette gamme temporelle peut offrir aux communautés « utilisateurs » l'accès à un régime temporel ultime dans l'étude des changements de structures de matériaux au cours d'un processus réactionnel. Ces communautés sont très liées aux grands instruments du type « accélérateur » tels que les synchrotrons. En revanche, le domaine de la physique des plasmas créés par laser est par nature à l'écart de ce monde des applications. Afin de promouvoir les sources secondaires générées à partir de l'interaction laser-matière, de faire reconnaître leur potentialité et d'attirer les utilisateurs de divers horizons scientifiques, il a fallu réaliser des expériences de démonstration mettant en évidence l'intérêt et la complémentarité de ce nouveau type de sources.

Trois techniques principales sont généralement utilisées pour l'utilisation du rayonnement X : la diffraction X, l'absorption X et la diffusion diffuse. L'objectif du travail présenté dans ce chapitre est de démontrer que les sources X produites par laser peuvent étendre ces techniques jusqu'à une résolution temporelle de 100 fs. Le résultat le plus marquant a été la démonstration de la diffraction X femtoseconde¹ réalisée à l'aide du rayonnement X- K_{α} .

C.2. Diffraction X femtoseconde

C.2.1. Principe de la technique

Le principe de la technique de la technique de diffraction X femtoseconde est le suivant. C'est une expérience résolue en temps pour laquelle la dynamique des positions atomiques initiée par une excitation ultrabrève dans un échantillon cristallin est sondée par diffraction grâce un flashe de rayonnement X. Le processus d'excitation peut être obtenu en mixant deux solutions ou bien en changeant les conditions de l'échantillon tels que la température, le champ électrique ou la pression par exemple. Si une transition optique existe pour démarrer la réaction, une impulsion lumineuse peut également être utilisée.

La résolution temporelle de ce type d'expérience, appelée pompe-sonde², dépend de la durée de l'excitation (pompe) et de la sonde. Le mixage de liquide peut être effectué en quelques dizaines de microsecondes. Les variations de champs électriques ou de courant peuvent être obtenues en quelques ns. Des résolutions temporelles beaucoup plus courtes sont atteintes avec les impulsions pompes optiques. Le développement de la spectroscopie visible ultrarapide a ainsi suivi de près celui de la technologie laser qui permet de délivrer actuellement des impulsions inférieures à 5 fs.

Si l'impulsion pompe doit toujours être au moins aussi courte que la résolution temporelle désirée, la sonde peut quant à elle permettre une discrimination temporelle suivant deux techniques. La première est d'utiliser une impulsion sonde ultrabrève associée à un détecteur statique. La seconde est d'analyser les variations de signal grâce à un détecteur ultrarapide³, associé à une sonde quasi continue.

La

Figure C-1 présente ces deux types d'expérience pompe-sonde. Dans le cas d'une impulsion ultrabrève, le faisceau sonde suit le faisceau pompe avec un retard temporel bien déterminé. L'expérience doit être répétée autant de fois que le nombre de retards temporels nécessaires pour décrire la réaction. A chaque séquence, un instantané de l'évolution de la matière est ainsi enregistré tel un stroboscope. Ces instantanés sont ensuite rassemblés afin de reconstruire le film complet de la réaction.

Dans le cas d'un détecteur ultrarapide, l'échantillon est sondé de manière continue et le signal est résolu temporellement par le détecteur. Au contraire de la technique précédente, cela permet d'avoir accès à l'ensemble de la cinétique de la réaction en une seule séquence. Des résolutions temporelles inférieures à 1 ns peuvent être obtenues avec une caméra à balayage de fente sensible au rayonnement X. Elles atteignent 500 fs par acquisition dans le meilleur des cas. Malheureusement, la physique de ces caméras est telle que le prix à payer est une chute notoire de l'efficacité, ce qui limite sévèrement leur utilisation.

Si la dynamique de la réaction à observer est inférieure à quelques picosecondes, l'utilisation des impulsions sondes ultrabrèves est largement préférée. Dans ce cas, la synchronisation entre le faisceau pompe et la sonde doit être maintenue tout au long des séquences avec une précision inférieure à la résolution temporelle souhaitée. Les sources de rayonnement X produites par laser (K_α et Bétatron par exemple) sont issues du même système laser qui est utilisé pour exciter l'échantillon. La synchronisation est ainsi parfaite. Cette propriété remarquable explique que ces sources X aient été pionnières pour permettre l'accès aux résolutions temporelles sub-picosecondes. La source X- K_α présentée en B.2 étant bien maîtrisée, elle a été utilisée comme sonde X ultrabrève pour démontrer la technique de diffraction X femtoseconde.

C.2.2. Démonstration expérimentale

Le système expérimental⁴ est présenté dans la Figure C-2. Les expériences ont été réalisées avec le système laser de la « salle verte » du LOA délivrant des impulsions infrarouges (800 nm) de 120 fs à 10 Hz. Le faisceau laser est séparé en deux bras. Un premier faisceau de 15.5 mJ est utilisé pour générer la source de rayonnement X- K_α sur une cible solide de silicium. Le rayonnement X- K_α ($\lambda=7.13 \text{ \AA}$) est collecté dans un angle solide de $5 \cdot 10^{-3}$ stéradians par un cristal toroïdal de quartz⁵ (orientation 100). Il est focalisé sur la surface d'un film de Langmuir-Blodgett d'arachidate de cadmium qui diffracte le premier ordre de Bragg (θ_B égal à 3.7°) :

$$\text{Eq. (C-1)} \quad \lambda = 2d \sin\theta_B$$

Ce sel d'acide gras est composé de têtes polaires où les atomes de cadmium sont localisés, et d'une queue hydrophobe. Les molécules d'arachidate de cadmium sont déposées sur un substrat de verre en films successifs, avec une orientation alternée de ces têtes polaires et queues hydrophobes. Ceci place les atomes de cadmium dans des plans parallèles à la surface qui sont séparés par une distance $d=55 \text{ \AA}$. Le rayonnement X est diffracté principalement par les atomes de cadmium, avec une faible contribution de la chaîne d'acide gras. Le signal de diffraction X est enregistré grâce à une caméra CCD sensible au rayonnement X. Le film est excité par l'impulsion pompe à 800 nm contenant 7.5 mJ et focalisé sur une tache focale de $250 \mu\text{m}$ à mi-hauteur.

L'expérience permet de mesurer l'intensité X diffractée en fonction de l'angle θ (rocking curve) avant excitation ($R(\theta)$) et après excitation ($T(\theta)$). La Figure C-3 présente l'évolution du rocking curve transitoire ($R(\theta) - T(\theta)$) pour différents retards temporels suivant l'excitation. Pour les retards négatifs où le faisceau pompe excite l'échantillon après que le flash X ait sondé l'échantillon, aucun signal transitoire n'est enregistré. En revanche, une chute brutale du signal de diffraction X est observée dans les premières centaines femtosecondes suivant l'excitation. Après une picoseconde, plus aucun changement n'est obtenu sur le rocking curve dans la limite du rapport signal sur bruit de cette expérience.

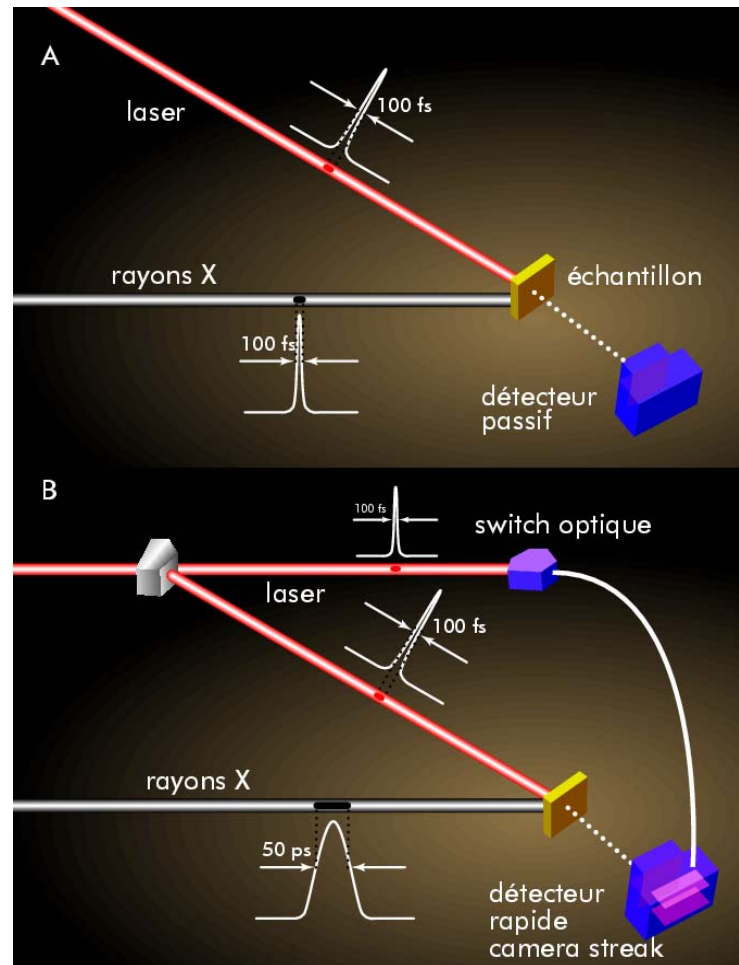


Figure C-1 : Principe des deux types d'expérience pompe sonde. Le faisceau d'excitation (pompe) excite l'échantillon. A : Un faisceau de rayonnement X issu du même système laser que le faisceau d'excitation est utilisé pour sonder la réaction. La durée du flash X est inférieure à la durée du processus à analyser. B : Un détecteur ultrarapide permet d'enregistrer les variations de signal obtenues à partir d'un faisceau X quasi continu (durée d'impulsion très supérieure à la durée du processus à analyser). (©LA RECHERCHE)

Plusieurs informations peuvent être déduites de l'évolution du rocking curve transitoire. Pour un cristal monocristallin, la largeur de ce signal est inversement proportionnel à la longueur de corrélation sur laquelle les couches atomiques donnent une contribution similaire à l'amplitude de diffusion. Cette longueur caractéristique peut être affectée par l'absorption du rayonnement X dans l'échantillon ainsi que son extinction due à la diffraction⁶. Dans le cas présent, nous avons mesuré

une longueur de corrélation égale à 1100 Å qui est principalement contrôlée par la qualité de la structure. Des expériences précédentes réalisées avec une résolution temporelle picoseconde sur des cristaux de silicium, d'or et d'arséniure de gallium chauffés par laser ont montré un élargissement significatif du rocking curve⁷. Ceci indique un chauffage inhomogène sur la profondeur de pénétration du rayonnement X qui est de l'ordre de plusieurs micromètres dans ces expériences. Dans certains cas, un décalage angulaire du pic de Bragg est observé, indiquant une modification de la distance inter-atomique (d) suite à la génération de phonons acoustiques et d'onde de compression/dilatation se propageant de la surface vers l'intérieur du matériau. Ces effets ne sont pas visibles ici. Le film est excité de manière homogène et le signal de diffraction est rapidement éteint par le désordre atomique généré dans chacune des couches atomiques d'atomes de cadmium, et ceci avant que l'expansion ou la compression de la surface de l'échantillon ne puisse s'établir.

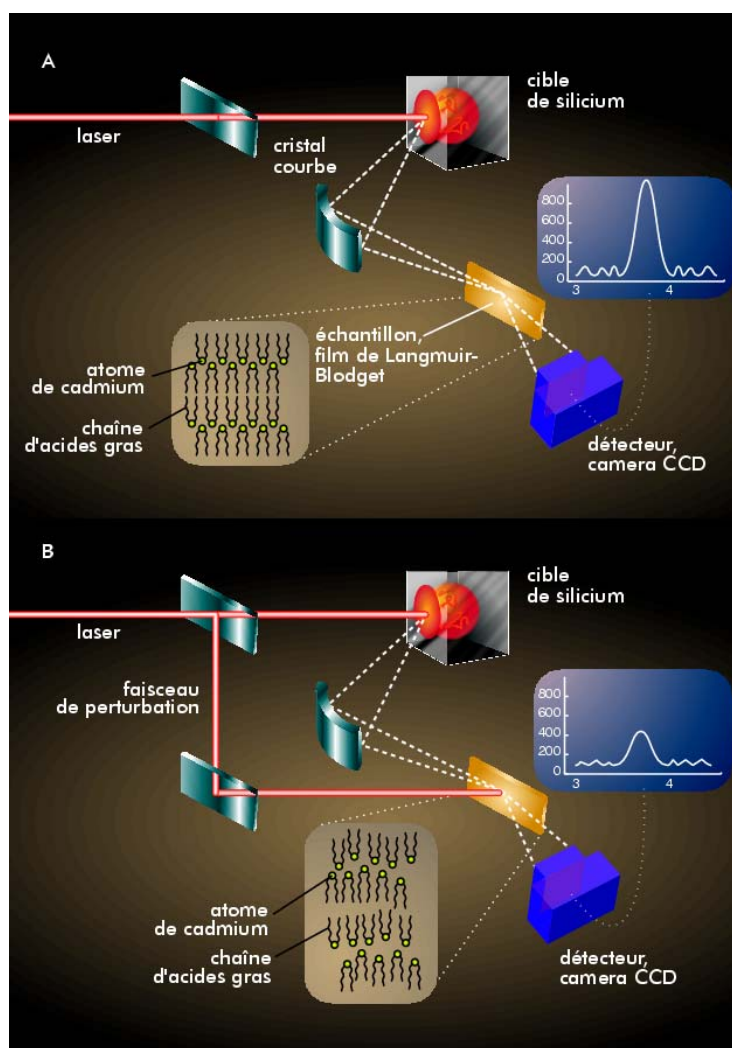


Figure C-2 : Système expérimental utilisé pour l'expérience de démonstration de la technique de diffraction X femtoseconde grâce à la source laser-plasma X-K α . A : sans faisceau d'excitation. B : avec faisceau d'excitation. (©LA RECHERCHE)

La Figure C-4 montre que le signal de diffraction X intégré angulairement chute de 75 % avec un temps caractéristique de 600 fs. Ce temps caractéristique correspond à la convolution de la réponse du matériau à l'excitation avec la durée de l'impulsion X-K α . Si l'on suit les indications des études théoriques prédisant une durée d'impulsion X de 100 fs,

l'évolution temporelle observée dans la figure correspond alors à la réponse du matériau. La chute de l'intensité X diffractée indique que les atomes de cadmium se déplacent en dehors des plans atomiques. L'écart par rapport aux positions d'équilibre produit un élargissement de la distribution électronique qui suit le mouvement des noyaux. Cette distribution électronique f peut être décrite par une gaussienne qui est fonction de la distance z à la position d'équilibre du plan d'atome de cadmium : $f(z) \propto \exp(-1/2(z/\sigma(t))^2)$ où $\sigma(t)$ est la demi-largeur de la distribution électronique. L'intensité du rayonnement X diffracté peut alors être approximée par l'Eq. (C-2) où d est la distance entre les plans atomiques de Cadmium et I_0 est l'intensité obtenue pour une distribution électronique infiniment étroite ($\sigma = 0$).

Eq. (C-2) :
$$I(t) = I_0 \exp[-(2\pi\sigma(t)/d)^2]$$

A température ambiante, la valeur de σ est 1.5 \AA et $I = 0.97 I_0$. Après l'excitation laser, on obtient $I/e = 0.37 I_0$ pour $d/2\pi = 8.8 \text{ \AA}$. La théorie de Debye-Waller⁸ décrit le processus de diffraction X sur des matériaux chauffés en utilisant une description similaire pour tenir compte de l'augmentation de l'amplitude de vibration atomique liée à l'augmentation de température. Dans notre expérience, l'échantillon est chauffé bien au dessus du seuil de fusion et les atomes de cadmium se déplacent loin leur position initiale. L'élargissement de la distribution spatiale électronique produit ici un effet comparable conduisant à la baisse de la réflectivité X du film de Langmuir-Blodgett.

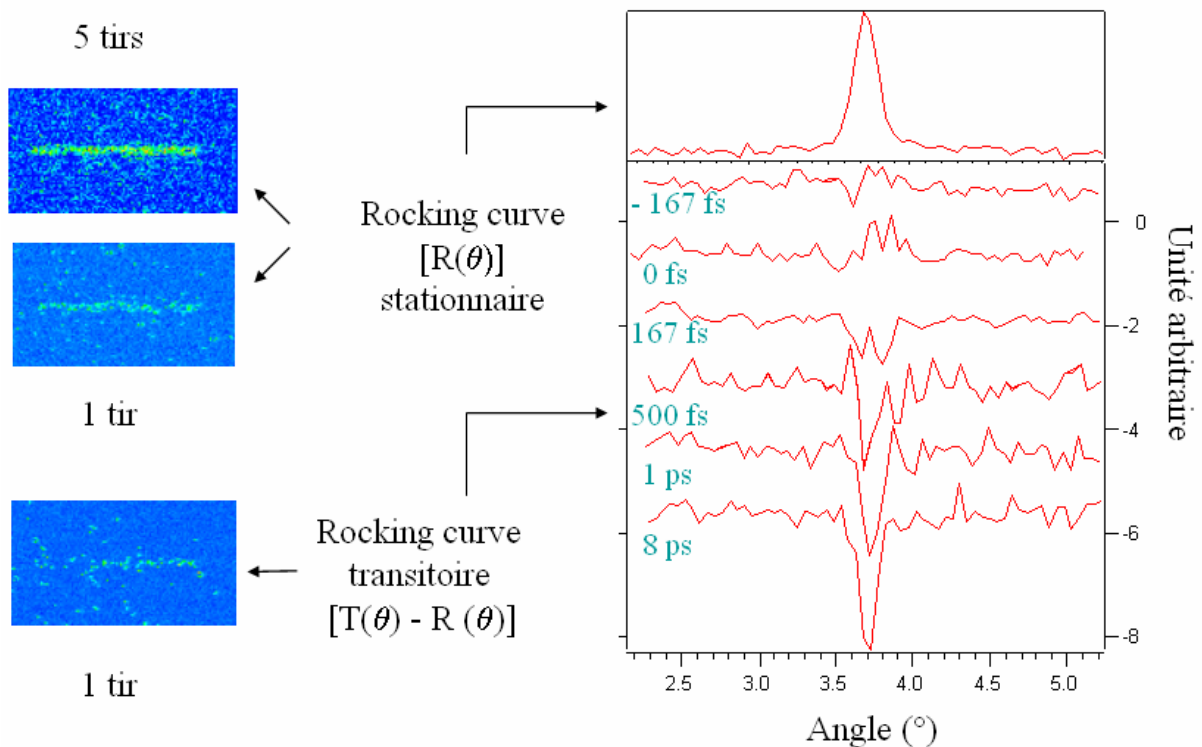


Figure C-3 : Evolution du signal de diffraction X avant et après excitation par une impulsion laser de 120 fs.

Le processus physique qui est à l'origine de la destruction de la structure des films de Langmuir-Blodgett est difficile à déterminer. Un effet thermique du type Debye-Waller suite à l'augmentation de température du réseau jusqu'à la température de fusion ne peut produire qu'une diminution du signal X de 20 %, ce qui est très inférieur aux observations expérimentales. Un autre processus est à l'origine de la destruction de la structure. En régime sub-picoseconde, le dépôt

d'énergie laser dans les matériaux diélectriques est dominé par l'ionisation multi photonique. Il est suivi par un effet d'avalanche due aux collisions électroniques jusqu'à ce que la densité électronique critique n_c soit atteinte au seuil de claquage du matériau. Aux intensités laser utilisées dans les expériences, les taux d'ionisations multi photoniques pour les atomes de cadmium, d'oxygène et de carbone prédisent un degré d'ionisation égal à 1 pendant le temps de montée de l'impulsion laser, et le chauffage collisionnel électronique intervient bien avant que l'énergie ne soit transférée au réseau. Une large fraction des liaisons covalentes est cassée et les atomes se retrouvent loin de l'équilibre sur la surface d'énergie potentielle perturbée. Dans ces conditions, l'énergie électronique peut se coupler de manière très efficace au réseau, provoquant une « explosion coulombienne » des atomes de cadmium et la destruction du signal de diffraction. Une estimation simple du temps requis pour élargir la distribution électronique dans ces conditions est $d/(2\pi v) = 300$ fs, où $v = 28 \text{ \AA ps}^{-1}$ est la vitesse moyenne des atomes de cadmium à 5 eV. Ce temps caractéristique est en bon accord avec les résultats expérimentaux.

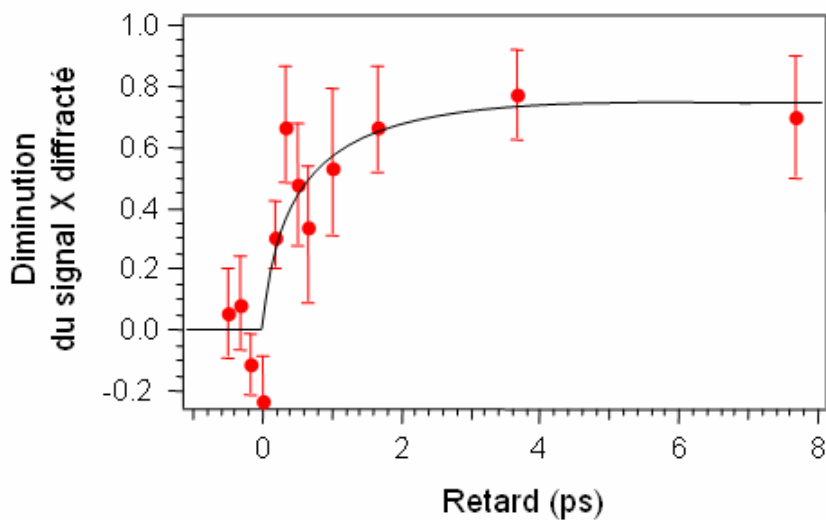


Figure C-4 : Diminution du signal de diffraction X $(-\Sigma_{\theta} [T(\theta) - R(\theta)]R(\theta) / \Sigma_{\theta} R(\theta)^2)$ en fonction du retard suivant l'excitation laser. Les valeurs sont normalisées à la valeur obtenue après destruction de la surface du film. La valeur 1.0 correspond au signal mesuré après un retard infini (quelques minutes) suivant l'excitation laser.

Les résultats obtenus durant cette expérience diffèrent notablement du type d'information obtenue dans les autres études de diffraction X ultrarapides effectuées à cette période. Ces dernières étaient réalisées avec des résolutions temporelles beaucoup plus longues et ont mis en évidence les effets thermiques telles que l'expansion du réseau cristallin après un chauffage laser ou la propagation d'une onde de compression/dilatation dans le volume du matériau suite aux contraintes générées à la surface. Ces effets thermiques ont été mis en évidence par le décalage et l'élargissement angulaire du rocking curve. Dans le cas présent, la chute de l'intensité X diffractée, sans modification angulaire du rocking curve, est cette fois-ci la signature d'un processus qui n'est pas d'origine thermique.

C.2.3. Conclusion

Cette expérience a été pionnière dans le domaine des sources de rayonnement X et des applications portant sur les études de dynamique structurale. Elle a montré que des mouvements atomiques simples pouvaient être diagnostiqués par diffraction X résolue en temps dans la gamme temporelle femtoseconde, ce qui représente un gain de plusieurs ordres de

grandeurs pour la résolution de ce type d'expériences. Cette technique s'est ensuite largement disséminée dans d'autres laboratoires afin de réaliser des expériences d'application en physique du solide^{9,10,11,12,13,14,15}.

Un second enseignement concerne le type d'applications « réalisables ». Le nombre de photons X femtosecondes focalisés sur l'échantillon reste très limité (3000 à 40000 en fonction de la longueur d'onde du rayonnement X par tir laser). D'autre part, la stabilité tir à tir du flux X est très faible, de l'ordre de 10% à 30 %. Des temps d'accumulation importants sont ainsi nécessaires pour obtenir un rapport signal sur bruit satisfaisant. A ce stade du développement, les applications ne pourront concerner que les matériaux solides présentant un fort pouvoir diffractant, c'est-à-dire les matériaux cristallins de petites mailles élémentaires et/ou constitués d'atomes de numéro atomique élevé. Les expériences de chimie en phase gazeuse ou liquide aussi bien que les études de cristallographie de protéines resteront hors de portée à ce stade du développement.

C.3. Cristallographie X femtoseconde

La démonstration de la technique de diffraction X femtoseconde (page C-55) ainsi que les premières expériences d'application, comme l'étude la fusion non-thermique d'un semiconducteur (chapitre D.2) ou l'observation de la dynamique ultrarapide des phonons optiques (chapitre D.3), ont été réalisées en suivant l'évolution d'un seul pic de diffraction de Bragg. De telles expériences permettent d'avoir accès à un seul paramètre de maille du système cristallin, ce qui limite sévèrement l'analyse structurale. L'étude de matériaux plus complexes nécessite par exemple la collection simultanée de plusieurs milliers à plusieurs dizaines de milliers de taches de Bragg. La réalisation d'une véritable expérience de cristallographie femtoseconde avec les sources X produites par l'interaction laser-plasma passe par une démonstration préalable de ces capacités à produire de tels clichés de diffraction.

C.3.1. Géométrie pour sources X divergentes

La détection de simultanée de plusieurs taches de diffraction de Bragg dans une expérience de diffraction X est généralement effectuée à l'aide d'un faisceau X polychromatique et collimaté qui permet d'obtenir des clichés de Laué. Les différents plans atomiques satisfaisant la relation de Bragg (Eq. (C-1)) sont sondés grâce à la polychromaticité du faisceau incident. La source X-bétatron présentée au chapitre B.5 peut être utilisée dans cette géométrie de façon analogue au faisceau d'un synchrotron. La source X-K α est en revanche monochromatique et divergente. La divergence de la source doit alors être mise à profit pour atteindre les différents plans de Bragg d'un échantillon cristallin¹⁶.

La différence entre ces deux géométries pour explorer les plans atomiques est présentée dans la Figure C-5 et la Figure C-6. Si s_0 et s sont respectivement les vecteurs d'onde incident et diffracté du faisceau X, la relation de Bragg (Eq. (C-1)) est obtenue à partir de l'équation de Laué qui traduit la conservation des vecteurs d'onde $\mathbf{s} - \mathbf{s}_0 = \mathbf{G}$ où \mathbf{G} est le vecteur d'onde associé au réseau réciproque (espace des vecteurs d'onde) du système cristallin¹⁷. Dans cet espace réciproque, les réflexions sont représentées par des points de coordonnées données par les indices de Miller (hkl). Pour un vecteur d'onde incident du rayonnement X (longueur d'onde λ), une réflexion est autorisée si et seulement si la coordonnée correspondante tombe sur une sphère, appelée sphère d'Ewald, de rayon $r = 1/\lambda$, pour laquelle la relation de Bragg est satisfaite.

En utilisant cette description standard de la sphère d'Ewald pour le cas d'un faisceau polychromatique et collimaté, la région qui peut être atteinte se situe entre les deux sphères de rayons correspondant au maximum et au minimum de la gamme de longueur d'onde (Figure C-6). En revanche, le rayon de la sphère d'Ewald reste fixe dans le cas d'un faisceau monochromatique et divergent. La divergence du faisceau peut être vue comme une rotation de la sphère dans le réseau réciproque. En fonction de la divergence du faisceau et de la densité de plans de diffraction dans le réseau réciproque, nous pouvons voir sur la Figure C-6 que plusieurs taches de Bragg peuvent ainsi être sélectionnées.

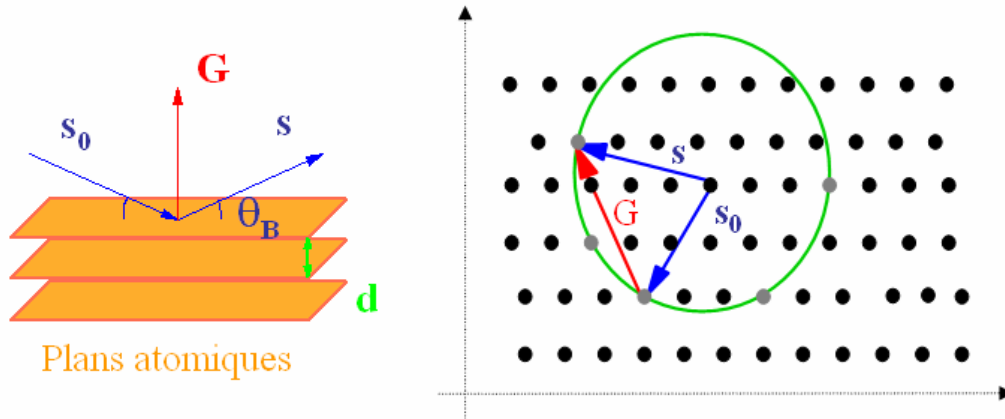


Figure C-5 : Description de la diffraction dans l'espace réciproque. La sphère d'Ewald (vert) est obtenue à partir de la relation de Laue ($s - s_0 = G$). s_0 et s sont les vecteurs d'onde incident et diffracté par le réseau cristallin représenté par le vecteur G . Les plans atomiques dans l'espace réciproque sont représentés par leur indice de Miller. Les plans pouvant être sondés par diffraction sont obtenus par intersection avec la sphère d'Ewald.

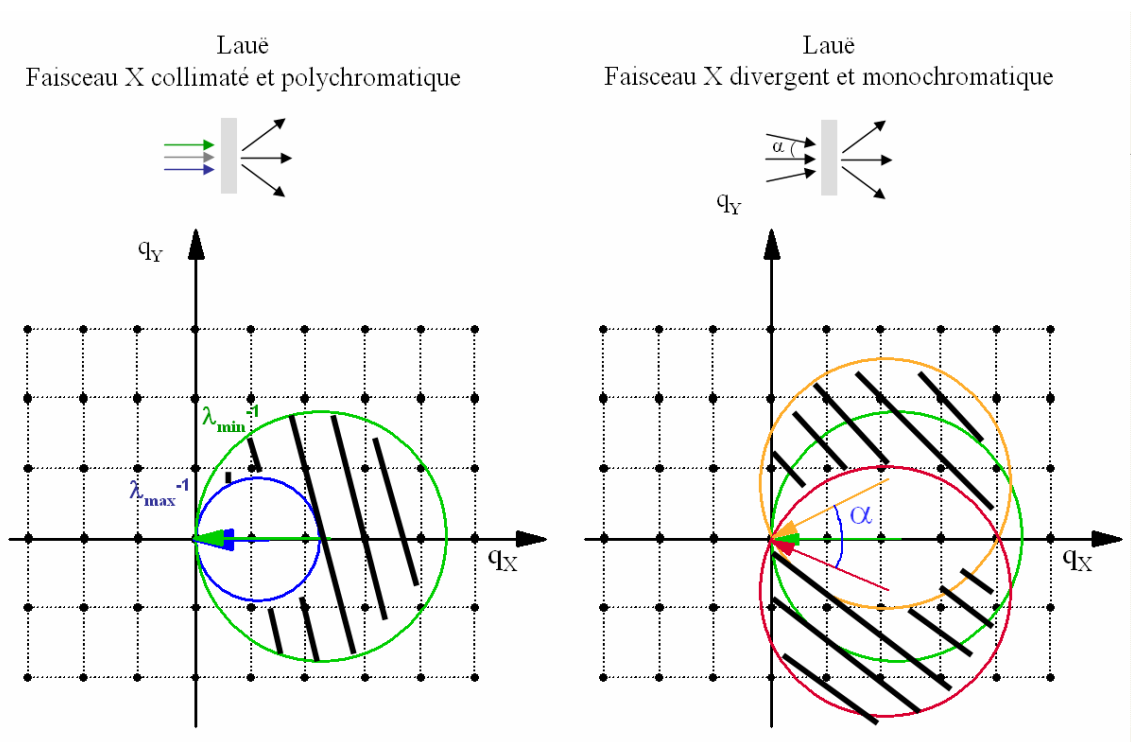


Figure C-6 : Exploration du réseau réciproque en utilisant un faisceau de rayonnement X collimaté et polychromatique, ou divergent et monochromatique. La zone hachurée correspond à la région du réseau réciproque (plans (hkl)) accessible par chacune des deux méthodes.

C.3.2. Réalisation expérimentale

La Figure C-7 présente le système expérimental. Nous avons utilisé la chaîne laser Ti:Sa de la « salle verte » du LOA délivrant des impulsions de 120 fs et 25 mJ à une cadence de répétition de 10 Hz. Le faisceau est focalisé sur un fil déroulant de fer préalablement aplati afin d'obtenir une surface plane lors de l'interaction laser-cible et préserver l'efficacité de conversion en rayonnement X- K_{α} ($\lambda = 1.94 \text{ \AA}$). Ce système de fil déroulant nous permet d'exposer une surface non détruite à chaque tir laser et d'obtenir des temps d'accumulation de plusieurs heures à 10 Hz sans changer de cible. Le rayonnement X- K_{α} , dont les caractéristiques peuvent être trouvées au chapitre B.2.1, est collecté et focalisé sur l'échantillon par un cristal toroïdal de quartz. Le cristal est orienté suivant les plans (10.0) et nous avons utilisé la réflexion (40.0) pour sélectionner le rayonnement X- K_{α} issu du plasma ($\Delta\lambda/\lambda = 10^{-4}$). Dans cette expérience, l'angle solide couvert par cette optique X est de $3.5 \cdot 10^{-3}$ str. La tache focale X sur l'échantillon est de $50 \mu\text{m}$ et contient $4 \cdot 10^3$ photons par tir.

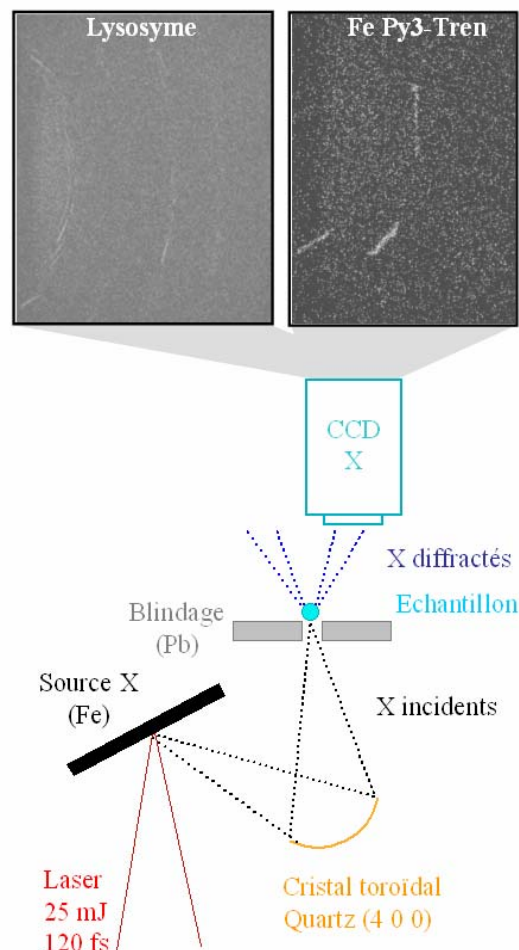


Figure C-7 : Test expérimental de la géométrie de diffraction permettant d'avoir accès à plusieurs taches de Bragg simultanément avec la source X- K_{α} ultrabrève.

Nous avons utilisé des échantillons de Lysozyme et de Fe-Py₃(tren) placés dans le plan focal de l'optique X. Les dimensions du cristal de protéine sont de $0.5 \times 0.3 \times 0.2 \text{ mm}^3$ et $0.5 \times 0.5 \times 0.2 \text{ mm}^3$ pour le cristal moléculaire. Les

clichés de diffraction sont enregistrés grâce à une caméra CCD sensible au rayonnement X et refroidie à -40° afin de limiter le bruit intrinsèque du détecteur durant les séquences d'acquisition. La dimension des pixels est de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$. Le détecteur est placé à 2 cm derrière l'échantillon, et décalé latéralement pour s'affranchir du faisceau X principal dont une partie n'est pas diffractée.

La Figure C-7 présente les clichés obtenus pour les deux échantillons¹⁸. Le profil des taches de diffraction en forme de section d'arc de cercle est lié à la divergence du faisceau X qui s'étend dans le plan parallèle à la normale aux plans atomiques diffractants. L'image pour le Fe-Py₃(tren) a été obtenue après une accumulation de 500 s à 10 Hz. L'acquisition est partagée en séquences de 20 secondes après lesquelles un filtrage de l'image CCD est effectué en identifiant les photons X-K_α et en éliminant le bruit résiduel. La principale limitation du temps d'accumulation est le bruit généré par les électrons énergétiques produits par le plasma de la source X. On peut observer que le cristal de Lysozyme produit un nombre plus élevé de taches de Bragg car la maille élémentaire est plus grande que celle du cristal moléculaire. Un temps d'accumulation de 10 heures a été nécessaire pour cet échantillon. Le rapport signal sur bruit est faible (5) et rend impossible la réalisation d'une expérience résolue en temps à l'échelle femtoseconde dans ce cas pour lesquels des variations d'intensité de quelques pourcents devront être analysées.

C.3.3. *Conclusion*

Cette étude montre que la source de rayonnement X-K_α est capable, malgré sa monochromaticité, de donner accès à l'enregistrement simultané de plusieurs pics de diffraction de Bragg au cours d'une expérience de diffraction X femtoseconde. La divergence naturelle de cette source est ici utilisée comme point fort, permettant de sonder la dynamique atomique à partir de l'évolution de plusieurs plans (hkl) du réseau réciproque. Le flux de la source ne permettra pas de résoudre des structures grâce à cette technique. Elle trouvera plutôt son intérêt dans l'étude d'échantillons dont les structures initiales et finales sont connues, avec la possibilité de zoomer sur quelques pics de Bragg transitoires dont l'évolution temporelle a été mise en évidence grâce à des simulations numériques réalisées préalablement.

C.4. *Conclusions et perspectives*

La démonstration de la technique de diffraction X femtoseconde à l'aide de la source laser-plasma X-K_α a permis d'étendre la technique de diffraction X à des résolutions temporelles de 100 fs. Cette technique a été ensuite utilisée au LOA (voir chapitre D.2) mais également par d'autres laboratoires pour l'appliquer à l'étude de la dynamique atomique femtoseconde et picoseconde en physique du solide plus particulièrement.

L'objectif est maintenant de rendre utilisable cette technique par une communauté d'utilisateurs élargie, c'est-à-dire de développer une véritable ligne de lumière de diffraction X femtoseconde. Ce projet est en cours de réalisation au LOA, notamment grâce au projet RTD européen FAMTO et au projet franco-japonais ERATO. Outre un environnement scientifique dédié, les points forts de cette installation seront :

- un flux X moyen augmenté d'un facteur 100 grâce à l'utilisation du nouveau système kHz du LOA

- un goniomètre 4 axes avec tube à rayons X classique permettant d'aligner et orienter les échantillons sur site, sans utilisation de la source X femtoseconde.
- une optique de rayonnement X ayant deux fonctions : optimisation de l'angle solide de collection des photons X- K_α qui sont émis dans tout l'angle solide ; recollimation en un faisceau de faible divergence (quelques degrés) afin d'augmenter le nombre de photons pouvant satisfaire la relation de Bragg.

Les sources X-Larmor et X-Bétatron n'en sont, quant à elle, qu'au stade de développement et de caractérisation. Les deux principaux atouts de ces deux sources sont leur polychromaticité et leur collimation. Des expériences d'absorption X résolue en temps peuvent ainsi être envisagées en tirant profit, tout comme pour la diffraction X, de leur très courte durée d'impulsion pour étendre cette technique au domaine picoseconde et femtoseconde. Des expériences sont maintenant planifiées pour caractériser expérimentalement leur durée d'impulsion.

Ces faisceaux de rayonnement X (plus particulièrement X-Bétatron et X-Diffusion Thomson linéaire) seront également testés dans le domaine du bio-médical (traitement de tumeurs), en physique des plasmas pour la radiographie et la cartographie de densité électronique par diffusion Thomson X de plasma de fusion, ainsi que l'excitation de matière dense et chaude. Ces expériences sont actuellement effectuées avec la source X- K_α dans de nombreux laboratoires. La perspective de pouvoir utiliser des faisceaux collimatés est très attractive dans ces domaines pour lesquels le nombre de photons par unité de surface est critique aussi bien au niveau de la cible que du détecteur qui peut être placé, dans certains cas, à plusieurs mètres du plasma.

¹ C. Rischel, A. Rousse et al., *Nature* **390**, 490 (1997)

² A. Rousse et al., *Rev. Modern. Phys.* **73**, 17 (2001)

³ J. Larsson et al., *Optics Letters* **22**(13): 1012 (1997)

⁴ A. Rousse, *La Recherche* **315**, 46-50. (1998)

⁵ E. Förster E., Uschmann I. et al. *SPIE proceedings* **4504**, 8 (2001).

⁶ Zachariasen W. (1994). *Theory of X-ray diffraction in crystals*, Dover Publications

⁷ *Time-resolved Diffraction*, edited by J.R. Helliwell & P.M. Rentzepis, *Oxford Series on Synchrotron Radiation 2*, Oxford Science Publications (1997).

⁸ J.J Rousseau « *crystallographie géométrique et radio-crystallographie* », éditeur : Dunod (2000)
B.E. Warren « *X-ray diffraction* » éditeur : Dover publications (1990).

⁹ C. Rose-Petruck et al, *Nature* **398**, 310 (1999)

¹⁰ C. Siders et al, *Science* **286**, 1340 (1999)

¹² K. Sokolovski-Tinten et al., *PRL* **87** 225701 (2001)

¹³ T. Feurer et al, *Physical Review E* **65**, 16412(1-4) (2001)

¹⁴ A. Cavalleri et al, *Physical Review Letters* **87**(23), 237401 (2001)

¹⁵ K. Sokolovski-Tinten et al., *Nature* **422**, 287 (2003)

¹⁶ V.W. Kossel et al, *Annalen der Physik* **23**, 677 (1935)

¹⁷ W.L. Bragg et al, *Phil. Soc. Proc.* **17** 43 (1912).

¹⁸ D. Boschetto, A. Rouse et al, *Journal of Applied Crystallography* **36**, 348 (2003)

APPLICATIONS DES SOURCES X ULTRABREVES

D. Applications des sources X ultrabrèves

D.1. Introduction

Les applications des sources X ultrabrèves sont multidisciplinaires. Le travail réalisé jusqu'à maintenant se focalise sur la science X ultrarapide pour laquelle le principal objectif est l'observation et le contrôle des structures atomiques transitoires ultrabrèves en physique du solide et en bio-chimie.

Intérêt général pour la dynamique atomique ultrarapide

Le temps caractéristique de quelques picosecondes (10^{-12} s) représente une frontière entre deux types de dynamiques réactionnelles distinctes. Les processus les plus lents qui varient de la nanoseconde à plusieurs années sont gouvernés par la diffusion des atomes et des molécules. Les états intermédiaires occupent les conformations autour du minimum local sur la surface d'énergie potentielle avec une distribution de Boltzmann¹. Le passage d'un état à un autre est déterminé par la faible probabilité d'atteindre une conformation d'un niveau d'énergie haut vers le plus proche minimum. La première démonstration directe d'un régime différent (temps caractéristique de quelques picosecondes) a été l'observation de vibrations cohérentes de molécules diatomiques et triatomiques au cours de réactions chimiques². Le même phénomène a été observé dans les protéines en solution³, pour lesquelles la relaxation vibrationnelle dans les molécules complexes est plus lente qu'il était alors admis. Ces deux résultats obtenus en biologie et en chimie sont des exemples de dynamiques réactionnelles déterministes, pour lesquelles les atomes se déplacent dans l'échantillon sur la surface d'énergie potentielle sans phénomènes diffusifs. Cette nouvelle classe de réaction donne accès aux événements les plus rapides au cours d'un processus atomique réactionnel.

Intérêt en bio-chimie

De nombreux événements biologiques fondamentaux ont lieu dans une gamme temporelle picoseconde ou femtoseconde⁴. Expérimentalement, seuls les processus pouvant être initiés par un flash lumineux peuvent être étudiés, ce qui limite sévèrement le champ d'investigation dans ce domaine. La dynamique des changements de structure ultrarapide (fs) a été étudiée -jusqu'à aujourd'hui- par des méthodes de spectroscopie optique. Deux types de processus sont principalement abordés : les isomérisations photoinduites et la dissociation des ligands dans l'hème des protéines. Une isomérisation photoinduite a lieu lorsque l'absorption d'un photon crée un état excité de la molécule qui relaxe par rotation d'un ou plusieurs atomes autour de la liaison chimique, passant de la configuration « cis » à « trans » ou inversement. Une illustration importante est le processus de la vision pour lequel l'absorption du photon initie une isomérisation rétinale dans la protéine de rhodopsine. Le même mécanisme dans la molécule de bactériorhodopsine met à disposition une pompe à proton nécessaire à la production d'ATP dans différentes bactéries. La détermination détaillée de la structure de la molécule dans l'état excité avant et pendant l'isomérisation n'a pas été effectuée.

Toutes les expériences de spectroscopie visible sur la bactériorhodopsine montrent que ces états excités se développent très vite (30 fs), et que l'isomérisation « trans-cis » ainsi induite se produit en quelques picosecondes alors que le retour à l'équilibre « cis-trans » s'effectue au bout de 10 ms. La caractérisation de l'isomère « trans-cis » est déjà étudiée par cristallographie résolue en temps avec une résolution temporelle nanoseconde⁵. En revanche, la caractérisation des états

excités est un des objectifs majeurs de la cristallographie picoseconde ou femtoseconde. L'accès au régime femtoseconde permettrait de capturer et de suivre «en direct» les structures intermédiaires durant la réaction.

De nombreuses études se concentrent sur l'« hème » qui est un groupe aromatique présent dans diverses catégories de protéines. Dans certains cas, la fonction de cet « hème » implique la liaison des molécules de O_2 , et des groupes NO ou CO qui sont appelées « ligands ». L'interaction entre l'« hème » des protéines et ces ligands a été étudiée de manière très intensive par spectroscopie visible. Un exemple important est le cas de l'hémoglobine qui assure le transport de l'oxygène dans le sang. Cette molécule est notamment formée de 4 sous unités avec 1 site de liaison oxygène dans chacune d'entre elles. Une caractéristique importante de la molécule est l'augmentation de l'affinité de 3 de ses sous unités après la capture de l' O_2 sur une première. La transmission de l'information à travers la protéine est supposée être initiée par le changement de l'« hème » d'une structure en dôme vers une structure plate, ce qui produit de larges réarrangements atomiques dans la molécule. Quand l'« hème » (avec son ligand lié) est illuminé par un flash lumineux de la bonne longueur d'onde, le ligand se dissocie. Ce processus n'est pas une spécificité naturelle de la molécule d'hémoglobine, par contre cela permet de déclencher la dissociation du ligand qui peut alors être étudiée par spectroscopie. Les résultats obtenus avec du rayonnement visible sont interprétés en supposant que la structure en dôme devient active 0.5 picosecondes après l'excitation laser. Des expériences de diffraction X avec une résolution temporelle femtoseconde permettrait de détecter les détails de la réponse de l'environnement de la protéine, et étudier de manière directe le processus dynamique au cours duquel les petits mouvements atomiques dans l'« hème » sont amplifiés en grands déplacements dans la protéine.

La Myoglobine est une autre protéine proche de l'hémoglobine qui est également largement étudiée. Sa fonction est de lier l' O_2 dans les tissus musculaires. Les expériences de spectroscopie visible et de cristallographie X nanoseconde ont permis de déterminer la réponse structurale de la protéine après la dissociation du ligand $O_2/CO/NO$. La position du groupe CO sur certains sites à l'intérieur de la protéine a pu ainsi être localisée, mais les premières étapes du déplacement après la dissociation ne pourront être obtenues que grâce à une résolution picoseconde ou femtoseconde avec le rayonnement X.

Intérêt en physique de la matière condensée

Les expériences de spectroscopie visible ont clairement mis en évidence depuis les années 1980 que des impulsions ultrabrèves peuvent déclencher une transition de phase en physique du solide et changer l'état macroscopique ou les propriétés physiques d'un matériau^{6,7}. Ces phénomènes peuvent être fortement coopératifs, c'est-à-dire que les processus de relaxation structurale des différents états excités ne sont pas indépendants et engendrent une transition de phase photoinduite vers un nouvel ordre cristallin (Figure D-1).

Les relations entre les états amorphe, liquide et cristallin représentent une classe de transition de phase dont la nature et les temps caractéristiques des réarrangements atomiques ont été privilégiés lors des premières études structurales résolues aux temps ultrabrefs^{8,9,10,11,12,13,14}. La transition de phase du type solide-liquide a fait l'objet des premières études réalisées avec les sources X ultrabrèves. Le chapitre D.2 détaille la première expérience d'application X femtoseconde qui a été réalisée sur un cristal semiconducteur d'InSb¹⁵. Elle représente un premier exemple de processus dont la durée de vie est plus courte que le temps de mise à l'équilibre thermique. Le mécanisme de la transition ne peut être décrit en terme de température, car cette description n'est valable que quelques picosecondes après l'excitation. Les mesures structurales

effectuées avec une résolution temporelle inférieure à 1 picoseconde sont ainsi particulièrement intéressantes puisque des états intermédiaires hautement réactifs pourraient être caractérisés avant que les fluctuations thermiques n'aient le temps de masquer les positions atomiques.

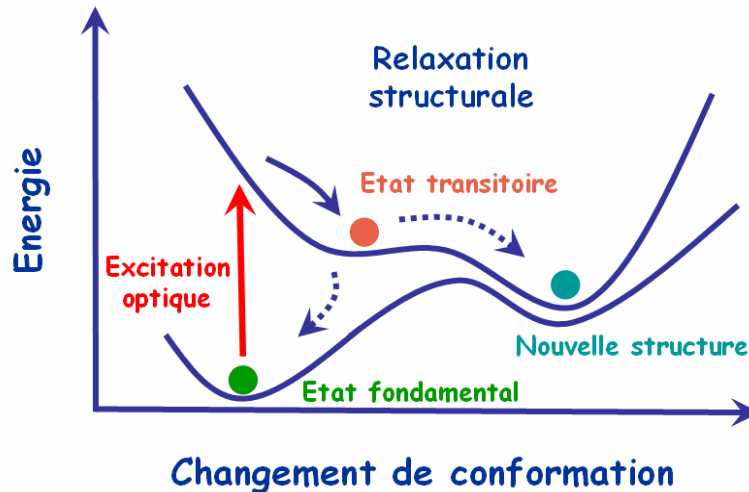


Figure D-1 : Principe de la dynamique structurale suite à une excitation par un flash laser. Les temps caractéristiques des états transitoires peuvent être aussi brefs que quelques centaines femtosecondes. La cristallographie résolue en temps avec une telle résolution temporelle permet d'avoir accès au chemin complet d'un processus réactionnel, ainsi qu'aux effets précurseurs des transitions de phases macroscopiques.

Les pérovskites tel que le KNbO_3 sont des matériaux qui effectuent une séquence de transitions entre les phases rhomboédrique, orthorhombique et cubique lorsqu'ils sont chauffés. Ces cristaux deviennent ferroélectriques à la température de transition (température de Curie) à laquelle le champ électrique local induit par la polarisation augmente plus rapidement que le recul élastique des atomes. Cette situation induit un déplacement atomique asymétrique et l'apparition soudaine de la ferroélectricité dans la phase cubique. La spectroscopie Raman a permis de mettre en évidence le temps caractéristique de cette transition qui doit être dans la gamme temporelle inférieure à une picoseconde¹⁶. En revanche, le chemin microscopique au long duquel les atomes se déplacent dans le réseau reste à déterminer. La spectroscopie Raman ne permet notamment pas de trancher entre le type de transition : displacive ou ordre-désordre. Une transition ordre-désordre est définie par plusieurs minima dans la surface d'énergie potentielle au sein de laquelle les atomes se déplacent par effet tunnel à la température de Curie ; alors qu'une transition displacive correspond à un décalage d'un minimum. Si un échantillon peut être excité par un flash laser ultrabref, la technique de diffraction X résolue en temps à l'échelle femtoseconde présentée au C.2 peut donner accès à une description quantitative du chemin de la transition et donner une interprétation claire de ce processus transitoire ultrabref.

Un autre exemple concerne la magnétisation et la démagnétisation de matériaux tels que Ni ou CoPt. La dynamique de spin et le couplage avec le réseau cristallin par le biais des phonons optiques sont déterminants pour la compréhension du mécanisme de la transition magnétique. Les études de spectroscopie visible ultrarapide et de spectroscopie de photoélectrons ont mis en évidence le caractère ultrabref de la dynamique réactionnelle (femtomagnétisme) et le rôle de l'excitation électronique, des changements d'état de spin et du couplage électron-phonon qui s'établit en une ou deux picosecondes. L'influence des phonons sur la dynamique de spin n'est pas comprise, et de manière plus générale, le

réarrangement atomique durant la transition ne peut être étudié de manière directe qu'avec la diffraction ou la spectroscopie X à ces échelles de temps.

L'observation de phonons optiques avec le rayonnement X représente ainsi une étape importante pour l'analyse de ce type de transition. C'est l'objet de l'étude présentée au chapitre D.3 qui représente la deuxième expérience d'application réalisée avec la technique de diffraction X femtoseconde.

Dans certains matériaux, l'existence d'une bi-stabilité moléculaire peut impliquer des changements d'identité moléculaire tels que la charge et le spin, accompagnés de réarrangements atomiques pouvant être ultrarapides. Ce type d'étude n'est pas seulement intéressant en science fondamentale mais peut également avoir des répercussions plus appliquées pour la technologie de l'enregistrement magnéto-optique par laser. Un autre exemple est le cas des matériaux à transfert de charges tel que le TTF-CA dont l'étude de la dynamique des transitions de phases est importante pour le développement de composants photo déclenchables ultrarapides. Dans ce type de composé où l'ordre atomique est déterminé par la compétition entre les états neutre et ionique, la transition photoinduite entre états macroscopiques est exacerbée. Les multicouches de séquences de molécules « donneur » et « accepteur » stimulent les transferts d'électrons de manière coopérative. Le fort couplage structural et électronique induit une multi-stabilité entre l'état fondamental neutre et deux états ioniques dégénérés et dimérisés qui correspondent à un ordre ferroélectrique lorsque la température du réseau est inférieure à 81 °K. Les études de spectroscopie optique ont mis en évidence la transformation de phase de l'état ionique vers l'état neutre et inversement. Une étude récente en diffraction X résolue en temps avec une résolution de 100 ps a permis de mettre en évidence la dynamique structurale amenant l'ordre ferroélectrique macroscopique¹⁷. En revanche, le mécanisme précurseur de cette transition n'a pas été observé ni caractérisé. Une explication avancée est un effet coopératif moléculaire unidimensionnel le long de chacune des chaînes établissant un ordre structural transitoire local après quelques centaines de femtosecondes.

Ces exemples, aussi bien en bio-chimie qu'en physique de la matière condensée, montrent que la cristallographie X femtoseconde pour laquelle un faisceau de rayonnement X ultrabref vient sonder directement les positions atomiques avec une résolution temporelle ultime, peut offrir une nouvelle compréhension des processus réactionnels en révélant leur dynamique la plus rapide.

D.2. Transition de phase solide-liquide ultrarapide

D.2.1. La fusion non-thermique

La transition de phase solide-liquide déclenchée par un flash laser femtoseconde à la surface d'un cristal semiconducteur est souvent dénommée sous le terme de fusion non-thermique, car le temps caractéristique de ce processus est inférieur au temps de relaxation thermique (quelques picosecondes) du système cristallin¹⁸. Les photons absorbés dans l'épaisseur de peau de l'échantillon excite une population d'électrons qui relaxe et se couple au réseau par l'excitation de phonons optiques (oscillation des atomes dans une maille élémentaire) puis de phonons acoustiques (vibration du réseau cristallin). Le couplage électron-phonon optique est très rapide (quelques centaines de femtosecondes) alors que le transfert de l'énergie au réseau via les phonons acoustiques nécessite plusieurs picosecondes à plusieurs dizaines de picosecondes.

Le mécanisme de fusion non thermique a été largement étudié en spectroscopie visible ultrarapide depuis les années 1980 avec l'avènement des systèmes laser femtosecondes qui permettent d'exciter l'échantillon en un temps plus court que le processus à étudier. La première mise en évidence expérimentale a été obtenue sur des échantillons de silicium pour lesquels la réflectivité du faisceau laser sonde était étudiée en fonction du retard suivant l'excitation par un premier bras du système laser¹⁹. La réflectivité caractéristique du silicium liquide est observée quelques centaines de femtosecondes après l'excitation. Ces premières expériences ont été confirmées par de nombreuses études supplémentaires sur d'autres cristaux semiconducteurs, et notamment dans l'InSb²⁰. L'utilisation de cette technique de spectroscopie visible ne permet cependant pas de confirmer de manière définitive l'existence d'un changement structural atomique. L'augmentation du coefficient de réflexion peut également être expliquée par une variation de la constante diélectrique due à la présence de la forte population d'électrons excités de la bande de valence vers la bande de conduction (10^{21} cm^{-3}), à un changement de la structure de la bande électronique dans ces conditions de forte excitation électronique (rétrécissement du « gap ») ou à la réduction du nombre d'électrons participants aux liaisons covalentes.

Afin d'isoler la contribution du changement structural atomique parmi l'ensemble de ces processus électroniques, une seconde série d'expériences a été réalisée en suivant l'évolution temporelle du signal de second harmonique généré dans l'échantillon²¹. Ce signal dépend de la susceptibilité électrique du second ordre χ^2 qui reflète la symétrie spatiale du réseau cristallin. Cette expérience est possible dans le cas du silicium car ce cristal n'est pas centro-symétrique et le signal de seconde harmonique est non nul. Les résultats obtenus montrent un élargissement de sa distribution spatiale plusieurs centaines de femtosecondes après l'excitation, renforçant ainsi l'hypothèse qu'un désordre structural est bien généré dans cette gamme temporelle. Une étude expérimentale par diffraction X résolue en temps à l'échelle femtoseconde a été suggérée à cette époque pour définitivement statuer sur l'existence d'une telle transition de phase.

Les études théoriques beaucoup plus récentes supportent cette première interprétation des expériences de spectroscopie visible. Différentes approches ont été utilisées pour décrire la réponse du réseau cristallin à l'excitation laser ultrabrève^{22,23,24,25}: calcul de l'évolution de la structure de la bande électronique en présence d'une forte excitation électronique, calcul de l'énergie de cohésion des atomes pour décrire la dynamique des distorsions du réseau, simulation moléculaire ab initio d'un groupe d'atomes, ou bien étude de l'effet d'un champ intense sur un groupe de particules par un calcul de la dynamique électron-ion à partir de l'équation de Schrödinger. Ces études montrent que des déplacements atomiques aussi élevés que 1 Å peuvent s'effectuer en quelques centaines de femtosecondes. Ces déplacements sont suffisamment importants par rapport aux distances interatomiques (3.1 Å dans le silicium) pour casser la structure du réseau cristallin.

Stampfli et ses collaborateurs²⁶ ont décrit les différentes étapes de la réaction par une diminution de la force des liaisons covalentes suite à la forte excitation électronique produite par l'excitation laser femtoseconde. Cette diminution provoque l'apparition de forces répulsives entre les atomes et d'une pression interne importante. La constante électrique de cisaillement devient négative et la fréquence des phonons acoustiques transverses devient imaginaire. L'amplitude des oscillations des atomes ainsi que les distances interatomiques augmentent, ce qui entraîne une distorsion du réseau atomique. Suite à l'interaction anharmonique des phonons transverses acoustiques TA avec les phonons optiques longitudinaux LO, ces derniers deviennent également instables. Ces instabilités provoquent une redistribution de l'énergie cinétique entre les phonons du cristal, et induisent le mécanisme de fusion ultrarapide.

Dans le cas de l'InSb, échantillon qui a été étudié ici avec la technique de diffraction X femtoseconde, Allen²⁷ a réalisé des simulations donnant l'évolution du déplacement atomique à partir du modèle de l'équation de Schrödinger. Cette technique permet de déterminer l'évolution de la structure de bande électronique et les déplacements d'un groupe d'atomes soumis à un champ électromagnétique élevé.

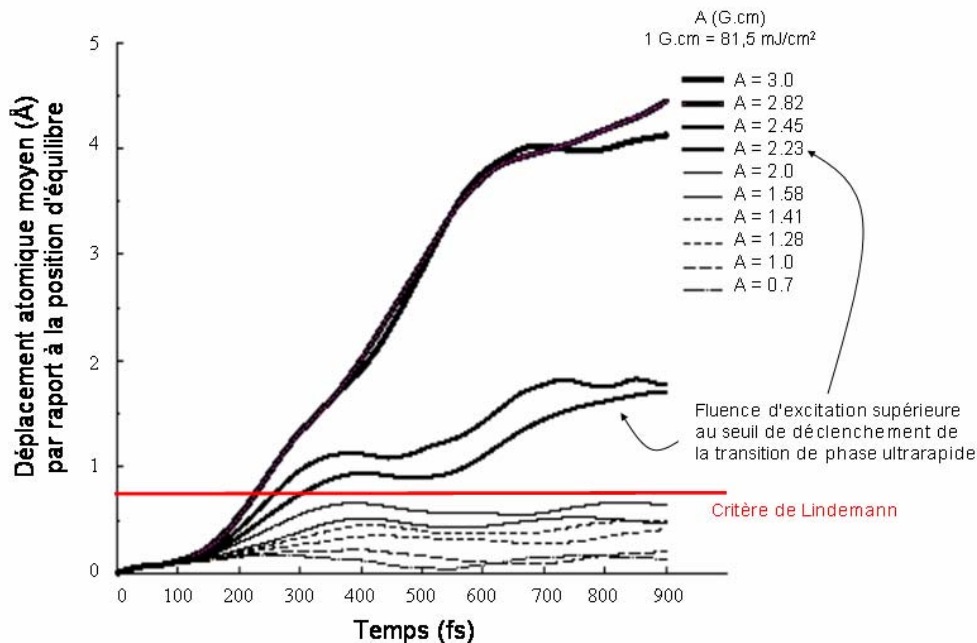


Figure D-2 : Simulations numériques du déplacement atomique suite à une excitation laser femtoseconde dans le cas du cristal semiconducteur d'InSb en fonction du temps et de la fluence d'excitation (Allen *et al*).

La Figure D-2 présente l'évolution des déplacements atomiques en fonction du temps et de la fluence d'excitation. Le seuil de la transition est obtenu pour un taux d'excitation des électrons de la bande de valence vers la bande de conduction de 20 %. Tout comme le modèle Stampfli, les déplacements atomiques provoquant la transition de phase sont de l'ordre de 1 Å en 300 fs.

D.2.2. Observation expérimentale

Les études expérimentales ont été réalisées à l'aide de la même configuration (Figure C-2) que celle utilisée pour la démonstration de la technique de diffraction X femtoseconde présentée au chapitre C.2, avec en plus la possibilité de sonder l'échantillon par spectroscopie visible simultanément à la diffraction X ultrarapide. L'échantillon est excité par un faisceau laser de 800 nm et de durée d'impulsion de 120 fs. Il est sondé avec le rayonnement X-K_α à 7.12 Å produit sur une cible de silicium. Le cristal toroïdal de quartz (100) collecte dans un angle solide de $7.4 \cdot 10^{-3}$ str et refocalise le rayonnement X sur une tache focale de 100 μm de diamètre. Des échantillons cristallins d'InSb orientés suivant les plans (111), (100) et (100) coupés de manière asymétrique ont été utilisés pour changer l'épaisseur sondée à la surface de l'échantillon en changeant l'angle d'incidence du rayonnement X tout en satisfaisant la relation de Bragg sur les plans (111)²⁸. La technique de diffraction X femtoseconde permet actuellement l'analyse d'une seule réflexion de Bragg. Les informations sur la structure sont donc limitées, mais permettent néanmoins d'être sensible à la perte de l'ordre cristallin

(diminution de l'intensité intégrée), à la dilatation (décalage angulaire négatif du signal de diffraction) ou à la compression (décalage angulaire positif).

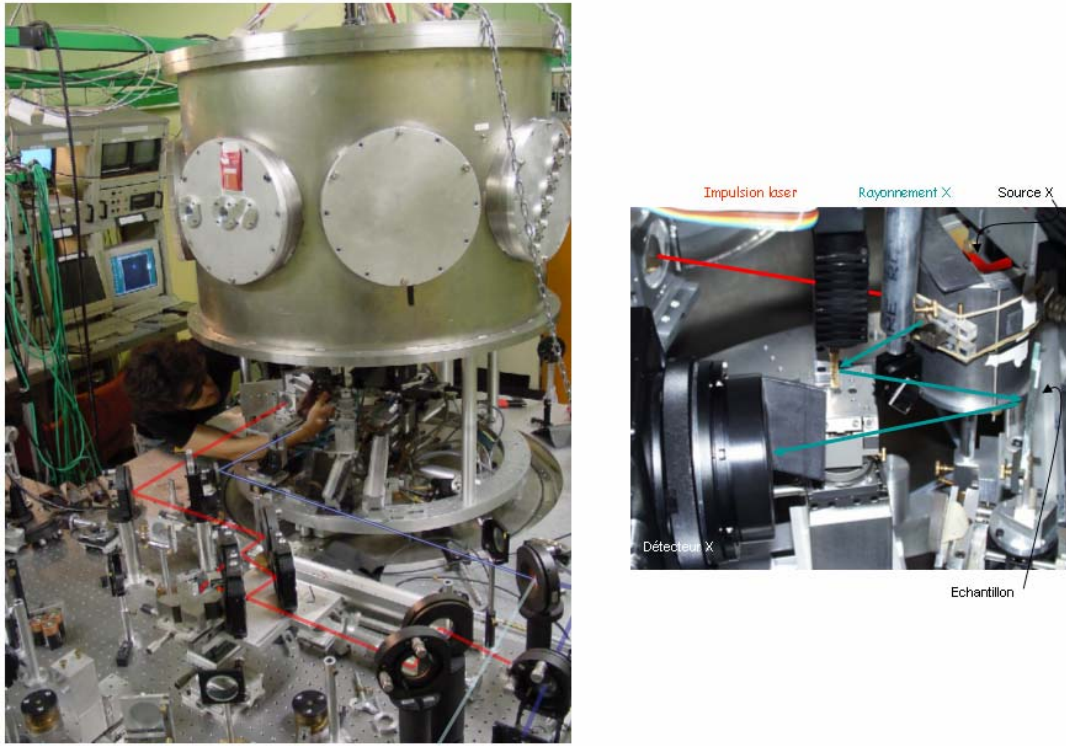


Figure D-3 : Système expérimental pour l'étude de la transition de phase solide-liquide à l'aide de la technique de diffraction X femtoseconde. Le faisceau laser est séparé en trois faisceaux ; rouge : faisceau pour la source X ; bleu foncé : faisceau d'excitation de l'échantillon ; bleu clair : sonde optique (continuum)

La Figure D-4 présente les « rocking curves » obtenus pour des échantillons d'InSb (100) jusqu'à des retards de plusieurs nanosecondes après l'excitation laser. Le flux d'excitation est de 160 mJ/cm^2 , ce qui correspond à l'excitation de 15 à 20 % des électrons de valence vers la bande de conduction pour déclencher la transition de phase. La réponse du cristal semiconducteur peut être décomposée en 4 principales étapes. La première est une chute brutale (moins d'une picoseconde) du signal de diffraction X sans élargissement de son profil angulaire. Quelques dizaines de picosecondes après l'excitation, le signal présente un fort décalage angulaire positif. Il devient ensuite négatif pour un retard de quelques nanosecondes et se recentre sur l'angle de Bragg initial aux temps longs avec une intensité X inférieure à celle du cristal non excité. Ces différentes étapes correspondent aux différentes réponses structurales du semiconducteur suite à l'excitation laser.

Tout d'abord, la première chute ultrarapide de l'intensité X intégrée est en accord avec la transition vers un désordre atomique. La Figure D-5 montre que 350 fs après l'excitation laser, le signal chute de 40 %. Cette variation ne peut pas être attribuée à un processus du type Debye-Waller qui traduit l'effet de l'augmentation de la température et la diminution du signal X diffracté suite à l'agitation thermique des atomes. Si on considère le déplacement atomique moyen des atomes d'InSb à la température de fusion (0.26 \AA), une diminution de 10 % du signal X diffracté est attendu, ce qui reste bien

inférieur aux observations expérimentales. Le temps caractéristique de la transition est également inférieur au temps caractéristique du transfert de l'énergie des électrons excités vers les vibrations d'origine thermique du réseau qui prend plusieurs picosecondes.

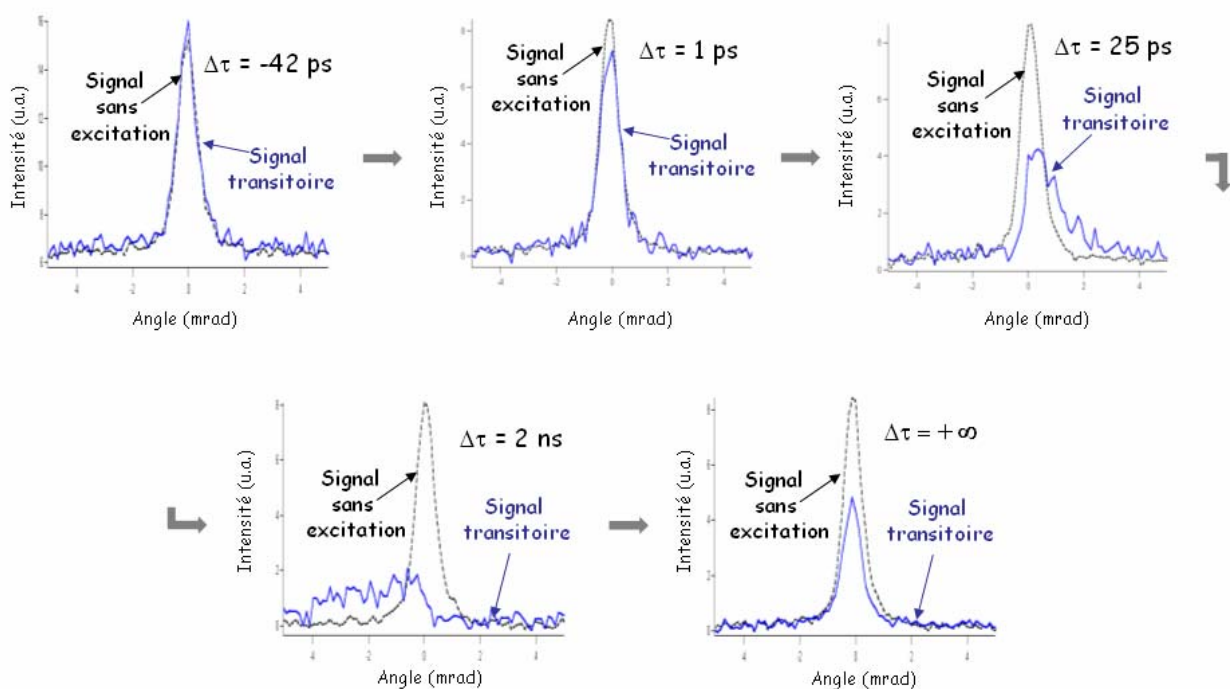


Figure D-4 : « Rocking curves » expérimentaux obtenus sur un échantillon d'InSb (100) pour une fluence d'excitation de 163 mJ/cm^2 .

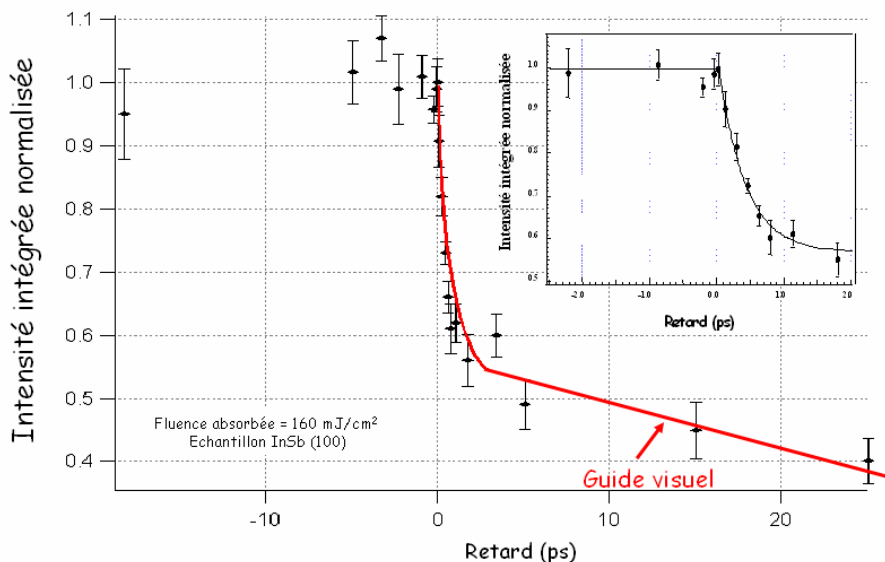


Figure D-5 : Intensité X intégrée en fonction du retard suivant l'excitation de l'InSb. Le temps caractéristique de la diminution du signal de diffraction X (350 fs) présenté dans l'insert est obtenu en effectuant un ajustement numérique par une exponentielle décroissante $I=I_0\exp(-t/\tau)$ où I_0 est l'intensité du rayonnement X incident.

La durée de la transition de phase mesurée à partir de la technique de diffraction X femtoseconde est en accord avec les estimations numériques²⁹ et les études de spectroscopie visible³⁰. Dans le silicium, elle est par exemple de l'ordre de 120 fs. Ce temps caractéristique est inversement proportionnel à la fréquence de phonons ω dans l'échantillon, ce qui permet de l'extrapoler au cas de l'InSb à l'aide de la relation suivante : $\omega = d^{-2} M^{-1/2}$ où d est la distance inter-atomique et M la masse atomique. Si l'on néglige les variations de la structure de bande de l'échantillon excité, un temps caractéristique de 350 fs est obtenu, en « parfait » accord avec nos résultats expérimentaux dans les mêmes conditions d'excitation.

Les décalages angulaires visibles sur la Figure D-4 après des retards de 5 ps traduisent quant à eux la génération d'une onde de compression/dilatation du réseau qui se propage de la surface vers l'intérieur du cristal. Le retour à l'équilibre s'effectue en plusieurs dizaines de nanosecondes. La diminution de l'intensité crête diffractée au temps infini indique que la qualité cristalline de la zone excitée à la surface de l'échantillon reste affectée pour les hautes fluences d'excitation proches du seuil de génération d'un plasma. Ce dernier est de 165 mJ/cm^2 et a été déterminé à partir d'expériences de spectroscopie visible à 165 mJ/cm^2 dans les mêmes conditions expérimentales³¹.

D.2.3. Caractérisation

L'épaisseur du film liquide, le seuil de déclenchement et la nature (homogène/hétérogène) de la transition ont été caractérisés sans ambiguïté grâce à la technique de diffraction X femtoseconde.

La Figure D-6 présente l'évolution de l'épaisseur de la couche liquide d obtenue à partir des données expérimentales en fonction de la fluence d'excitation et pour 4 différentes épaisseurs sondées. L'épaisseur maximale du film liquide est de 1000 Å. Elle diminue progressivement lorsque le flux d'excitation diminue, et atteint une valeur nulle au dessous du seuil. Dans le cas simplifié d'une couche liquide formée à la surface du semiconducteur non perturbé, l'intensité diffractée (intégrée) peut alors être décrite par $I = I_0 \exp(-d/l)$ où I_0 est l'intensité observée sans excitation et l est l'épaisseur sondée par le rayonnement X.

L'ajustement numérique (ligne pleine) représente bien les résultats expérimentaux de ce modèle simple en assumant que le processus de fusion se produit jusqu'à une épaisseur z si l'intensité excède la valeur seuil I_c (fusion homogène).

L'atténuation du faisceau laser d'excitation est prise en compte en considérant l'absorption à un photon et deux photons avec les coefficients α et β : $dI/dz = -\alpha I - \beta I^2/\tau$, où τ est la durée de l'impulsion laser. Si l'intensité à la surface est I_0 , l'épaisseur de la couche liquide peut alors être déterminée par l'Eq. (B-1) :

$$\text{Eq. (D-1)} \quad d = \frac{1}{\alpha} \text{Ln} \left[\left(1 + \alpha l \beta I_c \right) \frac{I_0}{I_0 + \alpha l \beta} \right]$$

Le meilleur ajustement numérique de la Figure D-6 est obtenu avec les paramètres libres β et I_c (α est pris égal à $1 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-1}$) tels que $I_c = 9.5 \text{ mJ/cm}^2$ et $\beta = 780 \pm 190 \text{ cm GW}^{-1}$. La valeur de I_c est proche du seuil de dommage irréversible observé à partir de l'analyse post mortem de la surface excitée des échantillons et est en accord avec les expériences réalisées en spectroscopie optique sur les échantillons de Si, GaAs et InSb. Dans ces expériences, la réflectivité atteint un plateau (réflectivité de l'état liquide) en moins d'une picoseconde pour les fluences d'excitation excédant le seuil de transition. Ceci est bien confirmé par nos mesures optiques effectuées sur l'InSb pour lesquelles elle atteint une valeur de

1.6, et perdure durant plusieurs picosecondes pour les fluences les plus basses³². Lorsque l'excitation est inférieure au seuil de la transition, le processus de fusion s'effectue alors avec un temps caractéristique beaucoup plus long (plusieurs dizaines de picosecondes), ce qui est en accord avec la description classique de la fusion thermique.

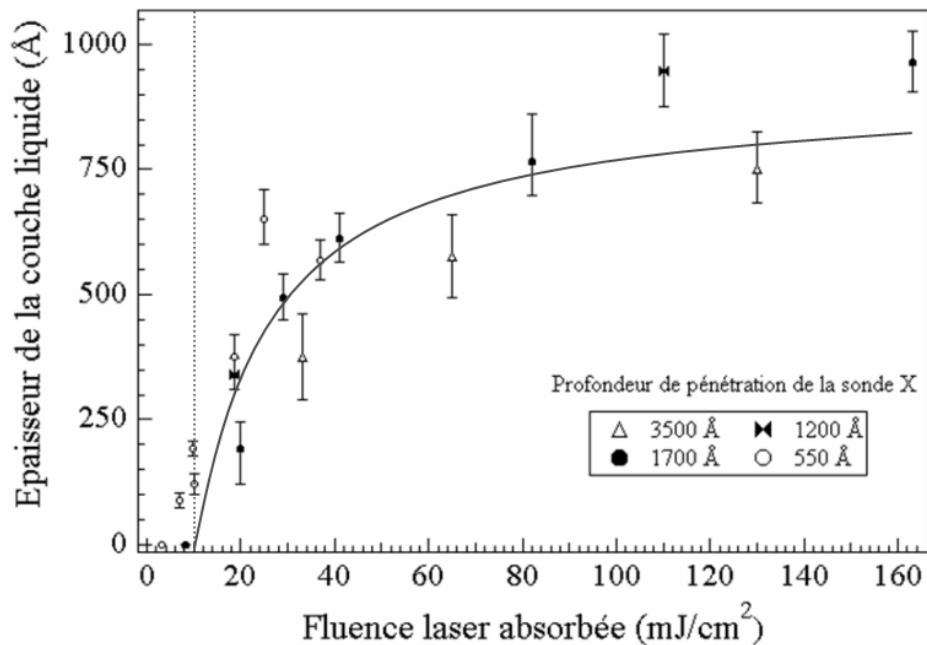


Figure D-6 : Détermination de l'épaisseur de la couche liquide en fonction du flux d'excitation. Synthèse de l'ensemble des expériences réalisées avec les échantillons d'InSb (111), (100) et (100) coupés asymétriquement afin de modifier la profondeur de pénétration du rayonnement X à la surface du cristal semiconducteur.

Les expériences de diffraction X confirment cette évolution pour les fluences d'excitation inférieures à 15 mJ/cm². Il est cependant difficile de déterminer une valeur précise (expérimentale) du seuil de la transition dans ce cas car le rapport signal sur bruit ne permet pas de discriminer clairement les deux dynamiques ultrarapide et lente de la structure cristalline.

Plusieurs indications nous montrent que la nature de la transition est différente du processus de fusion thermique classique qui est un processus hétérogène, associé à la propagation d'une interface liquide/solide de la surface vers l'intérieur du solide. Si l'on suppose que la densité de porteurs excités à la surface peut être obtenue en utilisant la relation $N_c = I(\alpha + \beta I/\tau)/h\nu$ ($h\nu$ correspond à l'énergie du laser : 1.5 eV) et que la fusion ultrarapide se produit de manière homogène jusqu'à une profondeur critique où la densité électronique seuil de déclenchement de la transition est atteinte, la comparaison entre l'épaisseur du film liquide et les valeurs de la densité électronique en fonction du flux d'excitation permet alors de déterminer cette densité seuil. En utilisant cette procédure, on obtient une valeur égale à $7 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$. Elle est proche de la densité seuil théorique de fusion ultrarapide estimée de manière numérique ($2 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$) dans le cas de l'InSb. Le bon accord entre ce modèle simple et les résultats expérimentaux obtenus par diffraction X ultrarapide est une première indication de la nature homogène de la transition.

Afin de renforcer cette hypothèse, des simulations détaillées ont été effectuées pour décrire l'interaction laser-semiconducteur à partir du modèle de Drude et obtenir l'évolution de la densité électronique en fonction du flux laser et

de la profondeur dans l'échantillon. A titre d'illustration, la Figure D-7 présente l'évolution temporelle de l'épaisseur du film liquide à la surface de l'échantillon d'InSb en fonction du flux laser d'excitation. Des expériences de spectroscopie visible ont été réalisées afin de déterminer les paramètres utilisés dans le modèle (masse optique électronique et constante de relaxation de Drude). L'ensemble de cette étude détaillée peut être trouvé dans la thèse de Sylvain Fourmaux. Les valeurs simulées de la densité électronique (N_s) et du flux d'excitation (F_s) seuils ainsi que l'épaisseur de la couche liquide ont pu être estimées en supposant que la phase liquide est obtenue si $N > N_s$ ou $F > F_s$ (processus homogène). La comparaison des épaisseurs de couche liquide (Figure D-6) du modèle avec les résultats expérimentaux (Figure D-7) montre un très bon accord.

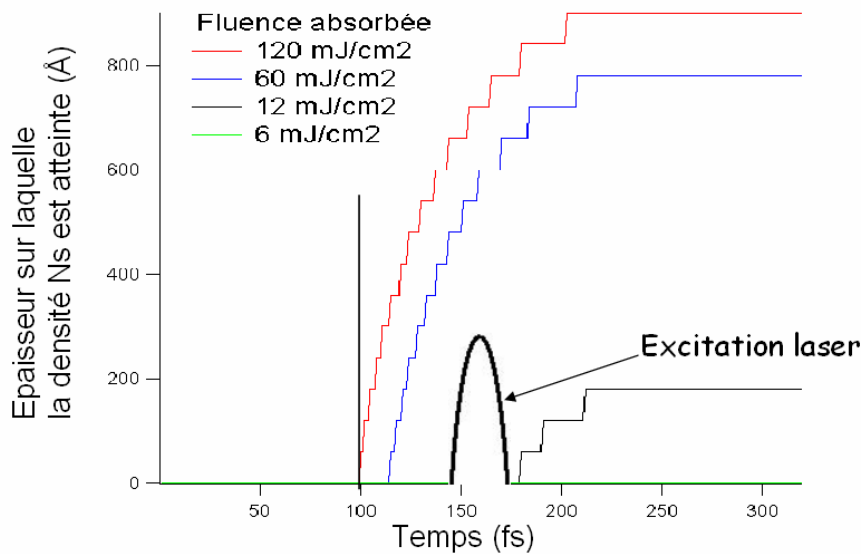


Figure D-7 : Evolution de l'épaisseur du film liquide en fonction du flux laser d'excitation et du temps. La densité électronique seuil pour laquelle la transition vers l'état liquide est obtenue est $N_s = 8.4 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$.

Ces simulations numériques montrent également que le temps nécessaire à ce que la densité électronique atteigne la densité seuil est très inférieur au temps caractéristique de la transition de phase mesurée au cours des expériences de diffraction X femtoseconde. Pour la fluence d'excitation laser maximale utilisée, il faut 108 fs pour atteindre N_s (Figure D-7) alors que le signal de diffraction X chute en 350 fs (Figure D-8). De même, plus la fluence d'excitation est faible, et plus le temps caractéristique pour atteindre N_s est rapide ce qui est de nouveau contraire aux observations expérimentales pour lesquelles la durée de la transition varie de 350 fs pour la fluence maximale à 1 ps proche du seuil.

Les simulations précédentes supposent qu'une fois la densité critique atteinte, la transition vers l'état liquide est instantanée. Cette description est insuffisante, et indique que le transfert d'énergie électronique vers le réseau requiert un temps fini pour aboutir à la destruction du désordre cristallin. En prenant en compte la durée du flash X ainsi que la vitesse moyenne de déplacement des atomes une fois que la densité seuil est atteinte, les simulations de l'évolution du signal de diffraction X en fonction du temps permettent alors de lever ces désaccords (Figure D-9). Il faut considérer une vitesse de déplacement atomique supérieure à 2 Å/ps pour le flux d'excitation maximal afin de bien représenter les observations expérimentales. Cette valeur est en accord avec les simulations effectuées par Allen³³ sur la dynamique atomique des atomes d'InSb au cours du mécanisme de fusion non-thermique dans nos conditions expérimentales.

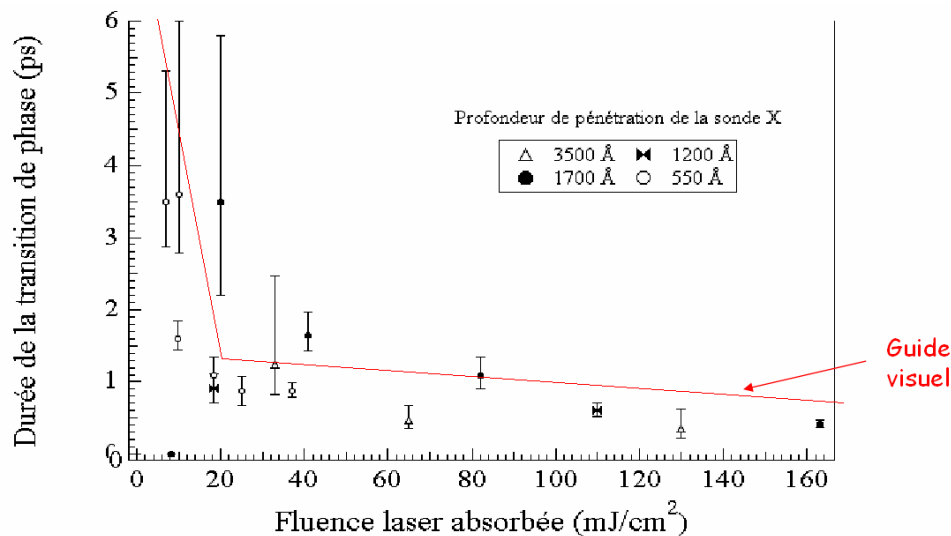


Figure D-8 : Détermination de la durée du mécanisme de fusion non-thermique en fonction de la fluence d'excitation et de la profondeur de pénétration de la sonde X à la surface de l'échantillon. Synthèse de l'ensemble des expériences réalisées avec les échantillons d'InSb (111), (100) et (100) coupés asymétriquement afin de modifier la profondeur de pénétration du rayonnement X à la surface du cristal semiconducteur. On observe deux régimes au seuil de la transition: thermique (durée de plusieurs picosecondes) et non-thermique (< 1 ps).

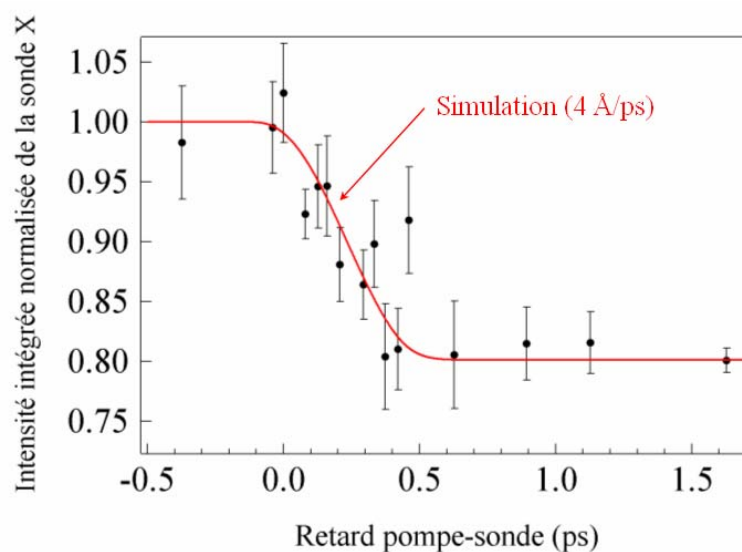


Figure D-9 : Evolution de l'intensité X normalisée en fonction du retard suivant l'excitation (120 mJ/cm²). Les simulations (trait plein) sont réalisées en prenant en compte une durée de l'impulsion X égale à 200 fs ainsi que vitesse moyenne des déplacements atomiques de 4 Å/ps.

D.2.4. Conclusion

L'étude de la fusion ultrarapide d'un semiconducteur représente la première expérience d'application de la technique de diffraction X femtoseconde. Les résultats permettent de répondre à une question récurrente en physique du solide depuis l'avènement des expériences de spectroscopie visible il y a une vingtaine d'année concernant l'étude de la réponse des matériaux à une excitation optique ultrabrève. Nous avons démontré de manière directe qu'une dynamique de structure

peut atteindre une échelle de temps ultrabrève, bien inférieure au temps de relaxation thermique. Dans notre expérience, la transition d'un état solide vers un état liquide a été caractérisée de manière quantitative et sans ambiguïté.

Cette expérience représente une première caractérisation d'un processus non-thermique, ouvrant la porte d'un régime où les mouvements atomiques ne sont plus affectés par les processus diffusifs. Au contraire d'un simple chauffage, l'excitation dans ce régime temporel induit des dynamiques atomiques directes. Des phénomènes totalement nouveaux deviennent accessibles aux observations.

D.3. Phonons optiques et transitions de phases

D.3.1. Dynamique des vibrations atomiques élémentaires

Les phonons optiques sont souvent associés aux déplacements atomiques élémentaires dans un cristal, et représentent l'oscillation des atomes dans leur maille élémentaire. Leur période de vibration est extrêmement courte : elle varie de quelques dizaines de femtosecondes à quelques centaines de femtosecondes en fonction des matériaux. Elle est bien inférieure à la période de vibration des phonons acoustiques qui caractérisent un déplacement périodique entre plans atomiques et qui se situe dans la gamme de plusieurs picosecondes à quelques dizaines de picosecondes. Les phonons ont été largement étudiés^{34,35,36} par spectroscopie visible telles que la diffusion Raman et Brillouin ou bien la diffusion de neutrons. Ces techniques permettent de déterminer précisément la fréquence des phonons, mais ne donnent accès à aucune résolution spatiale sur la dynamique des positions atomiques. Le premier intérêt d'effectuer une expérience de diffraction X avec une résolution temporelle femtoseconde est de pouvoir déterminer, de manière directe et expérimentale, l'amplitude des excursions qu'effectue les atomes autour de leur position d'équilibre.

La génération de phonons optiques représente également la première réponse du réseau cristallin à une excitation extérieure. Si l'excitation est effectuée par un laser ultrabref, le transfert de l'énergie absorbée par la population électronique au réseau s'effectue en premier lieu par l'excitation de phonons optiques. La possibilité d'observer et de caractériser leur dynamique à l'aide du rayonnement X est donc une étape importante vers la compréhension des mécanismes précurseurs amenant à une transition de phase photoinduite, telle que la fusion non-thermique étudiée au chapitre D.2, mais également les transitions de spin ou neutro-ionique par exemple.

Au cours de cette deuxième expérience d'application qui concerne le travail de thèse de Davide Boschetto, la technique de diffraction X femtoseconde développée au laboratoire a été utilisée pour étudier la dynamique des phonons optiques dans un cristal de bismuth. Ce matériau est intéressant à plusieurs titres.

Premièrement, les vibrations optiques cohérentes ont été largement étudiées par spectroscopie visible. Les paramètres fondamentaux tels que la fréquence et les temps de relaxation typiques (quelques ps) sont donc connus. Deux modes de vibrations ont été mis en évidence. Un mode A_{1g} (qui est complètement symétrique) suivant la diagonale principale de la maille élémentaire, qui correspond au mouvement de respiration des deux atomes ; c'est-à-dire les deux atomes se rapprochent et s'éloignent suivant la diagonale principale de la maille. La fréquence propre de ce mode est 2.92 THz, qui correspond à une période de vibration de 342 fs. Un mode E_g dégénéré dans le plan orthogonal à la diagonale principale de la maille élémentaire. La fréquence propre de ce mode est 2.22 THz, qui correspond à une période de vibration de 450

fs. Dans le cas d'un milieu absorbant tel que le bismuth, seuls les modes complètement symétriques sont efficacement excités par une impulsion laser brève et pourront être détectés par diffraction X résolue dans le temps.

Deuxièmement, la structure est simple puisque la maille élémentaire du Bi ne contient que deux atomes. Enfin, ce matériau a un numéro atomique élevé. Il peut diffracter efficacement le rayonnement X et ainsi optimiser le rapport signal sur bruit lors des expériences résolues en temps.

Des simulations ont d'abord été réalisées afin de déterminer l'amplitude des variations du signal de diffraction X que l'on doit obtenir durant l'expérience ainsi que l'influence de la longueur d'onde du rayonnement X sur le signal X transitoire détecté. Ces simulations utilisent le formalisme classique de la diffraction ainsi que l'approche de Takagi-Taupin^{37,38}, qui étend la théorie dynamique de la diffraction X au cas des cristaux déformés et des ondes non planes. Le code donne comme résultats l'évolution dans le temps du facteur de structure, du profil angulaire de l'intensité diffractée (rocking curve) et de l'intégrale de l'intensité diffractée.

A la température ambiante, le bismuth est tétragonal et ses paramètres de maille sont : $a=b=c=4.7450 \text{ \AA}$ et $\alpha=\beta=\gamma=57.23^\circ$. Suivant l'excitation laser, le mode de vibration A_{1g} est excité et les deux atomes de bismuth de la maille élémentaire oscillent l'un contre l'autre.

La variation du signal de diffraction X est proportionnelle à la variation du module carré du facteur de structure. Cette dernière est maximale quand le vecteur de l'espace réciproque est parallèle à la direction de polarisation du phonon. Il est donc avantageux de sélectionner pour la diffraction un vecteur de l'espace réciproque qui est parallèle à la direction de la diagonale de la maille élémentaire, c'est-à-dire la direction (111) . Pour le pic de diffraction (111) le facteur de structure s'écrit :

$$\text{Eq. (D-2) : } F_{(111)}(t) = f_{Bi} \left[\exp[6\pi \cdot u(t)] + \exp[-6\pi \cdot u(t)] \right] = 2 f_{Bi} \cos[6\pi \cdot u(t)]$$

où $u(t)$ est la position relative des deux atomes dans la maille élémentaire qui dépend du temps. La position relative des atomes peut s'écrire $u(t) = u_0 + \Delta u(t)$, où u_0 est la position relative à l'équilibre et $\Delta u(t)$ est le déplacement dépendant du temps.

L'allure de $|F_{(111)}|^2$ en fonction de $u(t)$ est présentée dans la Figure D-10. Si la valeur de la position à l'équilibre des atomes était égale à 0.25 (c'est-à-dire les atomes sont à $\pm 1/4$ de la diagonale principale de la cellule élémentaire), alors le facteur de structure est égal à zéro et l'intensité diffractée est nulle. Par contre, les atomes sont à une position relative à l'équilibre $u_0=0.234$, qui est très proche de la valeur pour laquelle l'extinction systématique du pic de diffraction intervient. On s'attend alors qu'un déplacement cohérent des atomes qui modifie u_0 produise un large changement dans le facteur de structure $F_{(111)}$, et donc de l'intensité du pic de diffraction. Nous pouvons remarquer que si $u_0 + \Delta u > 0.25$ la variation de $|F_{(111)}|^2$ change de signe.

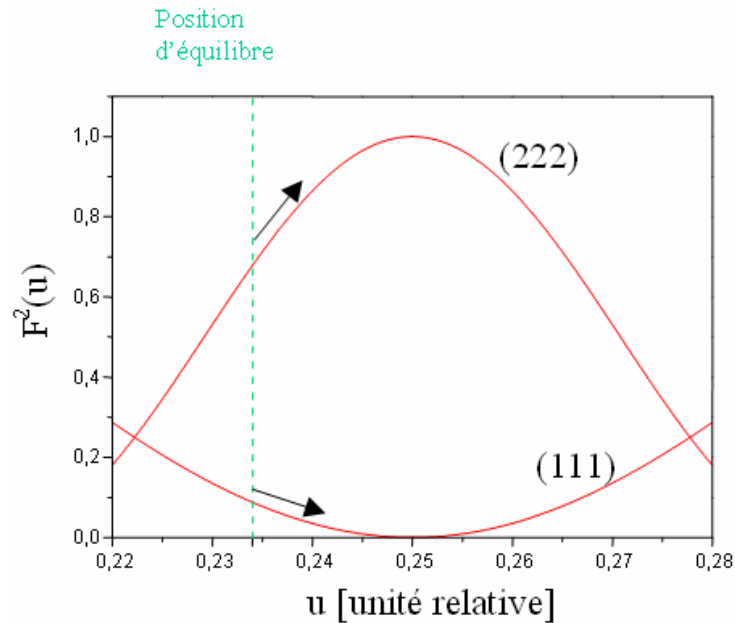


Figure D-10 : Variation du carré du facteur de structure dans le cas du Bismuth et pour les plans atomiques (111) et (222) en fonction de la position relative des atomes dans la maille élémentaire.

Dans le cas d'un cristal uniformément perturbé par un phonon cohérent, la variation relative de l'intensité intégrée du rocking curve est égale à la variation relative du module carré du facteur de structure. Par contre, quand le cristal est uniquement perturbé au voisinage de la surface, il est indispensable de tenir compte du fait qu'une partie du signal diffracté n'est pas perturbée par le phonon. Des simulations dynamiques ont été mises au point dans ce cas pour modéliser le signal X diffracté.

La

Figure D-11 montre une simulation de la variation relative maximale (en %) de l'intensité intégrée du rocking curve en fonction de l'épaisseur d'une couche mince de bismuth et en fonction de la longueur d'onde de la sonde X. Cette simulation a été effectuée pour $\lambda = 7.13 \text{ \AA}$ (Si- K_{α}), $\lambda = 2.75 \text{ \AA}$ (Ti- K_{α}), $\lambda = 1.94 \text{ \AA}$ (Fe- K_{α}), dans le cas du pic de diffraction (111). On peut remarquer que la variation relative maximale diminue très vite en fonction de l'épaisseur de la couche mince, et qu'elle décroît de manière significative avec la longueur d'onde du fait des différentes profondeurs de pénétration du rayonnement X. Le rayonnement X- K_{α} issu du silicium apparaît comme très favorable pour optimiser le rapport signal/bruit des expériences, compte tenu des faibles profondeurs d'excitation du laser visible (une dizaine de nm) à la surface de l'échantillon de Bismuth.

La Figure D-12 présente l'évolution temporelle du signal de diffraction X (rocking curve) suivant les plans atomiques (111) d'un échantillon d'épaisseur de 12.5 nm. Dans ces simulations, l'amplitude maximale du déplacement atomique est choisie égal à 0.01 Å. La longueur d'onde du rayonnement X est de 7.13 Å et l'épaisseur du film correspond à la longueur d'absorption (dans le bismuth) du faisceau laser d'excitation à 800 nm. Les déplacements atomiques induits par les phonons optiques produisent une variation périodique du signal de diffraction X dont l'amplitude maximale est de 15 %.

Il est important de noter que la prise en compte de la durée d'impulsion finie de la sonde X (≤ 200 fs) a pour effet de limiter cette variation du signal X à 8 % dans nos conditions expérimentales.

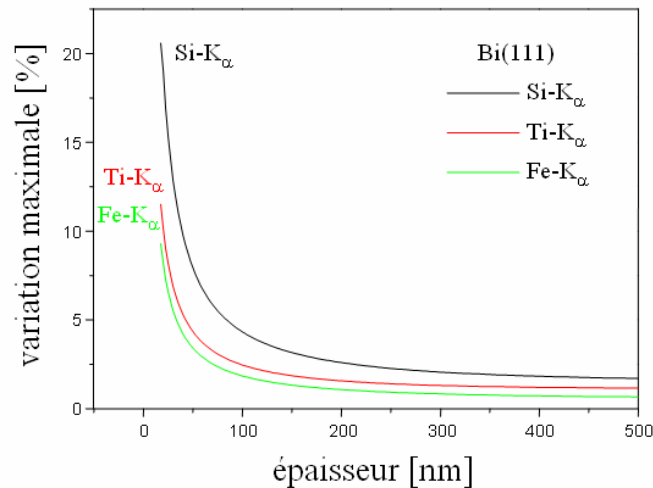


Figure D-11 : Variation maximale du pic de diffraction (111) en fonction de l'épaisseur de la couche mince.

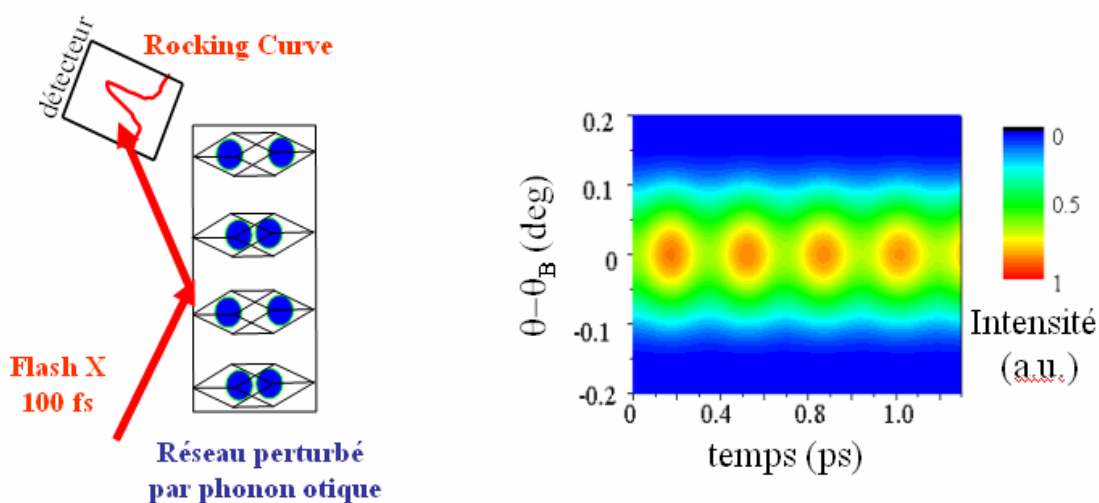


Figure D-12 : Simulation de l'effet du déplacement atomique durant l'oscillation des phonons optiques sur le signal de diffraction X résolue en temps à l'échelle femtoseconde.

D.3.2. *Observation expérimentale*

Les études expérimentales ont été réalisées en deux étapes. Dans un premier temps, des expériences de spectroscopie optique ont permis de maîtriser l'excitation de l'échantillon et de déterminer précisément leur seuil de dommage. Les expériences de diffraction X ultrarapide ont ensuite été réalisées pour déterminer la dynamique atomique.

La Figure D-13 présente l'allure temporelle de la réflectivité du faisceau sonde visible sur un échantillon de bismuth excité à un flux de 5 mJ/cm^2 , qui est proche du seuil de dommage mesuré dans nos expériences (13 mJ/cm^2). La variation périodique du signal est la signature des phonons générés de manière cohérente dans l'échantillon. L'ajustement numérique de la courbe expérimentale montre cependant qu'il n'est pas possible de représenter les résultats expérimentaux par la fréquence de phonon caractéristique du bismuth (342 fs). Dans ces conditions de forte excitation laser, il est nécessaire de décrire la fréquence comme une fonction dépendante du retard suivant l'excitation afin de traduire l'influence des porteurs libres sur la dynamique électronique sondée par le rayonnement optique. A partir du modèle développé dans la thèse de Davide Boschetto, la fréquence de phonon Ω peut s'exprimer à partir de l'Eq. (D-3) où ω_0 est la fréquence au repos, α est le coefficient traduisant l'effet de l'excitation électronique, β le temps de relaxation électronique et γ le temps caractéristique d'amortissement du phonon.

$$\text{Eq. (D-3)} \quad \Omega = \sqrt{\omega_0^2(t) - \gamma^2} = \sqrt{\left[\omega_0^2 - \alpha e^{-\beta t}\right] - \gamma^2}$$

La Figure D-13 montre que les résultats expérimentaux sont alors bien représentés si une dérive de fréquence liée à la présence d'une forte population électronique est prise en compte. Une seconde conséquence du régime de forte excitation est que la fréquence fondamentale excitée est supérieure à la fréquence au repos de 23 % ($\Omega = 442 \text{ fs}$). Ce dernier résultat confirme les premières expériences réalisées par Hase³⁹, mais montre également que des processus de modulation de la fréquence du phonon optique doivent être pris en compte pour décrire la dynamique électronique (anharmonicité, modulation du gap, écrantage électronique).

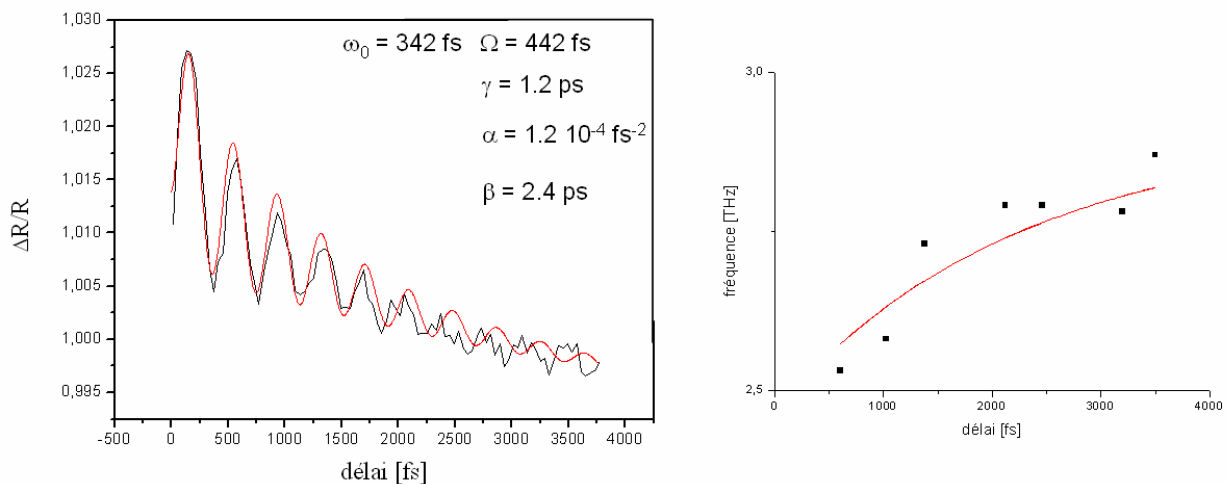


Figure D-13 : Réflectivité optique en fonction du temps d'un échantillon de Bismuth pour un flux d'excitation de 5 mJ/cm^2 (noir). Ajustement numérique réalisé avec une seule fréquence d'oscillation de phonon correspondant au bismuth au repos : 2.92 THz (rouge). Les résultats expérimentaux sont bien représentés pour les paramètres notés sur la figure (influence de la population électronique excitée) qui traduisent la dérive de la fréquence en fonction du temps (figure de droite).

La Figure D-14 présente maintenant les résultats obtenus par la technique de diffraction X femtoseconde pour avoir accès, de manière directe, à la dynamique de la structure atomique.

Au temps $t = 0$, on observe une chute du signal diffracté suivie par deux oscillations d'amplitude de quelques %. Dans les conditions de l'expérience, il n'a pas été possible de sonder l'échantillon pour des retards supérieurs. Cette dynamique peut être interprétée de la manière suivante. Tout d'abord, la forte excitation de la population électronique induit une nouvelle position d'équilibre pour laquelle la distance entre les deux atomes de la maille élémentaire diminue. Chaque atome se déplace à une distance relative d'un quart par rapport à la diagonale principale de la maille élémentaire (dynamique notée (1)). Ensuite, les atomes commencent à osciller (phonon optique) autour de cette position métastable (dynamique notée (2)). La difficulté de réalisation de cette expérience n'a pas permis la mesure de plus d'oscillations afin d'avoir accès au temps de relaxation des phonons. Cependant, une première analyse quantitative des résultats obtenus par diffraction X ultrarapide montre des différences significatives et inattendues par rapport aux expériences de spectroscopie optique.

Tout d'abord, il est intéressant de signaler que la dynamique (1) provoquant la chute initiale du signal de diffraction X n'avait pas pu être mise en évidence à l'aide des techniques optiques. Sous forte excitation laser, les atomes changent d'abord de position d'équilibre en 300 fs avant d'effectuer leurs premières oscillations.

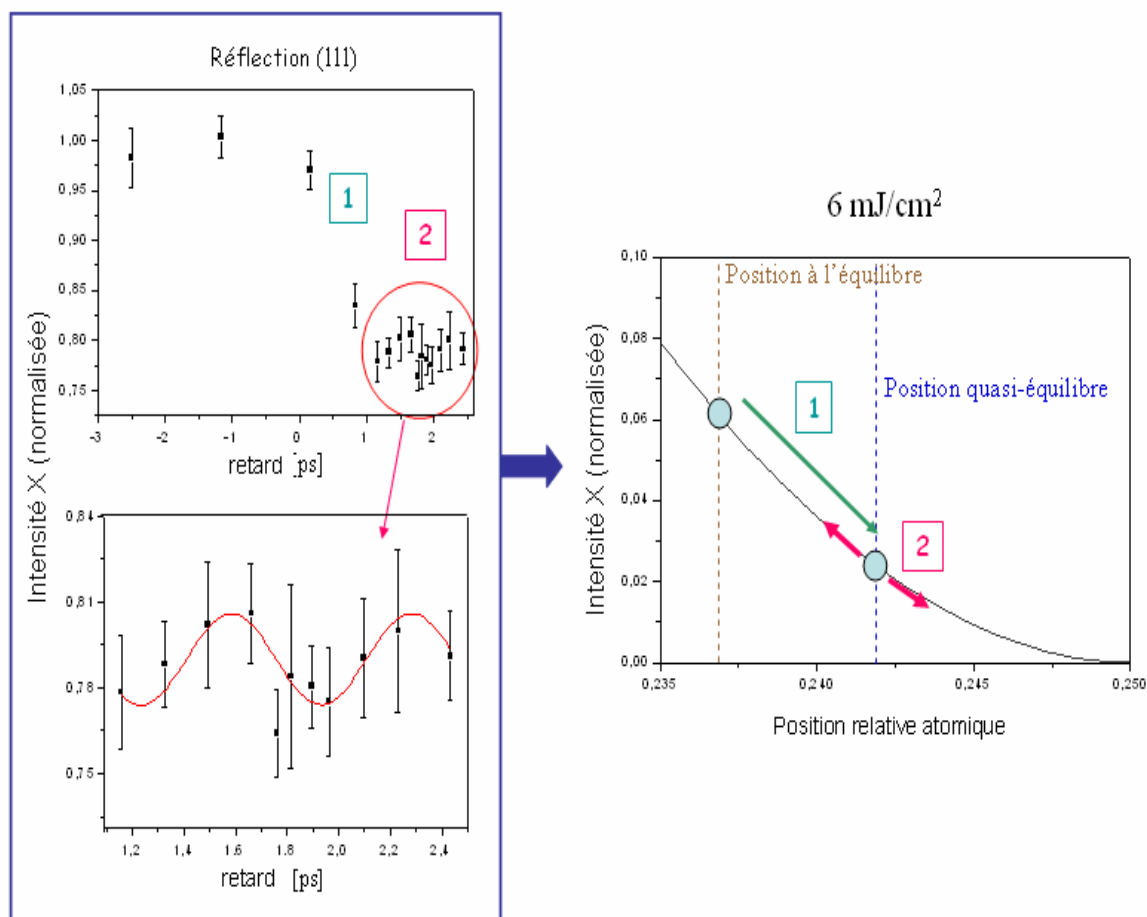


Figure D-14 : Résultats expérimentaux obtenus à partir de la technique de diffraction X femtoseconde sur la caractérisation des phonons optiques dans un cristal de Bismuth.

D'autre part, l'amplitude d'oscillation du phonon mesurée au cours de la dynamique (2) est environ de 3-4 %, ce qui correspond à un déplacement atomique de l'ordre de 0.2 \AA , c'est-à-dire une variation de la distance totale entre les atomes

de la base de 0.4 Å. Cette variation correspond à 7% de la distance à l'équilibre des atomes de la base. Ces déplacements sont très larges, mais ils restent en dessous de la limite de fusion.

Dans l'hypothèse de la validité de la théorie « displacive » d'excitation de phonon, on peut utiliser cette valeur approximative pour calculer le nombre de porteurs créés par l'impulsion d'excitation et la fréquence d'oscillation des phonons. On obtient une densité de $2.3 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ dans les conditions expérimentales (6 mJ/cm^2) et une fréquence de vibration de phonons de 487 fs. On peut remarquer que cette fréquence est inférieure à la valeur de la fréquence expérimentale estimée ici à partir des deux oscillations observées (660 fs). Elle est également en désaccord avec la fréquence théorique ($2.92 \text{ THz} / 342 \text{ fs}$) et celle que nous avons mesurée par spectroscopie optique (442 fs) (Figure D-13). La présence du nombre élevé de porteurs est certainement à l'origine de cette contradiction comme cela a été précédemment mentionné à partir des résultats de spectroscopie optique.

Une deuxième remarque importante concerne l'amplitude de la chute initiale observée, d'environ 20%, qui est bien supérieure aux 8 % venant du seul déplacement cohérent des atomes attendu par les simulations. Deux raisons peuvent être invoquées pour expliquer cette importante variation :

- la profondeur de pénétration de l'impulsion laser d'excitation est plus grande que celle trouvée dans la littérature, soit 19.2 nm.
- l'impulsion d'excitation excite aussi un fond de phonons incohérents, ce qui produit une chute du signal que l'on peut décrire par le facteur de Debye-Waller (désordre atomique)⁴⁰.

Les simulations réalisées pour nos conditions expérimentales, en prenant en compte l'élévation des températures « électronique » et « réseau »⁴¹, permettent de bien représenter nos résultats grâce à la contribution de phonons incohérents et une constante de temps de relaxation électron-réseau égale à 200 fs (Figure D-15).

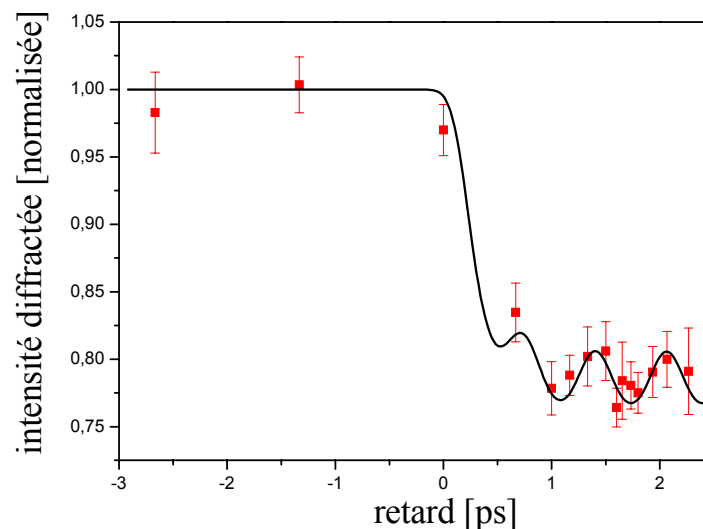


Figure D-15 : Modélisation de l'expérience de diffraction X avec une constante de temps de thermalisation électron-réseau de 200 fs et la prise en compte des phonons incohérents.

D.3.3. Conclusion

La deuxième expérience d'application de la technique de diffraction X femtoseconde a démontré que les vibrations élémentaires des atomes dans un solide peuvent être observées, et de manière directe grâce au rayonnement X ultrabref.

Même si la qualité des résultats expérimentaux est actuellement insuffisante pour permettre une étude précise des processus mis en jeu, deux nouveaux phénomènes ont pu être mis en évidence grâce à la diffraction X femtoseconde: le changement « quasi » instantané (limité par la résolution temporelle de 100 fs) de position d'équilibre avant l'établissement des oscillations atomiques, et la différence de fréquence de vibration notoire en comparaison avec les expériences réalisées en spectroscopie visible.

La ligne de lumière X femtoseconde en cours de réalisation (chapitre C.4) sera nécessaire pour réaliser les études complémentaires. En particulier, la diminution du temps d'accumulation devient indispensable pour mesurer les variations de signaux X de quelques pourcents de ce type d'expériences (elles sont de quelques dizaines de pourcents pour les expériences de fusion non-thermique (chapitre D.2)).

D.4. Conclusions et perspectives sur les applications

Deux applications pionnières ont été effectuées dans le domaine de la physique du solide grâce à la technique de diffraction X femtoseconde présentée en C.2. Des résultats significatifs et novateurs ont d'ores et déjà été obtenus, soulignant la complémentarité avec les expériences de spectroscopie visible réalisées depuis plus d'une vingtaine d'années. L'amélioration des outils et de l'environnement scientifique autour de ces études va permettre de faire basculer cette technique d'une expérience de « physicien des plasmas » vers une expérience d'utilisateurs venant d'horizons scientifiques divers.

En interne au LOA, et au sein du groupe PXF, l'étude des phonons optiques va être poursuivie avec les physiciens du solide afin de comprendre leurs propriétés sous forte excitation laser et leur rôle précurseur dans le mécanisme de transition de phase solide-liquide non-thermique. Les expériences vont être étendues aux cristaux moléculaires à transition de spin que nous étudions actuellement en spectroscopie visible afin de maîtriser les processus d'excitation et les seuils de dommage de ce type de matériaux. La nouvelle géométrie de diffraction X sera notamment mise à profit pour sonder plusieurs plans atomiques simultanément afin de mieux décrire les processus responsables des déplacements atomiques ultrabrefs.

Des collaborations actives ont été nouées avec plusieurs autres spécialistes en physique du solide ou en bio-chimie. En particulier, des études communes sont en cours de réalisation avec l'Université de Rennes 1 (Groupe de Matière condensée) et l'Institut Technologique de Tokyo sur les processus structuraux photo-induits ainsi que sur les dynamiques structurales initiées par des transferts de charges. Des expériences d'intérêts plus biochimiques sont en préparation en collaboration avec l'université de Göttingen en Allemagne et l'université de Copenhague au Danemark. Ces expériences d'application que nous pouvons lancer avec la technique de diffraction X femtoseconde sont soutenues grâce à une implication forte dans les réseaux européens (Réseaux thématiques XPOSE et FLASH, Réseaux de développement technologique (FAMTO) et internationaux (ERATO avec le Japon) rassemblant les utilisateurs potentiels de ces nouvelles techniques.

La démonstration des sources X femtosecondes collimatées et polychromatiques (Bétatron et Larmor) (chapitres B.4 et B.5) va permettre d'améliorer de manière significative les informations sur la structure ultrarapide de la matière. Après avoir démontré la technique d'absorption X femtoseconde, cette technique sera ensuite utilisée pour donner des informations locales de la structure des matériaux, en parfaite complémentarité avec les structures globales que la diffraction X permet de révéler. L'étude de matériaux non cristallins deviendra également accessible, augmentant de manière très significative le nombre d'applications et d'échantillons pouvant être analysés.

Ces faisceaux collimatés X-dur étendent également le domaine des applications à la médecine (radiographie, imagerie et traitement des tumeurs), la fusion thermonucléaire inertielle (imagerie des capsules et du cœur des plasmas de fusion), à la physique des plasmas denses et fortement corrélés (excitation X isochorique et homogène) et à la production de rayonnement laser dans le domaine spectral X (photo-pompage en couche interne). Ces expériences sont en cours de conception actuellement.

-
- ¹ A. Rousse et al., *Rev. Modern. Phys.* **73**, 17 (2001)
- ² J.C. Williamson et al, *Chem. Phys. Lett.* **196**, 529 (1992); J.C. Williamson, *J. Phys. Chem.* **98**, 2766 (1994)
- ³ M.H. Vos et al., *Nature (London)* **363**, 320 (1993)
- ⁴ M.H. Vos and J.-L. Martin, , *BBA-Bioenergetics* **1411** (1999)
- ⁵ Srjajer et al, *Science* **274**, 1726 (1996)
- ⁶ C.V. Shank et al., *Phys. Rev. Lett.* **50**, 454 (1983).
- ⁷ D. Hulin et al, *Physical Review Letters* **52**(22): 1998 (1984)
- ⁸ C.V. Shank et al., *Phys. Rev. Lett.* **51**, 900 (1983).
- ⁹ L. Huan et al., *Phys. Rev. Lett.* **80**, 185 (1998).
- ¹⁰ K. Sokolowski-Tinten et al., *Phys. Rev. B* **51**, 14186 (1995).
- ¹¹ J. Solis et al., *Phys. Rev. Lett.* **76**, 2519 (1996)
- ¹² P. Saeta et al., *Phys. Rev. Lett.* **67**, 1023 (1991)
- ¹³ C.N. Afonso et al., *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2519 (1996)
- ¹⁴ W.S. Fann et al., *Phys. Rev. B* **46**, 13592 (1992)
- ¹⁵ A. Rousse, C. Rischel et al., *Nature* **410**, 65 (2001)
- ¹⁶ J.P. Sokoloff et al., *Physical Review B* **38**(1): 597 (1988)
- ¹⁷ E. Collet et al., *Science* **300**, 612 (2003)
- ¹⁸ K. Sokolowski-Tinten et al., *Appl. Phys. A* **53**, 227 (1991).
- ¹⁹ Référence 6 de cette section
- ²⁰ I.L. Shumay & U. Hoffer, *Phys. Rev. B* **53**, 15878 (1996).
- ²¹ Référence 8 de cette section
- ²² J.S. Graves, & Allen, R. E., *Phys Rev. B* **58**, 13627 (1999).
- ²³ P.L. Silvestrelly et al., *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3149 (1996).
- ²⁴ D.E Aspnes et al., *Phys. Rev. B* **27**, 985 (1983).
- ²⁵ P. Stampfi, P. & Bennemann, K. H. ,*Appl. Phys. A* **60**, 191 (1995).
- ²⁶ P. Stampfli & K.H. Bennemann, *Phys. Rev. B*, **46**(17) (1992).
P. Stampfli & K.H. Bennemann, *Phys. Rev. B*, **49**(11) (1994)
- ²⁷ R.E. Allen et al, *Proceedings of SPIE conference on Ultrafast Phenomena in Semiconductors (San Jose)* (2001)
- ²⁸ S. Fourmaux, *Thèse de l'Ecole polytechnique* (2002).
- ²⁹ Référence 24 de cette section

³⁰ Référence 20 de cette section

³¹ Thèse Sylvain Fourmaux, Ecole Polytechnique (2003)

³² Référence 29 de cette section

³³ Référence 26 de cette section

³⁴ Zeiger et al., *Physical Review B* **45**(2): 768 (1992).

³⁵ S. Hunsche Set al., *Physical Review Letters* **75**(9), 1815 (1995)

³⁶ T.K. Cheng et al., *Appl. Phys. Lett.* **57**(10), 1004-1005 (1990)

³⁷ S. Takagi, *Journal of the Physical Society of Japan* **26**(5), 1239 (1969); D. Taupin, *Bull. Soc. franç. Minér. Crist.* LXXXVII: 469 (1964).

³⁸ P. Sondhauss & Wark J. S, *Acta Crystallographica* **A59**: 7 (2003).

³⁹ M. Hase et al., *Physical Review Letters* **88**(6), 67401(1-4) (2002)

⁴⁰ Zachariasen W. (1994). *Theory of X-ray diffraction in crystals*, Dover Publications.

⁴¹ P.P. Pronko et al., *Mat. Res. Symp. Proc.* **397**, 45 (1996)

ACCOMPAGNEMENT DES PROJETS DE RECHERCHE

E. Accompagnement des projets de recherche

E.1. Introduction

Le travail scientifique présenté dans les chapitres précédents a été accompagné par la réalisation de programmes de recherche de développement technologique et de réseaux thématiques, par l'organisation d'évènements scientifiques, par l'encadrement de trois thèses et par la création de groupes de recherche au LOA. L'objectif de ce chapitre est de présenter les points les plus significatifs de ces actions directement menées dans le cadre spécifique de la thématique de la science X ultrarapide, sans développer les projets d'ordre plus général développés par le laboratoire telles que les activités liées à la Facilité Européenne par exemple.

E.2. Structures locales

E.2.1. Création de 2 groupes de recherche au LOA

J'ai participé à la création de deux groupes de recherche au LOA. Le premier est le groupe LPX (Laser-Plasma-rayon X) qui a été établi en Mai 1998, et dont j'en ai été le responsable jusqu'en Mai 2001. Le groupe a compté jusqu'à une dizaine de personnes et avait la charge de développer les études de physique de l'interaction laser-matière pour la production et l'application de sources secondaires de rayonnement X et XUV.

Le deuxième est le groupe PXF (Physique du rayonnement X Femtoseconde) (<http://loa.ensta.fr/pxf>), qui a été créé en Mai 2003 et dont je suis le responsable. Il se concentre sur le rayonnement X produit par laser : la physique de l'interaction laser-matière pour sa production, la physique des transitions de phases pour son application et le couplage laser avec les sources accélérateurs pour développer et utiliser des sources X ultrabrèves sur ces grands instruments.

E.2.2. Encadrement d'étudiants

Trois étudiants ont effectué leur travail de thèse sur les différentes thématiques développées dans les chapitres précédents : Sylvain Fourmaux, Kim Ta Phuoc et Davide Boschetto.

➤ Sylvain Fourmaux (1999-2002)

Le travail de thèse s'est effectué dans le domaine de l'application du rayonnement X femtoseconde. La technique de diffraction X ultrarapide a été utilisée pour mettre en évidence et caractériser la transition de phase solide-liquide excitée par un flash laser femtoseconde à la surface d'un semiconducteur. Ces études ont été décrites au chapitre D.2 et ont donné lieu à plusieurs publications dont notamment: *Nature* **410** (6824), 65-68 (2001) et *Rev. Mod. Phys.* **73** (1), 17-31 (2001).

➤ Kim Ta Phuoc (1999-2002)

Le travail de thèse s'est effectué dans le domaine de la physique de l'interaction laser-matière pour la production d'une nouvelle génération de rayonnement X femtoseconde. Ces études ont été décrites au chapitre B.4. L'objectif a été de

produire du rayonnement X collimaté. Ceci a été possible à partir d'expériences d'interaction laser électron dans un jet de gaz. Elles ont donné lieu à plusieurs publications dont notamment : *Phys. Rev. Lett.* **91**(19) 195001-5 (2003) et *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 221-223 (2003).

➤ Davide Boschetto (2000-2004)

Davide Boschetto a travaillé dans le domaine de l'application du rayonnement X femtoseconde. Il s'est concentré sur la spectroscopie de phonon optique par les techniques pompe-sonde à l'aide du rayonnement visible et X (diffraction X femtoseconde). Ces études ont été décrites aux chapitres C.3 et D.3 et sont en cours de publication ; *J. Appl. Cryst.* **36**, 348-349 (2003).

E.3. Projets européens

La réussite de la première expérience de diffraction X femtoseconde présentée au chapitre C.2 a clairement montré la potentialité des sources laser-plasma pour l'observation de structures transitoires de durée de vie inférieure à la picoseconde. **La réalisation d'expériences d'application dans d'autres disciplines scientifiques nécessite un effort soutenu, que ce soit dans la maîtrise de la technique et de l'amélioration des performances que dans les collaborations interdisciplinaires** permettant de définir et réaliser les expériences elles même. Des projets européens spécifiques sur la thématique de la science X ultrarapide ont donc été lancés dans le cadre du 5^{ème} PCRD : le RTD (Research for Technological Development) FAMTO (ultra-FAst Movie TOols) et le réseau thématique (RTN) XPOSE. Des projets sont également acceptés dans le cadre du 6^{ème} PCRD (FLASH) ou sont en cours d'évaluation (PIXEL).

E.3.1. RTD FAMTO (1999-2004)

J'ai proposé et lancé ce programme RTD qui rassemble trois autres partenaires européens: Université de Lund en Suède, Université de Jena en Allemagne et le synchrotron ESRF à Grenoble. L'objectif est de mettre en place les premières stations dédiées à l'analyse de structures transitoires picosecondes et sub-picosecondes en physique, chimie et biologie. Cela est réalisé en développant une nouvelle génération d'équipements périphériques au sein des facilités laser et Synchrotron. Le projet inclut la faisabilité d'expériences pionnières dans les diverses disciplines citées auparavant. Je suis le coordinateur de ce programme qui a été financé à hauteur de 1.5 M€.

E.3.2. RTN XPOSE (1999-2004)

Afin de réunir les communautés de physiciens, qui travaillent sur les sources, avec la communauté interdisciplinaire des utilisateurs, le programme XPOSE a été lancé en 1999. Onze laboratoires - dont le LOA - font partie de ce réseau RTN (Research Technical Network) qui est coordonné par le laboratoire de Lund en Suède. Ce réseau nous permet d'établir une réflexion sur la problématique associée à l'observation et l'analyse de telles structures transitoires en contact direct avec les utilisateurs. Je fais parti du comité de contrôle et d'organisation de ce projet.

E.4. Organisations d'évènements scientifiques

J'ai participé à l'organisation de conférences en tant que membre des comités scientifiques, mais également en tant que Chair principal dans le cas de l'Ecole d'été¹ internationale que j'ai organisé à Cargèse (Corse) en juillet 2003, de la session « Time-resolved crystallography » à la conférence annuelle « European Crystallography Meeting »² organisée à Durban (Afrique du Sud), et de la conférence organisée à Orsay (Février 2004) sur les projets de sources de rayonnement X femtoseconde « accélérateurs » et de leurs applications³. La section E.4.1 présente brièvement l'Ecole d'été de Cargèse à titre d'exemple. Des informations complémentaires peuvent également être trouvées sur les différents sites Web de ces évènements scientifiques.

E.4.1. Ecole d'été "La Science X ultrarapide"

Les objectifs scientifiques de l'école ont été de proposer aux participants (120, majoritairement européens) un panorama complet sur la thématique de la science X ultrarapide, tout en insistant sur les potentialités et les limites actuelles des sources X et de leurs applications. L'objectif stratégique de l'école était de stimuler et promouvoir la recherche dans ce nouveau domaine en France afin d'affirmer un rôle leader au niveau international, de permettre un rapprochement entre la communauté des lasers et des synchrotrons et de permettre aux viviers des utilisateurs français de ces nouvelles techniques d'être informés et formés.

L'école a permis la formation de jeunes chercheurs (45 étudiants), mais également de chercheurs confirmés (67) dans le domaine de la science X ultrarapide. Le principe de l'école d'été a été propice aux échanges scientifiques. Les participants ont eu l'unique opportunité de suivre des exposés de haut niveau basés sur des sujets scientifiques à la pointe de la recherche, rencontrer et discuter avec les scientifiques " leader " dans le domaine. Des exposés/cours ont permis de tenir compte du caractère multidisciplinaire de l'auditoire en faisant un effort didactique poussé sur chacun des thèmes abordés :

➤ *rayonnement X ultrabref " accélérateurs " (synchrotron, LINAC, laser électron libre)*

L'objectif de ce thème a été d'aborder les solutions existantes et futures de la production X femtoseconde issue de la communauté des accélérateurs. Une attention particulière a été portée sur l'identification des limites actuelles de ces techniques et des solutions futures envisagées.

➤ *rayonnement X ultrabref " laser-plasma "*

L'objectif de ce thème a été d'aborder les solutions existantes et futures de la production X femtoseconde issue de la communauté des lasers intenses et ultra brefs. Une attention particulière a été portée sur l'identification des limites actuelles de ces techniques et des solutions futures envisagées.

➤ *Techniques X en régime femtoseconde*

L'objectif de ce thème a été de confronter les techniques d'analyses des matériaux à partir du rayonnement X dans le cas présent des impulsions X femtosecondes. Les difficultés d'applications des techniques connues tels que la diffraction, l'absorption, le transport du faisceau X femtoseconde de la source jusqu'à l'échantillon, la détection X, ont été abordés.

➤ *Application en bio-chimie et physique.*

L'objectif de ce thème a été de présenter et discuter les expériences d'applications réalisables avec les performances actuelles des systèmes X femtosecondes, d'identifier les enjeux majeurs pour l'utilisation du rayonnement X ultrabref dans les différentes thématiques et les propriétés requises des systèmes X pour la réalisation de ces expériences ambitieuses.



Figure E-1 : Affiche de l'École d'été internationale organisée à Cargèse du 13 au 19 juillet 2003 sur la thématique de la Science X Ultrarapide.

L'organisation de l'école d'été a été principalement basée sur deux types de contributions orales. Une série de 17 exposés longs de 60 minutes sélectionnés par le comité scientifique en concertation avec le comité d'organisation afin de donner aux participants un panorama complet de l'état de l'art dans cette nouvelle thématique. Dix d'exposés/cours de 15 minutes se concentrant sur des résultats importants obtenus dans le domaine des sources X ultrarapides et de leurs applications.

Les participants ont eu la possibilité de présenter et discuter leurs travaux durant une session d'affiches organisée le dernier jour de l'école.

Les exposés longs ont permis de donner aux participants venant d'horizons scientifiques différents une introduction détaillée sur chacun des sujets traités, mais également de fournir suffisamment de bases pour identifier les limitations des

systèmes X femtosecondes.

Les exposés courts ont eu pour but de focaliser l'attention sur les récents résultats obtenus dans ce domaine ou sur des projets en cours de réalisation au niveau international; ainsi que de mettre en évidence les expériences ambitieuses à lancer dans les différentes thématiques.

Durant l'école, divers événements à caractère social ont été organisés et ont permis d'établir des contacts conviviaux entre les participants, favorisant ainsi les échanges scientifiques. Plus de détails sur les conférenciers et les activités de l'école peuvent être trouvés sur le site Web de l'école <http://loa.ensta.fr/pxf>.

¹ <http://loa.ensta.fr/pxf>

² http://www.sacrs.org.za/ecm21/sci_timetable.html

³ <http://www.lure.u-psud.fr/congres/femto/>

CONCLUSIONS GENERALES

F. Conclusions générales

Mon projet de recherche se concentre sur la production et l'optimisation de nouvelles sources de rayonnement X ultrabref obtenues à partir de l'interaction laser-matière à haut flux, ainsi que sur leurs applications en physique de la matière condensée pour l'étude de la dynamique ultrarapide de structures.

Des résultats significatifs ont été obtenus dans chacun des trois axes de recherche que j'ai mis en place :

➤ Production de sources X ultrabrèves

Le flux de la source de rayonnement X- K_α a été optimisé pour permettre la réalisation des premières applications en « science X ultrarapide ». Deux nouvelles sources ont été démontrées à partir de l'interaction laser-matière en régime relativiste afin de palier aux désavantages de la source X- K_α (monochromaticité et divergence dans tous l'angle solide). Ces études ont abouti à la production d'une source innovante de rayonnement X produit par interaction laser-matière. Un faisceau collimaté de rayonnement X (20 mrad) a été obtenu à partir de l'interaction laser-matière pour la première fois dans le domaine spectral du keV. Il est ultrabref et polychromatique.

➤ Potentialité de sources X ultrabrèves

Le fort potentiel de la source X- K_α a été mise en évidence grâce à la démonstration de la technique de diffraction X femtoseconde qui a été effectuée sur un échantillon test organométallique. Cette expérience pionnière a montré qu'une technique était maintenant disponible pour sonder des dynamiques ultrarapides atomiques simples au cours d'un processus réactionnel.

➤ Applications de sources X ultrabrèves

La technique de diffraction X femtoseconde a été utilisée pour réaliser deux expériences d'application en physique du solide. La transition de phase solide-liquide ultrarapide d'un cristal semiconducteur a été observée et caractérisée pour la première fois avec une résolution temporelle inférieure à la durée du processus. Des expériences de spectroscopie X femtoseconde de phonons optiques ont également été lancées pour étudier les processus précurseurs de ce type de transition de phase.

Ces axes de recherches sont poursuivis et présentent des perspectives enthousiasmantes. En particulier, un environnement « utilisateur » est en cours de construction autour de l'utilisation de la source X- K_α . Plusieurs groupes de recherche (en particulier en physique du solide) français, européens et japonais vont être les premiers utilisateurs de ce dispositif. Les sources collimatées de rayons X vont être développées et optimisées à partir de l'interaction laser-matière en régime relativiste. Elles seront utilisées en particulier pour démontrer expérimentalement la technique d'absorption X résolue en temps, avec une résolution étendue jusqu'à l'échelle femtoseconde. Si ces études sont concluantes, l'application de ce nouvel outil sera lancée au laboratoire. D'autres applications (voir chapitre D.4) dans d'autres domaines scientifiques seront également considérées.

L'accroissement de l'intensité laser des nouveaux systèmes va nous permettre d'explorer la physique d'interaction laser-matière dans ces régimes à très haut flux et ultrarelativiste, de développer -de la même manière que pour le « mini synchrotron » (chapitre B.5)- un « mini laser à électron libre » dans le domaine spectral X. L'amélioration significative des propriétés du faisceau X (cohérence, collimation, flux) qui seraient obtenues dans ce cas aurait un impact majeur sur les applications en science X ultrarapide.

Un nouvel axe de recherche a également débuté ces derniers mois. Il s'agit d'un fort couplage avec la communauté des accélérateurs au niveau français et européen. Deux projets de couplage de faisceau laser femtoseconde et intense au côté du nouveau synchrotron SOLEIL et dans le cadre du projet de Laser à électron libre ARC-EN-CIEL sont en cours d'étude pour produire du rayonnement X ultrabref sur ces installations. De même, les techniques de caractérisation de faisceau de rayonnement X femtoseconde qui ont été développées grâce à la source X- K_{α} vont être utilisées pour caractériser les sources XUV et X ultrabrèves de la communauté « accélérateur » (BESSY et DESY en Allemagne).

**TABLES DES ILLUSTRATIONS
ET
ARTICLES DE REFERENCE**

G. Liste des Figures

- Figure A-1 *Synoptique du projet de recherche* A-15
- Figure B-1 *Principe de la source X- K_α et spectre de l'émission X produite par le plasma dans le cas d'une cible de silicium.* B-21
- Figure B-2 *Optimisation du signal X en fonction de l'angle d'incidence du laser sur la cible, l'intensité laser du faisceau principal et le retard suivant la pré-impulsion.* B-22
- Figure B-3 : *Système expérimental utilisé pour caractériser le rayonnement X-dur (15 -700 keV) produit à partir de l'interaction entre un laser intense avec une cible solide. (a) chambre d'interaction ; (b) principe du spectromètre X multicanaux construit à partir d'une superposition de filtres et de détecteurs thermoluminescents (TL).* B-24
- Figure B-4 : *Distribution spectrale du rayonnement X produit par l'interaction d'un faisceau laser de 30 fs et 0.4 J sur une cible de Ta de 500 μm d'épaisseur. 3500 tirs laser ont été effectués. L'histogramme en trait fin (épais) correspond aux résultats expérimentaux sans (avec) correction de la contribution d'électrons énergétiques directement détectés par le spectromètre. La courbe en trait plein (pointillé) correspond aux calculs obtenus avec le code ESG4 pour deux distributions maxwelliennes en énergie des électrons de températures égales à 210 keV et 260 keV.* B-25
- Figure B-5 : *Signal X mesuré par la chambre d'ionisation en fonction de l'énergie laser (E_l) et la durée d'impulsion laser (τ_l). Triangle : 150 fs ; carré : 30 fs ; rond : $E_l = 0.4$ J. La ligne en pointillée indique la loi d'échelle $\propto E_l^{1.5}$ (énergie) et $\propto E_l^{1.7}$ (durée).* B-26
- Figure B-6 *Principe de la source X « Larmor ». a. Rayonnement X émis par l'oscillation relativiste des électrons du plasma dans les champs électromagnétiques périodiques du laser : diffusion Thomson sur un électron initialement au repos; b : Rayonnement X émis par diffusion Thomson d'un faisceau laser sur un faisceau d'électron initialement accéléré; c : Analogie avec le rayonnement X du type « synchrotron ».* B-28
- Figure B-7 : *Evolution des trajectoires d'un électron libre dans le champ électromagnétique laser, et du vecteur de Poynting associé, en fonction du paramètre a_0 .* B-30
- Figure B-8 : *Caractéristiques de la distribution angulaire du rayonnement X-Larmor dans le cas d'un électron libre et d'un faisceau laser en polarisation circulaire. Les résultats ne sont présentés que pour le demi-plan $\theta > 0$. Une distribution similaire est obtenue pour le demi-plan $\theta < 0$.* B-31
- Figure B-9 : *Effet d'une vitesse initiale électronique non nulle sur la composante longitudinale de la trajectoire électronique et sur la distribution angulaire du rayonnement X-Larmor.* B-32
- Figure B-10 : *Effet de la durée d'impulsion du faisceau laser sur la distribution spectrale du rayonnement X-Larmor.* B-32
- Figure B-11 : *Distribution spectrale théorique du rayonnement X-Larmor en fonction de a_0 et de la direction d'observation θ ($a_0=5$).* B-33
- Figure B-12 *Système expérimental utilisé pour l'expérience X-larmor. La photographie zoomez sur les éléments principaux à l'intérieur de l'enceinte d'interaction.* B-34
- Figure B-13 : *Distribution spectrale du rayonnement X observé (avec le spectromètre placé à l'extérieur de l'enceinte) dans l'axe de propagation du faisceau laser ($\theta = 0$) pour l'intensité laser maximale $a_0 = 5.6$ (bleu). L'encart représente une sélection spectrale du signal enregistrée par le détecteur. La densité électronique est égale à $5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. La courbe (rouge) correspond au modèle de l'électron libre pour des électrons d'énergie initiale de 1.5 MeV, un angle d'observation de 3° et une intensité laser $a_0 = 6$.* B-35
- Figure B-14 : *Distribution spatiale du rayonnement X pour une densité électronique de $5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et $a_0 = 5.6$. La courbe en trait plein correspond au modèle de l'électron libre (a). La figure (b) représente une seconde série d'expérience pour*

laquelle la simulation numérique obtenue en considérant une fonction de distribution électronique de température égale à 0.9 MeV est utilisée pour reproduire les résultats expérimentaux. La courbe en pointillé ne tient pas compte de l'effet d'une dispersion en k de 5° . B-37

Figure B-15 : Evolution de l'intensité du rayonnement X en fonction de la densité électronique du plasma. En rouge sont représentés les résultats pour l'intensité laser maximale ($a_0 = 5.6$) et pour un angle d'observation $\theta = 0^\circ$ dans l'axe de propagation du faisceau laser. Les résultats obtenus dans l'axe laser pour $a_0 = 1$, et hors axe laser pour $a_0 = 5.6$ sont représentés en bleu. B-37

Figure B-16 : Principe simplifié de la source de rayonnement X-Bétatron produite à partir de l'interaction laser-matière. Ce « mini » Synchrotron femtoseconde utilise les paquets ultrabrefs d'électrons accélérés dans le sillage du faisceau laser qui effectuent des oscillations bétatroniques et émettent du rayonnement du type synchrotron dans le canal ionique produit derrière l'impulsion laser. r_0 est l'amplitude d'oscillation de l'électron, K le paramètre de force de « l'onduleur » plasma. B-39

Figure B-17 : Simulation PIC de la propagation du faisceau laser dans le plasma et de l'émission X produite par les électrons relativistes se propageant dans le canal ionique (photons/tir/0.1%BW/srad). B-41

Figure B-18 : Distribution spatiale du rayonnement X-Bétatron pour des longueurs d'ondes X supérieures à 1 keV. A : Empreinte du faisceau X directement observé sur la caméra CCD sans optique de rayonnement X et pour une densité électronique plasma de $8 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. La grille de nickel placée en amont du détecteur est à l'origine de l'ombre portée visible sur le détecteur. B : distribution dans le plan horizontal. Chaque point expérimental est moyenné sur 10 tirs. La courbe en trait pointillé correspond aux simulations PIC réalisées avec les mêmes paramètres que l'expérience. La densité électronique est égale à 10^{19} cm^{-3} . B-42

Figure B-19 : Distributions spectrale et spatiale du rayonnement X-Bétatron théoriques obtenues pour nos paramètres expérimentaux (densité électronique égale à $1 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, jet de gaz de 3 mm). L'insert indique la gamme spectrale observée durant nos expériences dans les bandes spectrales suivantes : 1 : $1 \text{ keV} < E < 10 \text{ keV}$, 2 : $4 \text{ keV} < E < 10 \text{ keV}$, 3 : $6 \text{ keV} < E < 10 \text{ keV}$. B-43

Figure B-20 : Evolution de l'intensité du rayonnement X en fonction de la densité électronique du plasma. La courbe en pointillé correspond aux résultats obtenus par les simulations numériques 3D PIC du rayonnement X-Bétatron avec les mêmes paramètres que les expériences. B-44

Figure B-21 : Flux des différentes sources ultrabrèves actuelles ou futures dans le domaine spectral supérieur au keV. La durée de l'impulsion et la cadence de répétition sont notées pour chacune des sources. TESLA : projet (2015) de laser à électron libre dans le domaine du rayonnement X à DESY (Hambourg, Allemagne). LCLS : projet (2010) de laser à électron libre dans le domaine du rayonnement X à SLAC (Stanford, USA). CHESSE : projet de LINAC à récupération d'énergie à Cornell (USA). SPPS et MAX IV : source LINAC ultrabref associé à un onduleur en cours de réalisation à SLAC (Stanford, USA) et en projet à Lund (Suède). Les premières expériences résolues en temps (au moins picoseconde) devraient commencer durant l'année 2004. Slicing : source basée sur le « découpage laser » d'un micro paquet d'électron issu du faisceau d'électrons circulant dans un synchrotron de troisième génération à LBNL (Berkeley, USA). Pléiades : source basée sur la diffusion Thomson d'un laser femtoseconde avec un LINAC de durée de quelques picosecondes. En pointillé sont notées les sources en projet. B-47

Figure B-22 : Brillance moyenne des différentes sources ultrabrèves actuelles ou futures dans le domaine spectral supérieur au keV. La durée de l'impulsion et la cadence de répétition sont notées pour chacune des sources. TESLA : projet (2015) de laser à électron libre dans le domaine du rayonnement X à DESY (Hambourg, Allemagne). LCLS : projet (2010) de laser à électron libre dans le domaine du rayonnement X à SLAC (Stanford, USA). CHESSE : projet de LINAC à récupération d'énergie à Cornell (USA). SPPS et MAX IV : source LINAC ultrabref associé à un onduleur en cours de réalisation à SLAC (Stanford, USA) et en projet à Lund (Suède). Les premières expériences résolues en temps (au moins picoseconde) devraient commencer durant l'année 2004. Slicing : source basée sur le « découpage laser » d'un micro-paquet d'électron issu du faisceau d'électrons circulant dans un synchrotron de troisième génération à LBNL (Berkeley, USA). Pléiades : source basée sur la diffusion Thomson d'un laser femtoseconde avec un LINAC de durée de quelques picosecondes. En pointillé sont notées les sources en projet. B-49

Figure C-1 : Principe des deux types d'expériences pompe sonde. Le faisceau d'excitation (pompe) excite l'échantillon. A : Un faisceau de rayonnement X issu du même système laser que le faisceau d'excitation est utilisé pour sonder la réaction. La durée du flashe X est inférieure à la durée du processus à analyser. B : Un détecteur ultrarapide permet

d'enregistrer les variations de signal obtenues à partir d'un faisceau X quasi continu (durée d'impulsion très supérieure à la durée du processus à analyser). (©LA RECHERCHE) C-57

Figure C-2 : Système expérimental utilisé pour l'expérience de démonstration de la technique de diffraction X femtoseconde grâce à la source laser-plasma X-K α . A : sans faisceau d'excitation. B : avec faisceau d'excitation. (©LA RECHERCHE) C-58

Figure C-3 : Evolution du signal de diffraction X avant et après excitation par une impulsion laser de 120 fs. C-59

Figure C-4 : Diminution du signal de diffraction X ($-\Sigma_{\theta} [T(\theta) - R(\theta)]R(\theta) / \Sigma_{\theta} R(\theta)^2$) en fonction du retard suivant l'excitation laser. Les valeurs sont normalisées à la valeur obtenue après destruction de la surface du film. La valeur 1.0 correspond au signal mesuré après un retard infini (quelques minutes) suivant l'excitation laser. C-60

Figure C-5 : Description de la diffraction dans l'espace réciproque. La sphère d'Ewald (vert) est obtenue à partir de la relation de Laue ($s - s_0 = G$). s_0 et s sont les vecteurs d'onde incident et diffracté par le réseau cristallin représenté par le vecteur G . Les plans atomiques dans l'espace réciproque sont représentés par leur indice de Miller. Les plans pouvant être sondés par diffraction sont obtenus par intersection avec la sphère d'Ewald. C-62

Figure C-6 : Exploration du réseau réciproque en utilisant un faisceau de rayonnement X collimaté et polychromatique, ou divergent et monochromatique. La zone hachurée correspond à la région du réseau réciproque (plans (hkl)) accessible par chacune des deux méthodes. C-62

Figure C-7 : Test expérimental de la géométrie de diffraction permettant d'avoir accès à plusieurs taches de Bragg simultanément avec la source X-K α ultrabrève. C-63

Figure D-1 : Principe de la dynamique structurale suite à une excitation par un flash laser. Les temps caractéristiques des états transitoires peuvent être aussi brefs que quelques centaines femtosecondes. La cristallographie résolue en temps avec une telle résolution temporelle permet d'avoir accès au chemin complet d'un processus réactionnel, ainsi qu'aux effets précurseurs des transitions de phase macroscopiques. D-71

Figure D-2 : Simulations numériques du déplacement atomique suite à une excitation laser femtoseconde dans le cas du cristal semiconducteur d'InSb en fonction du temps et de la fluence d'excitation (Allen et al). D-74

Figure D-3 : Système expérimental pour l'étude de la transition de phase solide-liquide à l'aide de la technique de diffraction X femtoseconde. Le faisceau laser est séparé en trois faisceaux ; rouge : faisceau pour la source X ; bleu foncé : faisceau d'excitation de l'échantillon ; bleu clair : sonde optique (continuum) D-75

Figure D-4 : « Rocking curves » expérimentaux obtenus sur un échantillon d'InSb (100) pour une fluence d'excitation de 163 mJ/cm². D-76

Figure D-5 : Intensité X intégrée en fonction du retard suivant l'excitation de l'InSb. Le temps caractéristique de la diminution du signal de diffraction X (350 fs) présentés dans l'insert sont obtenus en effectuant un ajustement numérique par une exponentielle décroissante $I = I_0 \exp(-t/\tau)$ où I_0 est l'intensité du rayonnement X incident. D-76

Figure D-6 : Détermination de l'épaisseur de la couche liquide en fonction du flux d'excitation. Synthèse de l'ensemble des expériences réalisées avec les échantillons d'InSb (111), (100) et (100) coupés asymétriquement afin de modifier la profondeur de pénétration du rayonnement X à la surface du cristal semiconducteur. D-78

Figure D-7 : Evolution de l'épaisseur du film liquide en fonction du flux laser d'excitation et du temps. La densité électronique seuil pour laquelle la transition vers l'état liquide est obtenue est $N_s = 8.4 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$. D-79

Figure D-8 : Détermination de la durée du mécanisme de fusion non-thermique en fonction de la fluence d'excitation et de la profondeur de pénétration de la sonde X à la surface de l'échantillon. Synthèse de l'ensemble des expériences réalisées avec les échantillons d'InSb (111), (100) et (100) coupés asymétriquement afin de modifier la profondeur de pénétration du rayonnement X à la surface du cristal semiconducteur. On observe deux régimes au seuil de la transition: thermique (durée de plusieurs picosecondes) et non-thermique ($< 1 \text{ ps}$). D-80

Figure D-9 : Evolution de l'intensité X normalisée en fonction du retard suivant l'excitation (120 mJ/cm²). Les simulations (trait plein) sont réalisées en prenant en compte une durée de l'impulsion X égale à 200 fs ainsi que vitesse moyenne des déplacements atomiques de 4 Å/ps. D-80

Figure D-10 : Variation du carré du facteur de structure dans le cas du Bismuth et pour les plans atomiques (111) et (222) en fonction de la position relative des atomes dans la maille élémentaire. _____ D-83

Figure D-11 : Variation maximale du pic de diffraction (111) en fonction de l'épaisseur de la couche mince. _____ D-84

Figure D-12 : Simulation de l'effet du déplacement atomique durant l'oscillation des phonons optiques sur le signal de diffraction X résolue en temps à l'échelle femtoseconde. _____ D-84

Figure D-13 : Réflectivité optique en fonction du temps d'un échantillon de Bismuth pour un flux d'excitation de 5 mJ/cm^2 (noir). Ajustement numérique réalisé avec une seule fréquence d'oscillation de phonon correspondant au bismuth au repos : 2.92 THz (rouge). Les résultats expérimentaux sont bien représentés pour les paramètres notés sur la figure (influence de la population électronique excitée) qui traduisent la dérive de la fréquence en fonction du temps (figure de droite). _____ D-85

Figure D-14 : Résultats expérimentaux obtenus à partir de la technique de diffraction X femtoseconde sur la caractérisation des phonons optiques dans un cristal de Bismuth. _____ D-86

Figure D-15 : Modélisation de l'expérience de diffraction X avec une constante de temps de thermalisation électronique de 200 fs et la prise en compte des phonons incohérents. _____ D-87

Figure E-1 : Affiche de l'Ecole d'été internationale organisée à Cargèse du 13 au 19 juillet 2003 sur la thématique de la Science X Ultrarapide. _____ E-98

H. Liste des Tables

Table 1 *Caractéristiques de la source X idéale pour application en « science X ultrarapide »* B-20

Table 2 *Caractéristiques générales des 3 sources de rayonnement X ultrabref développées dans mon projet de recherche*..... B-20

I. Articles de référence

I.1.1. Production of a keV X-Ray Beam from Synchrotron Radiation in Relativistic Laser-Plasma Interaction, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 135005 (2004)

I.1.2. X-Ray Radiation from Nonlinear Thomson Scattering of an Intense Femtosecond Laser on Relativistic Electrons in a Helium Plasma, *Phys. Rev. Lett.* **19(91)**, 195001- 4 (2003)

I.1.3. Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution, *Nature* **410** (6824), 65-68 (2001)

I.1.4. Femtosecond x-ray crystallography, *Rev. Mod. Phys.* **73** (1), 17-31 (2001)

I.1.5. Femtosecond time-resolved x-ray diffraction from laser-heated organic films, *Nature* **390**, 490 (1997)