



HAL
open science

Optimisation de la génération d'harmoniques d'ordre élevé et application à l'interférométrie UVX résolue en temps.

Jean-François Hergott

► To cite this version:

Jean-François Hergott. Optimisation de la génération d'harmoniques d'ordre élevé et application à l'interférométrie UVX résolue en temps.. Physique [physics]. Université Paris Sud - Paris XI, 2001. Français. NNT: . tel-00081880

HAL Id: tel-00081880

<https://theses.hal.science/tel-00081880>

Submitted on 26 Jun 2006

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.

l'UNIVERSITE PARIS XI
UFR SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE

Présentée pour obtenir

le GRADE de DOCTEUR EN SCIENCES
DE l'UNIVERSITE PARIS XI ORSAY

Spécialité : Lasers et Matière

Par

Jean-François HERGOTT

Sujet de la thèse :

***Optimisation de la génération d'harmoniques d'ordre élevé
et application à l'interférométrie UVX résolue en temps.***

Soutenue le **17 septembre 2001** devant le jury composé de :

- M. J. Bauche Président
- Mme. A. L'Huillier Rapporteur
- Mme. A. Klisnick Rapporteur
- M. G. de Lachèze-Murel
- M. C. Stenz
- M. P. Salières

TABLE DES MATIERES.

Introduction générale	1
------------------------------	----------

Chapitre I : Généralités sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz rares.8

Introduction.	8
A. Description des systèmes expérimentaux.	9
1. Les lasers.	9
2. Le milieu atomique.	11
3. L'analyse spectrale.	14
4. Les systèmes de détection.	16
B. Principales dépendances des spectres.	17
1. Spectre caractéristique.	18
2. Influence de l'éclairement laser.	19
3. Influence de la durée de l'impulsion fondamentale.	20
4. Influence de la longueur d'onde génératrice.	21
5. Influence de la nature du milieu.	22
6. Influence de la densité du milieu atomique.	24
7. Modèle semi-classique.	25
C. Rappels théoriques concernant l'émission harmonique.	28
1. Réponse de l'atome unique dans l'approximation SFA.	29
2. Réponse macroscopique du milieu.	34
2.1 Equations de propagation dans un milieu dispersif.	35
2.2 Conditions d'accord de phase dans le cas d'un faisceau fondamental Gaussien.	39
Conclusion	43

Chapitre II : Génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les fibres creuses. 45

Introduction.	45
1. Contexte	45
2. Rappels théoriques sur la propagation d'un faisceau dans une fibre creuse.	46
2.1 Généralités.	46
2.2 Constantes de propagation des modes propres de la fibre creuse.	48
2.3 Mode fondamental EH_{11} dans la fibre creuse.	49
A. Etude expérimentale.	50
1. Etude de l'efficacité de génération dans un capillaire.	50
1.1 Dispositif expérimental et couplage du laser dans le capillaire.	50
1.2 Etude de l'émission harmonique en fonction des paramètres de génération.	52
1.2.1 Spectre harmonique en fonction de l'énergie laser.	52
1.2.2 Effet de la pression sur l'émission harmonique.	57
2. Etude des profils d'émission dans les capillaires.	60
2.1 Dispositif expérimental.	60
2.2 Profils d'émission en champ lointain des harmoniques.	61

2.3	Analyse détaillée des profils d'émission.	65
B.	Etude théorique et simulations de l'émission harmonique dans les capillaires.	69
1.	Eléments de théorie sur l'émission harmonique.	69
1.1	Description de l'accord de phase.	69
1.2	Influence de l'absorption.	75
2.	Description du code de propagation.	79
3.	Emission harmonique dans un capillaire.	81
3.1	Signal émis en fonction de la pression et effet de l'ionisation.	81
3.2	Variation des caractéristiques de la fibre.	85
3.2.1	Longueur de milieu et absorption.	85
3.2.2	Rayon interne de la fibre.	87
4.	Etude de l'accord de phase dans un capillaire.	88
4.1	Profils d'émission en champ lointain.	88
4.2	Profils spectraux des harmoniques.	97
4.2.1	Généralités	97
4.2.2	Simulations des spectres dans le cas de l'argon.	99
	Conclusion.	105
 <i>Chapitre III : Optimisation de l'émission harmonique dans un jet. .</i>		107
	Introduction.	107
A.	Etude expérimentale des effets de pression et de longueur sur l'efficacité harmonique.	109
1.	Dispositif expérimental.	109
2.	Influence de la longueur du milieu générateur sur les spectres	110
3.	Etude détaillée des effets de pression et de longueur.	112
B.	Etude théorique et simulations.	114
1.	Etude théorique à l'aide d'un modèle 1D.	114
1.1	Rappel des longueurs caractéristiques.	114
1.2	Fit des courbes expérimentales à l'aide d'un modèle 1D.	116
2.	Simulations 3D.	120
3.	Discussion en fonction des longueurs caractéristiques de la génération.	125
C.	Mesure absolue du nombre de photons harmoniques émis.	127
1.	Calibration du spectromètre UVX.	128
2.	Mesure du nombre absolu de photons.	132
2.1	Principe de la mesure.	132
2.2	Le détecteur.	132
2.3	Résultats.	136
D.	Comparaison avec d'autres résultats.	138
1.	Nombre de photons obtenus avec des lasers ultra - courts.	138
2.	Nombre de photons obtenus lors de la génération dans les fibres creuses.	141
	Conclusion.	142

Chapitre IV : Focalisation du rayonnement UVX par génération d'harmoniques.	144
Introduction.	144
A. Principe d'une lentille de Bragg – Fresnel.	145
1. Rappels généraux.	145
2. Principales caractéristiques d'une optique de Bragg–Fresnel.	148
2.1 Expression du rayon et de l'épaisseur des zones.	148
2.2 Distance focale et profondeur de champ.	150
B. Mesure de la tache focale au foyer d'une lentille de Bragg-Fresnel.	151
1. Dispositif expérimental.	151
2. Principe de la mesure.	153
3. Mesure de la taille du faisceau harmonique au foyer de la LBF.	155
4. Estimation de l'éclairement atteint à 21,6nm.	161
4.1 Réflectivité de la LBF.	161
4.2 Efficacité de diffraction dans l'ordre 1 de la LBF.	163
4.3 Eclairement atteint et perspectives.	164
C. Tentative de mesure directe du front d'onde harmonique.	166
1. Principe de la méthode.	166
2. Dispositif expérimental et résultats préliminaires.	168
Conclusion.	172
Chapitre V : Interférométrie spatiale à deux sources harmoniques.	173
Introduction.	173
A. Génération de deux sources harmoniques mutuellement cohérentes séparées spatialement.	176
1. Rappel des propriétés de cohérence.	176
1.1 Cohérence propre.	177
1.1.1 Cohérence spatiale.	178
1.1.2 Cohérence temporelle.	179
1.2 Cohérence mutuelle.	180
2. Démonstration expérimentale de la cohérence mutuelle.	180
2.1 Dispositif expérimental.	180
2.2 Dépendances des interférogrammes.	182
2.2.1 Variation avec l'ordre de non linéarité.	183
2.2.2 Variation avec la distance d.	184
2.2.3 Variation du contraste avec l'intensité relative de chaque bras.	186
3. Mesure du temps de cohérence.	188
3.1 Résultats expérimentaux.	188
3.2 Interprétation.	190
B. Application de l'interférométrie spatiale au diagnostic d'objets déphasants.	190
1. Intérêt des harmoniques d'ordre élevé pour l'interférométrie UVX.	190
2. Dispositif expérimental.	191
2.1 Etude d'un filtre en « marche d'escalier ».	193
2.2 Mesure de la densité électronique d'un plasma produit par laser.	197
2.2.1 Rappels sur l'indice de réfraction d'un plasma.	197
2.2.2 Cartographie 2D de la densité électronique du plasma.	199
Conclusion.	204

Chapitre VI : Interférométrie fréquentielle avec les harmoniques.	206
Introduction.	206
A. Interférométrie fréquentielle à 2 sources.	207
1. Principe de l'interférométrie fréquentielle.	207
1.1 Rappels.	207
1.2 Formulation mathématique.	208
2. Interférométrie fréquentielle avec les harmoniques.	210
2.1 Principales difficultés.	211
2.2 Dispositif expérimental.	212
2.3 Evolution des spectres cannelés avec les paramètres de génération.	213
2.3.1 Variation de l'interfrange avec l'ordre harmonique q .	213
2.3.2 Variation de l'interfrange avec le délai Δt .	214
2.3.3 Influence de l'éclairement laser sur les spectres.	216
2.3.4 Asymétrie des spectres expérimentaux.	217
B. Interférométrie fréquentielle à 4 sources.	220
1. Généralités.	221
1.1 Formulation mathématique.	221
1.2 Effet du délai ΔT entre les deux couples sur l'interférogramme.	224
1.2.1 T proche de $2\Delta t$.	224
1.2.2 T grand devant $2\Delta t$.	225
2. Démonstration expérimentale de l'interférométrie fréquentielle à 4 impulsions.	226
2.1 Dispositif expérimental.	226
2.1.1 Génération des 4 impulsions.	226
2.1.2 Calibration des platines de translation.	228
2.2 Résultats expérimentaux.	229
2.2.1 Exemples d'images au foyer spectral du spectromètre UVX.	229
2.2.2 Analyse des profils de coupe.	231
C. Application de la technique d'interférométrie fréquentielle à deux sources au diagnostic d'un plasma.	236
1. Plasma produit par un jet atomique dense.	237
1.1 Dispositif expérimental.	237
1.2 Mesure de la densité électronique du plasma.	238
2. Plasma produit par cible solide.	241
2.1 Dispositif expérimental.	242
2.2 Résultats expérimentaux.	243
D. Comparaison et perspectives des 2 techniques d'interférométrie spatiale et spectrale.	245
Conclusion.	247
Conclusion générale	249
Références bibliographiques	253
Annexe	A.1

Introduction générale.

Dans le livre « *The principles of nonlinear optics* », bien connu des étudiants en optique non-linéaire, l'auteur, Y.R. Shen, débutait en écrivant : « *While linearization beautifies physics, nonlinearity provides excitement in physics* ». La génération d'harmoniques d'ordre élevé permet d'atteindre des ordres de non-linéarité extrêmes, comme nous le verrons dans la suite. On comprend ainsi l'agitation croissante autour de ce phénomène depuis sa découverte.

La génération d'harmoniques, démontrée initialement dans un cristal par Franken *et al.* (1961), puis dans un gaz par New et Ward (1967), a rendu possible la génération de rayonnement cohérent à des longueurs d'onde où il n'existait pas de laser. Cependant, l'efficacité de conversion, rapidement décroissante avec l'ordre de non linéarité, a longtemps limité les études à des ordres faibles (~ 9). L'essor des lasers intenses durant ces vingt dernières années a permis l'observation de nouveaux phénomènes non linéaires lors de l'interaction des atomes avec des champs excitateurs extrêmement forts, tels que l'ionisation multiphotonique (Aleksakhin *et al.* 1977), l'ionisation au dessus du seuil (ATI) (Agostini *et al.* 1979), ou encore la génération d'harmoniques d'ordre élevé, qui est un des processus les plus remarquables. Elle a notamment permis de repousser les limites d'observation du phénomène jusqu'à des ordres de non linéarité supérieurs à 301 (Spielmann *et al.* 1997).

Plus généralement, la génération d'harmoniques d'ordre élevé a lieu lors de l'interaction non linéaire d'un milieu atomique avec une impulsion laser courte et intense (10^{13} - 10^{15} W/cm²). Le spectre d'émission présente une allure caractéristique : après une rapide décroissance de l'efficacité de génération pour les premiers ordres, l'efficacité de conversion reste ensuite quasi constante jusqu'à des ordres élevés (région dite du *plateau*) avant de chuter rapidement dans la *coupure* du spectre. Le processus ne peut alors plus être décrit par la théorie des perturbations à l'ordre le plus bas, qui permet de décrire avec succès les ordres faibles de non linéarité. La première observation expérimentale de ces spectres caractéristiques a eu lieu quasi simultanément dans deux laboratoires à la fin des années 80, par l'équipe de Rhodes et coll. à Chicago (McPherson *et al.* 1987) et par celle de Mainfray et coll. à Saclay (Ferry *et al.* 1988). Les études expérimentales qui suivirent eurent principalement pour but d'augmenter l'étendue du plateau et d'optimiser l'efficacité de conversion (Macklin *et al.* 1993, L'Huillier *et al.* 1993). La course à la plus courte longueur d'onde générée était lancée, suivant les progrès des lasers. Une longueur d'onde UVX de 7,4nm (harmonique 143) était atteinte en focalisant un laser Nd :verre à 1053 nm dans un jet de gaz rare (Perry *et al.* 1994), 6,7 nm en générant l'harmonique 37 d'un laser KrF à 248nm (Preston *et al.* 1996). Récemment, la technologie Ti :Saphir, qui permet de générer des

impulsions laser ultra-courtes (de 5 à 25 fs), a repoussé la limite du plateau dans la fenêtre de l'eau entre 2,7 nm et 4,5 nm (Chang *et al.* 1997, Spielmann *et al.* 1997).

A partir de simulations numériques de la réponse d'un atome unique soumis à un champ laser intense (résolution de l'équation de Schrödinger dépendant du temps), Krause, Schafer et Kulander proposèrent la première loi de coupure vraisemblable expliquant l'étendue des spectres (Krause *et al.* 1992). L'énergie maximale de photon atteinte en fin de plateau est donnée par la loi de coupure simple : $I_p + 3U_p$, où I_p est le potentiel d'ionisation de l'atome et U_p l'énergie pondéromotrice (énergie moyenne d'un électron libre acquise au cours de son oscillation dans le champ laser). Cette loi n'est valable que jusqu'à l'éclairement de saturation, pour lequel le milieu s'ionise, et où l'on retrouve qualitativement les différentes dépendances expérimentales observées sur les spectres. Le modèle semi-classique en trois étapes, proposé peu après (Kulander *et al.* 1993, Corkum 1993), permet de donner une image physique simple du phénomène dans un régime de champ fort lentement variable : tout d'abord l'électron traverse par effet tunnel la barrière de potentiel Coulombien abaissée par le champ laser. L'électron oscille alors dans le champ laser quasi-librement, l'influence de la force de Coulomb étant négligée. Finalement, si l'électron revient à proximité du noyau, il peut se recombiner radiativement à l'état fondamental en émettant un photon d'énergie I_p plus l'énergie cinétique acquise au cours de son oscillation dans le champ. Des simulations classiques donnent pour cette énergie cinétique la valeur de $3U_p$, retrouvant ainsi la loi de coupure. Ce modèle simple implique que l'efficacité de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dépend fortement de la polarisation du laser, et devrait chuter dans le cas d'une polarisation elliptique, puisque l'électron libéré dans un tel champ n'a qu'une très faible probabilité de revenir à proximité du noyau et donc de se recombiner (Corkum 1993, Corkum *et al.* 1994). De nombreuses études sur les propriétés des harmoniques générées par des champs polarisés elliptiquement ont été effectuées, aussi bien sur le plan expérimental (Burnett *et al.* 1995, Antoine *et al.* 1997a) que sur le plan théorique (Becker *et al.* 1997, Antoine *et al.* 1996b), confirmant la validité du modèle en trois étapes.

Lewenstein et ses collaborateurs (Lewenstein *et al.* 1994, 1995) ont développé un modèle purement quantique de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans l'approximation des champs forts – basse fréquence (« Strong Field Approximation », SFA), qui retrouve, en les justifiant, les hypothèses du modèle semi-classique. Il permet de calculer le dipôle atomique $x(t)$ en fonction du temps, qui se présente comme un train quasi périodique d'élongations au cours desquelles un train quasi périodique d'impulsions ultra-brèves est rayonné (Antoine *et al.* 1996a). Le spectre de Fourier de ce train d'impulsions a des composantes aux différentes fréquences $q\omega$, impaires, de la fréquence fondamentale, qui sont les termes sources de l'émission harmonique. Dans certaines conditions de génération les différentes harmoniques conservent une relation de phase les unes avec les autres, résultant en un train d'impulsions attosecondes ($1\text{as}=10^{-18}\text{s}$) (Paul *et al.* 2001). Une autre conséquence importante du modèle est que chaque composante $q\omega$ oscille avec un déphasage proportionnel

à l'éclairement laser, par rapport à la fréquence fondamentale directement reliée à l'action acquise par l'électron le long des deux trajectoires principales contribuant à l'émission (Salières *et al.* 2001). Elle va influencer considérablement les propriétés temporelles, spectrales et spatiales du faisceau harmonique émis.

En plus de cette réponse microscopique, la modélisation du phénomène de génération d'harmonique doit rendre compte de la réponse macroscopique du milieu, à savoir la propagation des champs dans un milieu dispersif. Le premier code de propagation 3D a été développé par Anne L'Huillier (L'Huillier *et al.* 1992), rendant compte de manière réaliste des observations expérimentales. Il modélise la construction du champ harmonique dans le milieu émetteur, en incluant les variations spatiales et temporelles du champ fondamental, les différents termes de dispersion et l'effet de l'ionisation. Tous ces paramètres définissent les conditions d'accord de phase entre le champ harmonique et la polarisation non linéaire, terme source de l'émission. Ce code de propagation permet ainsi de rendre compte de façon remarquable des différentes propriétés de l'émission harmonique. Il existe désormais plusieurs codes de propagation qui sont couplés à des codes de calcul du dipôle atomique effectué en général dans l'approximation SFA (Priori *et al.* 2000, Tempea *et al.* 2000).

Les progrès accomplis, aussi bien du point de vue des techniques expérimentales que du point de vue de la compréhension théorique, ont motivé de nombreuses études d'optimisation et de contrôle des propriétés des harmoniques en fonction des différents paramètres du laser et du milieu générateur. Ces études concernent, entre autres, la polarisation du laser générateur (discutée précédemment), la longueur d'onde et la durée de l'impulsion fondamentale (Balcou *et al.* 1992, Kondo *et al.* 1993, Salières *et al.* 1995b, Ditmire *et al.* 1995, Christov *et al.* 1996, Priori *et al.* 2000, Schnürer *et al.* 1999, Tempea *et al.* 2000). Il a également été proposé de générer les harmoniques à partir de deux fréquences fondamentales, l'une fixe et l'autre variable, afin d'obtenir des harmoniques continûment accordables (Eichmann *et al.* 1994, Gaarde *et al.* 1996). On contourne ainsi la difficulté d'accorder les lasers Ti :Saphir femtosecondes. L'influence de la nature du milieu générateur sur l'émission harmonique a également été largement étudiée : tout d'abord les gaz rares, qui restent les plus utilisés (Balcou 1993), mais aussi les ions de gaz rare (Wahlström *et al.* 1993, Preston *et al.* 1996), les gaz moléculaires (Chin *et al.* 1995, Lyngå *et al.* 1996) ou encore les agrégats atomiques (Donnelly *et al.* 1997). Signalons que la génération d'harmoniques par cible solide ou par plasma produit par laser a également été étudiée (Pukhov *et al.* 1996, von der Linde *et al.* 1995). Les études de l'influence de la densité (Altucci *et al.* 1996) et de la longueur du milieu émetteur (Delfin *et al.* 1999) sur la génération d'harmoniques ont mené à l'optimisation de l'efficacité de conversion et du nombre de photons générés.

De nouvelles formes de conditionnement du gaz, qui augmentent le volume d'interaction entre le laser et le milieu émetteur, ont été proposées afin d'optimiser cette efficacité de génération : cellule de gaz (Tamaki *et al.* 1999), fibre creuse remplie de gaz (Rundquist *et al.* 1998). Des études récentes ont déterminé différents régimes d'accord de

phase, en fonction des valeurs des longueurs caractéristiques de la génération d'harmoniques (longueurs du milieu, de cohérence et d'absorption) (Schnürer *et al.* 1999, Constant *et al.* 1999).

La génération d'harmoniques d'ordre élevé, phénomène piloté par le champ fondamental, en tire la plupart de ses propriétés, modifiées cependant par la physique propre à ce régime d'interaction : influence de la phase du dipôle atomique, effets de la dispersion électronique introduite par l'ionisation etc. La détermination précise des caractéristiques temporelles, spectrales et spatiales, donc des faisceaux harmoniques émis, est importante, tant du point de vue fondamental que du point de vue de l'utilisation de cette source de rayonnement UVX.

La distribution spatiale de l'émission harmonique a été étudiée par plusieurs groupes dans diverses conditions expérimentales. Un des résultats les plus marquants a été l'étude des profils d'émission en fonction des paramètres d'accord de phase (Salières *et al.* 1995b) : lorsque le laser est focalisé avant le milieu atomique, l'émission harmonique a lieu préférentiellement sur l'axe de propagation du laser et présente des profils très réguliers. Par contre, lorsque le laser est focalisé dans le jet ou après, les profils d'émission peuvent être fortement annulaires, résultat d'un accord de phase hors axe. Cette variation des profils est interprétée comme un effet direct de la phase du dipôle sur l'accord de phase. La bonne qualité de faisceau obtenue dans certaines conditions de génération permet ainsi de focaliser efficacement le rayonnement harmonique (Le Déroff *et al.* 1998). D'autre part, une première expérience de mesure du degré de cohérence spatiale a été effectuée par (Ditmire *et al.* 1996) dans une expérience d'interférométrie de type fentes d'Young. Des mesures récentes, par une technique d'interférométrie à bi-miroir de Fresnel, confirment le haut degré de cohérence spatiale sur toute la section du faisceau harmonique, dans certaines conditions de génération (Le Déroff *et al.* 2000a).

Une propriété importante des impulsions harmoniques est leur durée ultra courte, même inférieure à celle des impulsions fondamentales. Des méthodes de mesure de durées femtosecondes dans l'UVX ont ainsi dû être développées. Elles sont basées sur la spectroscopie des photoélectrons produits lors de l'ionisation d'atomes par l'impulsion harmonique en présence de l'impulsion fondamentale (Schins *et al.* 1996, Glover *et al.* 1996 Bouhal *et al.* 1997, Toma *et al.* 2000). Récemment il a été possible de mesurer une impulsion UVX (13,5 nm) de 1,8fs alors que le laser générateur avait une durée de 7fs (Drescher *et al.* 2001). La durée de l'harmonique est alors inférieure à la durée d'un cycle optique du laser fondamental (2,7fs).

L'étude des profils spectraux, notamment en fonction des conditions de focalisation, renseigne elle aussi sur le processus d'accord de phase. Elle permet d'une part de séparer les contributions des différentes trajectoires électroniques à l'émission harmonique, mais aussi de mesurer la valeur de la modulation de fréquence introduite par la variation temporelle de la phase de la polarisation non linéaire (LeDéroff *et al.* 1999, Salières *et al.* 2001).

L'élargissement – décalage des spectres harmoniques induits par l'ionisation du milieu est décrit par (Wahlström *et al.* 1993), alors que les propriétés spectrales des harmoniques générées à partir d'impulsions lasers « chirpées » ont été étudiées par (Zhou *et al.* 1996). La mesure du temps de cohérence temporelle des harmoniques 11 à 27 générées dans l'argon (Bellini *et al.* 1998, Lyngå *et al.* 1999) a révélé une séparation spatiale des contributions des deux principales trajectoires électroniques contribuant à l'émission, qui présentent des temps de cohérence très différents. Enfin, la génération d'harmoniques d'ordre élevé se distingue des autres sources UVX par la possibilité de produire deux sources harmoniques bloquées en phase séparées dans l'espace (Zerne *et al.* 1997) ou dans le temps (Salières *et al.* 1999). Cette propriété unique permet d'observer des franges d'interférences, respectivement dans les domaines spatial et spectral.

Les différentes propriétés de la source UVX produite par génération d'harmoniques (brillance, courte durée, synchronisation naturelle avec le fondamental, qualité de faisceau, cohérence spatiale, temporelle et mutuelle) en font un outil remarquable et unique pour de nombreuses applications dans différents domaines de la physique. Après la phase d'études du processus fondamental de la génération d'harmoniques, la caractérisation précise de cette source UVX a ouvert la voie à des applications de type pompe-sonde en physique atomique (Larsson *et al.* 1995, Gisselbrecht *et al.* 1999), moléculaire (Sorensen *et al.* 2000) et des surfaces (Haight *et al.* 1993). Cependant, un plus grand nombre d'applications serait rendu possible par une augmentation du nombre de photons harmoniques générés.

Au début de ce travail de thèse fin 1998, la situation est donc la suivante. Le phénomène de génération d'harmoniques dans les conditions « classiques » (focalisation d'un faisceau laser dans un jet de gaz) est relativement bien compris et caractérisé. Mais le besoin d'optimisation de l'émission conduit à la proposition de nouvelles formes de conditionnement du gaz telles que les cellules ou les fibres. En outre, les tentatives d'observation de phénomènes non linéaires dans l'UVX (ionisation à 2 photons harmoniques) restent infructueuses malgré la bonne qualité de faisceau et la durée ultracourte de l'émission harmonique. Ceci pose la question technique de la bonne focalisation du faisceau harmonique. Enfin, les propriétés uniques de cohérence de la source harmonique n'ont toujours pas été exploitées dans les applications. Le travail de thèse s'est articulé autour de ces trois aspects.

Tout d'abord, nous nous sommes consacrés à l'étude approfondie du processus d'accord de phase dans les fibres creuses, qui a fait l'objet de deux expériences, l'une à Saclay, l'autre à Bordeaux en collaboration avec E. Constant et E. Mevel du laboratoire CELIA (Hergott *et al.* 2001a). L'optimisation de l'efficacité de génération a ensuite été étudiée à Saclay dans un jet long (Hergott *et al.* 2001b). Dans un deuxième temps, nous avons utilisé la qualité du faisceau harmonique pour tester la focalisation du rayonnement par une optique multicouche diffractive nouvellement développée, appelée lentille de Bragg – Fresnel, en collaboration avec Ph. Zeitoun et S. Le Pape du LSAI d'Orsay (Le Pape *et al.* 2001b). Pour finir, nous avons voulu démontrer la possibilité d'appliquer la source UVX par

génération d'harmoniques à l'interférométrie UVX, en utilisant la propriété de cohérence mutuelle de deux sources harmoniques séparées soit spatialement soit temporellement. Ces deux techniques ont alors été utilisées pour démontrer la possibilité de mesures directes, résolues en temps à l'échelle femtoseconde, de densités électroniques dans des plasmas denses. L'application de l'interférométrie UVX spatiale au diagnostic plasma (Descamps *et al.* 2000) a été effectuée au Lund Laser Center (Suède) en collaboration avec D. Descamps, C. Lyngå, J. Norin, C.G. Wahlström et A. L'Huillier dans le laboratoire du Professeur S. Svanberg. L'interférométrie UVX spectrale (Salières *et al.* 1999) a été développée à Saclay en collaboration avec l'équipe plasma (T. Auguste, P. Monot, P. D'Oliveira). Notons qu'une expérience d'application en physique du solide (dynamique de relaxation d'électrons dans la bande de conduction d'isolants) a également été réalisée en collaboration avec F. Quéré, S. Guizard et Ph. Martin du SRSIM. Cette étude, détaillée dans la thèse de F. Quéré, ne le sera pas ici (Quéré *et al.* 2000)

Le manuscrit de thèse comprend six chapitres selon le plan suivant :

- I. Après avoir détaillé les différents systèmes expérimentaux utilisés, nous rappelons, à partir de spectres expérimentaux, les principales caractéristiques de la génération d'harmoniques, qui dépendent du laser générateur (éclairage laser, durée, longueur d'onde) et du milieu non linéaire (nature du gaz, densité atomique). Nous indiquons les différentes étapes du calcul du dipôle atomique dans l'approximation SFA ainsi que les équations de propagation des champs dans le milieu macroscopique.
- II. Nous développons l'étude détaillée de l'accord de phase lors de la génération d'harmoniques dans les fibres creuses. Pour cela, nous étudions les profils d'émission en champ lointain en fonction de la pression, signature de la manière dont se réalise l'accord de phase. Les simulations des profils spatiaux et spectraux permettent de déterminer les paramètres importants de cette émission. Ils sont discutés en terme de trajectoire contribuant à l'émission.
- III. Dans ce chapitre, nous présentons une étude expérimentale et théorique de l'optimisation de l'efficacité de conversion macroscopique, en fonction de la longueur du milieu et de la densité atomique. Nous mettons l'accent sur les différents régimes d'accord de phase en précisant le facteur limitant. Des mesures absolues du nombre de photons optimisé concluent ce chapitre.
- IV. L'étude de la focalisation du faisceau harmonique par une lentille de Bragg - Fresnel est présentée dans la quatrième partie. Les propriétés particulières de ce type d'optique diffractive sont détaillées. La taille du faisceau au foyer de la lentille permet d'estimer

l'éclairement atteint. Une tentative de mesure directe du front d'onde harmonique a été tentée par une technique de Shack – Hartmann UVX.

- V. Nous présentons une expérience d'interférométrie UVX spatiale, à partir de deux sources harmoniques mutuellement cohérentes séparées spatialement. Dans un premier temps, nous démontrons la possibilité d'étudier par cette technique des objets déphasants. Dans un deuxième temps, cette technique originale est appliquée à la mesure de densité électronique d'un plasma créé sur cible solide. Les résultats expérimentaux sont confirmés par des simulations.
- VI. Ce dernier chapitre présente la possibilité de générer deux sources harmoniques séparées en temps mais bloquées en phase, pouvant donc produire des interférences dans le domaine des fréquences. L'étude de ces interférogrammes en fonction des paramètres de génération renseigne sur le « chirp » de l'harmonique et la dynamique d'ionisation. L'interférométrie fréquentielle est ensuite étendue à 4 sources, démontrant la possibilité de produire 4 sources harmoniques bloquées en phase. La technique d'interférométrie à 2 sources est enfin utilisée pour la mesure résolue en temps de la densité électronique d'un plasma créé par laser dans un jet d'hélium. Une tentative de mesure en transmission sur un plasma créé sur feuille mince est présentée.

Chapitre I : Généralités sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz rares.

Introduction.

Dans ce manuscrit, nous traitons des harmoniques d'un rayonnement laser de fréquence ω , générées lors de l'interaction non linéaire du faisceau laser avec un gaz rare. Des éclairagements de l'ordre de 10^{13} W/cm² à 10^{15} W/cm² doivent alors être atteints afin de réaliser le processus hautement non linéaire. La génération d'harmoniques d'ordre élevé a donc largement profité de l'évolution des lasers de puissance à courte durée d'impulsion (quelques dizaines de femtosecondes), que l'on focalise afin d'atteindre dans le milieu atomique l'éclairage nécessaire. Différents systèmes, concernant aussi bien le milieu atomique que le dispositif d'analyse du rayonnement UVX produit, peuvent être utilisés. Les harmoniques d'ordre élevé peuvent être générées en focalisant un laser soit dans un jet de gaz pulsé ou une cellule, soit en couplant le laser générateur dans une fibre creuse remplie de gaz rare.

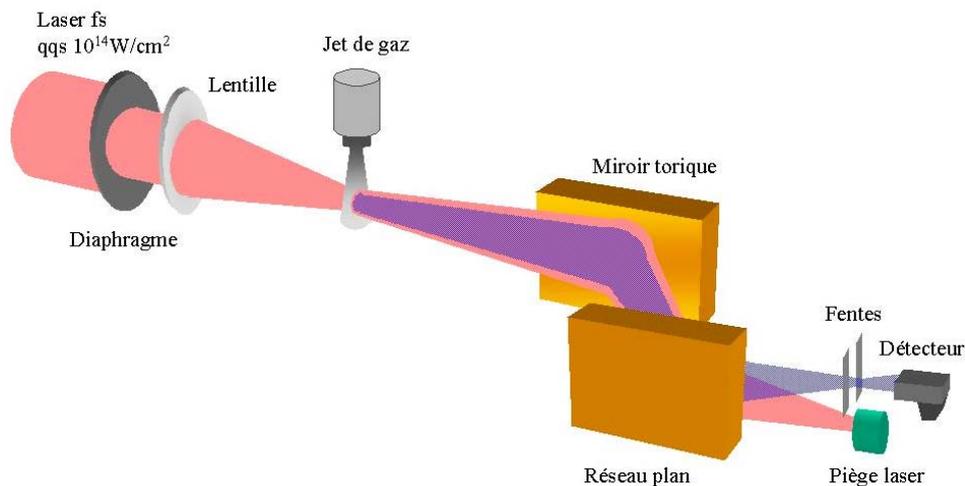


Figure I-1 : Schéma du montage expérimental pour la génération et l'analyse spectrale du rayonnement harmonique.

Le rayonnement ainsi produit peut alors être analysé spectralement dans un spectromètre UVX, permettant de sélectionner une seule harmonique. D'autres dispositifs utilisent des miroirs multicouches pour la sélection spectrale. Le rayonnement est alors mesuré avec un détecteur sensible dans le domaine spectral des harmoniques. En Figure I-1, nous présentons un schéma du dispositif de génération utilisé au laboratoire. Ainsi, dans notre cas, le laser LUCA est focalisé dans un jet de gaz pulsé. Le rayonnement harmonique alors émis sur l'axe de propagation du laser est analysé à l'aide d'un spectromètre UVX. Un photomultiplicateur UVX mesure le signal transmis par la fente de sortie du spectromètre.

Nous allons maintenant présenter succinctement les différents systèmes (laser, milieu atomique, optiques et détection) utilisés pour réaliser les études présentées dans ce manuscrit.

A. Description des systèmes expérimentaux.

1. Les lasers.

Les différentes caractéristiques du laser utilisé pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé sont très importantes. Ce processus non linéaire est en effet « piloté » par le champ fondamental d'excitation, c'est-à-dire que ses principales propriétés sont transposées aux champs harmoniques émis. Ainsi une bonne qualité de faisceau aussi bien spatiale que spectrale ou encore temporelle est nécessaire. De plus afin d'obtenir les éclaircissements nécessaires à la génération d'harmoniques d'ordre élevé, il faut produire des impulsions courtes et énergétiques. La longueur d'onde du laser joue elle aussi un rôle important ; elle détermine notamment l'extension des spectres d'émission harmonique. L'influence de ces différents paramètres sera détaillée dans la section B.7 en considérant la loi de coupure.

La majeure partie des expériences présentées dans ce manuscrit ont été réalisées sur la chaîne laser femtoseconde LUCA (Laser Ultra-Court Accordable) du CEA-DRECAM. D'autres résultats ont été obtenus lors de collaborations avec différentes équipes, soit au sein du service avec l'équipe d'étude des plasmas sur le laser UHI10 (Ultra Haute Intensité 10TW), soit avec des équipes extérieures comme le CELIA de Bordeaux avec un système kHz courte durée (30fs) ou le Lund Laser Center en Suède avec un laser aux caractéristiques très proches du laser LUCA de Saclay. Ces différents lasers sont tous issus de la technologie Titane-Saphir et basés sur des techniques de compression et d'amplification similaires. Nous rappelons les grandes lignes de la génération d'impulsions courtes et les grandeurs caractéristiques du laser LUCA.

Pour générer des impulsions laser de courte durée il est nécessaire de démarrer avec une impulsion ayant un large spectre. Ceci est obtenu, par exemple, dans les cristaux d'oxyde d'aluminium dopé Titane (Titane-Saphir), qui présentent un spectre d'émission d'une largeur

d'environ 200nm. L'avantage d'un tel cristal est qu'il présente naturellement une large bande spectrale à gain élevé qui ne nécessite donc pas d'allongement spectral supplémentaire pour obtenir des impulsions intenses et brèves. L'étirement temporel est nécessaire avant amplification, afin de diminuer l'éclairement crête de l'impulsion et ainsi éviter les effets non linéaires dans les milieux amplificateurs du système laser, qui peuvent endommager les barreaux. La technique utilisée pour réaliser cet étirement temporel est la méthode de dérive de fréquence CPA (Chirped Pulse Amplification) (Strickland *et al.* 1985). Elle consiste à introduire une dispersion temporelle dans le spectre de l'impulsion ; par exemple, le côté bleu suit un trajet optique plus long que le côté rouge. Cette impulsion « longue » est amplifiée pour atteindre l'énergie désirée puis recomprimée à l'aide d'un compresseur dont le réglage permet de compenser au mieux la dispersion introduite par l'étireur. On retrouve ainsi, après amplification, des impulsions de durée équivalente à celles en sortie d'oscillateur.

Un schéma de principe de la chaîne laser Femto2 de LUCA est représenté en Figure I-2. L'oscillateur Titane-Saphir à couplage de mode par effet Kerr, pompé par un laser à argon ionisé, délivre des impulsions de 25fs (énergie 5nJ) grâce à la courte longueur du cristal. Elles sont ensuite injectées dans un étireur de Offner (Chériaux *et al.* 1996), système totalement réfléchitif, achromatique et sans aberrations, qui réalise l'étirement temporel : l'impulsion passe à 300 ps. L'amplificateur régénératif (résonateur laser) et le booster (pré-amplificateur), augmentent respectivement l'énergie de l'impulsion à 1 et 16 mJ, en faisant passer l'impulsion étirée dans un milieu amplificateur. Le dernier étage d'amplification est un amplificateur multipassage de structure papillon, permettant de nombreux passages dans le milieu amplificateur selon des trajets différents (Georges *et al.* 1991). Les milieux amplificateurs sont pompés par des lasers YAG doublés en fréquence.

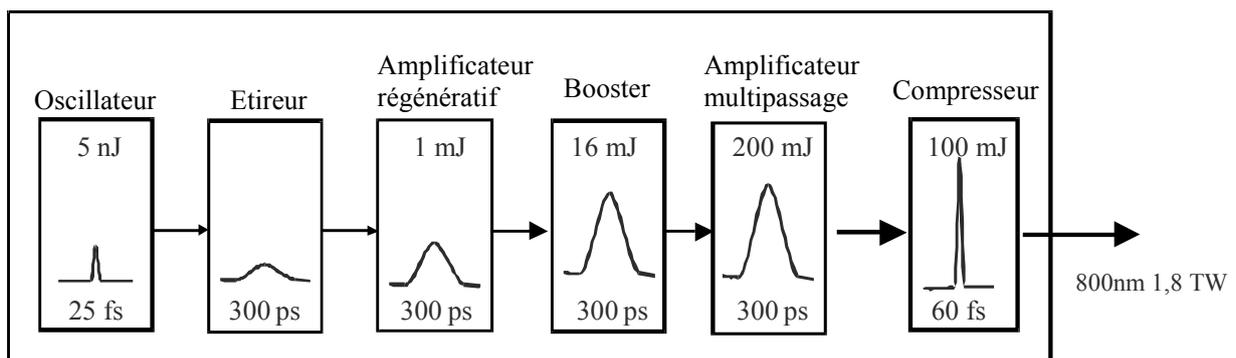


Figure I-2 : Schéma de principe de la chaîne laser LUCA.

Les impulsions en sortie de ce dernier étage ont alors une durée de 300ps et une énergie de 200mJ. Enfin, le compresseur permet d'obtenir des impulsions de 100mJ à 800nm avec une

durée de l'ordre de 60fs. La Figure I-3 représente une trace d'autocorrélation de l'impulsion laser dont on extrait la durée de l'impulsion. Le taux de répétition de ce laser est de 20 Hz.

Les différences principales des autres lasers utilisés, que nous ne détaillerons pas ici, portent sur le nombre d'étages amplificateurs et sur le compresseur, changeant ainsi les caractéristiques en sortie de chaîne laser. Ainsi, le laser utilisé à Lund est le plus proche du laser LUCA, et délivre des impulsions jusqu'à 200mJ, de durée 110fs à 790 nm au taux de répétition de 10 Hz. Le laser UHI 10 du DRECAM, permet d'atteindre grâce à ses étages d'amplification et à son compresseur sous vide des impulsions de 700mJ, de durée 70fs à 800nm au taux de répétition de 10 Hz (Hulin 2000). La compression et le transport sous vide du faisceau préservent ses qualités spatiales et spectrales au cours de la propagation. Ces deux lasers ont été principalement utilisés dans l'application du rayonnement harmonique au diagnostic de plasmas denses. Le dernier laser utilisé, lors de l'étude de la génération harmonique dans les capillaires, est le laser du CELIA à Bordeaux, dont les 4 étages d'amplification (régénératif + 3 étages supplémentaires multipassages) délivrent des impulsions allant jusqu'à 25mJ à 800nm avec un taux de répétition de 1kHz. La compression sous vide permet d'obtenir une durée d'impulsion de 30fs.

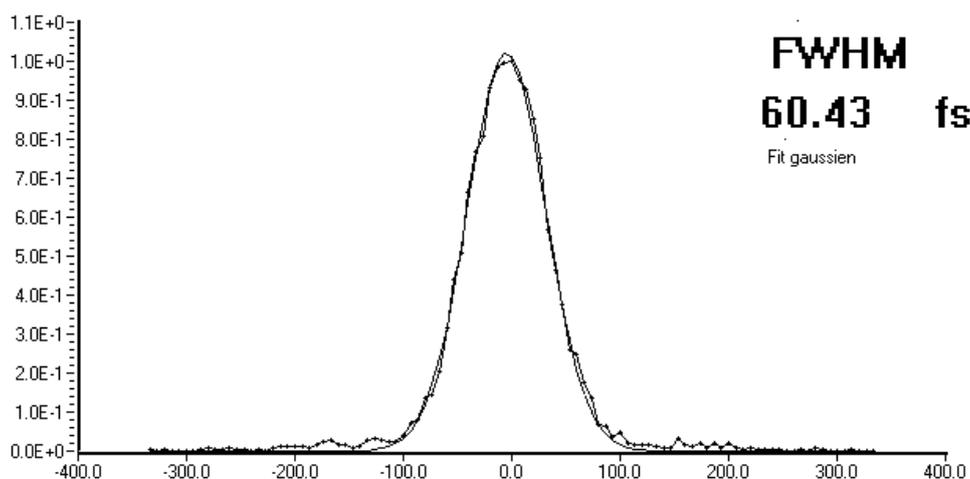


Figure I-3 : Trace d'autocorrélation de l'impulsion du laser LUCA. La durée de l'impulsion est de 60fs.

2. Le milieu atomique.

Le milieu atomique joue un rôle déterminant dans l'émission harmonique en raison des propriétés microscopiques de l'atome mais aussi de la densité d'atomes dans le volume d'interaction, comme nous le verrons respectivement aux sections B.5 et B.6. Le

conditionnement du milieu atomique est également important pour l'efficacité d'émission. En effet il faut réussir à produire un milieu suffisamment long, de densité pic élevée et avec un profil de densité régulier, tout en conservant une pression résiduelle basse afin de préserver les systèmes de pompage. Nous allons maintenant détailler les différents conditionnements les plus couramment utilisés.

Le système que nous avons le plus utilisé est un jet pulsé qui a été mis au point au laboratoire. Le dispositif est composé essentiellement d'un piston, entraîné par un électroaimant, qui alimente une buse de sortie pouvant être de différentes formes. Le mouvement du piston est produit par la mise sous tension ($\sim 60V$) de l'électroaimant, injectant ainsi des bouffées de gaz dans l'enceinte. Le jet est déclenché environ 1ms avant l'impulsion laser à l'aide d'un signal de synchronisation. Le temps d'ouverture du jet est réglable de façon à optimiser la pression pic dans le jet ; il est de l'ordre de $250\mu s$. Une vanne rapide placée en amont de l'injecteur permet de réguler la pression dans le jet à la valeur désirée. Les profils de densité atomique diffèrent selon le type de buse de sortie. Ainsi pour une buse cylindrique, le profil de densité est symétrique, se rapprochant d'une lorentzienne avec une décroissance plus rapide dans les ailes. Cette tuyère fait typiquement 6mm de long avec un diamètre de 1mm.

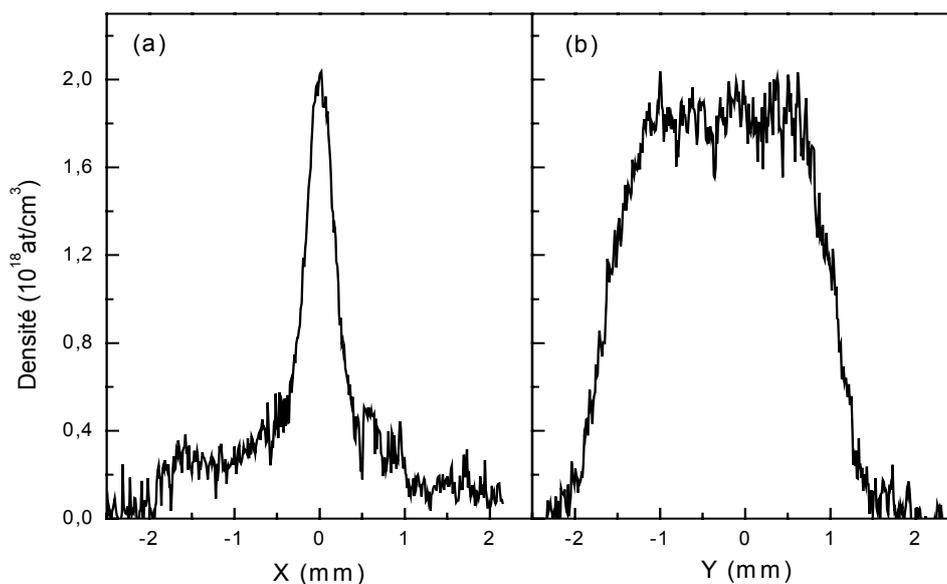


Figure I-4 : Profil de densité atomique de la buse rectangulaire dans le sens de la plus petite dimension X (a) et selon la grande dimension Y (b) à $300\mu m$ en dessous de la sortie de buse.

Il est également possible en utilisant une buse rectangulaire de produire un milieu atomique long avec de forts gradients de densité sur les bords. Une telle buse a été utilisée dans le but d'optimiser le rayonnement harmonique produit (cf. Chapitre III). En Figure I-4 est représenté

un profil de densité atomique pour un jet rectangulaire, de dimension $0,3 \times 3 \text{ mm}^2$ (X×Y), selon les deux dimensions. Ces profils de densité sont mesurés par interférométrie (interféromètre de type Mach-Zender, Hulin 2000). Le profil est quasi lorentzien dans la petite dimension X et quasi carré selon la grande dimension Y. Des études détaillées de la pression dans un jet cylindrique en fonction des différents paramètres ont été effectuées dans (Altucci *et al.* 1996). Dans ces jets pulsés, la pression au maximum du profil varie proportionnellement à la pression amont imposée par la vanne rapide. On peut alors estimer que la pression dans le jet, juste en sortie de buse, varie comme $P_{\text{jet}} = P_{\text{amont}} / \alpha$ avec α de l'ordre de 10 à 20 selon le gaz utilisé et la précision de la régulation.

Une autre possibilité est l'utilisation d'une fibre creuse remplie de gaz rare. Il est ainsi possible d'augmenter de manière considérable la longueur du milieu générateur tout en conservant une densité quasi constante sur la longueur de la fibre (Rundquist *et al.* 1998). Ceci dépend du système d'injection du gaz dans le corps creux du capillaire. En effet les pertes sur les bords subsistent, ce qui implique qu'un seul trou d'injection de gaz n'est pas suffisant pour garantir un profil continu. Par contre lorsque deux trous d'injection sont disposés symétriquement par rapport aux bords d'entrée et de sortie du capillaire, on peut espérer obtenir un profil de densité plus homogène. Ce système est particulièrement approprié aux lasers kHz car il permet de limiter le flux de gaz dans l'enceinte, les jets pulsés fonctionnant au kHz restant de plus relativement rares.

Une dernière possibilité est l'utilisation d'une cellule de gaz, permettant d'obtenir un milieu au profil atomique régulier et de densité élevée (Tamaki *et al.* 1999). Il est alors possible de régler la longueur du milieu d'interaction de 1mm à 7mm. On peut opter soit pour un milieu long et peu dense, soit pour un milieu court et dense. Bien que l'obtention d'un milieu dense et long soit possible, il n'est en général pas recommandé pour la génération d'harmoniques du fait de la défocalisation du faisceau laser par les électrons libres produits par l'ionisation (cf Chapitre III). Le schéma d'une telle cellule est illustré en Figure I-5. Un pompage différentiel permet de garder une pression basse (10^{-5} - 10^{-4} Torr) en dehors de la cellule dans laquelle la pression peut atteindre plus de 60 Torr.

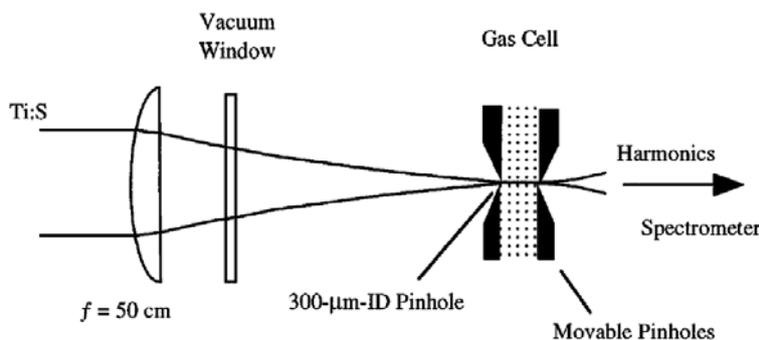


Figure I-5 : Schéma de principe de la génération d'harmoniques dans une cellule (d'après Tamaki *et al.* 1999). Les trous d'entrée et de sortie du laser sont réglables ainsi que la longueur de la cellule.

Un système pouvant être assimilé à une cellule consiste en un tube plus ou moins pincé dans la région d'interaction avec le laser, de façon à faire varier la longueur d'interaction. Le laser perce alors lui-même le tube pour traverser le milieu atomique et générer les harmoniques (Spielmann *et al.* 1998). Dans ce cas, les longueurs d'interaction peuvent être très faibles (quelques dizaines de microns) et la densité pic plus élevée. Le système doit être renouvelé constamment, les fuites de gaz devenant de plus en plus importantes au cours du temps lorsque les trous percés par le laser s'agrandissent.

Aucun des systèmes existant à ce jour ne permet d'obtenir un profil homogène parfait. En effet, que ce soit une fibre ou une cellule, les pertes sur les bords font que le profil n'est jamais constant sur toute la longueur du milieu, il peut même devenir relativement compliqué. Le système se rapprochant le plus d'un profil de densité carré est le jet long, du moins dans une de ses directions caractéristiques. De plus, il permet une meilleure connaissance du profil de densité atomique.

3. L'analyse spectrale.

Pour les expériences effectuées à Saclay, comme à Bordeaux, nous utilisons un système PGM/PGS (Plane Grating Monochromator / Spectrometer) de Jobin-Yvon. Une vue 3D du système d'analyse spectral et de détection est représenté en Figure I-6. L'avantage de cette configuration est de créer une image en champ plan, permettant de fonctionner directement en spectromètre si on remplace la fente de sortie et le détecteur associé par des galettes de micro canaux ou une caméra CCD. Le spectromètre est constitué d'un miroir torique de focale 1m et d'un réseau plan de 700 traits/mm, utilisé dans l'ordre -1 de diffraction.

Afin d'optimiser la collection du rayonnement, le système optique image directement la zone d'interaction entre le milieu atomique et le laser ; il n'y a donc pas de fentes d'entrée. En effet la dimension radiale de cette région est typiquement de quelques dizaines de microns, donc inférieure ou de l'ordre de la dimension des fentes de sortie (entre 20 et 200 μm). Un diaphragme de 1cm de diamètre est placé à 0,5m après le foyer de façon à minimiser la détection de la lumière plasma, non collimatée, produite aux éclaircissements élevés. Les optiques sont recouvertes d'or et attaquées par les faisceaux sous incidence rasante, $11,5^\circ$ par rapport à la surface de l'optique, pour obtenir une meilleure réflectivité aux longueurs d'onde UVX. La réflectivité de ces optiques sous incidence rasante commence à diminuer à partir de 130 eV d'énergie de photon. L'efficacité de diffraction dans l'ordre -1 est également optimisée. En effet, la profondeur des gravures rectangulaires de ce réseau a été calculée pour obtenir l'équivalent d'un angle de blaze, c'est à dire un maximum de diffraction à une longueur d'onde donnée. Dans notre cas, le maximum de diffraction est obtenu pour une longueur

d'onde de 15nm. Une dernière spécificité de ce système est l'espacement variable des gravures du réseau (densité moyenne de 700 traits/mm) qui permet de compenser en partie les aberrations introduites sur le faisceau par le miroir torique.

Etant donné l'absence de fente d'entrée, il n'y a pas d'axe optique prédéfini donnant l'étalonnage en longueur d'onde du spectromètre. Il doit donc être refait à chaque fois en alignant le laser sur des repères extérieurs. La déviation totale du réseau est $D=\alpha-\beta$ (157°), avec α l'angle d'incidence sur le réseau et β l'angle de réflexion par rapport à la normale du réseau ($\beta < 0$). La loi générale des réseaux en réflexion s'écrit (Hecht 1987) :

$$\sin \alpha + \sin \beta = dm\lambda \quad (\text{I-1})$$

avec m l'ordre de diffraction et d le nombre de traits par millimètre. On peut déduire de I-1 une relation entre la longueur d'onde harmonique détectée et l'angle θ du réseau.

$$\sin \theta = \frac{md\lambda}{2 \cos \frac{D}{2}} \quad (\text{I-2})$$

La longueur focale du miroir (1m) associée à la densité de traits aboutissent à une résolution de $0,1 \text{ \AA}$ pour une fente de $20\mu\text{m}$. La grande focale de ce système ainsi que l'incidence rasante permettent de diminuer la densité d'énergie du laser générateur arrivant sur les optiques, évitant ainsi leur dégradation par les éclaircissements élevés nécessaires à la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

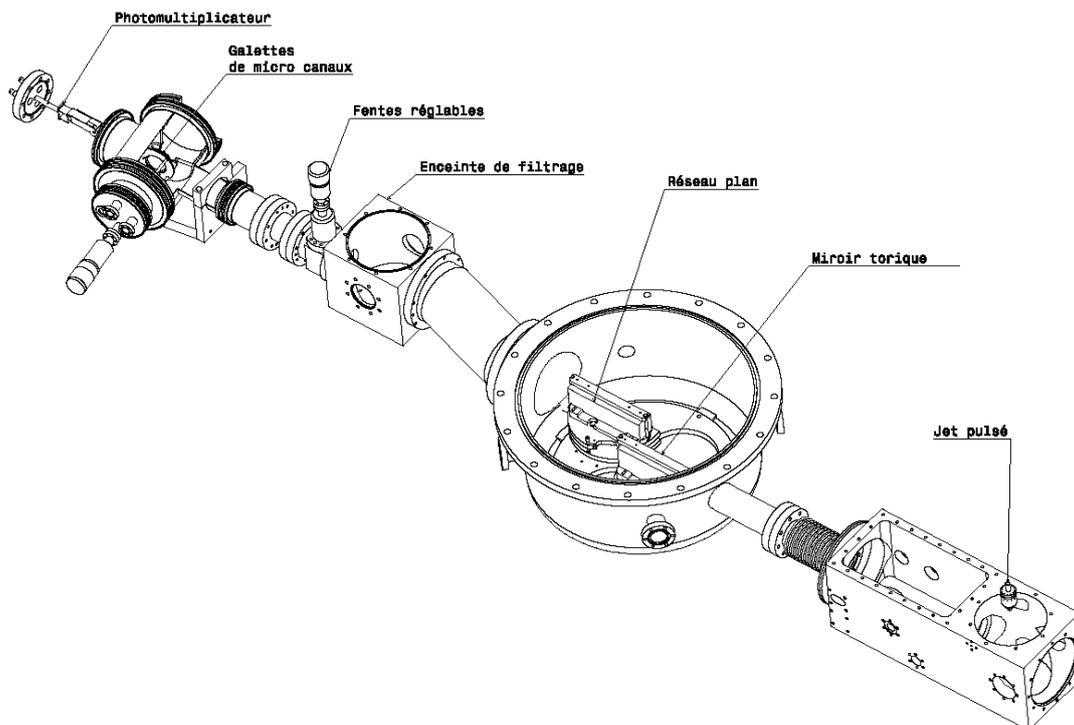


Figure I-6 : Vue 3D du monochromateur UVX utilisé pour la détection d'harmoniques.

Le spectromètre du CELIA, à Bordeaux, diffère de celui que nous utilisons à Saclay par la longueur focale (2m) du miroir torique, de la densité de traits (470 traits/mm) du réseau et l'angle d'incidence sur les optiques (12,5°). Le maximum de diffraction est également obtenu pour une longueur d'onde de 15nm. Dans ce spectromètre, les spectres sont obtenus en plaçant une caméra CCD amincie Princeton, sous vide, au plan focal du spectromètre. On observe donc les différentes harmoniques dispersées sur la matrice CCD. La résolution spectrale du système, donnée par la taille des pixels, est de 0,1 Å.

4. Les systèmes de détection.

Le choix d'un certain type de système de détection dépend essentiellement du but recherché dans l'expérience. Nous distinguerons deux cas généraux ; les détecteurs utilisés pour l'acquisition de spectres d'émission harmonique et ceux utilisés lorsqu'une résolution spatiale est nécessaire.

L'un des principaux problèmes lors de la détection des harmoniques est posé par la lumière IR diffusée dans l'enceinte, mais également par la lumière plasma qu'elle peut produire en interagissant avec les bords de l'enceinte. Un soin particulier doit être porté, après le monochromateur, au piégeage de l'IR avant qu'il ne soit trop focalisé. L'acquisition des spectres harmoniques est généralement effectuée par un photomultiplicateur (Philips-RTC XP1600). Les photons harmoniques, sélectionnés par la position réseau et la fente de sortie, génèrent des électrons en arrivant sur la photocathode du photomultiplicateur. Ces photoélectrons vont alors générer des électrons secondaires par effet d'avalanche sur la série de dynodes placées après la première face. La première face étant polarisée négativement entre -1,2kV et -1,8kV ces électrons sont accélérés jusqu'à la masse. Le pic transitoire de courant produit passe par un intégrateur relié à un échantillonneur-bloqueur. La tension alors fixée est numérisée par un convertisseur analogique numérique. Ce signal est envoyé par bus GPIB à l'ordinateur, et mis en forme par un programme d'acquisition permettant de visualiser en temps réel les courbes mesurées.

Comme nous l'avons dit précédemment, il est possible de fonctionner en spectromètre en enlevant la fente de sortie et en remplaçant le multiplicateur d'électrons par une caméra CCD. On a alors simultanément deux informations : dans la dimension horizontale est observé le spectre d'émission harmonique, alors que dans la dimension verticale on observe la composante spatiale du champ harmonique émis en sortie de milieu. Le système du CELIA de Bordeaux en est un exemple. Cependant, ce système présente un inconvénient majeur. La matrice CCD est très sensible à la longueur d'onde IR ; il faut donc utiliser des filtres, comme par exemple l'aluminium, pour couper les fréquences basses et laisser passer les plus élevées. Les ordres harmoniques faibles (jusqu'à 13) sont également coupés ainsi que les ordres élevés

(de longueur d'onde < 17 nm, bord d'absorption L de l'aluminium). Les harmoniques entre 50eV et 200eV d'énergie de photons peuvent être observées en remplaçant les filtres en aluminium par des filtres en zirconium. Le fait que les matrices CCD soient très sensibles à la lumière infra rouge complique donc l'obtention d'un spectre harmonique dans sa totalité.

Un bon compromis entre ces deux systèmes de détection peut être obtenu en plaçant au foyer du spectromètre un système de galettes de microcanaux couplé à un écran phosphore. Le système que nous utilisons est constitué de galettes doubles, montées en chevron, recouvertes d'iodure de césium (CsI) afin d'augmenter la sensibilité de la détection dans le domaine UVX. Un soin particulier doit être porté à toujours conserver ces galettes sous vide, étant donné que la couche sensible s'oxyde très vite à l'air libre, perdant ainsi sa sensibilité de détection. La face avant des galettes est polarisée à une tension comprise entre -1 kV et -2 kV, la face arrière étant reliée à la masse. L'écran phosphore auquel ces galettes sont couplées peut être soumis à une tension allant jusqu'à $+4$ kV. Ce dernier est alors imagé directement sur une caméra CCD avec un système de grandissement. Ce détecteur, avec un diamètre de 40mm, fonctionne en fait comme un multiplicateur d'électrons. Les photoélectrons générés lors de l'interaction des photons harmoniques avec la couche sensible de la face avant sont accélérés dans les micro canaux (de diamètre 12 à 14 μ m) par le champ électrique appliqué. Lorsque ces électrons frappent les parois des canaux, des électrons secondaires sont produits, entraînant un effet d'avalanche. Des gains importants, de près de 7 ordres de grandeur, peuvent être obtenus. L'impact des électrons sur l'écran phosphore forme, dans le visible, une image du faisceau UVX arrivant sur les galettes. Le gain étant fixé par la tension appliquée sur les galettes ; la sensibilité du détecteur peut être adaptée aux conditions expérimentales. La résolution du système est principalement limitée par la taille des micro canaux et l'empilement des galettes ; elle est de l'ordre de 80 μ m. Une meilleure résolution peut être obtenue, soit en inclinant les galettes, donc en les utilisant en incidence rasante, soit avec des systèmes récents où la taille des canaux a été réduite à 6 μ m. Les principaux avantages de ce système d'imagerie sont le fort gain et surtout la faible sensibilité à l'IR diffusé dans l'enceinte. La résolution spatiale du système peut atteindre celle d'une caméra CCD.

B. Principales dépendances des spectres.

L'influence sur les spectres d'émission harmonique des différents paramètres de génération a été largement étudiée par différents laboratoires ; elle est maintenant relativement bien connue, du moins pour les systèmes laser de durée d'impulsion supérieure à 30fs. L'utilisation d'impulsions lasers ultra courtes (~ 5 fs) permet d'observer de nouveaux comportements qui ne seront pas discutés dans ce manuscrit. Les paramètres impliqués dans le processus d'émission harmonique peuvent être regroupés en trois ensembles : le laser

générateur, le milieu atomique et la géométrie de l'interaction non linéaire entre le laser et le milieu atomique.

L'influence des caractéristiques du laser et du milieu atomique sera illustrée respectivement aux sections B.2, 3 et 4 et B.5 et 6 à partir de spectres expérimentaux. Le modèle théorique semi classique qui établit la loi de coupure (section B.7) permettra de relier clairement la forme caractéristique des spectres harmoniques à ces différents paramètres.

1. Spectre caractéristique.

Les caractéristiques des spectres d'harmoniques d'ordre élevé générées dans un gaz rare sont illustrés sur la Figure I-7. Il s'agit d'un spectre mesuré lors de l'interaction d'un laser IR à 800nm, de durée d'impulsion 70fs, avec un jet pulsé de néon. Ce spectre partiel inclut les harmoniques 17 à 67. Seules les fréquences impaires du laser excitateur sont générées (cf. B.7) : la symétrie à champ central du potentiel atomique interdit l'émission de fréquences paires. Après une décroissance rapide de l'efficacité d'émission pour les premiers ordres qui n'apparaissent pas sur ce spectre partiel, le spectre présente une région dite « plateau » dans laquelle les différentes harmoniques ont quasiment la même amplitude, (ici jusqu'à l'harmonique 55) limitée par une nette décroissance de l'efficacité dans la région de *coupure* du spectre. Ce comportement caractéristique, non-perturbatif, est obtenu dans le régime de champ fort et basse fréquence. Il est à noter que les pics latéraux apparaissant de part et d'autres des harmoniques 17 à 31 correspondent aux harmoniques 33 à 63 diffractées dans l'ordre 2 du réseau. On note ainsi l'importance d'avoir de bons réseaux afin de limiter au maximum les pertes d'énergie dans les ordres supérieurs.

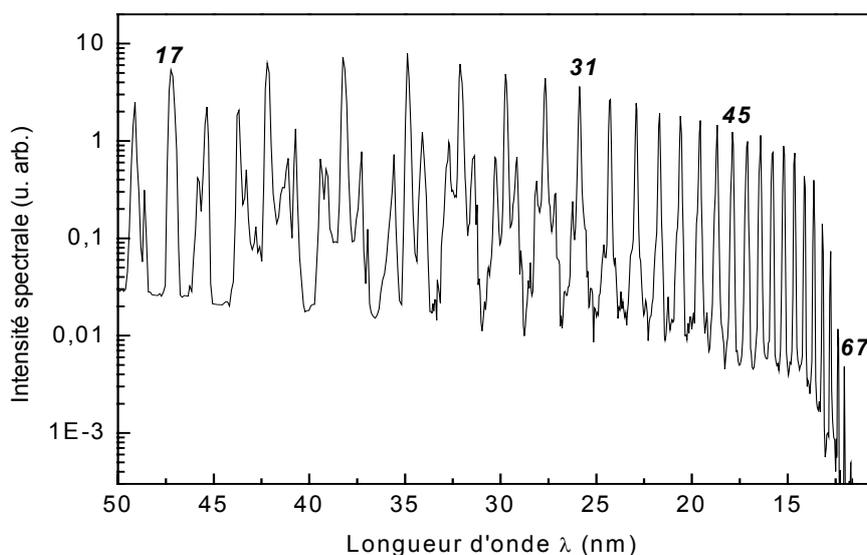


Figure I-7 : Spectre harmonique typique mesuré dans le néon.

2. Influence de l'éclairement laser.

Une des caractéristiques importantes de la génération d'harmonique d'ordre élevé, dans les gaz rares, est la forte dépendance avec l'éclairement laser. La Figure I-8a représente l'extension du plateau du spectre harmonique généré dans l'argon pour différents éclairements laser. On observe une extension de l'étendue du plateau de l'harmonique 19 à 29 lorsque l'éclairement est augmenté de 10^{14} W/cm² à $3,4 \cdot 10^{14}$ W/cm², ainsi qu'une augmentation de l'efficacité de génération. Ces études expérimentales (Wahlström *et al.* 1993) et théoriques (cf. B.7) montrent que l'étendue du plateau harmonique varie linéairement avec l'éclairement laser, tant que l'ionisation ne limite pas l'émission harmonique.

La dépendance avec l'éclairement a pour conséquence de faire passer une même harmonique de la région de la coupure du spectre dans le plateau. La Figure I-8b illustre cette évolution pour l'harmonique 21 générée dans l'argon, en fonction d'une variation fine de l'éclairement laser. A faible éclairement laser l'harmonique 21 n'est pas générée efficacement et se trouve dans la région de la coupure du spectre. Dans cette partie, l'amplitude de l'harmonique varie rapidement avec l'éclairement croissant suivant une loi de puissance I^p ($p \sim 14$). A plus fort éclairement, l'harmonique arrive dans le plateau du spectre et la variation de son amplitude avec l'éclairement devient nettement plus lente ($p \sim 6$). L'éclairement de transition entre la coupure et le plateau dépend surtout de l'ordre harmonique considéré et faiblement du gaz utilisé. A éclairement encore plus élevé, on observe une saturation lorsque l'éclairement est supérieur à l'éclairement de saturation, différent selon les gaz, correspondant à une ionisation complète des atomes du milieu. Le signal diminue alors lorsque l'ionisation devient trop importante.

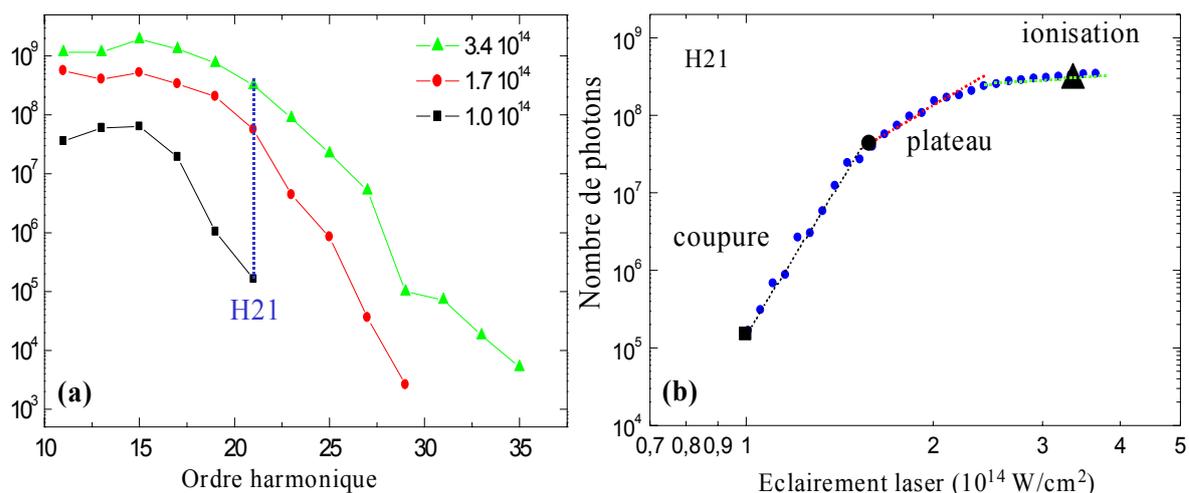


Figure I-8 : (a) Extension du plateau dans l'argon en fonction de l'éclairement d'après (Wahlström *et al.* 1993). (b) Nombre de photons de l'harmonique 21 générée dans l'argon, en fonction de l'éclairement laser dans le milieu d'après (Salières 1995).

3. Influence de la durée de l'impulsion fondamentale.

La Figure I-9a présente une comparaison expérimentale du spectre harmonique généré dans l'argon avec un éclairement pic de 4.10^{14} W/cm² constant, pour des durées de l'impulsion fondamentale de 100fs, 50fs et 25fs. La variation de durée de l'impulsion fondamentale est obtenue en variant la largeur spectrale de laser avant compression afin d'obtenir des impulsions de durée variable proches de la limite de Fourier. L'effet de la durée de l'impulsion fondamentale sur l'étendue du plateau du spectre est très claire, aussi bien expérimentalement que théoriquement : le plateau s'étend jusqu'à un ordre harmonique plus grand lorsque la durée d'impulsion est très courte, pour un éclairement fixé. La coupure du spectre a lieu à l'harmonique 29 pour une durée d'impulsion laser de 100fs, alors qu'elle n'intervient qu'à l'ordre de non linéarité 47 pour une impulsion de 25fs. Les impulsions de très courte durée permettent ainsi d'optimiser l'efficacité de génération des ordres élevés.

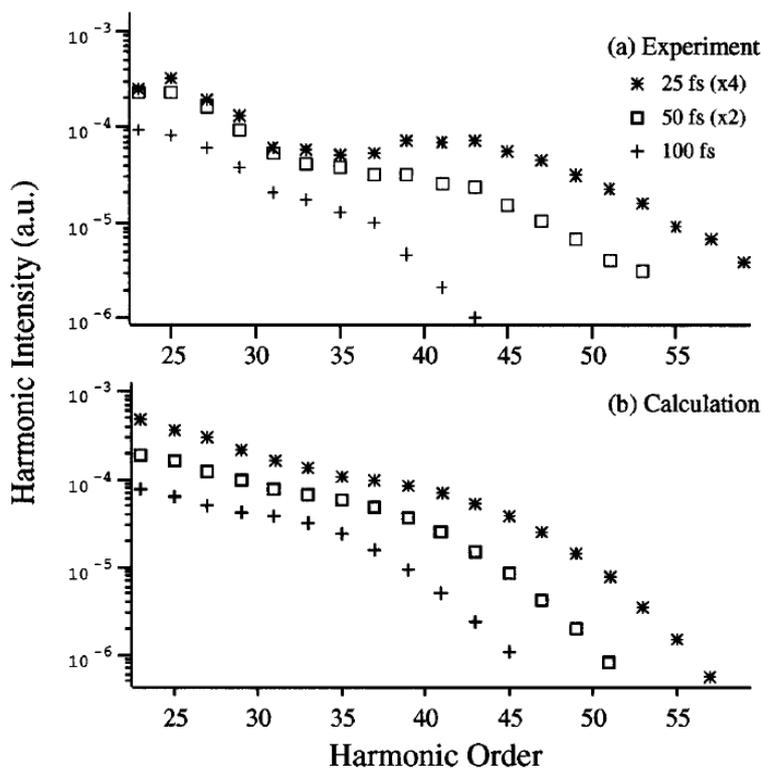


Figure I-9 : Efficacité de génération des harmoniques générées dans l'argon à éclairement fixe de 4.10^{14} W/cm² pour différentes durées d'impulsion (en légende) expérimentale (a) et théorique (b) d'après (Christov et al. 1996).

L'augmentation de l'étendue du plateau dans le cas où la durée de l'impulsion fondamentale est de 25fs est liée à l'éclairement de saturation. En effet lorsque l'impulsion est

« longue », l'ionisation totale du milieu est atteinte bien avant le maximum de l'enveloppe temporelle de l'impulsion laser. L'ionisation sature alors, comme nous l'avons vu précédemment, l'émission harmonique. Pour une impulsion plus courte, l'ionisation du milieu est atteinte plus tardivement, près du maximum de l'enveloppe temporelle. L'éclairement de saturation d'un gaz donné soumis à une impulsion de très courte durée est ainsi augmenté (Christov *et al.* 1996, Schafer *et al.* 1997, Brabec *et al.* 2000). Le milieu atomique peut être soumis à un éclairement laser plus intense avant que l'ionisation ne limite l'émission. Ainsi, le spectre harmonique émis présente un plateau plus étendu.

L'utilisation des lasers ultra courts a permis récemment de démontrer la génération d'harmoniques d'ordre très élevé, dans la fenêtre de l'eau (4,4 – 2,7 nm), avec un laser de 25fs (Chang *et al.* 1997) ou encore avec un laser de durée 5fs, inférieure à deux cycles optiques (Spielmann *et al.* 1997).

4. Influence de la longueur d'onde génératrice.

La longueur d'onde du laser utilisé pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé est également un paramètre important dans le processus de génération. En effet, le comportement plateau – coupure n'est obtenu que dans un régime de champ fort et de basse fréquence, donc pour des longueurs d'ondes suffisamment grandes. Si la longueur d'onde d'excitation est trop courte, le spectre présente une décroissance quasi perturbative de l'efficacité de génération avec l'ordre. Pour une génération efficace des ordres élevés, il est préférable d'utiliser une longueur d'onde du laser générateur suffisamment grande, IR par exemple (Salières 1995a). Remarquons que c'est l'inverse de l'optique non linéaire classique, où l'on part d'un rayonnement UV pour générer dans le VUV. En Figure I-10 sont comparés deux spectres générés dans l'argon avec des conditions d'éclairement dans le milieu équivalentes ($\sim 2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$), mais avec deux longueurs d'onde fondamentales différentes. Dans le cas d'un laser à 800nm (ω), le spectre s'étend jusqu'à l'harmonique 23. Par contre, lorsque la longueur d'onde génératrice est de 400nm (2ω , obtenu par doublage de fréquence du 800nm dans un cristal fin de KDP), le spectre ne s'étend plus que jusqu'à l'harmonique 7 du 2ω , ce qui correspond en longueur d'onde à l'harmonique 14 du laser à 800nm. Le spectre est donc bien moins étendu.

Si on génère les harmoniques en superposant temporellement et spatialement ces faisceaux lasers de fréquence ω et 2ω , il est possible d'obtenir un rayonnement harmonique dont le spectre présente toutes les harmoniques du laser ω , paires et impaires, grâce au mélange de fréquence (LeDéroff 1999). Plus généralement, pour deux fréquences ω_1 (fixe et

intense) et ω_2 (accordable et moins intense), on peut générer les harmoniques $q\omega_1 \pm \omega_2$ accordables entre les harmoniques $q\omega_1$ (Gaarde *et al.* 1996)

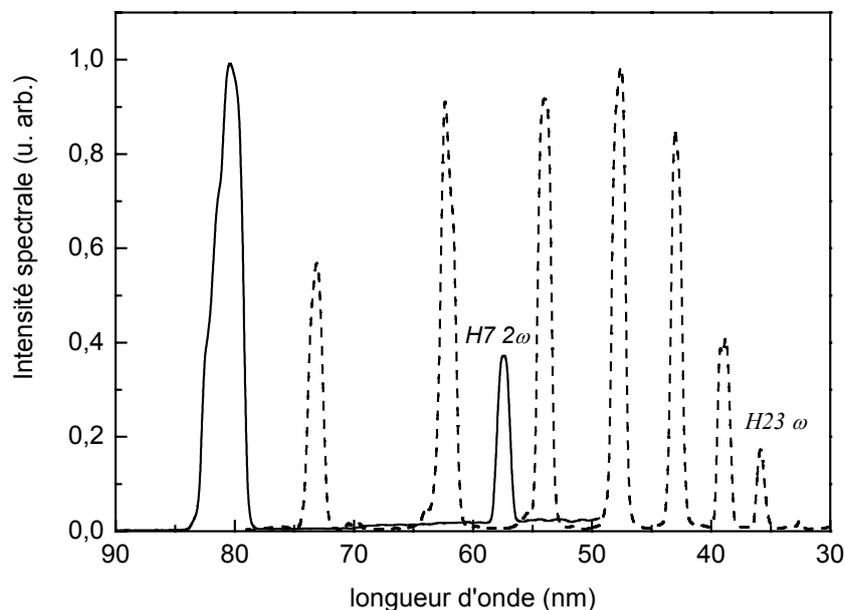


Figure I-10 : Comparaison des spectres générés dans l'argon dans des conditions de génération comparables, avec des longueurs d'onde d'excitation de 800nm (trait pointillé) et 400nm (trait plein).

5. Influence de la nature du milieu.

Les spectres harmoniques dépendent fortement de la nature du gaz rare utilisé pour la génération. La Figure I-11 illustre l'extension du plateau harmonique en fonction du gaz, par ordre de numéro atomique décroissant : Xe, Kr, Ar et Ne. Dans les conditions expérimentales de ces spectres (laser générateur à 800nm, 70fs), la coupure évolue de l'harmonique 21 (H21) dans le xénon, à H25 dans le krypton, puis H31 dans l'argon pour finir à H65 dans le néon. La comparaison des efficacités de génération dans les différents gaz a été faite par (L'Huillier *et al.* 1993) dans le xénon, argon, néon et hélium, en utilisant un laser générateur de longueur d'onde 1 μ m et de durée d'impulsion 1ps. Le nombre absolu de photons est reporté sur la Figure I-12 en fonction de l'ordre harmonique pour différents milieux atomiques. Le spectre d'émission dans le néon s'étend au-delà de l'harmonique 125 mais la coupure instrumentale du spectromètre n'a pas permis la mesure d'harmoniques émises à plus courte longueur d'onde.

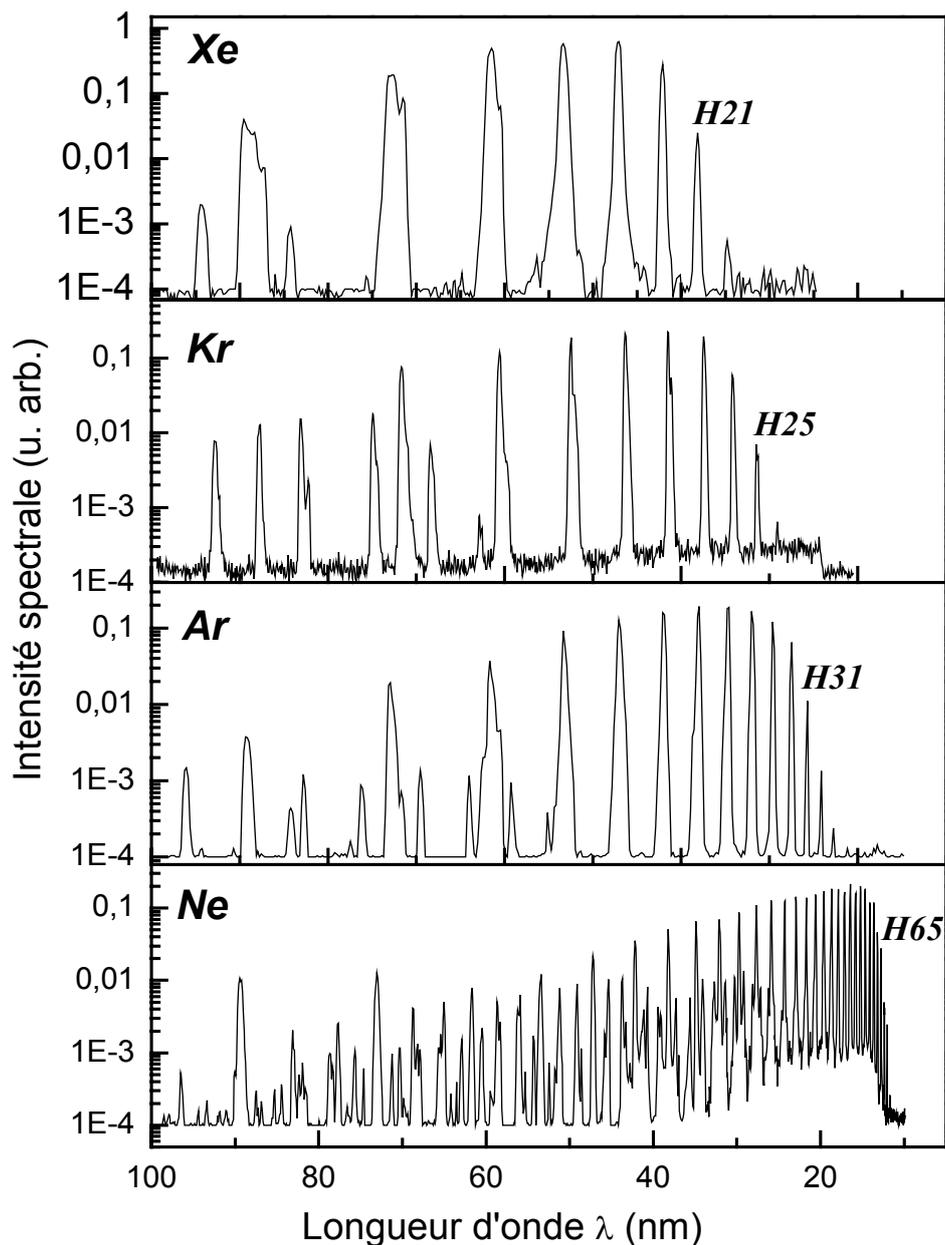


Figure I-11 : Evolution de l'extension du plateau des spectres harmoniques en fonction du milieu générateur. Les éclaircements sont respectivement de : 0,7, 1, 2 et $4.10^{14} W/cm^2$ pour le Xe, Kr, Ar et Ne

Ainsi, plus le gaz utilisé pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé est léger, plus la coupure du spectre est repoussée vers les courtes longueurs d'onde. Cependant l'efficacité de génération est bien plus faible dans les gaz légers comme par exemple l'hélium que dans les gaz plus lourds comme le xénon. Ce comportement s'explique par deux raisons. D'une part, la polarisabilité d'un gaz léger est plus faible que celle d'un gaz lourd, l'efficacité de génération d'harmonique, pour un ordre q donné s'en trouve donc diminuée. D'autre part, plus le gaz rare est léger, plus son potentiel d'ionisation et par conséquent l'éclairement de

saturation sont grands. Les éclaircements de saturation, mesurés expérimentalement pour le xénon, l'argon et le néon sont respectivement 7.10^{13} , 2.10^{14} et $8,3.10^{14}$ W/cm² (DiMauro *et al.* 1995), pour une impulsion fondamentale de 100fs. Les gaz rares légers peuvent être soumis à un éclairciment laser plus élevé avant de s'ioniser, générant ainsi des ordres plus élevés.

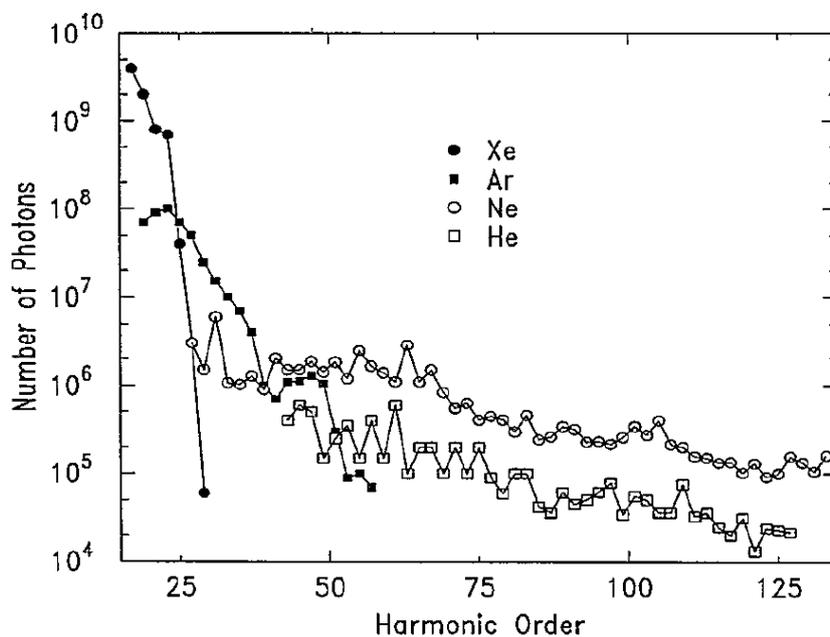


Figure I-12 : Evolution du nombre de photons générés en fonction de l'ordre harmonique pour différents milieux générateurs, du plus lourd au plus léger (L'Huillier *et al.* 1993).

6. Influence de la densité du milieu atomique.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé est un processus cohérent. Ainsi le champ harmonique total émis correspond à la superposition cohérente des champs émis par chaque atome soumis au champ exciteur. Le nombre de photons harmoniques produits en sortie de milieu est en général proportionnel au carré de la densité atomique. C'est ce que l'on observe en Figure I-13 qui présente l'évolution du signal de l'harmonique 21 dans l'argon en fonction de la pression amont (échelle log-log). Le signal croît quadratiquement pour les pressions basses comprises entre 100 et 400 Torr. Cependant l'efficacité de génération est également influencée par d'autres phénomènes qui varient avec la pression et peuvent altérer cette dépendance quadratique (pressions élevées). Ces causes seront discutées plus en détail dans le Chapitre III. Signalons toutefois que cet écart à la loi en P² peut être provoqué par des problèmes de dispersion dans le milieu, affectant l'efficacité de génération (cf. C.2), ou la

réabsorption du rayonnement émis par le milieu générateur, ou encore par la défocalisation à haute pression du laser générateur (Altucci *et al.* 1996). L'augmentation de la pression dans le milieu atomique reste un moyen simple d'optimiser l'émission harmonique. Ceci confirme l'importance d'un conditionnement approprié comme nous l'avons décrit au §A.2.

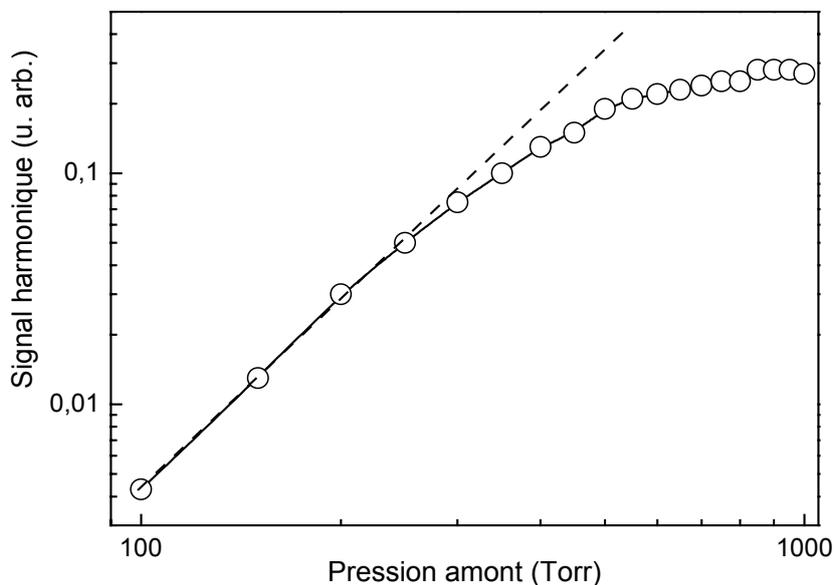


Figure I-13 : Variation expérimentale de l'harmonique 21 générée dans l'argon en fonction de la pression.

7. Modèle semi-classique.

Les différentes dépendances des spectres observées expérimentalement, notamment l'extension du plateau, avec la longueur d'onde du laser générateur, la nature du milieu atomique ou encore l'éclairement dans le milieu générateur peuvent être interprétées à partir d'un modèle relativement simple. Ce dernier, développé par Kulander (Kulander *et al.* 1993) d'une part, et Corkum (Corkum *et al.* 1993) d'autre part, a révolutionné la compréhension de la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Le modèle suppose un champ fondamental intense de basse fréquence, polarisé linéairement. Il décompose le processus de génération en trois étapes :

- a) Ionisation de l'atome par effet tunnel
- b) Accélération de l'électron libre dans le champ laser
- c) Recombinaison radiative de l'électron et du cœur atomique

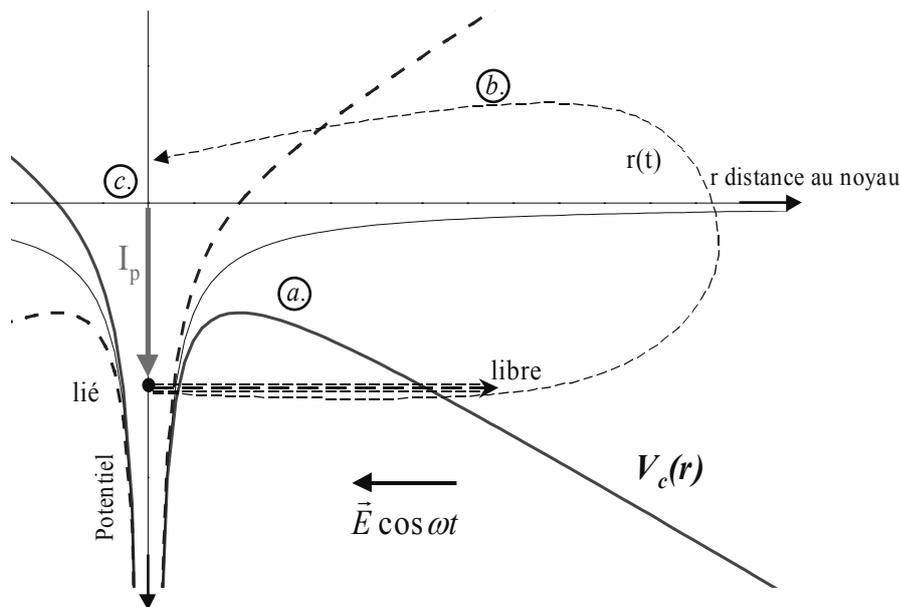


Figure I-14 : *Modèle semi classique en trois étapes pour la génération d'harmoniques.*

La Figure I-14 illustre les étapes du modèle, à une dimension, sur une période d'oscillation du champ laser. Lorsque l'atome est soumis à un champ intense E , la barrière du potentiel coulombien $V_c(r)$, r étant la distance au noyau, est abaissée par le terme d'interaction dipolaire électrique $-E \cdot r$. L'électron voit un potentiel effectif $V_{\text{eff}}(r) = 1/r - E \cdot r$ formant une barrière de largeur finie que l'électron peut franchir par effet tunnel (étape (a), en trait plein épais sur la Figure I-14). Pour que ceci soit possible, il faut que le temps caractéristique de traversée de la barrière soit très court devant la période d'oscillation du champ. Le rapport des deux grandeurs s'appelle le paramètre de Keldysh γ ; il est inférieur à 1 dans le régime d'ionisation tunnel (Keldysh 1965). La probabilité de passage est d'autant plus élevée que l'amplitude du champ est grande et que le champ (oscillant) est proche de son maximum.

L'étape (b) correspond au mouvement de l'électron dans le continuum, où il est « éjecté » avec une vitesse initiale nulle. Il oscille alors quasi-librement dans le champ laser où il acquiert une énergie cinétique E_c , fonction périodique du temps. Selon la phase du champ laser à l'instant où l'électron sort dans le continuum, on montre que sa trajectoire $r(t)$, à l'oscillation suivante, repasse par le cœur atomique (flèche pointillée sur la Figure I-14) ou s'en éloigne définitivement.

La dernière étape (c) ne considère que les trajectoires $r(t)$ qui repassent suffisamment près du noyau atomique. Il existe alors une probabilité pour que le système (e^- - cœur) se recompose radiativement dans son état fondamental, en émettant un photon d'énergie $h\nu = I_p + E_c$, avec I_p le potentiel d'ionisation de l'atome et E_c l'énergie acquise par l'électron dans le continuum, au moment de la recombinaison. On montre alors, par un calcul de

cinématique classique, que l'énergie cinétique instantanée maximale de l'électron qui repasse près du noyau est $E_{c,max}=3,2U_p$. Le terme U_p est l'énergie pondéromotrice, c'est à dire l'énergie cinétique moyenne d'un électron libre, de charge e et de masse m , dans un champ laser d'amplitude E et de fréquence ω . Cette énergie pondéromotrice s'écrit :

$$U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2} \quad (\text{I-3})$$

L'énergie maximale des photons émis au cours de la recombinaison est donc définie par :

$$h\nu_{\max} = I_p + 3,2U_p \quad (\text{I-4})$$

Si le taux d'ionisation n'est pas trop élevé (les trajectoires ne mènent pas à une recombinaison), ce phénomène se reproduit à l'identique à chaque cycle optique du laser. L'émission est donc un processus périodique de période T pouvant se décomposer selon les harmoniques de la fréquence du laser générateur. De plus, au temps $t+T/2$, le même phénomène se produit avec la symétrie d'inversion ($r \leftrightarrow -r$, l'électron sort par effet tunnel de l'autre côté du potentiel coulombien). Seules les harmoniques d'ordre impair sont donc rayonnées. L'émission est ainsi constituée d'un train d'impulsions ultra brèves (100 as), larges spectralement, qui se prolonge sur toute la durée de l'impulsion laser. C'est le spectre de ce train périodique d'impulsions, qui est observé expérimentalement dans l'espace de Fourier comme une série discrète d'harmoniques impaires de la fréquence d'excitation. Le mouvement de l'électron n'est toutefois pas strictement périodique, du fait de l'étalement du paquet d'onde ou de l'ionisation : il existe une largeur finie des structures à $q\omega$ dans le spectre et une durée finie d'émission.

Le modèle en trois étapes reproduit les principales caractéristiques de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz, que nous avons discutées précédemment. La loi de coupure I-4 implique les paramètres importants, qu'ils soient liés au laser fondamental ou à la nature du gaz. L'extension du plateau est d'autant plus importante que l'énergie pondéromotrice acquise par l'électron est importante. L'énergie maximale des photons est d'autant plus grande que la longueur d'onde excitatrice est grande ($U_p \propto \lambda^2$). On comprend ainsi pourquoi il est intéressant de générer les harmoniques avec un laser de longueur d'onde IR. La loi de coupure illustre également la croissance linéaire de l'extension du plateau avec l'éclairement laser ($U_p \propto E^2 = I$). Cependant ceci n'est vrai que jusqu'à l'éclairement de saturation I_{sat} du gaz. Il est donc nécessaire de générer les harmoniques avec des impulsions fondamentales de très courte durée afin d'augmenter I_{sat} et conserver la croissance linéaire plus longtemps. La nécessité d'utiliser des impulsions de courte durée et de grande longueur d'onde explique le succès des lasers Ti:Saphir pour la génération d'harmoniques. La

dépendance en I_p de la loi de coupure permet d'expliquer que ce sont les gaz rares légers, ayant un potentiel d'ionisation I_p grand, qui présentent le plateau le plus étendu. Le modèle permet également de montrer que plusieurs trajectoires, de longueurs différentes, jouent un rôle dans l'émission harmonique.

Le modèle semi classique permet de donner une représentation simple du processus de génération et de comprendre l'origine physique de la coupure du spectre. Cependant il mélange des arguments classiques et quantiques tels que l'ionisation tunnel, le mouvement classique de l'électron et la recombinaison quantique. De plus il repose sur trois hypothèses fondamentales : les contributions dominantes à la génération des harmoniques proviennent des électrons qui

- (i) sont apparus dans le continuum avec une vitesse nulle
- (ii) reviennent près du noyau
- (iii) ont une énergie cinétique correspondant à la production d'une harmonique donnée au moment du retour sur le noyau

C. Rappels théoriques concernant l'émission harmonique.

Le modèle en trois étapes présenté précédemment n'est pas à même de décrire les propriétés spatiales, temporelles et spectrales des champs harmoniques émis. Ces propriétés importantes, tant du point de vue fondamental que du point de vue de l'utilisation des harmoniques comme source de rayonnement UVX, ont été largement étudiées, aussi bien expérimentalement que théoriquement. Pour comprendre ces effets, il faut décrire de manière quantique l'interaction atome –champ fort mais également étudier la propagation du champ harmonique dans le milieu atomique. L'étude doit ainsi être faite aussi bien à l'échelle microscopique qu'à l'échelle macroscopique. Une revue détaillée des études théoriques a été menée par P. Salières et coll., dans les références (Salières 1995a, Salières *et al.* 1999a). Deux aspects doivent être pris en compte pour décrire de manière rigoureuse la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Il y a tout d'abord la réponse microscopique d'un milieu atomique soumis à un champ intense. Ensuite il faut considérer la réponse macroscopique, c'est-à-dire la propagation du champ harmonique macroscopique (somme cohérente des champs microscopiques) dans le milieu générateur.

L'interaction entre un atome unique et un champ laser intense, décrite de manière non perturbative, peut être calculée directement par résolution numérique de l'équation de Schrödinger dépendante du temps (TDSE). Il est alors possible de résoudre le problème à trois dimensions donnant des résultats exacts pour un atome à électron actif unique (Krause *et al.* 1992, Rae *et al.* 1994, Antoine *et al.* 1995). Cependant les temps de calcul sont alors très longs. Une solution alternative à ce calcul direct a été proposée par Lewenstein et

collaborateurs, fondée sur l'approximation des champs forts (SFA), méthode analytique approchée (L'Huillier *et al.* 1993, Lewenstein *et al.* 1994). Ce modèle repose sur trois hypothèses principales :

- La durée de l'impulsion laser est grande devant la période d'oscillation du champ (2,7fs pour un laser à 800nm). Ainsi l'atome est soumis à un champ oscillant d'amplitude quasi constante (hypothèse adiabatique) de phase ϕ . La réponse de l'atome suit alors l'amplitude du champ.
- On ne considère que l'état fondamental comme état lié. Les états excités liés de l'atome, élargis par effet Stark dynamique, sont négligés.
- On tient compte des états dans le continuum correspondant aux états d'un électron libre dans un champ oscillant.

On peut alors, tenant compte de ces hypothèses et considérant un facteur de Keldysh $\gamma < 1$, résoudre analytiquement l'équation de Schrödinger dépendante du temps. Signalons que pour les lasers de très courte durée d'impulsion, inférieure à 27 fs, l'hypothèse adiabatique n'est plus valide. Dans le cas non adiabatique, l'atome est soumis à de fortes et rapides fluctuations de l'amplitude du champ $E(t)$ et de sa phase $\phi(t)$, sur une période optique. Il faut alors calculer la réponse de l'atome en considérant toute la variation du champ. Le modèle de Lewenstein a pu être généralisé pour décrire l'interaction des atomes avec des impulsions ultra courtes (Salières *et al.* 1998, Geissler *et al.* 1999, Priori *et al.* 2000). Nous présentons ici le modèle dans le cas adiabatique, que nous avons utilisé pour les simulations présentées dans ce manuscrit. Précisons que ce modèle, complètement quantique, retrouve l'image semi-classique en justifiant les hypothèses, tout en décrivant rigoureusement les effets d'ionisation tunnel, de diffusion et d'interférences quantiques.

1. Réponse de l'atome unique dans l'approximation SFA.

On suppose un atome à un électron actif unique soumis à un champ laser $\vec{E}(t) = \vec{E} \cos(\omega t)$, polarisé linéairement selon x. Nous utilisons les unités atomiques mais les énergies sont exprimées en unités $\hbar\omega$. L'hamiltonien du système s'écrit comme la somme de l'hamiltonien de l'atome H_0 et de l'hamiltonien d'interaction H_i . A l'instant $t=0$, le système est dans l'état fondamental $|0\rangle$;

$$H = H_0 + H_i = -\frac{1}{2}\nabla^2 + V(\vec{x}) - \vec{E}(t) \cdot \vec{x} \quad (\text{I-5})$$

L'équation de Schrödinger dépendante du temps est :

$$i \frac{\partial \Psi(\vec{x}, t)}{\partial t} = \left[-\frac{1}{2} \nabla^2 + V(\vec{x}) - \vec{E}(t) \cdot \vec{x} \right] \Psi(\vec{x}, t) \quad (\text{I-6})$$

Nous considérons le cas où l'effet tunnel est le principal mécanisme d'ionisation ($\gamma < 1$) (Ammosov *et al.* 1986) en supposant, étant donné les éclaircements élevés (10^{14} - 10^{15} W/cm²), que seul l'état lié fondamental $|0\rangle$ joue un rôle.

Dans le continuum on néglige l'effet du potentiel atomique sur le mouvement des électrons, qui sont considérés comme libres et traités comme des ondes planes. Les éléments de matrice entre états du continuum, états propres $|\vec{v}\rangle$ de l'impulsion de l'électron sortant, s'écrivent $\langle \vec{v} | x | \vec{v}' \rangle = i \nabla_{\vec{v}} \cdot \delta(\vec{v} - \vec{v}')$ (Grochmalicki *et al.* 1986). La fonction d'onde électronique devient alors :

$$|\Psi(t)\rangle = e^{iI_p t} \left(a(t) |0\rangle + \int d^3 \vec{v} b(\vec{v}, t) |\vec{v}\rangle \right) \quad (\text{I-7})$$

où $a(t)$ est l'amplitude de l'état fondamental, $b(\vec{v}, t)$ les amplitudes des états correspondants du continuum. En considérant que la génération d'harmoniques n'est due qu'aux recombinaisons dans l'état fondamental, donc en négligeant les contributions continuum-continuum (Ivanov *et al.* 1992), le moment dipolaire dépendant du temps $x(t) = \langle \Psi(t) | x | \Psi(t) \rangle$ s'écrit :

$$x(t) = 2 \text{Re} \left(\int d^3 \vec{v} a^*(t) d^*(\vec{v}) b(\vec{v}, t) \right) \quad \text{où } d(\vec{v}) = \langle \vec{v} | x | 0 \rangle \quad (\text{I-8})$$

En introduisant le moment canonique $\vec{p} = \vec{v} + \vec{A}(t)$, avec $\vec{A}(t)$ potentiel vecteur du champ laser, on obtient l'expression :

$$x(t) = i \int_0^t dt' \int d^3 \vec{p} d^*(\vec{p} - \vec{A}^*(t')) a^*(t) \exp(-iS(\vec{p}, t, t')) E(t') d(\vec{p} - \vec{A}(t')) a(t') + cc \quad (\text{I-9})$$

où $S(\vec{p}, t, t')$ est l'action quasi classique de l'électron dans le continuum, s'écrivant :

$$S(\vec{p}, t, t') = \int_{t'}^t dt'' \left(\frac{(\vec{p} - \vec{A}(t''))^2}{2} + I_p \right) \quad (\text{I-10})$$

L'expression I-9 du moment dipolaire s'interprète comme une somme d'amplitudes de probabilité pouvant être associées à différents processus. L'amplitude de probabilité pour qu'un électron sorte dans le continuum au temps t' avec le moment canonique \vec{p} est $E(t') d(\vec{p} - \vec{A}(t')) a(t')$. La fonction d'onde électronique se propage alors jusqu'au temps t . Elle

acquiert un facteur de phase $\exp(-iS(\vec{p}, t, t'))$, où l'action quasi classique est associée au mouvement libre d'un électron dans le champ laser avec un moment canonique constant. On peut déjà remarquer que la phase du dipôle $x(t)$ dépend de l'éclairement par l'intermédiaire de l'action quasi classique. Enfin l'amplitude de probabilité pour que l'électron se recombine à l'état fondamental est $d^*(\vec{p} - \vec{A}^*(t))a^*(t)$.

Dans l'expression I-9, les valeurs de \vec{p} qui contribuent à l'intégrale sont celles qui rendent stationnaire l'action quasi classique : $\vec{\nabla}_{\vec{p}} S(\vec{p}_{st}, t, t') = \vec{x}(t) - \vec{x}(t') = 0$. Ce sont donc les moments \vec{p}_{st} pour lesquels l'électron, apparu au temps t' dans le continuum, retourne à la même position au temps t . Ces positions sont évidemment proches du noyau, car c'est le seul endroit où les transitions de et vers l'état fondamental ont une amplitude de probabilité non négligeable. L'expression du dipôle atomique, en tenant compte des extremums de l'action quasi classique (méthode du point selle) devient alors :

$$x(t) = i \int_0^\infty d\tau \left(\frac{\pi}{\varepsilon + i\tau/2} \right)^{\frac{3}{2}} d^*(p_{st} - A(t)) \exp(-iS(p_{st}, t, \tau)) E(t-\tau) d(p_{st} - A(t-\tau)) |a(t)|^2 + cc \quad (\text{I-11})$$

où $\tau = t - t'$ est le temps de retour de l'électron au voisinage du cœur atomique et ε une constante positive de régularisation. Afin d'explicitier le dipôle atomique, il est nécessaire de calculer le coefficient $a(t)$, amplitude de l'état fondamental, qui s'écrit en fonction du taux d'ionisation complexe $\gamma(t)$ du milieu :

$$a(t) = \exp\left(-\int_0^t \gamma(t'') dt''\right) \quad (\text{I-12})$$

$\gamma(t)$ est calculé à partir des moments de transition $d(\vec{p})$ et du champ $\vec{E}(t)$. L'expression du taux d'ionisation peut être traitée de la même manière que celle du dipôle atomique ; on peut montrer qu'en régime tunnel $\gamma(t)$ est une fonction périodique du temps de valeur moyenne $\bar{\gamma}$:

$$\bar{\gamma} = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} dt' \gamma(t') \quad (\text{I-13})$$

qui conduit à une décroissance exponentielle de la population de l'état fondamental :

$$|a(t)|^2 = \exp(-\Gamma t) \quad (\text{I-14})$$

où $\Gamma = 2\text{Re}\bar{\gamma}$ dépend de I_p et de U_p . Le dernier terme dans l'expression (I-9) du dipôle atomique est le terme de transition $d(\vec{p})$, qui dans notre cas se réduit aux transitions de et vers

le continuum. Les états du continuum sont traités comme des ondes planes, malgré la portée du potentiel Coulombien. Les éléments de matrice prennent la forme (Bethe *et al.* 1957) :

$$d(\vec{p}) = i \left(\frac{2^{7/2} \alpha^{5/4}}{\pi} \right) \frac{\vec{p}}{(\vec{p}^2 + \alpha)^3} \quad \text{où } \alpha = 2I_p \quad (\text{I-15})$$

Dans le cas d'un faible taux d'ionisation, on peut exprimer le dipôle $x(t)$ comme une série de Fourier des harmoniques d'ordre q impair de la fréquence fondamentale :

$$x(t) = \sum_{q \text{ impair}} x_q e^{-iq\omega t - \Gamma t} + cc \quad (\text{I-16})$$

Les coefficients x_q de la série I-16 sont calculés par transformée de Fourier de $x(t)$:

$$x_q = \frac{1}{2\pi} \int_{t_0}^{t_0+2\pi} dt x(t) \exp(iq\omega t) \quad (\text{I-17})$$

Une résolution analytique de l'équation I-17 combinée à I-11 est possible, donnant le dipôle harmonique en amplitude et en phase. Pour retrouver l'image physique donnée par le modèle semi – classique (section B-7), on peut effectuer une analyse de type point selle sur les trois variables t (équation I-17), t' et \vec{p} (équation I-9). Remarquons que ces grandeurs sont complexes du fait de l'effet tunnel.

La résolution des équations qui traduisent que l'action est stationnaire (I-10) permet de déterminer les trajectoires quantiques ayant une contribution dominante au terme source x_q de l'harmonique considérée. Nous ne présentons ici, sans démonstration, que les principaux résultats de (Lewenstein *et al.* 1994, 1995). Il est ainsi démontré que, dans la région de la coupure, une seule trajectoire complexe domine l'émission harmonique. Elle correspond à un temps de retour de l'électron tel que $\text{Re}(\tau) \sim 0,65T$. Dans le plateau, par contre, deux trajectoires sont dominantes, correspondant à des temps de retour complexes, τ_1 et τ_2 . Les parties réelles de ces temps mesurent le temps d'oscillation dans le continuum ;

- $\text{Re}(\tau_1)$, de l'ordre de $T/2$, définit la trajectoire dite « courte »
- $\text{Re}(\tau_2) \sim T$ définit la trajectoire dite « longue ».

La phase associée à chacune de ces 2 contributions est déterminée par l'action acquise le long des trajectoires. En première approximation $S \sim U_p \text{Re}(\tau)$; la phase du dipôle associée à la trajectoire longue est donc au moins deux fois plus grande que celle associée à la trajectoire courte. La composante x_q du dipôle s'écrit comme la somme des contributions des trajectoires courte et longue, incluant le terme d'interférence entre ces deux trajectoires (Gaarde *et al.* 1999) :

$$x_q = \sum_p |x_{q,p}| \exp i(\phi_{q,p}) \quad (\text{I-18})$$

où q et p désignent respectivement l'ordre harmonique et la trajectoire « courte » ou « longue », $\phi_{q,p}$ désignant la phase du dipôle harmonique correspondant.

A titre d'illustration, nous présentons en Figure I-16 le résultat de la variation de l'intensité et de la phase du dipôle, dans le cas de l'harmonique 45 générée dans le néon, calculée à partir du modèle SFA (résolution des équations I-11 et I-17). Le dipôle x_{45} est représenté dans une gamme d'éclairements allant de 1 à $6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. On observe clairement deux régions dans la variation de l'amplitude du dipôle $|x_{45}|$.

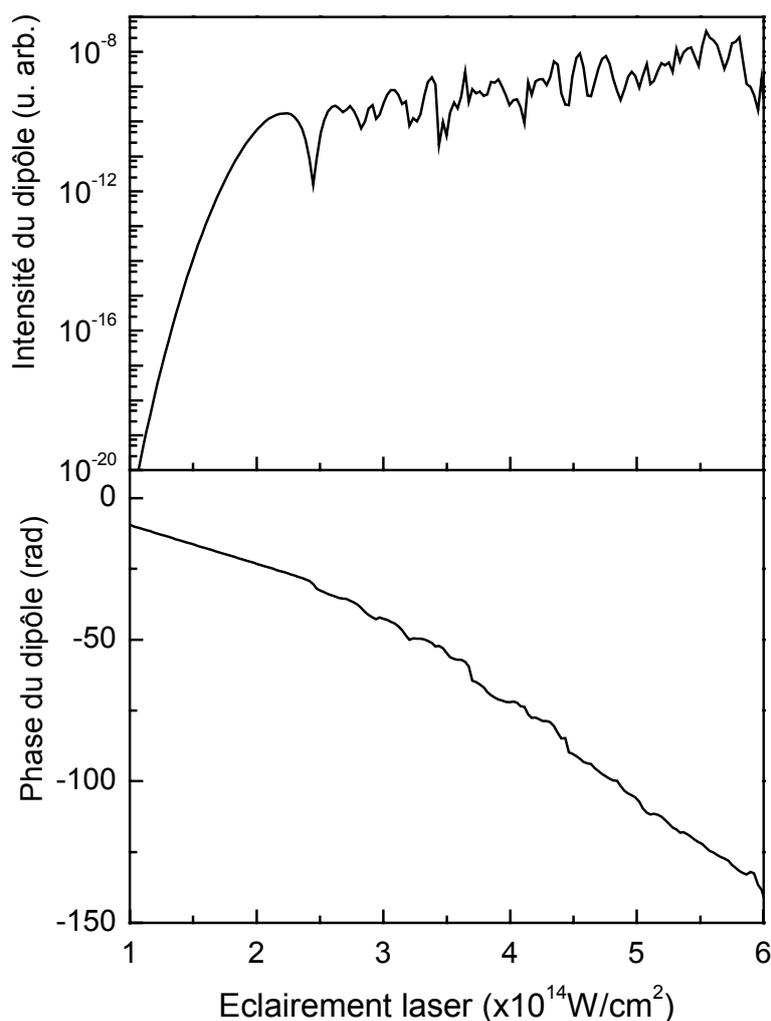


Figure I-16 : Variation de l'intensité et de la phase du dipôle atomique de l'harmonique 45 générée dans le néon en fonction de l'éclairement laser.

A faible éclairement, quand l'harmonique se trouve dans la coupure du spectre, la croissance est très rapide avec une forte pente. A plus fort éclairement, quand l'harmonique entre dans la

région du plateau, l'intensité du dipôle sature en présentant des interférences entre les trajectoires courte et longue, définies précédemment. La rupture de pente marquée à la transition plateau - coupure a lieu pour un éclairement de $2,4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Cet éclairement correspond à celui donné par la loi de coupure : $45\omega = I_p + 3,2U_p$, $I_p = 21,7 \text{ eV}$ pour le néon et $U_p(\text{eV}) = 9,33\lambda^2(\mu\text{m})I(10^{14} \text{ W/cm}^2)$. La phase du dipôle présente elle aussi un comportement caractéristique : elle décroît linéairement avec l'éclairement croissant dans la partie de la coupure (faible éclairement), avec une pente de $-3,2U_p/\omega$ ($-13,55 \text{ rad}/(10^{14} \text{ W/cm}^2)$). Dans le plateau, la variation est bien plus rapide et présente des oscillations d'amplitude de l'ordre de $2\pi/3$ autour d'une valeur moyenne de pente $-6,1U_p/\omega$ ($-25,9 \text{ rad}/(10^{14} \text{ W/cm}^2)$). Ce comportement du dipôle atomique, en amplitude et en phase, avec l'éclairement laser illustré par l'harmonique 45 générée dans le néon, n'est pas un cas particulier. En effet un comportement similaire en plateau-coupure est observé quel que soit le gaz rare étudié, ou l'ordre harmonique (ordre assez élevé afin d'être en régime tunnel $\gamma < 1$). La principale différence provient de l'éclairement de transition entre les deux régions.

En conclusion, le modèle SFA développé par Lewenstein *et al.* retrouve, en les justifiant, les hypothèses du modèle semi classique en trois étapes. Il permet de calculer le dipôle harmonique et de montrer la dépendance très particulière de la phase du dipôle avec l'éclairement laser dans ce régime de champ fort et basse fréquence. L'existence de plusieurs trajectoires de l'électron contribuant à l'émission d'une même harmonique a également été démontrée. La variation de la phase du dipôle et la présence de plusieurs trajectoires vont jouer un rôle décisif lors de l'émission harmonique macroscopique. Pour en apprécier plus précisément les conséquences, il est nécessaire d'analyser les équations de propagation d'un champ dans un milieu dispersif.

2. Réponse macroscopique du milieu.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé dans un gaz a pour terme source la polarisation non linéaire (produit du dipôle et de la densité atomique) induite dans le milieu par un champ laser excitateur intense. Le champ harmonique macroscopique d'ordre q résulte de la superposition cohérente des champs rayonnés à la fréquence $q\omega$ par les dipôles atomiques contenus dans le volume d'interaction. Il faut donc, pour obtenir une génération optimale du champ harmonique total, que ces champs interfèrent constructivement. C'est le problème de l'accord de phase entre la polarisation non linéaire et le champ harmonique qui doivent se propager avec la même vitesse de phase dans le milieu générateur. Nous verrons

¹ Rappelons que $U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2}$, et que $I = \frac{\epsilon_0 c}{2} E^2$, ce qui conduit à $U_p \sim 6 \text{ eV}$ pour $\lambda = 800 \text{ nm}$ et $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

qu'il existe plusieurs causes possibles de déphasage : focalisation, dispersion atomique et électronique.... De plus, comme nous l'avons vu, la phase du dipôle varie fortement en fonction de l'éclairement. La phase du champ harmonique émis n'est donc plus exclusivement déterminée par la phase du champ laser fondamental, comme c'est le cas en régime perturbatif, mais également localement, de manière non triviale, par l'éclairement dans le milieu. La variation spatiale de l'éclairement dans le milieu conduit à une distribution spatiale de la phase du dipôle. Ainsi les conditions d'accord de phase ne sont pas uniques et dépendent fortement des conditions de génération, pouvant déterminer différents régimes d'accord de phase.

Dans un premier temps nous établirons les équations de propagation du champ harmonique dans un milieu dispersif (§2.1), puis nous détaillerons les différentes conditions d'accord de phase (§2.2).

2.1 Equations de propagation dans un milieu dispersif.

Nous ne présenterons ici qu'un rappel du formalisme utilisé pour caractériser la propagation du champ harmonique à travers un milieu dispersif. Une étude plus détaillée peut être trouvée dans (L'Huillier *et al.* 1992, Balcou 1993 et Salières 1995a). Ce rappel nous permettra toutefois de mieux comprendre le processus d'émission macroscopique et de discuter plus en détail les conditions d'accord de phase. L'équation générale² de propagation d'un champ électromagnétique $\vec{E}^-(\vec{r}, t)$ dans un milieu diélectrique isotrope neutre, caractérisé par une polarisation électrique $\vec{P}^-(\vec{r}, t)$, s'écrit :

$$\Delta \vec{E}^-(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}^-(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^-(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \quad (\text{I-19})$$

Dans l'approximation paraxiale, on suppose que le champ $\vec{E}^-(\vec{r}, t)$ est en tout point perpendiculaire à l'axe de propagation et résulte de la superposition du champ fondamental et des champs harmoniques générés. On peut alors décomposer les contributions à ω et $q\omega$ en écrivant les champs sous la forme d'une série :

² L'équation de propagation est établie à partir des équations de Maxwell (Boyd, p57 1992).

$$\begin{aligned} \vec{E}^-(\vec{r}, t) &= \frac{1}{2} \left(\sum_{q \text{ impair}} \vec{E}_q^-(\vec{r}, t) \exp(-iq\omega t) + cc \right) \\ \vec{P}^-(\vec{r}, t) &= \frac{1}{2} \left(\sum_{q \text{ impair}} \vec{P}_q^-(\vec{r}, t) \exp(-iq\omega t) + cc \right) \end{aligned} \quad (\text{I-20})$$

En régime stationnaire, l'équation I-19, conduit à un système d'équations couplées :

$$\Delta \vec{E}_q^-(\vec{r}) + \left(\frac{q\omega}{c} \right)^2 \vec{E}_q^-(\vec{r}) = -\frac{1}{\varepsilon_0} \left(\frac{q\omega}{c} \right)^2 \vec{P}_q^-(\vec{r}, t) \quad (\text{I-21})$$

Cette équation, correcte dans le cas d'enveloppes temporelles lentement variables, peut ne plus l'être dans le cas d'impulsions courtes comme celles que nous considérons. La résolution du cas non stationnaire (Shen 1984) est traitée en faisant intervenir les transformées de Fourier des enveloppes temporelles E_q et P_q , en développant les termes faisant apparaître les dérivées première et seconde en temps. Lorsque les enveloppes varient lentement sur une période optique, un terme supplémentaire apparaît dans le premier membre de I-19 :

$$\frac{2ik_q}{v_{g,q}} \frac{\partial \vec{E}_q^-(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad \text{où } v_{g,q} = \frac{\partial \omega}{\partial k_q} \text{ est la vitesse de groupe à la fréquence harmonique } q\omega.$$

En général, cette approximation de l'enveloppe temporelle lentement variable est faite en parallèle avec l'approximation de l'enveloppe spatiale lentement variable (voir plus loin). Si la dispersion de la vitesse de groupe n'est pas négligeable, un décalage temporel entre les impulsions fondamentale et harmoniques se produit au cours de la propagation. Dans le cas qui nous intéresse, cette dispersion est faible car le milieu gazeux est suffisamment dilué. La résolution des équations se rapporte alors au cas quasi stationnaire, où les champs se propagent simultanément dans le milieu. La solution est identique au cas stationnaire, sous réserve de se placer dans le référentiel se translatant avec la vitesse de groupe maintenant identique pour les champs fondamental et harmoniques. Le changement de variables est ($z'=z$, $t'=t-z/v_g$). Cela suppose de négliger les contributions spatiales non locales à la polarisation, mais aussi de considérer que la polarisation suit la valeur temporelle instantanée du champ fondamental.

La polarisation P_q induite à la fréquence $q\omega$ se décompose en une partie variant linéairement avec E_q et une partie non linéaire :

$$\vec{P}_q^- = \vec{P}_q^{-L} + \vec{P}_q^{-NL} = \varepsilon_0 \chi_q \vec{E}_q^- + \vec{P}_q^{-NL} \quad (\text{I-22})$$

La susceptibilité χ_q est reliée à l'indice du milieu par $n_q = (1 + \chi_q)^{1/2}$. Dans le cas d'une faible dispersion, l'indice de réfraction est la somme des différents termes de dispersion induits par le milieu dilué (la partie imaginaire de la polarisabilité représente l'absorption) :

$$n_q(r, z) = 1 + \frac{1}{2} N_a(r, z) \alpha_a(q\omega, I) + \frac{1}{2} N_i(r, z) \alpha_i(q\omega, I) + \frac{1}{2} N_e(r, z) \alpha_e(q\omega) \quad (\text{I-23})$$

où a, i et e se rapportent à la contribution respective des atomes, ions et électrons libres, α étant la polarisabilité dépendant de l'éclairement I du champ fondamental dans les cas atomique et ionique et N les densités des différentes espèces présentes dans le milieu. Les densités dépendent des coordonnées radiale et longitudinale. Si la contribution des ions peut être négligée ($\alpha_i(q\omega)$ est très faible), il n'en est pas de même pour les deux autres termes. La dispersion atomique peut jouer un rôle non négligeable, en particulier dans le cas de géométries d'interaction où le laser générateur est peu focalisé (voir plus loin). Un autre terme important est la dispersion électronique. Lorsque le milieu commence à s'ioniser, produisant des électrons libres, le terme de dispersion correspondant peut très rapidement égaler les autres termes de dispersion et entraîner une défocalisation du faisceau : l'ionisation change aussi les conditions d'accord de phase. Les vecteurs d'onde peuvent être écrits :

$$\vec{k}_q = n_q(r, z) \frac{q\omega}{c} \vec{u} = \vec{k}_q^0(z) + \delta\vec{k}_q(r, z) \quad (\text{I-24})$$

On sépare ainsi les vecteurs d'onde $\vec{k}_q^0(z)$ et $\vec{k}_1^0(z)$ qui induisent des variations rapides des champs, et $\delta\vec{k}_q(r, z)$ et $\delta\vec{k}_1(r, z)$ qui introduisent des corrections lentement variables, dépendantes de r, aux champs harmoniques et fondamental. On introduit alors les fonctions enveloppes :

$$\begin{aligned} \vec{E}_q &= \vec{E}_q \exp\left(-i \int_{-\infty}^z k_q^0(z') dz'\right) \\ \vec{P}_q &= \vec{P}_q^d \exp\left(-i \int_{-\infty}^z qk_1^0(z') dz'\right) \end{aligned} \quad (\text{I-25})$$

où \vec{P}_q^d est le terme dominant dans la polarisation non linéaire, ne faisant intervenir que le fondamental, les harmoniques étant suffisamment faibles pour qu'on néglige les termes d'ordre supérieur. L'approximation des enveloppes lentement variables dans la direction de propagation z ($\partial^2/\partial z^2$ est négligeable devant $k_q \partial/\partial z$, $\partial^2/\partial x^2$ et $\partial^2/\partial y^2$) permet alors d'écrire le système d'équations :

$$\begin{aligned} \Delta_{\perp} \vec{E}_1 + 2ik_1^0 \frac{\partial \vec{E}_1}{\partial z} + 2(\vec{k}_1^0 \cdot \delta \vec{k}_1) \vec{E}_1 &= 0 \\ \Delta_{\perp} \vec{E}_q + 2ik_q^0 \frac{\partial \vec{E}_q}{\partial z} + 2(\vec{k}_q^0 \cdot \delta \vec{k}_q) \vec{E}_q &= -\frac{1}{\varepsilon_0} \left(\frac{q\omega}{c} \right)^2 \vec{P}_q \exp\left(-i \int_{-\infty}^z \Delta k_q^0(z') dz'\right) \end{aligned} \quad (\text{I-26})$$

où Δ_{\perp} est le laplacien transverse (somme des dérivées secondes par rapport aux coordonnées transverses x et y), et $\Delta k_q^0 = \vec{k}_q^0 - q\vec{k}_1^0$.

En introduisant $\tilde{\vec{E}}_q = \vec{E}_q \exp\left(i \int_{-\infty}^z \Delta k_q^0(z') dz'\right)$ la deuxième équation du système I-26 devient :

$$\Delta_{\perp} \tilde{\vec{E}}_q + 2ik_q^0 \frac{\partial \tilde{\vec{E}}_q}{\partial z} + 2\vec{k}_q^0 \cdot (\delta \vec{k}_q + \Delta \vec{k}_q^0) \tilde{\vec{E}}_q = -\frac{1}{\varepsilon_0} \left(\frac{q\omega}{c} \right)^2 \vec{P}_q \quad (\text{I-27})$$

Remarquons qu'une approche équivalente à la précédente consiste à introduire directement, lors de la définition des fonctions enveloppes I-25, le vecteur d'onde total $\vec{k}_q(r, z)$ dans le terme de phase. On obtient des équations équivalentes au système I-26, mais permettant de mieux séparer les influences de la variation transverse de l'indice (qui affecte la propagation des champs) et du changement du désaccord de phase entre le champ fondamental et les harmoniques. Le terme de phase du second membre de I-26 est alors modifié en : $\exp\left(-i \int_{-\infty}^z \Delta k_q(z') dz'\right)$. Pour que le transfert d'énergie du champ fondamental au champ harmonique généré soit optimal, il faut réaliser :

$$\Delta \vec{k}_q = \vec{k}_q - q\vec{k}_1 = 0 \quad (\text{I-28})$$

C'est la condition d'accord de phase classique.

La résolution du système d'équations (I-26 et I-27) repose donc sur la détermination des vecteurs d'onde des champs fondamental et harmoniques, ainsi que la polarisation non linéaire. Rappelons que celle-ci dépend du dipôle atomique calculé dans le modèle SFA (C-1). On peut l'écrire comme :

$$P_q(r, z, t) = 2N_a(r, z, t) e x_q(r, z, t) \exp(iq\varphi_1(r, z, t)) \quad (\text{I-29})$$

où $\varphi_1(r, z, t)$ est la phase du champ fondamental. En exprimant le dipôle atomique en fonction de son module et de sa phase $\phi_q = \arg(x_q)$, I-29 devient :

$$P_q(r, z, t) = 2N_a(r, z, t) e |x_q(r, z, t)| \exp(i \arg(x_q) + iq\varphi_1(r, z, t)) \quad (\text{I-30})$$

Un traitement rigoureux de l'influence des indices de réfraction sur la propagation des champs harmoniques nécessite de propager en premier lieu le champ fondamental dans le milieu non linéaire (I-26a). Les électrons libres produits par ionisation du milieu peuvent défocaliser le fondamental au cours de sa propagation. En effet l'indice de réfraction dû aux électrons libres est plus faible au voisinage de l'axe de propagation (où l'ionisation est forte) que sur les bords : le milieu ionisé agit alors comme une lentille divergente. Pour tenir compte de cet effet il est nécessaire de modéliser le profil de densité atomique, ainsi que les taux d'ionisation calculés à partir des modèles ADK (Ammosov *et al.* 1986) rendant compte de la déplétion du milieu et de la densité d'électrons libres. On calcule ensuite la polarisation non linéaire P_q et le vecteur d'onde dépendant de l'intensité $\delta\vec{k}_q(r, z)$ induits par le champ fondamental E_1 perturbé par la défocalisation.

Nous avons maintenant tous les éléments pour effectuer une résolution numérique des équations de propagation établies en I-26 et I-27.

2.2 Conditions d'accord de phase dans le cas d'un faisceau fondamental Gaussien.

Parmi tous les phénomènes complexes qui interviennent dans la propagation, il en est un particulièrement important : c'est l'accord (ou le désaccord) de phase entre les champs exciteur et harmonique. C'est ce que nous discutons de façon phénoménologique dans cette section à l'aide d'une approche géométrique basée sur la conservation des vecteurs d'onde (Salières *et al.* 1995b, Salières 1995a, Balcou *et al.* 1997). Nous considérons ici un champ laser fondamental de fréquence ω , polarisé linéairement, assimilé à un faisceau Gaussien de paramètre confocal b , noté : $E_1(\vec{r}, t) = |E_1| \exp(i\varphi_1(\vec{r}, t))$. La phase $\varphi_1(\vec{r}, t)$ du laser fondamental peut être exprimée comme :

$$\varphi_1(\vec{r}, t) = \varphi_1^0(z, t) + \varphi_{géo}(\vec{r}, t) = \frac{\omega}{c} \int_{z_0}^z n_1(z', t) dz' + \arg\left(\frac{1}{b + 2iz} \exp\left(-\frac{k_1^0 r^2}{b + 2iz}\right)\right) \quad (\text{I-31})$$

On distingue, d'une part, l'influence du milieu dispersif, qui apparaît dans $\varphi_1(\vec{r}, t)$ associée à la propagation d'une onde plane selon z . L'indice n_1 inclut l'influence des atomes et des électrons libres. On néglige ici la variation radiale de l'indice. D'autre part, on considère la phase du faisceau Gaussien $\varphi_{géo}(\vec{r}, t)$ associée à la focalisation du laser dans le milieu

émetteur, où k_1^0 dépend de l'indice du milieu n_l . Sur l'axe z , cette phase de focalisation est appelée phase de Gouy et devient $\varphi_{géo}(r=0, z, t) = -\arctan\left(\frac{2z}{b}\right)$.

Le vecteur d'onde associé au faisceau fondamental est déterminé par le gradient de la phase, aboutissant à :

$$\vec{k}_1(r, z, t) = \nabla \varphi_1(r, z, t) = \nabla \varphi_1^0(z, t) + \nabla \varphi_{géo}(r, z, t) = k_1^0 \vec{z} + \vec{k}_{géo}(r, z, t) \quad (\text{I-32})$$

où \vec{z} est le vecteur unitaire dirigé selon l'axe de propagation.

Nous avons vu précédemment (équation I-30) que la phase de la polarisation non linéaire dépend de la phase du champ fondamental, mais aussi de la phase ϕ_q du dipôle atomique, qui varie linéairement avec l'éclairement laser. Le vecteur d'onde associé à la polarisation non linéaire peut donc s'écrire comme :

$$\vec{k}_{NL}(r, z, t) = \nabla \varphi_{NL}(r, z, t) = \nabla_q \varphi_1(r, z, t) + \nabla \phi_q(r, z, t) = q\vec{k}_1 + \vec{K} \quad (\text{I-33})$$

avec $\vec{K} = \vec{\nabla} \phi_q = -\eta_{q,p} \vec{\nabla} I(r, z, t)$, ($\eta_{q,p} > 0$, cf. Figure I-16) où q et p désignent respectivement l'ordre harmonique et la trajectoire contribuant principalement à l'émission harmonique. Le vecteur d'onde \vec{k}_q du champ harmonique généré présente dans une géométrie peu focalisée (faible divergence du faisceau générateur) un module $|\vec{k}_q| \approx n_q \frac{q\omega}{c}$ dépendant de l'indice de réfraction du milieu à la fréquence $q\omega$. Les deux champs doivent se propager avec la même vitesse de phase, conduisant à la quasi égalité des vecteurs d'onde, et à la condition d'accord de phase « généralisée » :

$$\vec{k}_q \cong q\vec{k}_1 + \vec{K} \cong qk_1^0 \vec{z} + q\vec{k}_{géo} + \vec{K} \quad (\text{I-34})$$

Le vecteur d'onde associé à la phase du dipôle peut donc contribuer à l'accord de phase dans plusieurs directions, radialement et longitudinalement, selon la distribution de l'éclairement dans le milieu. En fait, les distributions spatiales des vecteurs d'onde \vec{k}_1 et \vec{K} vont déterminer des régions où l'accord de phase peut être réalisé. En Figure I-17 sont représentées les variations spatiales de ces vecteurs d'onde dans la région du foyer, pour un laser se propageant de la gauche vers la droite. Le vecteur \vec{k}_1 est principalement dirigé selon l'axe de propagation z . La Figure I-17a illustre un champ de vecteur convergent pour $z < 0$ (qui correspond à un foyer laser situé après le centre du milieu atomique) et divergent pour $z > 0$. Nous discuterons les différentes contributions à ces vecteurs plus en détail dans le Chapitre II. Le vecteur \vec{K} qui est proportionnel à l'opposé du gradient de l'éclairement présente une distribution spatiale plus complexe (Figure I-17b).

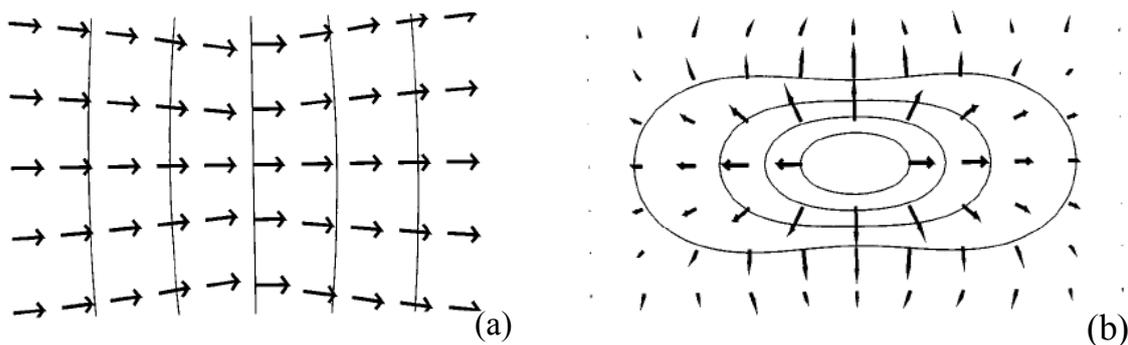


Figure I-17 : Distribution spatiale dans la région du foyer (a) du vecteur d'onde laser \vec{k}_1 et (b) de la phase atomique \vec{K} d'après (Balcou et al. 1997).

Pour illustrer ceci, nous nous plaçons dans le cas d'un milieu très dilué où la dispersion atomique est négligeable : $n_q \sim n_1$, ce qui implique $|k_q| \approx |qk_1^0|$. Nous distinguons quatre positions dans le volume focal, illustrées schématiquement en Figure I-18 :

(a) En $r=0$ et $z=0$, le vecteur d'onde \vec{K} est nul ; on obtient alors un désaccord de phase dû à la phase de Gouy, conduisant à la condition $k_q - qk_1 \approx \frac{2q}{b}$

(b) En $r=0$ et $z>0$, le vecteur d'onde \vec{K} permet de compenser, du fait de la variation longitudinale de l'éclairement laser, le désaccord de phase introduit par la focalisation du laser $q\vec{k}_{géo}$ et permet un accord de phase colinéaire. En effet $q\vec{k}_{géo} \propto -\vec{z}$, qui diminue la contribution $q\vec{k}_1$, et \vec{K} ne pointent pas dans la même direction. Le champ harmonique se construit alors sur l'axe, résultant en une émission harmonique centrée en sortie de milieu ainsi qu'en champ lointain.

(c) En $r=0$ et $z<0$, la situation est inversée. Les vecteurs d'ondes \vec{K} et $q\vec{k}_{géo}$ pointent dans la même direction, il n'y a plus de compensation possible. Dans ce cas l'accord de phase est très dégradé, rendant la construction du champ harmonique impossible sur l'axe.

(d) En $r \neq 0$ et $z < 0$, contrairement au cas précédent, il existe des régions hors axe de propagation permettant un accord de phase efficace non colinéaire. Il est alors possible de satisfaire la condition $\vec{k}_q \cong q\vec{k}_1 + \vec{K}$ dans une région proche du foyer mais hors axe, où la composante radiale de \vec{K} est importante. Le champ harmonique émis présente

alors une structure spatiale annulaire. Le gradient radial est d'autant plus important que le facteur $\eta_{q,p}$ est important. La trajectoire longue semble alors avoir la contribution dominante dans l'accord de phase hors-axe.

Rappelons toutefois qu'en régime perturbatif (faible éclairage, $\phi_q = \text{constante}$) la condition d'accord de phase (I-34) se réduit à une égalité entre les vecteurs d'onde \vec{k}_q et $q\vec{k}_1$.

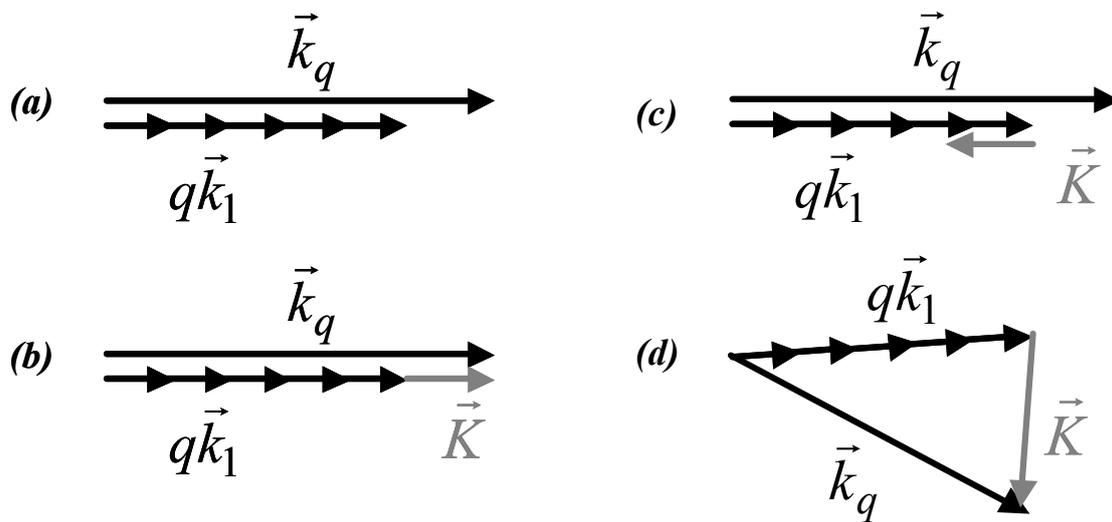


Figure I-18 : Représentation géométrique de l'accord de phase en terme de vecteurs d'onde en $r=0$ et $z=0$ (a), $r=0$ et $z>0$ (b), $r=0$ et $z<0$ (c) et $r\neq 0$ et $z<0$ (d). Le faisceau se propage de la gauche vers la droite.

Les conditions d'accord de phase (b) et (d) sont illustrées sur la Figure I-19, par des simulations de la construction du champ de l'harmonique 45 dans le milieu générateur (néon, d'après Salières *et al.* 1995b calculés à partir du code de propagation). Lorsque le laser est focalisé avant le jet ($z=+3\text{mm}$, cas (b)), le champ harmonique se construit sur l'axe et présente une faible divergence à la sortie du milieu. Par contre lorsque le laser est focalisé après le jet ($z=-1\text{mm}$, cas (d)), bien que le front d'onde du faisceau fondamental soit encore convergent, le champ harmonique se construit principalement hors axe, présentant un profil annulaire à la sortie du milieu, avec une divergence bien plus importante que dans le cas précédent. L'observation des profils d'émission harmonique est une conséquence directe de la façon dont l'accord de phase est réalisé dans le milieu. La signature de ces conditions d'accord de phase apparaît dans la courbe d'efficacité de génération (trait plein) sous la forme de deux maxima aux positions z optimales.

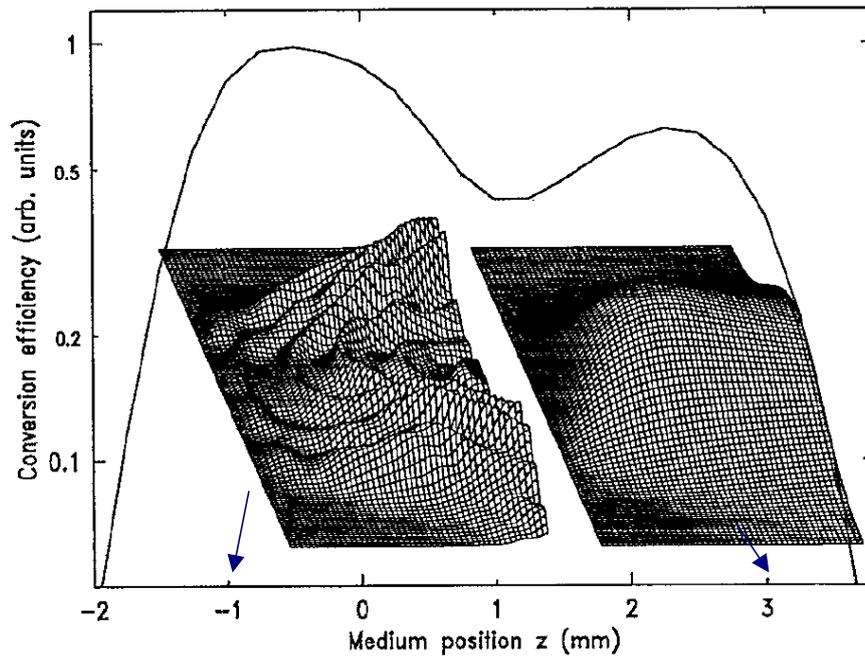


Figure I-19 : Variation de l'efficacité de génération (trait plein) dans le milieu en fonction de la distance z entre le centre du jet et le foyer, d'après (Salières et al. 1995b). La construction dans le milieu du champ harmonique aux positions z optimales est également représentée.

Conclusion

Nous avons tout d'abord décrit les systèmes expérimentaux utilisés pour la génération des harmoniques d'ordre élevé (laser, milieu atomique) et pour leur analyse et détection (spectromètre, détecteurs). Nous avons ensuite rappelé les principales dépendances expérimentales des spectres harmoniques en fonction des caractéristiques du laser excitateur et du milieu générateur. La structure caractéristique en *plateau – coupure* des spectres harmoniques peut être expliquée par un formalisme relativement simple (modèle semi-classique en trois étapes). Le modèle quantique retrouve rigoureusement l'image proposée par le modèle semi-classique en en justifiant les hypothèses.

On retrouve alors le même comportement en *plateau – coupure*, en fonction de l'éclairement laser dans le milieu, du module du dipôle atomique. Après une croissance rapide à faible éclairement, lorsque l'harmonique est dans la coupure, le module du dipôle sature en présentant des interférences à éclairement plus élevé. La phase du dipôle passe d'une

décroissance linéaire dans la coupure à une décroissance plus rapide dans le plateau qui présente des oscillations. Ces interférences sont dues à l'existence de différentes trajectoires de l'électron, une courte et une longue, qui contribuent à l'émission harmonique.

Nous avons ensuite rappelé les principaux développements des équations de propagation des champs fondamental et harmonique dans un milieu dispersif, dans les approximations paraxiale et des enveloppes spatiales et temporelles lentement variables. Par une approche géométrique nous montrons comment la condition d'accord de phase classique est modifiée en régime de champ fort – basse fréquence par un terme dû à la variation rapide de la phase du dipôle atomique en fonction de l'éclairement laser dans le milieu générateur. La conséquence de cette phase supplémentaire est l'existence de deux positions de focalisation où l'accord de phase est optimal (cas d'un faisceau Gaussien focalisé dans un jet de gaz). L'émission harmonique présente ainsi un profil centré lorsque le laser est focalisé *avant* le milieu atomique, signature d'un accord de phase efficace sur l'axe. Lorsque le laser est focalisé *après* le centre du jet, l'émission résultante est annulaire, signature d'un accord de phase efficace hors axe.

On peut donc dire qu'il existe deux régimes d'émission harmonique régis par les conditions de focalisation dans le milieu. Nous allons étudier plus précisément ces conditions d'accord de phase dans le cas de la génération d'harmonique lors du couplage du laser fondamental dans un capillaire rempli de gaz. Nous verrons alors s'il est également possible de trouver deux régimes d'accord de phase bien qu'il n'existe plus qu'une condition de focalisation unique, à savoir le guidage du faisceau fondamental par la fibre creuse.

Chapitre II : Génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les fibres creuses.

Introduction.

1. Contexte

Au cours des dernières années, un certain nombre d'applications utilisant les harmoniques d'ordre élevé comme source de rayonnement UVX ont été développées, utilisant leurs propriétés uniques de cohérence et de courte durée. Bien que ces applications aient d'ores et déjà démontré l'intérêt de la source harmonique, un grand nombre de nouvelles applications seraient rendues possibles si le nombre de photons générés était augmenté. Aussi l'optimisation de l'efficacité de génération est-elle devenue un sujet particulièrement chaud. L'influence des différents paramètres de l'interaction laser – matière sur la génération harmonique ayant été très étudiée (cf. Chapitre I-B), il a été proposé de générer les harmoniques en couplant le laser fondamental dans une fibre creuse remplie de gaz (Rundquist *et al.* 1998, Constant *et al.* 1999). Ce dispositif expérimental était très intéressant pour trois raisons principales. La première est la possibilité d'augmenter considérablement la longueur du milieu générateur (quelques cm) par rapport à un jet pulsé de gaz (quelques mm). La seconde est l'effet de guidage du faisceau laser fondamental par la fibre creuse. On peut ainsi espérer soumettre le milieu générateur à un éclairage plus constant en limitant fortement les effets de défocalisation par les électrons libres. Ces deux raisons permettent d'augmenter de manière significative la longueur d'interaction entre le laser et le milieu générateur, première étape vers l'optimisation de l'émission harmonique. La troisième raison est la possibilité d'un contrôle plus précis de l'accord de phase entre la polarisation non linéaire et les champs harmoniques émis. Une dernière raison, plus technique, est liée au taux de répétition élevé des systèmes lasers kHz. Les jets pulsés fonctionnant à taux de répétition élevé et présentant des densités atomiques pics suffisamment élevées sont encore relativement rares. Les importantes quantités de gaz qui sont alors relâchées dans l'enceinte font que le vide résiduel augmente très vite lorsque l'on utilise un système de pompage classique (pompe primaire couplée à une pompe turbo moléculaire). Avec une fibre creuse on limite les pertes de gaz et on conserve un vide résiduel satisfaisant même en utilisant un système classique de pompage.

Les premières études effectuées sur la génération d'harmoniques dans les fibres creuses ont principalement porté sur l'efficacité de génération (Rundquist *et al.* 1998, Durfee III *et al.* 1999). Les auteurs rapportent une augmentation de deux ordres de grandeurs de l'efficacité selon les conditions de génération. Ces derniers ont mesuré l'intensité d'une harmonique d'ordre q en fonction de la pression, qui semble être le paramètre important pour

l'accord de phase. Ces variations en fonction de la pression, révèlent systématiquement un maximum d'émission pour une valeur donnée de la pression, qui dépend de la nature du gaz. L'étude des profils d'émission montre que l'on passe d'un faisceau harmonique très large à un faisceau centré lorsque la pression optimale pour l'accord de phase est atteinte. Une étude expérimentale et théorique (modèle 1D) menée par (Constant *et al.* 1999), compare les efficacités de génération obtenues lors de la génération dans une fibre et dans un jet, toujours en étudiant la variation du signal harmonique émis en fonction de la pression. Dans les deux cas il existe une pression optimale, différente selon le conditionnement du milieu, avec des efficacités de génération équivalente.

Dans ce chapitre, après avoir présenté des spectres d'émission ainsi que des courbes d'efficacité de génération en fonction de la pression, nous nous intéresserons à la manière dont s'effectue l'accord de phase lors de la génération dans les fibres creuses remplies de gaz. Pour cela, nous présenterons dans un premier temps les méthodes expérimentales utilisées afin de définir les meilleures conditions de génération. Puis nous regarderons plus en détail les profils d'émission en champ lointain des harmoniques, signature explicite de la façon dont se réalise l'accord de phase dans le milieu. Pour finir, les résultats expérimentaux seront comparés aux simulations numériques, ce qui mettra en évidence des effets importants. Pour commencer, nous présentons des rappels sur la propagation d'un faisceau dans une fibre creuse.

2. Rappels théoriques sur la propagation d'un faisceau dans une fibre creuse.

2.1 Généralités.

Nous considérons la manière d'obtenir un bon couplage du laser dans la fibre creuse et sa conséquence sur le mode laser résultant. Le capillaire est caractérisé par sa longueur L et son rayon interne a correspondant à la partie creuse de la fibre, mais aussi par l'indice de réfraction n du matériau formant le guide d'onde. De manière générale, la fibre creuse peut être considérée comme un cylindre circulaire « interne » de rayon a et de constante diélectrique ε_0 (vide) enveloppé dans une gaine cylindrique « externe » composée d'un matériau diélectrique ou métallique de constante diélectrique complexe ε . On considère que la perméabilité des deux milieux est la même, égale à celle du vide μ_0 (Figure II-1). Il faut alors déterminer les composantes du champ des modes normaux du guide d'onde ainsi que leurs constantes de propagation (vitesse de phase et constante d'atténuation) (Marcatili *et al.* 1964, Stratton 1941).

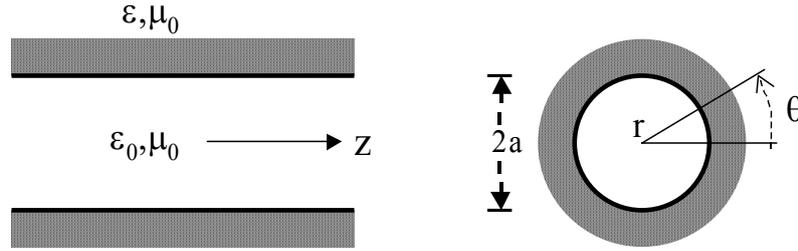


Figure II-1 : Fibre creuse diélectrique.

Afin de déterminer les modes de propagation dans la fibre, il faut résoudre les équations de Maxwell. Les composantes des modes propres, dans le cas général d'une structure cylindrique, satisfont à l'équation suivante en coordonnées cylindriques (Stratton 1941) :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial f}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 f}{\partial \theta^2} + (k^2 - \gamma^2) f = 0 \quad (\text{II-1})$$

où γ est la constante de propagation axiale du mode considéré. Les solutions de cette équation sont des fonctions de Bessel (fonctions cylindriques circulaires), solutions de l'équation $J_{l-1} \left(u_{lm} \frac{r}{a} \right) = 0$, où u_{lm} est la $m^{\text{ième}}$ solution de $J_{l-1}(u_{lm})$, avec l et m des entiers caractérisant le mode de propagation. Pour obtenir l'équation II-1, il faut supposer que $ka = 2\pi a/\lambda \gg |n| u_{lm}$ ainsi que $|\gamma/k - 1| \ll 1$, où $n = (\epsilon/\epsilon_0)^{1/2}$ est l'indice de réfraction complexe du milieu externe, k le vecteur d'onde dans le vide. La première inégalité impose que le rayon interne a soit bien plus grand que la longueur d'onde du laser propagé dans le capillaire. La deuxième inégalité implique que la constante de propagation axiale γ soit peu différente du vecteur d'onde dans le vide. Ceci limite l'analyse aux modes présentant peu de pertes.

Trois types de modes sont présents dans un tel guide d'onde, les modes électriques circulaires transverses TE_{0m} , les modes magnétiques circulaires transverses TM_{0m} et les modes hybrides avec toutes les composantes électriques et magnétiques EH_{lm} . Les composantes des champs dans ces modes sont répertoriées dans (Marcatili *et al.* 1964). La propagation de l'onde dans la fibre creuse peut être considérée comme une suite de réflexions sous incidence rasante sur la surface du diélectrique. Cette succession de réflexions provoque des pertes qui seront d'autant plus importantes que le mode propre considéré est d'ordre élevé. Ainsi le mode présentant le moins de pertes au cours de la propagation est appelé mode fondamental de la fibre. Notons ici la différence avec la propagation dans une fibre « pleine » où, la réflexion rasante verre-air étant totale, l'atténuation des modes lors de la propagation peut être très réduite.

2.2 Constantes de propagation des modes propres de la fibre creuse.

Les équations établies par Marcatili et Schmeltzer mènent à la détermination des constantes de propagation pour les trois types de modes :

$$\gamma \approx k \left[1 - \frac{1}{2} \left(\frac{u_{lm} \lambda}{2\pi a} \right)^2 \left(1 - i \frac{l_n \lambda}{\pi a} \right) \right] \quad (\text{II-2})$$

où l_n est donnée respectivement pour les modes TE_{0m} , TM_{0m} et EH_{nm} par :

$$l_n = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{n^2 - 1}} \\ \frac{n^2}{\sqrt{n^2 - 1}} \\ \frac{1}{2}(n^2 + 1) \\ \frac{1}{\sqrt{n^2 - 1}} \end{cases} \quad (\text{II-3})$$

Rappelons que l_n peut être complexe comme $n = (\varepsilon / \varepsilon_0)^{-1/2}$ selon le matériau constituant la partie externe du capillaire. La constante de phase et la constante d'atténuation de chaque mode sont, respectivement, les parties réelle et imaginaire de la constante de propagation γ :

$$\begin{aligned} \beta_{lm} = \text{Re}(\gamma) &= \frac{2\pi}{\lambda} \left\{ 1 - \frac{1}{2} \left[\frac{u_{lm} \lambda}{2\pi a} \right]^2 \left[1 + \text{Im} \left(\frac{l_n \lambda}{\pi a} \right) \right] \right\} \\ \alpha_{lm} = \text{Im}(\gamma) &= \left(\frac{u_{lm}}{2\pi} \right)^2 \frac{\lambda^2}{a^3} \text{Re}(l_n) \end{aligned} \quad (\text{II-4})$$

Dans un diélectrique, l'indice de réfraction n est généralement réel, les expressions (II-4) se réduisent à :

$$\begin{aligned} \beta_{lm} &= \frac{2\pi}{\lambda} \left\{ 1 - \frac{1}{2} \left[\frac{u_{lm} \lambda}{2\pi a} \right]^2 \right\} \\ \alpha_{lm} &= \left(\frac{u_{lm}}{2\pi} \right)^2 \frac{\lambda^2}{a^3} l_n \end{aligned} \quad (\text{II-5})$$

avec l_n donné par l'expression (II-3). Comme le facteur d'atténuation est proportionnel au rapport λ^2/a^3 , on peut réduire les pertes en augmentant la taille du rayon interne a par rapport

à la longueur d'onde. Dans le mode TE_{0m} , plus l'indice n est grand, plus les pertes en énergie sont importantes. Dans le mode TM_{0m} il est évident, en calculant la dérivée $\partial I_n / \partial n$, que le minimum d'absorption est obtenu pour $n = \sqrt{2}$. Pour les modes hybrides EH_{lm} le minimum de pertes est obtenu pour $n = \sqrt{3}$. Ainsi, en considérant les valeurs de u_{lm} possibles pour ces modes, le mode présentant le moins de pertes est un mode hybride lorsque $n < 2$, et TE_{01} dans le cas contraire. Etant donné le type de fibre que nous avons utilisé (cylindre extérieur en silice $n \approx 1,5$), ce sera le mode hybride EH_{11} qui sera mode fondamental de la fibre. L'atténuation en intensité d'un faisceau de longueur d'onde 800 nm couplé dans une fibre, de 4 cm de long et de rayon interne $a = 100 \mu\text{m}$, est de 1%. La majeure partie de l'énergie couplée dans la fibre creuse sera donc guidée par ce mode.

2.3 Mode fondamental EH_{11} dans la fibre creuse.

Afin de réaliser un couplage efficace du laser dans la fibre creuse, il est nécessaire d'adapter la taille du foyer laser à la dimension du mode fondamental de la fibre. Le mode fondamental EH_{11} est caractérisé par la relation $J_0(u_{11}) = 0$, où $u_{11} = 2,405$ est la première racine de la fonction de Bessel. Le mode fondamental peut donc s'écrire : $EH_{11} = J_0(2,405r/a)$.

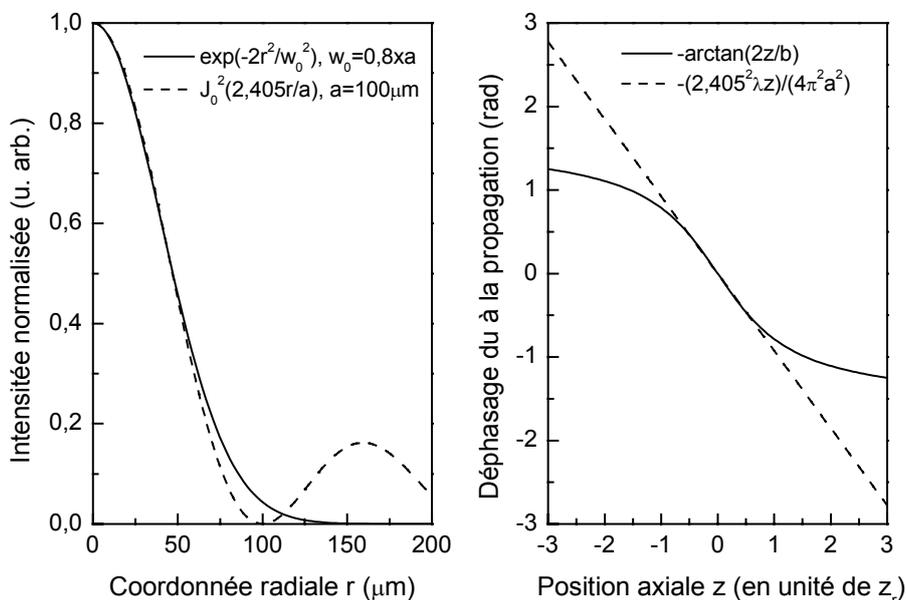


Figure II-2 : Comparaison entre le mode fondamental EH_{11} d'une fibre de rayon interne $100 \mu\text{m}$ (trait pointillé) et une Gaussienne telle que $w_0 = 0,8 \times a$ (trait plein) : (a) distribution radiale d'éclairement (b) déphasage dû à la propagation.

Si l'on considère que l'enveloppe de l'impulsion laser est Gaussienne, ou du moins peu différente ($M^2 \approx 2$), on peut comparer les distributions radiales d'intensité correspondant au mode laser et au mode fondamental de la fibre. Cette dernière $I_B \propto J_0^2(2,405r/a)$ est comparable à une intensité Gaussienne du type $I_G \propto \exp(-2r^2/w_0^2)$, pour $w_0=0,8 \times a$. Cette comparaison est illustrée en Figure II-2a pour une fibre de rayon interne $a=100\mu\text{m}$. Notons que la comparaison n'a de sens que pour $r < 100\mu\text{m}$, c'est à dire à l'intérieur de la fibre. En Figure II-2b sont comparées les phases (en $r=0$) d'un faisceau Gaussien et du mode fondamental de la fibre, selon les positions axiales z (exprimées en unité de longueur de Rayleigh z_r). La phase est la même, que ce soit pour une propagation libre ou guidée sur un intervalle $[-z_r, z_r]$. La fibre n'apporte donc rien de plus pour la génération d'harmonique, en terme de phase, par rapport à la région focale d'un faisceau Gaussien. Par contre la fibre permet de conserver la même distribution radiale d'éclairement le long de l'axe z , ce qui n'est pas le cas avec un faisceau Gaussien.

A. Etude expérimentale.

Les expériences ont été réalisées lors de deux campagnes, la première à Saclay sur le laser LUCA, la seconde à Bordeaux au laboratoire CELIA. L'expérience de Saclay a permis l'étude de l'accord de phase lors de la génération dans les fibres creuses. Cette expérience sera détaillée dans la section A-2. L'expérience réalisée au CELIA avait pour but d'optimiser l'émission harmonique et sera présentée dans la section A-1. Les spécificités des deux lasers utilisés ont été présentées au Chapitre I §A-1. Leurs taux de répétition élevés (20Hz et 1kHz) permettent des études systématiques avec une bonne statistique. Les deux lasers présentent une bonne qualité de faisceau, caractéristique importante, notamment pour les études de l'accord de phase à partir des profils d'émission harmonique.

1. Etude de l'efficacité de génération dans un capillaire.

1.1 Dispositif expérimental et couplage du laser dans le capillaire.

La Figure II-3 montre le dispositif expérimental utilisé au CELIA pour étudier et optimiser l'émission harmonique en fonction de différents paramètres de génération. Le rayonnement harmonique émis lors de l'interaction non-linéaire entre le laser générateur IR et le milieu atomique est analysé par un spectromètre UVX composé d'un miroir torique de focale 2m et d'un réseau plan (cf. Chapitre I §A.2). Le signal harmonique est mesuré sur une caméra CCD amincie Princeton, placée sous vide au foyer du spectromètre UVX. Ce type de

caméra étant extrêmement sensible au proche IR, un soin particulier est apporté à l'isolation de la caméra de la lumière IR du laser générateur, diffusée dans l'enceinte lors de sa réjection. Pour cela deux filtres d'aluminium d'épaisseurs 1200 Å et 2000 Å sont placés avant la CCD. Ces filtres de grand diamètre (1cm×3cm) sont déposés sur une fine grille qui les rend plus résistants. Le fait de superposer deux filtres réduit considérablement la lumière IR diffusée par les micro trous présents dans chacun d'eux.

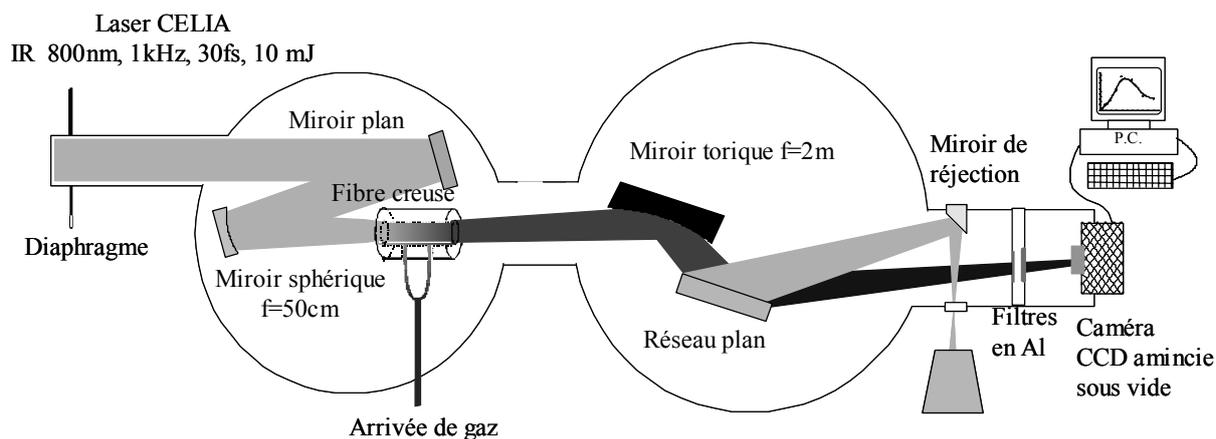


Figure II-3 : Schéma expérimental pour la génération d'harmoniques dans une fibre creuse remplie de gaz couplée au spectromètre UVX du CELIA de Bordeaux.

Les fibres creuses utilisées mesurent 4 cm de long pour un diamètre interne a allant de 100 à 400 μm . Le gaz est injecté continûment dans le corps creux de la fibre par deux trous, situés à 1 cm de chaque extrémité. Ceci permet d'obtenir une pression et donc une densité atomique quasi-constante sur toute la longueur du capillaire. La pression moyenne dans la fibre est proportionnelle à la pression amont mesurée (le facteur de proportionnalité supposé ~ 10 n'a pas été déterminé précisément). La fibre repose sur un support mécanique permettant un réglage sous vide de son orientation par rapport à l'axe du laser, représenté schématiquement sur la Figure II-4. Ainsi il est possible de translater la fibre sous vide, à l'aide de vérins motorisés, dans les directions Y (latéralement par rapport à l'axe du laser) et X (verticalement par rapport à l'axe du laser). Le miroir sphérique de refocalisation du faisceau laser est monté sur une translation manuelle afin de positionner précisément, à l'air, le foyer du miroir à l'entrée de la fibre (réglage de la position Z). Pour finir, des petits moteurs réglant les tilts du miroir permettent d'ajuster l'angle entre le capillaire et le faisceau incident (horizontal θ_h et vertical θ_v) afin d'optimiser le couplage du fondamental dans la fibre

creuse. Dans un premier temps, on réalise l'alignement de la fibre à bas flux pour ne pas l'endommager, puis il faut trouver la condition de couplage optimal.

Une fois la fibre alignée sur l'axe de propagation du laser, la taille du foyer laser est adaptée à celle du mode fondamental de la fibre en diaphragmant le faisceau, optimisant ainsi le couplage. Pour ceci, nous avons utilisé un trou calibré de diamètre compris entre 12 et 30mm (suivant la valeur du rayon interne a de la fibre) placé dans le faisceau de section $\phi_L \approx 35\text{mm}$ avant le compresseur, à une distance d'environ deux mètres de l'entrée de la fibre. A bas flux, nous avons réussi à coupler de l'ordre de 80% de l'énergie laser dans la fibre, en mesurant à l'aide d'un joulemètre l'énergie avant la fibre, $180\mu\text{J}$, et l'énergie en sortie, $145\mu\text{J}$. A plus haute énergie, le couplage est plus critique, tout d'abord à cause de la dispersion induite par le gaz s'échappant de la fibre (défocalisation du laser avant l'entrée dans la fibre), mais aussi du fait de la rapide détérioration de l'entrée du capillaire en cas de léger désalignement. Notons que l'énergie « perdue » en diaphragmant le faisceau laser aurait été couplée, du fait d'une plus grande divergence, dans les modes supérieurs de la fibre, se soldant par de plus fortes pertes.

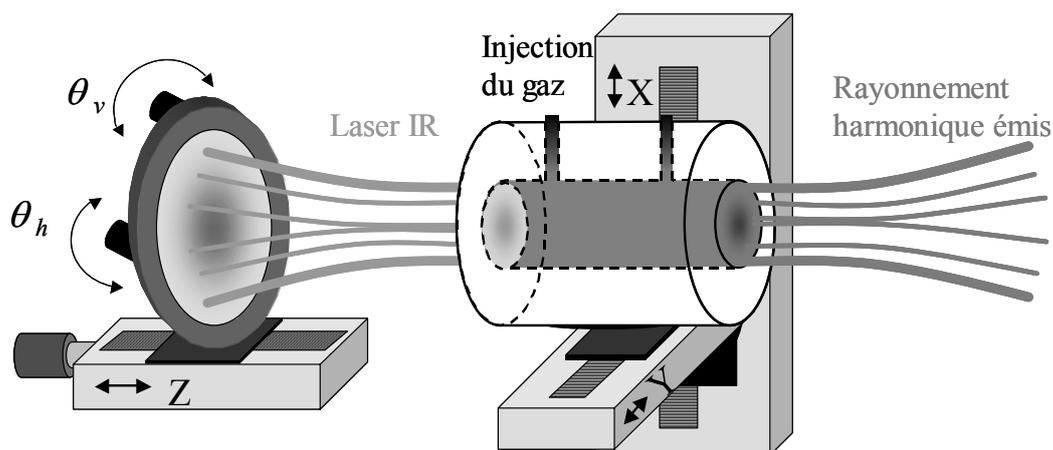


Figure II-4 : Schéma du montage des différentes translations pour réaliser le couplage du laser IR dans la fibre creuse.

1.2 Etude de l'émission harmonique en fonction des paramètres de génération.

1.2.1 Spectre harmonique en fonction de l'énergie laser.

L'énergie laser utilisée pour générer les harmoniques d'ordre élevé est un paramètre important (cf. Chapitre I §B.2). Il faut atteindre des éclaircissements conséquents dans le milieu,

proches de l'éclairement de saturation, afin d'optimiser la génération et d'étendre le plateau d'émission. Pour régler l'énergie couplée dans la fibre, une lame demi-onde est placée avant le compresseur. Lorsqu'on tourne la polarisation du laser, le compresseur joue un rôle d'atténuateur : l'efficacité de diffraction des deux réseaux qui le composent est optimale pour une polarisation perpendiculaire aux traits des réseaux (donc dans le plan d'incidence) et diminue fortement lorsque l'on s'en éloigne. Le compresseur peut être considéré comme un analyseur imparfait ; la mesure de l'énergie IR transmise en fonction de l'angle de la lame $\lambda/2$ donne un rapport d'atténuation de 20. Le principe du système et les résultats expérimentaux sont représentés en Figure II-5. Grâce à ce système nous pouvons varier facilement l'énergie laser injectée dans le capillaire.

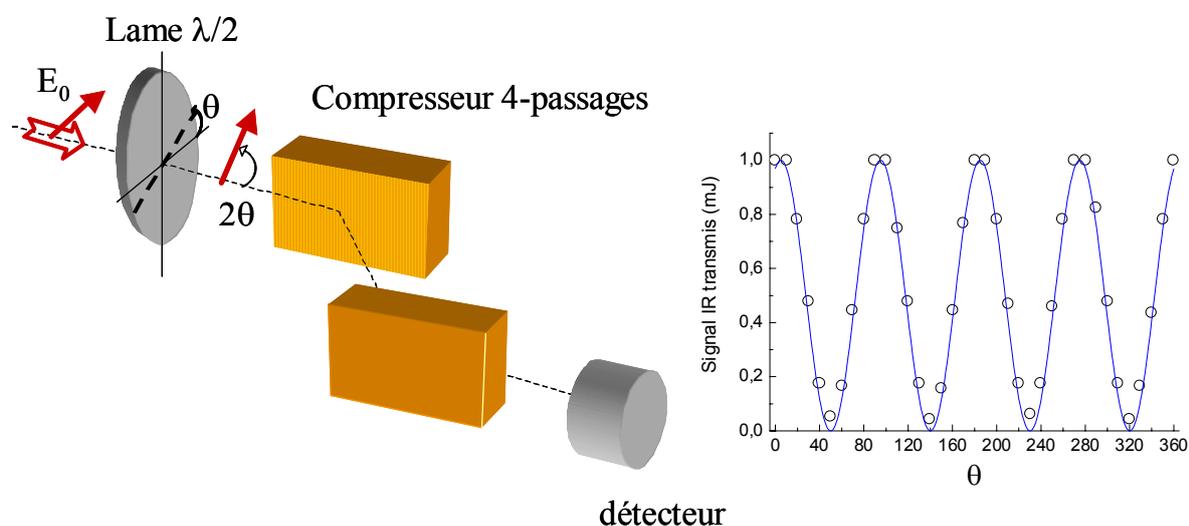


Figure II-5 : Schéma de principe de la variation de l'énergie laser avec une lame demi onde et énergie laser transmise en fonction de l'angle θ de la polarisation.

En Figure II-6 est présentée l'évolution d'une partie du spectre (harmoniques 25 à 31 générées dans 45 Torr d'argon), pour différentes énergies IR envoyées vers la fibre creuse de diamètre interne $200\mu\text{m}$. Les spectres sont corrigés du bruit de fond, de la réponse du spectromètre et du détecteur. Les structures visibles dans les profils harmoniques sont produites par la grille qui sert de support aux filtres en aluminium, placés avant la caméra CCD. Le temps d'exposition de la CCD est de 1s, correspondant à 1000 tirs. Si l'on suppose que l'on couple 80% de l'énergie dans le capillaire, les éclairements sont respectivement : 9.10^{13} , $1,3.10^{14}$, $2,7.10^{14}$, $4,5.10^{14}$, et 8.10^{14}W/cm^2 pour (a), (b), (c), (d) et (e). A faible éclairement ((a) et (b)) on observe une claire augmentation du signal pic et une largeur spectrale quasi constante. A fort éclairement ((c) et (d)) l'augmentation du signal pic sature

alors que la largeur spectrale s'accroît considérablement. Ainsi le spectre de l'harmonique 27 est élargi de 3Å à 15Å à mi-hauteur, lorsque l'éclairement est augmenté de $1,3 \cdot 10^{14}$ à $4,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. De plus on observe un déplacement global de la fréquence centrale de l'harmonique vers les courtes longueurs d'onde, couramment appelé « déplacement vers le bleu », qui sera discuté plus loin. Ce déplacement peut atteindre plus de 10Å au plus fort éclairement.

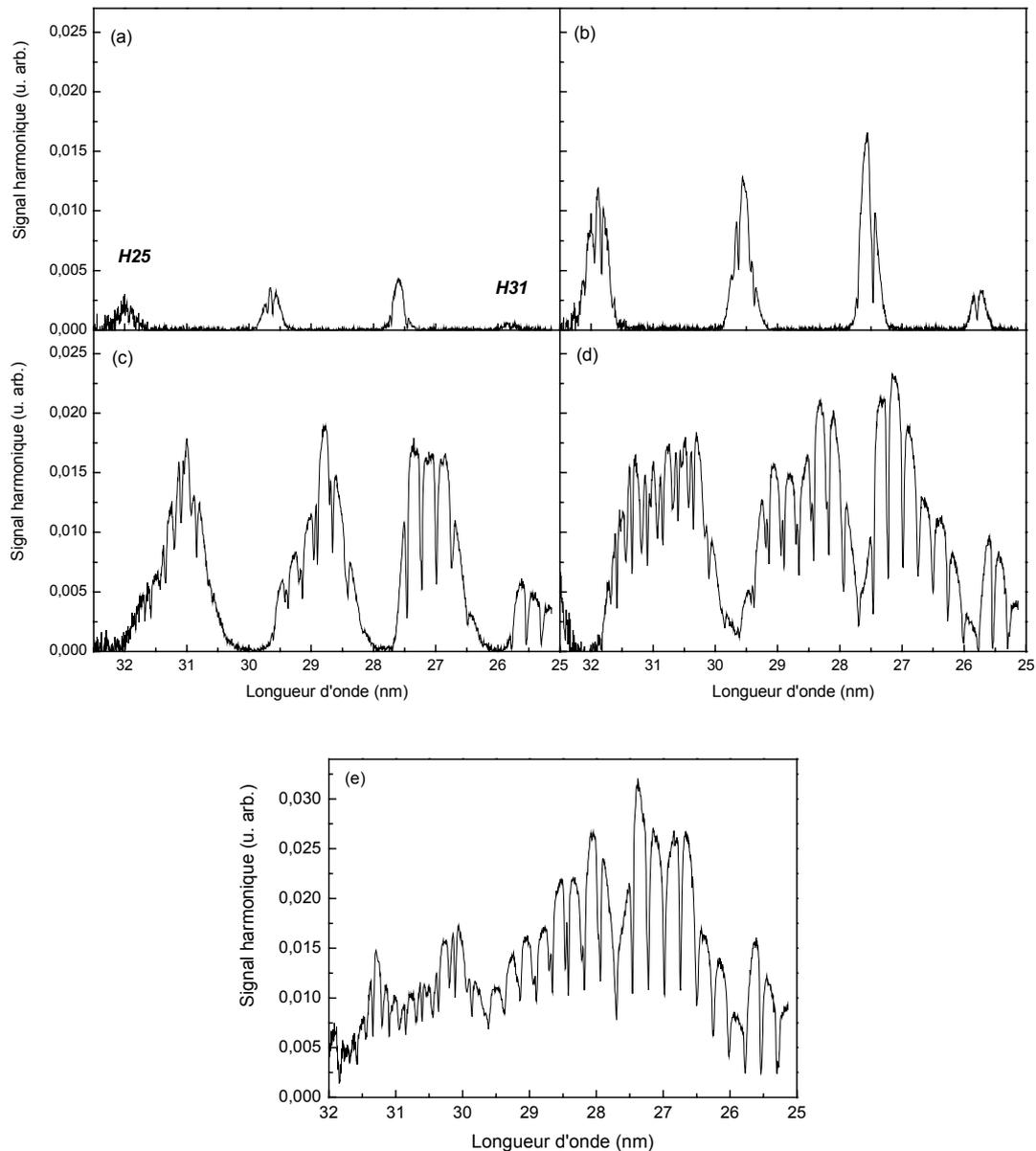


Figure II-6 : Spectres des harmoniques 25 à 31 générées dans 45 Torr d'argon pour différents éclairements pics dans le milieu : $9 \cdot 10^{13}$ (a), $1,3 \cdot 10^{14}$ (b), $2,7 \cdot 10^{14}$ (c), $4,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (d) et $8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (e).

A éclairement encore plus élevé (8.10^{14}W/cm^2), nous avons observé des élargissement spectraux tellement importants que les harmoniques se superposent, résultant en un spectre blanc (Figure II-6e). A faible éclairement, les harmoniques sont séparées de 2nm. Dans le cas du spectre blanc, le décalage/élargissement de l'harmonique par l'ionisation est donc supérieur à ces 2nm, mais difficile à estimer puisque les harmoniques se recouvrent.

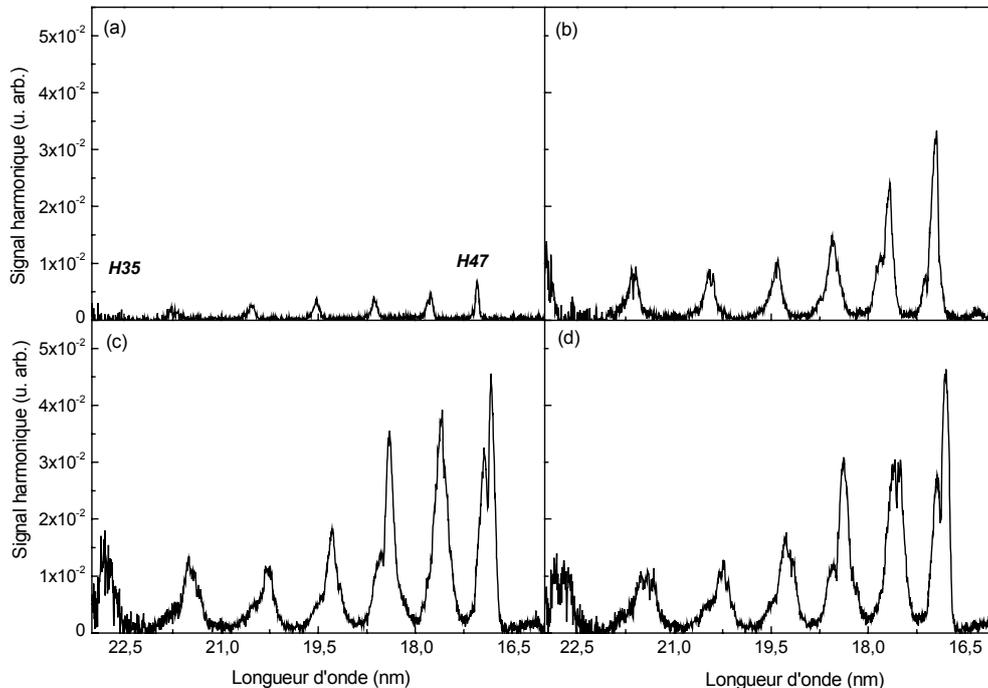


Figure II-7 : Spectres des harmoniques 35 à 47 générées dans 98 Torr de néon pour différents éclairements pics dans le milieu : $2,8.10^{14}$ (a), $4,6.10^{14}$ (b), $7,6.10^{14}$ (c) et $8,6.10^{14} \text{W/cm}^2$ (d).

Nous avons également étudié l'effet de l'éclairement laser sur les harmoniques générées dans le néon à une pression de 98 Torr. La Figure II-7 présente les harmoniques 35 à 47 générées à des éclairements de : $2,8.10^{14}$, $4,6.10^{14}$, $7,6.10^{14}$ et $8,6.10^{14} \text{W/cm}^2$, respectivement pour (a), (b), (c) et (d). On observe une nette augmentation du signal harmonique pic à faible éclairement ((a) et (b)) puis une saturation ((c) et (d)). Comparé à l'argon, l'élargissement spectral à fort éclairement est ici nettement plus faible ($1,4\text{\AA}$ à 3\AA), ainsi que le décalage spectral, qui atteint $2,1\text{\AA}$ pour l'harmonique 47. Un point remarquable dans ce spectre du néon par rapport à l'argon, est que les harmoniques d'ordre élevé sont clairement plus intenses que les ordres faibles et cette tendance s'accroît à fort éclairement. H45 est ainsi deux à trois fois plus intense que H37 lorsque le signal est intégré sur la largeur du profil spectral. Malgré les fluctuations d'intensité de l'émission harmonique, cette

asymétrie a été systématiquement observée, aussi bien dans le néon que dans l'hélium. Il semble donc que des effets d'accord de phase, ou d'absorption par le milieu émetteur lui-même, favorise les ordres élevés au détriment des plus faibles ; ils seront détaillés en section A.2. Remarquons pour finir que les spectres sont coupés au delà de l'harmonique 47 du fait du seuil d'absorption L_3 des filtres en aluminium à 17,05nm (Gullikson *et al.* 1994).

Le décalage/élargissement spectral observé sur les harmoniques peut être relié à l'ionisation du milieu, effet d'autant plus fort que l'éclairement dans le milieu est supérieur à l'éclairement de saturation. Les éclairements de saturation des différents gaz rares sont déduits de la mesure d'ions une fois chargés, en fonction de l'éclairement laser (Auguste *et al.* 1992). On voit ainsi que les spectres dans l'argon (Figure II-6c et II-6d) ont été enregistrés au dessus de l'éclairement de saturation, en présence d'une forte ionisation du milieu (cf. Chapitre I §B.5). Pour le néon, l'effet est moins important car l'éclairement maximal reste inférieur à l'éclairement de saturation.

La variation temporelle de l'indice de réfraction, par l'intermédiaire de la densité d'électrons libres N_e , a pour première conséquence le décalage spectral vers le bleu de l'impulsion fondamentale (Macklin *et al.* 1993, L'Huillier *et al.* 1992). Rappelons que le décalage spectral d'une impulsion de longueur d'onde λ se propageant dans un milieu ionisé de longueur L peut être estimé par (Yablonovitch 1988, Le Blanc *et al.* 1993) :

$$\delta\lambda_1 = -\frac{e^2 \lambda^3}{8\pi^2 \varepsilon_0 m_e c^3} \frac{dN_e}{dt} L \quad (\text{II-6})$$

(où e et m_e sont respectivement la charge et la masse de l'électron et c la vitesse de la lumière). Pour un éclairement proche de l'éclairement de saturation, on peut approximer la variation temporelle de la densité électronique dN_e/dt par N_0/τ où N_0 est la densité atomique initiale et τ la durée de l'impulsion. On peut estimer le déplacement spectral du fondamental dans nos conditions expérimentales ($\lambda=800$ nm, $\tau=40$ fs, $L=4$ cm), en supposant que tout le milieu est ionisé uniformément une fois, avec une densité atomique moyenne de $1,4 \cdot 10^{17}$ at/cm³ (la pression au niveau de l'injection n'est pas conservée sur toute la fibre - diminution d'au moins un facteur 20 sur les bords). Dans ces conditions, le déplacement spectral du fondamental est de 108nm (donc 4nm pour l'harmonique 27). Le décalage spectral des harmoniques peut quant à lui avoir deux origines : la variation de l'indice de réfraction à la fréquence harmonique $q\omega$ et le décalage spectral du fondamental. Le décalage dû à l'indice est égal à $\delta\lambda_q = \delta\lambda_1/q^3$ alors que le déplacement du fondamental reporté sur l'harmonique est $\delta\lambda_q = \delta\lambda_1/q$. On voit que l'effet des électrons libres est bien plus important sur l'impulsion fondamentale que sur une harmonique, surtout si son ordre est élevé, comme dans notre cas. Il semble donc probable, dans un premier temps, que le décalage des harmoniques observé en Figure II-6 et II-7 soit dû au déplacement du fondamental transféré à l'harmonique. En effet, il est nécessaire d'avoir un décalage spectral supérieur à 2 nm pour brouiller le spectre,

comme tel est le cas en Figure II-6e. Le décalage théorique, reste en bon accord avec l'expérience. Ceci est un phénomène bien connu, largement étudié dans un jet de gaz pulsé (Wahlström *et al.* 1993, Rae *et al.* 1994, Altucci *et al.* 1999).

1.2.2 Effet de la pression sur l'émission harmonique.

Les spectres de la Figure II-7 montrent un effet clair de l'éclairement laser, à pression fixée. Nous étudions maintenant l'influence sur l'émission harmonique de la pression de gaz dans la fibre. La Figure II-8 illustre l'évolution du signal intégré des harmoniques 21, 25, 29 et 33 générées dans l'argon, en fonction de la pression (les échelles verticales sont adaptées au niveau de signal de chaque harmonique).

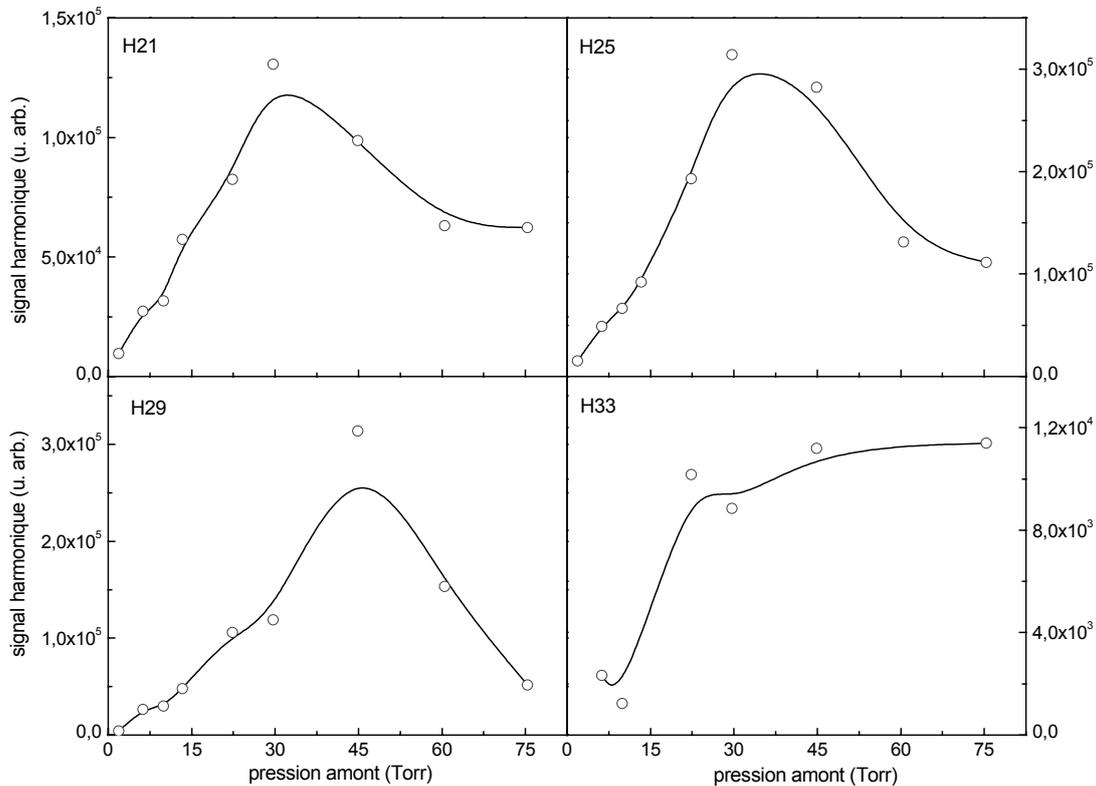


Figure II-8 : Evolution du signal intégré des harmoniques 21, 25, 29 et 33 générées dans l'argon (cercle) pour un éclairement laser de $1,6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Les courbes en trait plein sont un tracé moyen des points expérimentaux par approximation B-Spline.

Les points expérimentaux sont représentés par des cercles, les courbes en trait plein sont un tracé moyen par approximation B-Spline. Nous estimons que l'éclairement laser dans la fibre creuse remplie de gaz est de l'ordre de $1,6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Malgré la forte statistique (temps d'intégration de 1s donc 1000 tirs laser), des fluctuations du signal pouvant aller jusqu'à un facteur 2 ont été observées. Elles sont attribuées à des instabilités du pointé et de l'énergie du laser kHz. Ces instabilités ont bien entendu une incidence sur l'éclairement effectif dans le capillaire. Le premier point remarquable est l'existence d'un maximum d'émission harmonique (pour une pression P_{opt}) pour les harmoniques 21, 25 et 29, donnant à la courbe une forme en « cloche » : après une augmentation quasi linéaire du signal à basse pression, l'émission harmonique présente un maximum, puis diminue lentement pour les pressions élevées. La pression optimale semble dépendre de l'ordre harmonique. Elle augmente de 30 Torr à 45 Torr, lorsque l'on passe de l'harmonique 21 à 29. L'harmonique 33 présente une évolution différente : après une augmentation rapide à faible pression, le niveau de signal sature au delà de 20 Torr. Ce comportement particulier est probablement dû au fait que l'harmonique 33 se trouve dans la coupure du spectre (cf. Figure II-6).

Nous avons réalisé la même étude de l'évolution de l'émission harmonique en fonction de la pression pour les harmoniques générées dans le néon à un éclairement de $4,9 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (Figure II-9). Le signal de l'harmonique 35 a été multiplié par un facteur 5 pour être comparé avec les harmoniques 39 et 45. Il semble présenter un maximum à une pression P_{opt} de 90 Torr. Par contre, le signal des harmoniques 39 et 45 continue à augmenter jusqu'à la pression maximale que nous avons pu atteindre expérimentalement (du fait des performances du système de pompage).

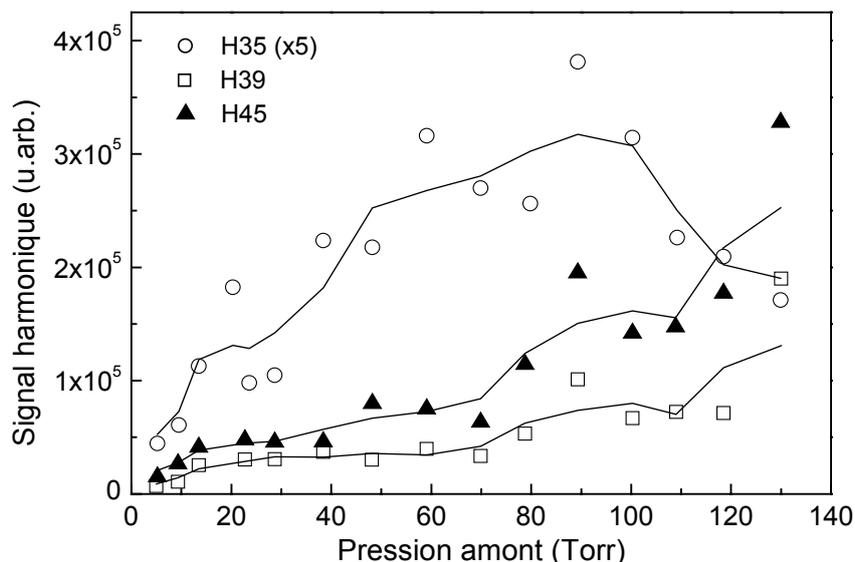


Figure II-9 : Evolution du signal intégré des harmoniques 35 (cercles), 39 (carrés) et 45 (triangles) générées dans le néon pour un éclairement laser de $4,9 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ dans le capillaire. Le signal correspondant à H35 est multiplié par 5. Les courbes en trait plein sont un tracé moyen des points.

Pour le néon, gaz rare léger, la pression optimale semble donc être plus élevée que pour l'argon. Il est également très clair que l'harmonique d'ordre élevé 45 est bien mieux générée que la 35 : il y a un facteur 5 entre les maxima des harmoniques 35 (90 Torr) et 45 (130 Torr).

L'évolution du signal harmonique avec la pression que nous avons observée dans l'argon est similaire à celle reportée par (Durfee III *et al.* 1999). Cette évolution pour différents gaz, des profils mesurés et calculés représentée en Figure II-10 est extraite de (Durfee III *et al.* 1999). Dans l'ordre des pressions optimales croissantes sont tracées l'harmonique 23 du xénon, 25 du krypton, 29 de l'argon et 25 de l'hydrogène. Plus le gaz rare générateur est léger, plus la pression optimale est élevée. Nos résultats sont donc en accord avec ce qui a déjà été observé. Cependant, nous n'observons pas la distorsion du spectre de l'argon rapportée par les auteurs : ces derniers observent en effet un signal nettement plus élevé sur les harmoniques 27 et 29 que sur leurs voisines.

Le fait que l'émission dépende si fortement de la pression dans le capillaire laisse à penser que la dispersion, dans ces milieux longs, joue un rôle crucial dans l'accord de phase. Nous allons maintenant étudier plus en détail la manière dont se réalise l'accord de phase dans les fibres creuses en identifiant les paramètres contribuant à une émission harmonique efficace.

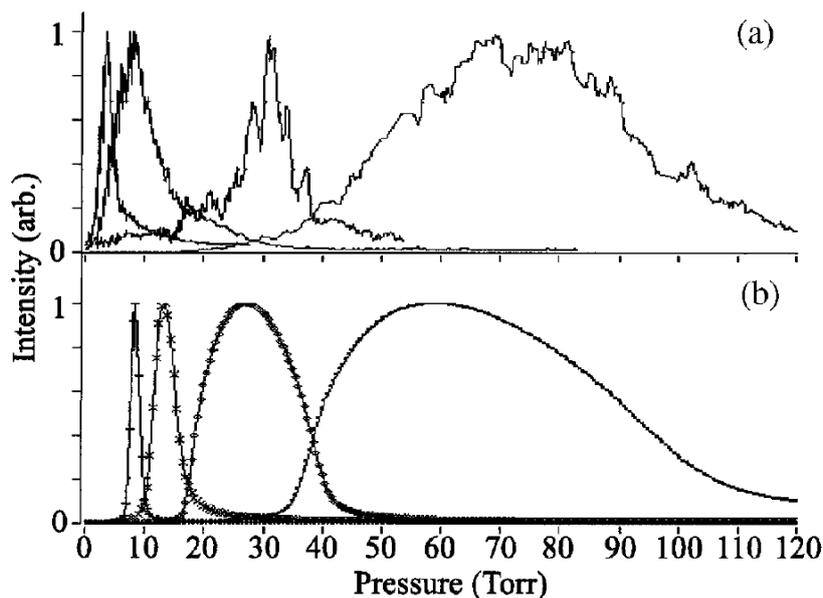


Figure II-10 : Dépendances en pression de l'émission harmonique dans différents gaz, mesurées (a) et calculées (b) d'après (Durfee III *et al.* 1999). Les courbes correspondent au xénon, krypton, argon et hydrogène dans l'ordre croissant des pressions optimales.

2. Etude des profils d'émission dans les capillaires.

2.1 Dispositif expérimental.

Afin de mieux comprendre l'accord de phase dans une fibre creuse remplie de gaz, nous avons effectué une série de mesures des profils spatiaux de l'émission harmonique. Ceci a été réalisé sur le laser LUCA de Saclay avec un dispositif expérimental similaire à celui utilisé au CELIA, dont nous ne détaillerons que les éléments spécifiques (cf. Figure II-11). Le laser générateur est focalisé à l'entrée du capillaire par une lentille de 50 cm de focale. Le couplage optimum, environ 70% de l'énergie est obtenu pour une taille de diaphragme de l'ordre de 11 mm. L'énergie utilisée pour générer les harmoniques dans l'argon est de 2 mJ et de 5 mJ dans le néon. La fibre creuse de 4 cm de longueur, de rayon interne 100 μm , ne présente qu'un trou d'injection de gaz. La pression dans le capillaire est ainsi moins homogène que dans le cas précédent où il y avait deux trous d'injection. La densité de gaz sur les bords du capillaire est plus faible qu'au centre (facteur 20). Ceci explique pourquoi les pressions mesurées sont plus élevées que dans l'expérience au CELIA. Le système de support et le réglage de la fibre est identique à celui utilisé par (Constant *et al.* 1999) ; la précision est cependant moins bonne qu'avec le système présenté au §1.1. Les harmoniques sont analysées par un spectromètre UVX composé d'un miroir torique de focale 1m et d'un réseau plan. Les images du profil en champ lointain, sont enregistrées 20 cm après le plan focal.

La détection est effectuée à l'aide de deux galettes de micro-canaux montées en chevron, d'un diamètre utile de 40 mm. On applique une tension de -1 kV jusqu'à -2 kV à la face avant, la face arrière étant reliée à la masse. Le système de galettes est couplé à un écran de phosphore pouvant être polarisé à $+4$ kV. Les spécificités techniques du spectromètre et le fonctionnement des galettes ont été détaillés au Chapitre I. Les images produites sur l'écran phosphore sont enregistrées à l'aide d'une caméra CCD 16 bits, 800×640 pixels (Princeton), permettant une bonne dynamique, avec un grandissement de l'ordre de 3. La résolution du système est fixée principalement par les galettes ; elle est de l'ordre d'une centaine de microns, donnée constructeur (Galliléo). Les galettes ont également un gain dans l'UVX bien plus important que la CCD. Le temps d'exposition de la caméra étant réglable, nous pouvons enregistrer des images correspondant soit à un tir laser (mono-coup) soit plusieurs tirs. Le système étant très stable en pointé, la perte de résolution due à l'accumulation de tirs reste négligeable. Notons que grâce à la faible sensibilité des galettes dans l'IR et au bon piégeage du laser après le spectromètre, il n'a pas été nécessaire d'utiliser des filtres avant le détecteur.

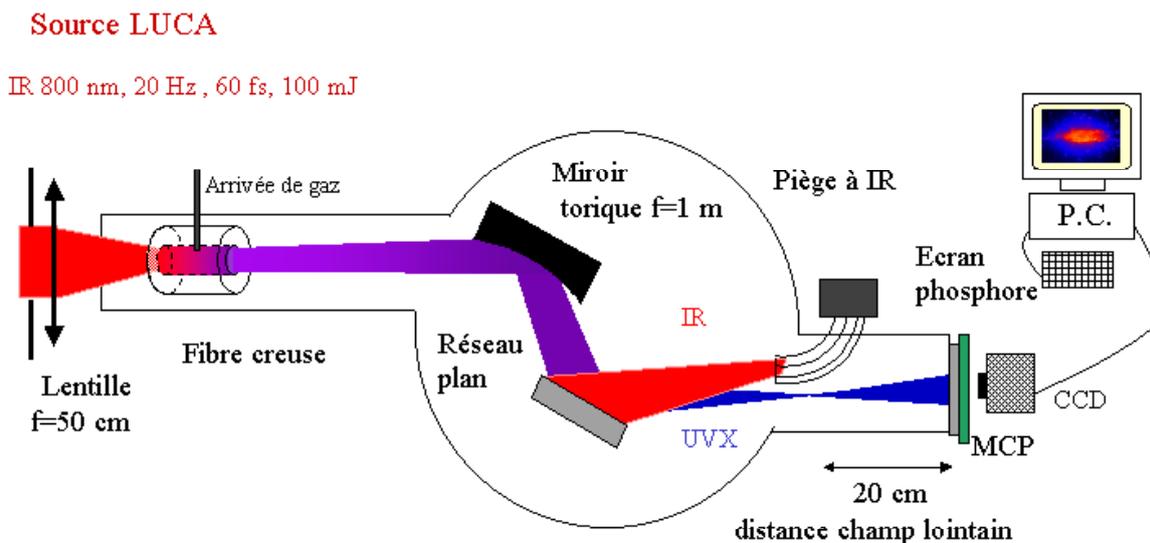


Figure II-11 : Schéma du dispositif expérimental utilisé pour l'étude des profils d'émission en champ lointain des harmoniques générées dans un capillaire.

2.2 Profils d'émission en champ lointain des harmoniques.

Les profils angulaires d'émission, appelés également profils en champ lointain, en fonction des paramètres de génération reflètent directement la manière dont se réalise l'accord de phase (cf. Chapitre I-C-2.2). Dans la dimension verticale on mesure le profil spatial alors que dans la dimension horizontale on mesure la convolution de la dispersion spectrale et du profil spatial, ce qui explique la forme allongée des taches. Nous avons pu observer les harmoniques allant de 23 à 33 dans l'argon, et de 31 à 61 dans le néon. Nous présentons en Figure II-12 des images de l'harmonique 23 générée dans l'argon pour différentes pressions amont. Nous estimons l'éclairement laser dans la fibre à environ $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. A basse pression, le profil d'émission angulaire est clairement annulaire. L'accord de phase serait donc réalisé hors-axe. Par contre, lorsqu'on augmente la pression dans la fibre, l'émission est de moins en moins annulaire, et finit par être centrée, signature d'un accord de phase optimal sur l'axe. Ces images du faisceau en champ lointain, montrent pour la première fois une émission annulaire aussi nette lors de la génération d'harmoniques d'ordre élevés dans les capillaires. En effet, l'évolution des profils d'émission en fonction de la pression étudiée dans (Rundquist *et al.* 1998, Durfee III *et al.* 1999) montrent simplement une transition d'un faisceau large à un faisceau étroit. Cette différence de divergence à basse et haute pression est alors expliquée simplement par un effet géométrique de l'accord de phase. Nous donnerons dans la partie B une interprétation différente, en termes de trajectoire.

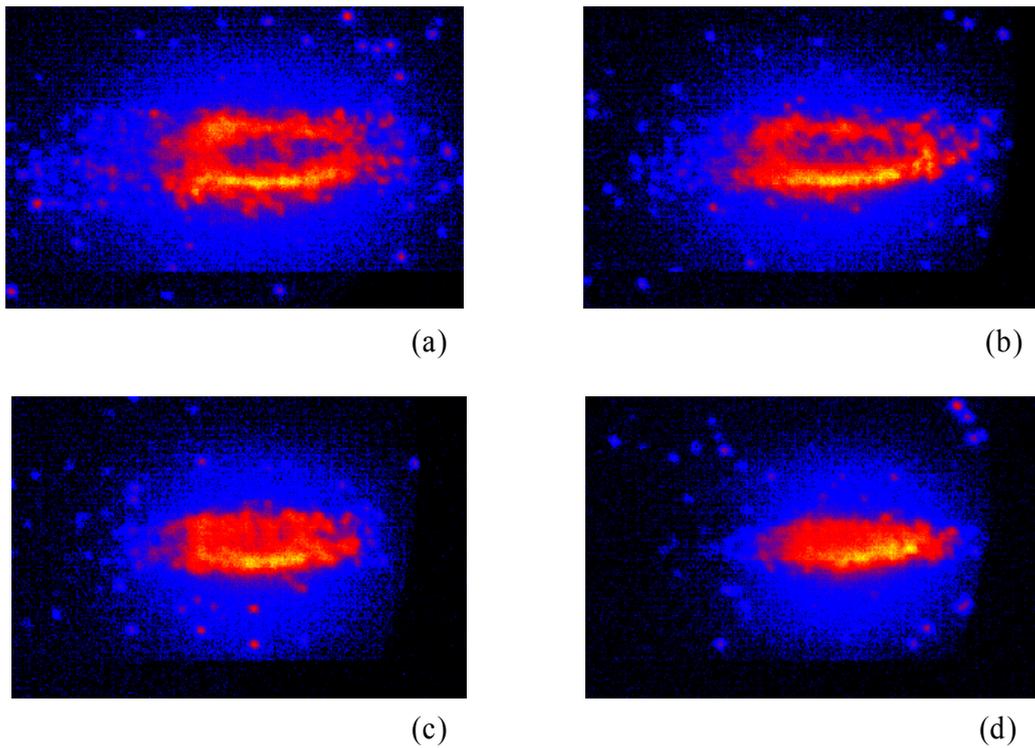


Figure II-12 : Images de l'harmonique 23 générée dans l'argon à 2.10^{14} W/cm^2 pour une pression amont, en Torr, appliquée au capillaire de 160 (a), 240 (b), 330 (c) et 450 (d).

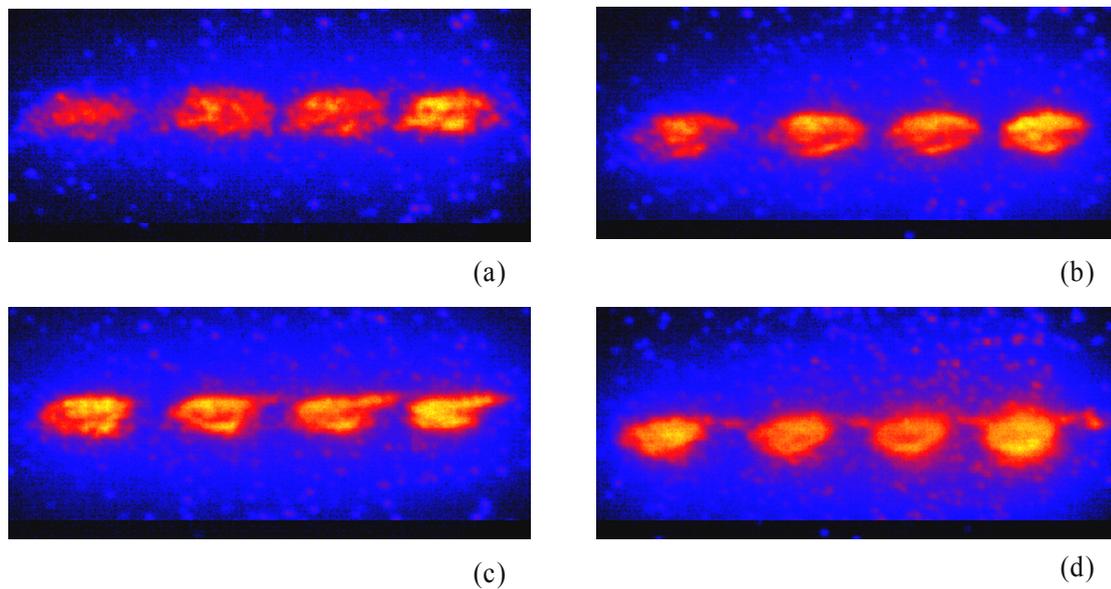


Figure II-13 : Images des harmoniques 41 à 47 générées dans le néon à 4.10^{14} W/cm^2 pour une pression amont, en Torr, de 120 (a), 240 (b), 360 (c) et 600 (d).

Une évolution similaire est observée pour les autres harmoniques générées dans l'argon, mais aussi dans le néon. La Figure II-13 illustre le même comportement à basse et haute pression pour les harmoniques 41 à 47 générées dans le néon à un éclairage de 4.10^{14}W/cm^2 . On retrouve ici le même type de changement d'accord de phase que celui observé dans un jet pulsé (cf. Chapitre I §C-2.2). Dans ce dernier cas, c'est la condition de focalisation avant ou après le jet qui déterminait une émission annulaire ou centrée, alors qu'ici, c'est la pression dans le capillaire qui est le paramètre d'accord de phase.

En intégrant les profils ainsi obtenus dans les deux dimensions, on détermine l'évolution de l'émission harmonique en fonction de la pression, présentée en Figure II-14. Les courbes sont semblables à celles mesurées sur le laser kHz du CELIA. Dans le cas de l'argon, après une rapide augmentation pour les basses pressions, le signal présente un maximum, puis diminue pour les pressions élevées. Pour le néon, le signal ne présente pas un maximum aussi marqué, mais plutôt une saturation ; il semble que nous n'ayons pas atteint la pression optimale.

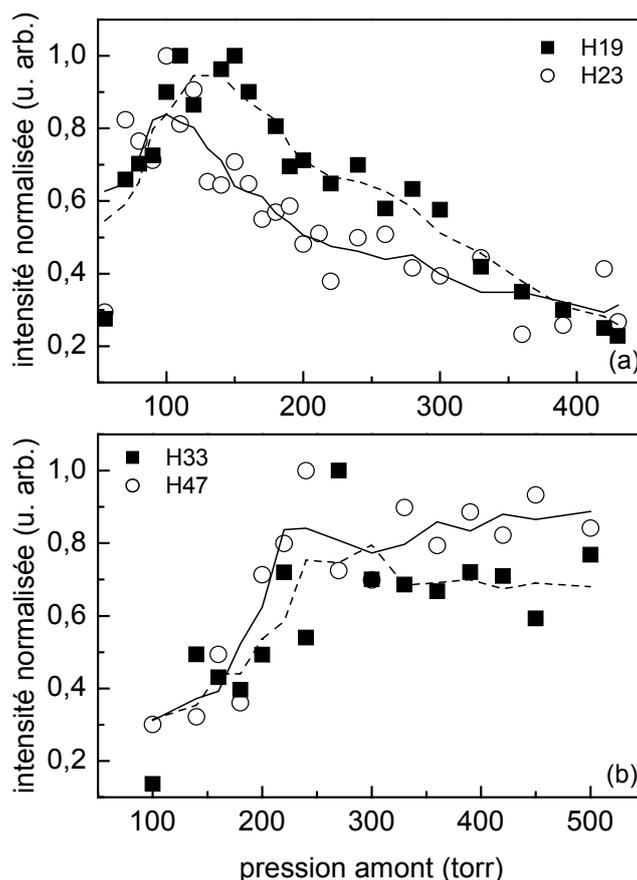


Figure II-14 : Evolution du signal harmonique en fonction de la pression après intégration des profils d'émission dans l'argon (a) pour H19 (carrés) et H23 (cercles) et dans le néon (b) pour H33 (carrés) et H47 (cercles). En traits pleins (H23 et H47) et pointillés (H19 et H33) sont tracées les moyennes des points expérimentaux.

On peut remarquer que P_{opt} est égale à environ 120 Torr pour H23 dans l'argon. Lors de la première expérience (cf. 1.2.2), la pression optimale pour cette harmonique dans l'argon était de l'ordre de 35 Torr. Cette différence peut avoir deux causes. D'une part, le profil de densité atomique dans la fibre possédant deux trous d'injection était plus régulier qu'il ne l'est ici avec une seule arrivée pour le gaz : la densité sur les bords est bien plus faible (pression moyenne plus faible), décalant ainsi la pression optimale. D'autre part, l'éclairement laser est ici légèrement plus élevée, ce qui introduit plus d'ionisation, contribuant ainsi à une augmentation de P_{opt} (cf. simulations de la section B).

La même évolution du signal harmonique avec la pression a été clairement observée sur les spectres dans le néon (cf. Figure II-15). On observe ainsi directement l'influence de la pression sur l'efficacité de génération pour différents ordres harmoniques. Signalons toutefois que des fuites au niveau de l'injection de gaz ont empêché de relever des pressions précises, pour ces spectres. Celles reportées en Figure II-15 ne sont qu'indicatives. Pour enregistrer les spectres, nous avons remplacé le système d'imagerie par un photomultiplicateur d'électrons. Une fente réglable a été installée au foyer du spectromètre UVX. La largeur de la fente a été fixé à 200 μm , correspondant à une résolution du spectromètre de l'ordre de 1 Å. Les harmoniques 33 à 67 sont visibles. Deux choses sont remarquables sur ces spectres :

- La première est l'effet de la pression sur l'accord de phase, on voit clairement que les harmoniques sont mieux générées à plus haute pression. Ceci montre bien que l'accord de phase est d'autant mieux réalisé que l'on se rapproche de la pression optimale de génération. En intégrant le profil spectral de chaque harmonique, on trouve à P_{opt} un facteur 2 pour les ordres 33 à 39 et de plus de 3 pour les ordres supérieurs.

- Le deuxième point remarquable est que le spectre obtenu à haute pression est fortement asymétrique comparé à celui obtenu à basse pression, pour lequel les différentes harmoniques ont toutes à peu près la même amplitude. Par contre, à haute pression, les ordres les plus élevés sont clairement favorisés par rapport aux ordres les plus faibles. Ceci indiquerait que l'optimum en pression est déjà atteint pour les ordres faibles, ce qui n'est pas le cas des ordres élevés pour lesquels l'efficacité de génération continue d'augmenter. Par exemple, il semble que l'on soit plus proche de la pression optimale, pour l'harmonique 35 que pour l'harmonique 47. Ceci confirme la tendance observée en Figure II-9, selon laquelle le signal pour l'harmonique 35 du néon présente un maximum à une pression plus basse que les harmoniques d'ordre plus élevés.

L'asymétrie des spectres obtenus dans le néon avait déjà été observée sur ceux obtenus sur le système kHz de Bordeaux. Ceci n'est d'ailleurs pas un effet uniquement dû à la génération dans une fibre, car il a également été observé dans une cellule de gaz (Tamaki *et al.* 1999). Il apparaît ainsi qu'il est nécessaire de tenir compte d'un autre paramètre, facteur limitant l'émission harmonique de manière plus ou moins importante selon l'ordre considéré pour une pression donnée.

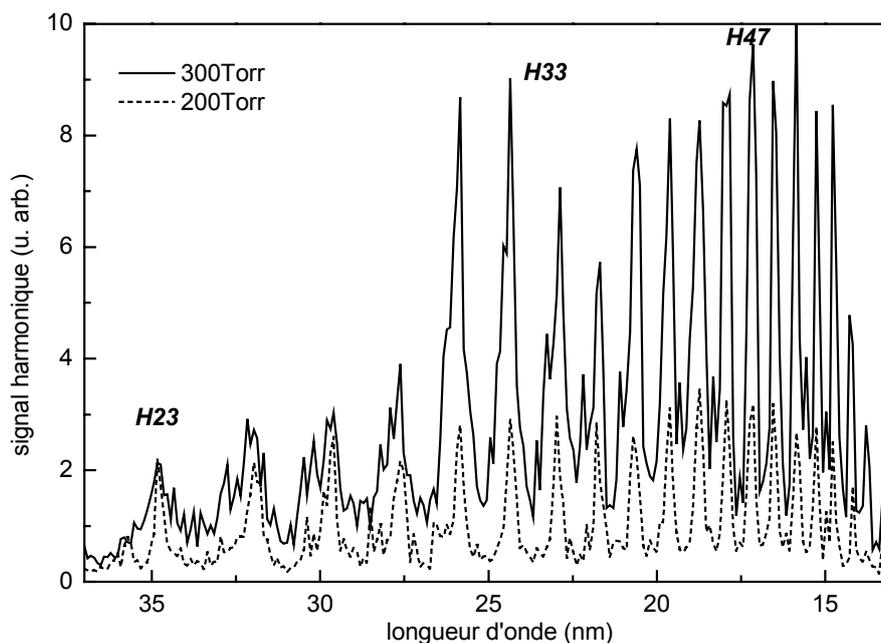


Figure II-15 : Spectres des harmoniques 23 à 61 générés dans le néon enregistrés à un éclairement de 4.10^{14} W/cm² à 200Torr (trait pointillé) et 300Torr (trait plein).

2.3 Analyse détaillée des profils d'émission.

L'analyse précise des images obtenues dans l'argon et le néon, telles que celles présentées en Figures II-12 et II-13, permet de remonter aux profils d'émission harmonique grâce à des coupes dans la dimension verticale. Connaissant le grandissement de notre système de détection, calibré à l'aide d'une grille dont le pas est parfaitement connu, ainsi que la distance entre le détecteur et le plan focal, nous pouvons déduire la divergence en radians du signal émis. La variation des profils d'émission angulaire des harmoniques 15, 19 et 23 générées dans l'argon en fonction de la pression appliquée à la fibre est présentée en Figure II-16. Pour toutes les harmoniques, on passe d'un profil annulaire de grande divergence à un profil étroit et centré lorsque la pression est augmentée de 140 à 420 Torr. Dans le néon (Figure II-17), l'évolution est moins marquée mais toujours clairement observable, en particulier pour l'harmonique 41.

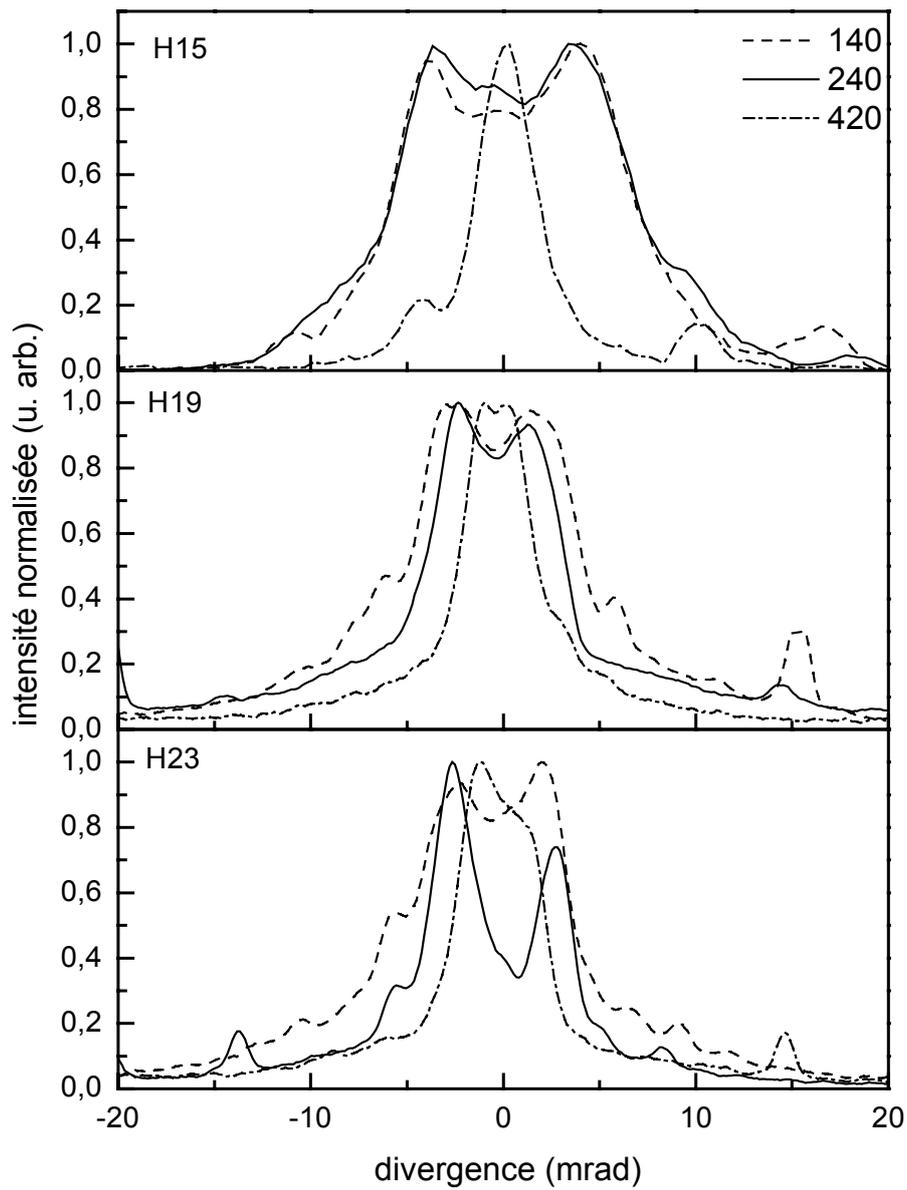


Figure II-16 : Profil d'émission pour les harmoniques 15, 19 et 23 dans l'argon générées dans la fibre à un éclairement de $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ aux pressions de 140 Torr (trait plein), 240 Torr (trait pointillé) et 420 Torr (trait pointillé-point).

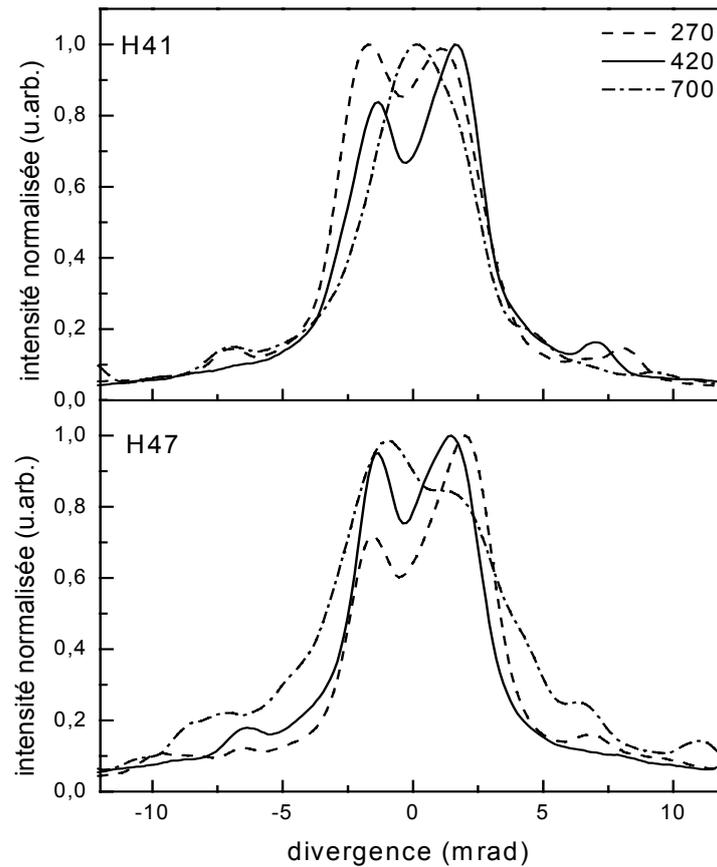


Figure II-17 : Profil d'émission pour les harmoniques 41 et 47 dans le néon générées dans la fibre à un éclairement de $4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ aux pressions de 270 Torr (trait plein), 420 Torr (trait pointillé) et 700 Torr (trait pointillé-point).

L'évolution de la divergence à mi-hauteur en fonction de la pression pour les différentes harmoniques générées respectivement dans l'argon et le néon est récapitulée dans les tableaux II-1 et II-2. Etant donné la résolution spatiale ($\sim 100 \mu\text{m}$) des galettes de micro-canaux, la résolution angulaire est de l'ordre de $\pm 0,4 \text{ mrad}$. Les tableaux illustrent clairement la diminution de la divergence d'environ 10 mrad à 4 mrad dans l'argon, et de 6 mrad à environ 4 mrad dans le néon. Ces divergences sont à comparer à celle du laser fondamental en sortie de fibre. La distribution radiale d'éclairement étant alors très proche d'une Gaussienne, la divergence¹ du faisceau est de l'ordre de 6 mrad : il semble donc que la divergence des harmoniques peut être très proche de celle du fondamental lorsque l'accord de phase est réalisé efficacement sur l'axe. Par contre, lorsque l'émission est hors axe, la divergence des

¹ Cette divergence est obtenue à partir de $\theta = \frac{2\lambda}{\pi w_0}$, où $w_0 = 0,8 \times a$ ($a = 100 \mu\text{m}$).

harmoniques peut être supérieure à celle du fondamental, particulièrement dans le cas de l'argon. Ceci peut être attribué à l'effet de l'ionisation qui défocalise le faisceau, couplant de l'énergie dans des modes supérieurs plus divergents. A basse pression il semble que la divergence diminue lorsque l'ordre harmonique augmente. Ainsi, l'harmonique 15 dans l'argon est la plus divergente alors que les harmoniques d'ordre élevé du néon sont plus étroites. Dans un jet, les divergences du faisceau harmonique vont de 6 à 15 mrad selon les conditions de focalisation, pour un faisceau fondamental de 55mrad,. Dans la fibre, nous obtenons approximativement les mêmes divergences que dans un jet, pour un faisceau fondamental bien moins divergent (6 mrad en sortie).

Divergence $\theta \pm 0,4$ (en mrad)		Pression amont (Torr)		
		110	240	420
Ordre q	15	13	13	3,3
	19	9,1	7,3	4,2
	23	9,8	8,4	4,6

Tableau II-1 : Récapitulatif des divergences à mi-hauteur des profils d'émission de différentes harmoniques générées dans l'argon à un éclairement de $2.10^{14}W/cm^2$.

Divergence $\theta \pm 0,4$ (en mrad)		Pression amont (Torr)			
		270	420	500	700
Ordre q	33	6	4,2	3,2	
	41	6	5,5	5,6	4,4
	47	5,8	5,1	5,3	6,8
	51	6	3,7	2,8	

Tableau II-2 : Récapitulatif des divergences à mi-hauteur des profils d'émission de différentes harmoniques générées dans le néon à un éclairement de $4.10^{14}W/cm^2$.

B. Etude théorique et simulations de l'émission harmonique dans les capillaires.

1. Eléments de théorie sur l'émission harmonique.

1.1 Description de l'accord de phase.

Afin de mieux comprendre l'influence de la pression sur l'efficacité et les profils d'émission harmonique, il faut analyser plus en détail le processus d'accord de phase. Nous rappelons brièvement ci-dessous les éléments conduisant à la condition d'accord de phase « généralisée » (cf. Chapitre I) puis détaillons chacun des termes dans le cas de la génération dans une fibre creuse.

Le champ harmonique généré lors de l'interaction non-linéaire entre le faisceau laser et le milieu atomique résulte d'un double processus ; d'une part l'émission microscopique et d'autre part la propagation macroscopique. Si l'on considère un atome unique soumis à un champ électromagnétique intense $\vec{E}_1(\omega)$ oscillant à la fréquence ω , le dipôle induit émet un champ $\vec{e}(q\omega)$ à la fréquence $q\omega$, q étant l'ordre de non linéarité (ordre de l'harmonique). Ce dipôle est caractérisé dans ce régime de champ fort, basse fréquence (cf. Chapitre I), par son module et sa phase intrinsèque ϕ_q , variant avec l'éclairement laser. Le dipôle total induit par le champ laser s'écrit :

$$d(t) = \sum_q d_q e^{-iq\omega t} \quad (\text{II-7})$$

$$d_q(I) = |d_q(I)| e^{i\phi_q(I) + iq\phi_1}$$

La polarisation non-linéaire, terme source de l'émission harmonique peut s'écrire localement comme le produit de la densité atomique par le dipôle atomique :

$$\vec{P}_q(\vec{r}) \approx N(\vec{r}) \vec{d}_q(\vec{r}) \quad (\text{II-8})$$

La réponse macroscopique décrit alors la manière dont les champs $\vec{e}(q\omega)$ rayonnés par les dipôles atomiques vont se superposer de façon cohérente pour former le champ harmonique :

$$\vec{E}_q = \sum_{\text{atomes}} \vec{e}(q\omega) \quad (\text{II-9})$$

Pour que le transfert d'énergie soit maximum, le champ harmonique émis et la polarisation non linéaire doivent se propager dans le milieu avec la même vitesse de phase conduisant à la quasi égalité des vecteurs d'onde et à la condition de phase « généralisée » :

$$\vec{\nabla} \varphi_q = q \vec{\nabla} \varphi_1 + \vec{\nabla} \phi_q \quad \Leftrightarrow \quad \vec{k}_q = q \vec{k}_1 + \vec{K} \quad (\text{II-10})$$

Nous avons discuté l'accord de phase dans le cas d'un jet au Chapitre I. En régime perturbatif (faible éclairement, $\phi_q = \text{constante}$) la condition d'accord de phase (II-10) se réduit alors à une égalité entre les vecteurs d'ondes \vec{k}_q et $q \vec{k}_1$. Si de plus on considère des ondes planes se propageant librement, dans un milieu non dispersif, cette dernière égalité est trivialement réalisée par un vecteur \vec{k}_q parallèle à \vec{k}_1 . Cependant, le cas que nous étudions est bien plus complexe. Tout d'abord, nous sommes dans un régime de champ fort – basse fréquence où la phase du dipôle ϕ_q varie quasi-linéairement avec l'éclairement laser. De plus, pour atteindre les forts éclairements nécessaires à la génération, on doit focaliser ou guider le faisceau laser ce qui introduit à la fois une distribution spatiale des éclairements (d'où un gradient de la phase du dipôle) et une modification de la vitesse de phase (d'où une dispersion dite géométrique). Enfin le milieu générateur, bien que dilué, présente une dispersion atomique et, pour un éclairement proche de I_{sat} , une dispersion électronique due aux électrons libres produits par l'ionisation du milieu. On peut décomposer chaque vecteur d'onde en faisant apparaître toutes ces corrections au cas de la propagation d'ondes planes dans le vide (\vec{k}_1^0, \vec{k}_q^0) :

$$\Rightarrow \vec{k}_q^0 + \delta \vec{k}_{q,\text{géo}} + \delta \vec{k}_{q,\text{atom}} + \delta \vec{k}_{q,\text{élec}} = q \vec{k}_1^0 + q \delta \vec{k}_{1,\text{géo}} + q \delta \vec{k}_{1,\text{atom}} + q \delta \vec{k}_{1,\text{élec}} + \vec{K} \quad (\text{II-11})$$

Ce qui donne :

$$\vec{k}_q^0 = q \vec{k}_1^0 + \Delta \vec{k}_{\text{géo}} + \Delta \vec{k}_{\text{atom}} + \Delta \vec{k}_{\text{élec}} + \vec{K} \quad (\text{II-12})$$

$$\text{où } |\vec{k}_q^0| = q |\vec{k}_1^0| = \frac{q \omega}{c} = \frac{2\pi q}{\lambda} \text{ et } \Delta \vec{k}_{(\text{géo},\text{atom},\text{élec})} = q \delta \vec{k}_{1,(\text{géo},\text{atom},\text{élec})} - \delta \vec{k}_{q,(\text{géo},\text{atom},\text{élec})}.$$

Précisons que la définition des (\vec{k}_1^0, \vec{k}_q^0) ne contient plus l'indice contrairement à celle donnée au Chapitre I ; ceci nous permet justement de faire ressortir les termes de dispersion. L'accord de phase va donc dépendre de la géométrie de l'interaction entre le laser générateur et le milieu atomique, des différents termes de dispersion ainsi induits mais également de la variation de la phase intrinsèque du dipôle avec l'éclairement laser. Nous allons détailler ces différents termes afin de bien comprendre l'incidence de chacun d'eux sur l'accord de phase dans une fibre creuse et relever les principales différences avec la génération d'harmoniques dans un jet.

Étudions pour commencer le terme de dispersion « géométrique ». Comme nous l'avons décrit précédemment, le mode laser à considérer, lors de la génération d'harmoniques dans un capillaire, n'est plus un mode Gaussien mais un mode de Bessel. Contrairement au cas du faisceau Gaussien, qui dépend en coordonnées cylindriques de r et de z , le mode

hybride EH₁₁ ne présente qu'une dépendance linéaire longitudinale en z. La phase de ce mode est assimilable à la phase de Gouy du faisceau gaussien pour r=0. Ainsi la correction au vecteur d'onde associée au guidage du faisceau laser de longueur d'onde λ dans la fibre correspond à (cf. Equation II-5) :

$$\delta \vec{k}_{1,géo} = \frac{2\pi}{\lambda} \left\{ -\frac{1}{2} \left[\frac{u_{11}\lambda}{2\pi a} \right]^2 \right\} \vec{z} \quad (\text{II-13})$$

A la fréquence harmonique (II-13) s'écrit :

$$\delta \vec{k}_{q,géo} = q \frac{2\pi}{\lambda} \left\{ -\frac{1}{2} \left[\frac{u_{11}}{2\pi a} \frac{\lambda}{q} \right]^2 \right\} \vec{z} \quad (\text{II-14})$$

Au total, le désaccord de phase géométrique s'écrit :

$$\begin{aligned} \Delta \vec{k}_{géo} &= q \delta \vec{k}_{1,géo} - \delta \vec{k}_{q,géo} = -q \left(\frac{u_{11}}{a} \right)^2 \frac{\lambda}{4\pi} \left(1 - \frac{1}{q^2} \right) \\ \Delta \vec{k}_{géo} &\approx -q \left(\frac{u_{11}}{a} \right)^2 \frac{\lambda_0}{4\pi} \vec{z} = -0,37 \times q \vec{z} \end{aligned} \quad (\text{II-15})$$

où $u_{11}=2,405$ et $a=100 \mu\text{m}$. Notons que ce désaccord de phase est équivalent à celui induit par un faisceau Gaussien (équivalent au mode EH₁₁) dans sa région focale (cf. §2.3 de l'introduction).

Le second terme à considérer est le terme de dispersion atomique introduit par le milieu générateur (cf. Equation I-23). Pour calculer l'indice de réfraction aux fréquences harmoniques $n_{q,atom}$, on utilise une expression de l'indice de réfraction (Dalgarno *et al.* 1960, Henke *et al.* 1993) dépendant du facteur de diffusion atomique $f=f_1+if_2$. La partie réelle f_1 détermine la dispersion du milieu, la partie imaginaire f_2 détermine l'absorption. La correction à l'indice de réfraction s'écrit donc :

$$\delta n_{q,atom} = -\frac{r_0 \lambda^2}{2\pi q^2} f_1 N(r, z, t) \quad (\text{II-16})$$

où r_0 est le rayon classique de l'électron et $N(r, z, t)$, la densité atomique qui peut varier dans l'espace et dans le temps. Le facteur de diffusion f est donné par les tables de Henke pour des énergies supérieures à 10eV. La correction à l'indice de réfraction pour le fondamental est calculée à partir de la polarisabilité statique α_1 du gaz générateur (L'Huillier *et al.* 1989) :

$$\delta n_{1,atom} = \frac{1}{2} \alpha_1 N(r, z, t) \quad (\text{II-17})$$

Le désaccord de phase introduit par le milieu atomique s'écrit donc :

$$\begin{aligned}\Delta \vec{k}_{atom} &= q \delta \vec{k}_{1,atom} - \delta \vec{k}_{q,atom} = \frac{2\pi q}{\lambda} (\delta n_{1,atom} - \delta n_{q,atom}) \vec{z} \\ &= \frac{q}{\lambda} N(r, z, t) \left(\pi \alpha_1 + r_0 \left(\frac{\lambda}{q} \right)^2 f_1 \right) \vec{z}\end{aligned}\quad (\text{II-18})$$

Le troisième terme de désaccord de phase a pour origine les électrons libres produits lors de l'ionisation du milieu par l'impulsion fondamentale (cf. Equation I-23). Le calcul de la polarisabilité due aux électrons libres fait intervenir la fréquence plasma :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 N_e(r, z, t)}{m_e \epsilon_0}} \quad (\text{II-19})$$

où e et m sont respectivement la charge et la masse de l'électron.

La dispersion due aux électrons libres, à la fréquence du laser fondamental, s'écrit :

$$\delta n_{1,elec} \approx -\frac{1}{2} \frac{\omega_p^2}{\omega^2} = -\frac{1}{2} \frac{e^2 N_e(r, z, t)}{m_e \epsilon_0 \omega^2} \quad (\text{II-20})$$

Le désaccord de phase dû aux électrons libres est donc :

$$\Delta \vec{k}_{elec} = q \delta \vec{k}_{1,elec} - \delta \vec{k}_{q,elec} = \frac{q\omega}{c} (\delta n_{1,e} - \delta n_{q,e}) \vec{z} = \frac{\omega_p^2}{2\omega c} \left(\frac{-q^2 + 1}{q} \right) \vec{z} \quad (\text{II-21})$$

$$\Rightarrow \Delta \vec{k}_{elec} \approx -q \frac{e^2 N_e(r, z, t)}{2m_e \epsilon_0 \omega c} \vec{z} \quad (\text{II-22})$$

Signalons que l'effet des électrons libres sur l'accord de phase est très important. Il peut très vite dominer les autres termes et ainsi empêcher un transfert d'énergie optimal entre la polarisation non linéaire et le champ harmonique émis. L'effet des électrons libres se ressent également très fortement sur la propagation du champ fondamental. La densité d'électrons libres, plus élevée sur l'axe du faisceau où l'éclairement est maximum que sur les bords, fait du milieu une lentille divergente qui défocalise le faisceau fondamental. Les conditions d'accord de phase s'en trouvent modifiées, sinon dégradées. Cet effet est très important pour la génération dans un jet. Le fait de guider le fondamental, dans un capillaire, laisse espérer moins de pertes en éclaircissement. Même si le faisceau se « défocalise » dans la fibre, ceci se traduit par une augmentation de l'énergie couplée dans les modes supérieurs ; la perte d'éclaircissement sera moins importante que lors de la génération dans un jet long.

Pour finir, le dernier terme à considérer est le gradient de la phase du dipôle, noté \vec{K} . Ce vecteur joue un rôle crucial dans l'accord de phase dans le régime de champ fort que nous

considérons. Comme nous l'avons montré au Chapitre I, la phase du dipôle varie quasi-linéairement avec l'éclairement laser dans le milieu, avec une pente négative caractérisant la trajectoire principale de l'électron mise en jeu dans l'émission harmonique : $\vec{K} = \vec{\nabla} \phi_q = -\eta_{q,p} \vec{\nabla} I(r, z)$ où q, p désignent respectivement l'ordre harmonique et la trajectoire (« courte » ou « longue ») qui contribue à l'émission (cf. Chapitre I). Dans le cas de la focalisation d'un faisceau laser de type Gaussien dans un jet, la variation de l'éclairement est radiale mais également longitudinale, selon l'axe z de propagation. Le vecteur \vec{K} , gradient de la phase du dipôle, peut donc avoir des composantes suivant différentes directions en (r, z) (cf. Chapitre I). Dans le cas du guidage du faisceau laser dans la fibre, le cas est plus simple : la variation d'éclairement est purement radiale. Le vecteur \vec{K} ne possède donc qu'une composante, perpendiculaire à l'axe de propagation, dirigée vers l'extérieur et dont le module sera d'autant plus grand que le facteur de trajectoire $\eta_{q,p}$ sera grand. Notons que sur l'axe de propagation, l'éclairement étant maximum, le vecteur \vec{K} est nul. Son module est maximum aux points d'inflexion du profil radial de l'éclairement.

La manière dont ces différents vecteurs d'onde vont se compenser va déterminer l'efficacité de l'émission harmonique, mais également le profil d'émission en sortie du milieu et en champ lointain. Les relations II-15, II-18 et II-22 montrent que les dispersions géométrique et électronique contribuent toutes deux dans la même direction à l'accord de phase, alors que la dispersion atomique leur est opposée. La dispersion géométrique est imposée par les caractéristiques du capillaire et ne dépend que de l'ordre harmonique. La dispersion atomique dépend de la nature du gaz et de la densité d'atomes dans le milieu générateur, donc de la pression appliquée à l'intérieur de la fibre creuse remplie de gaz.

- Ainsi, si l'ionisation n'est pas trop élevée, soit pour un éclairement dans le milieu bien en dessous de l'éclairement de saturation, il est possible de compenser, pour une pression donnée suffisamment élevée P_{opt} , les dispersions géométrique et électronique par la dispersion atomique. Le gradient de la phase étant nul sur l'axe z , on obtient un accord de phase efficace sur l'axe ; le gradient radial de la phase du dipôle empêchant un accord de phase hors - axe. Les profils d'émission sont alors centrés comme ceux que nous avons observés en Figures II-12 et II-13 à haute pression. La Figure II-18a illustre la manière dont ces vecteurs se compensent à haute pression.
- Par contre, si la pression appliquée au capillaire est inférieure à cette pression optimale, la dispersion atomique n'est plus assez importante pour compenser les dispersions géométrique et électronique, l'accord de phase ne peut donc pas se faire efficacement sur l'axe. Cependant, l'existence du gradient radial de la phase du dipôle, d'autant plus important que $\eta_{q,p}$ est grand, peut permettre un accord de phase efficace hors - axe. Les profils d'émission en résultant sont annulaires,

comme ceux que nous avons observés expérimentalement à basse pression (Figures II-12 et II-13). La Figure II-18b illustre la manière dont le vecteur \vec{K} permet d'obtenir un accord de phase efficace hors – axe, donc une émission annulaire.

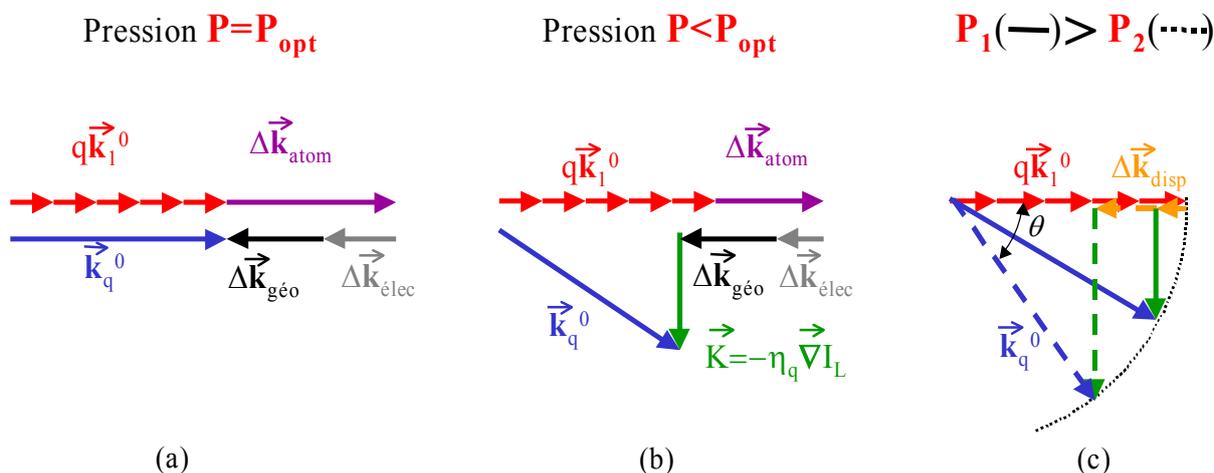


Figure II-18 : Diagramme de vecteurs d'onde impliqués dans l'accord de phase lors de la génération dans une fibre creuse remplie de gaz. L'émission est centrée pour une certaine pression (a) et est annulaire à basse pression (b). En (c) est représentée la variation de l'angle θ d'émission en fonction de la pression.

- Avec cette représentation en diagramme de vecteurs d'onde, il est également facile de comprendre la diminution de divergence des profils annulaires en fonction de la pression croissante, qui diminue la valeur de $\Delta\vec{k}_{disp}$ défini comme la somme des dispersions : $\Delta\vec{k}_{disp} = \Delta\vec{k}_{géo} + \Delta\vec{k}_{atom} + \Delta\vec{k}_{élec}$. L'angle d'émission θ diminue avec la pression (Figure II-18c). Si on se place à basse pression la dispersion atomique est très faible, il faut donc un fort gradient radial pour réaliser l'accord de phase ; le profil d'émission est alors fortement annulaire. Lorsque la pression dans la fibre augmente, la dispersion atomique devient de plus en plus importante, le gradient radial nécessaire pour réaliser l'accord de phase diminue en conséquence. Les profils deviennent donc de moins en moins annulaires pour finir par être centrés à la pression optimale. Au delà de cette pression optimale, l'accord de phase continue à se faire sur l'axe, mais moins efficacement. Rappelons que lorsqu'il subsiste un désaccord de phase, on définit une longueur de cohérence L_{coh} comme la distance sur laquelle la polarisation non linéaire et le champ harmonique

« libre » (qui se propage librement) se déphasent de π . C'est donc la longueur sur laquelle le champ harmonique se construit efficacement et est définie par :

$$L_{coh} = \left| \frac{\pi}{\Delta \vec{k}_{tot}} \right| \quad (\text{II-23})$$

où $\Delta \vec{k}_{tot} = q\vec{k}_1 + \vec{K} - \vec{k}_q$.

1.2 Influence de l'absorption.

Nous avons décrit dans la section précédente l'importance des différents termes de dispersion sur l'accord de phase. Nous avons notamment mis l'accent sur la forme des profils d'émission des harmoniques en sortie de milieu et surtout en champ lointain. Cette forme centrée ou annulaire dépend de la manière dont se réalise l'accord de phase selon les paramètres de génération. La condition d'accord de phase détermine également l'efficacité de la génération. En effet, le transfert d'énergie du champ fondamental vers les harmoniques est d'autant plus efficace que la condition II-12 est bien vérifiée. Cependant, comme illustré en Figure II-15, il existe un facteur limitant l'émission harmonique de manière plus ou moins importante selon l'ordre considéré pour une pression donnée.

En effet, la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les capillaires remplis de gaz ou dans les cellules permet d'augmenter considérablement la longueur du milieu émetteur. Par contre, l'absorption par le milieu générateur lui-même du rayonnement harmonique émis peut constituer un facteur limitant. Nous avons introduit dans la section précédente le facteur de diffusion atomique $f = f_1 + if_2$. La partie réelle f_1 a été utilisée pour caractériser l'indice de réfraction du milieu atomique à la fréquence harmonique. La partie imaginaire f_2 détermine la section efficace de photoabsorption $\mu_{a,q}$ du milieu atomique pour cette même fréquence par la relation :

$$\mu_{a,q} = 2r_0 \lambda_q f_2 \quad (\text{II-24})$$

Nous pouvons ainsi définir une deuxième longueur, après la longueur de cohérence, qui est la longueur d'absorption. Cette longueur est définie comme la distance sur laquelle le champ est atténué d'un facteur e , elle s'écrit :

$$L_{abs} = \frac{1}{\mu_{a,q} N(r, z, t)} \quad (\text{II-25})$$

La variation de la section efficace de photoabsorption en fonction de l'ordre harmonique, pour l'argon et le néon, est illustrée en Figure II-19. Pour des harmoniques générées dans le néon, à

pression donnée, une harmonique d'ordre faible (~H15) possède une longueur d'absorption jusqu'à trois fois plus courte qu'une harmonique d'ordre plus élevé (~H75). Dans le cas d'un accord de phase parfait et d'une polarisation constante, le nombre de photons générés peut être approximé par le produit des carrés de la polarisation et de la longueur d'absorption. Le nombre de photons générés est alors indépendant de la densité atomique. En effet, L_{abs} variant comme l'inverse de la densité (II-25) et la polarisation non linéaire proportionnellement à la densité (II-8), le nombre de photons générés devient :

$$N_q \approx L_{abs}^2 \times P_q^2 \approx \frac{|d_q|^2}{\mu_{a,q}^2} \quad (\text{II-26})$$

Lorsque l'absorption limite l'émission, le nombre de photons générés est le même à basse comme à haute pression.

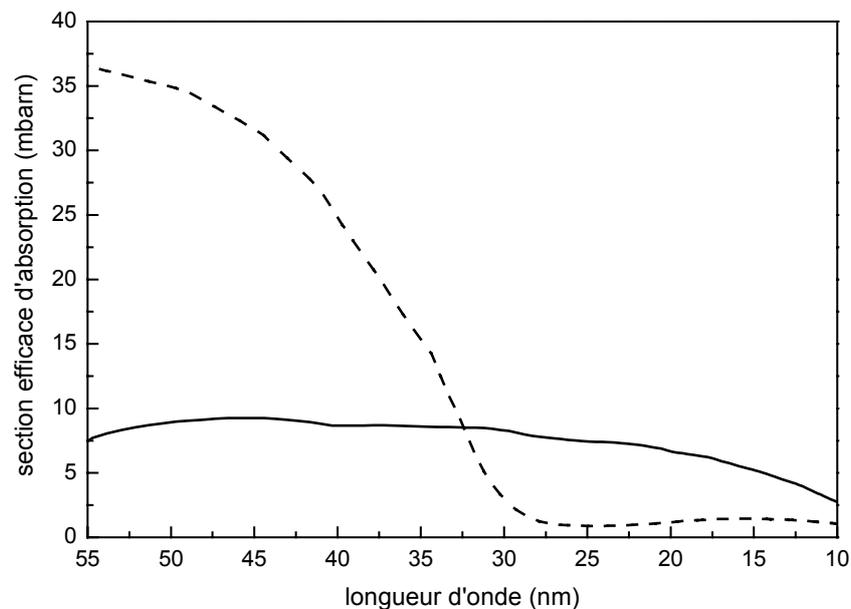


Figure II-19 : Evolution de la section efficace de photoabsorption en fonction de la longueur d'onde pour le néon (trait plein) et pour l'argon (trait pointillé).

Les différents effets, d'accord de phase et d'absorption, déterminent deux des longueurs caractéristiques de l'émission harmonique. La troisième est la longueur du milieu générateur, L_{med} . Nous pouvons comparer ces différentes longueurs entre elles, en fonction de la pression dans la fibre, pour mieux comprendre la compétition entre les différents processus. La fibre ayant une longueur de plusieurs centimètres, nous considérons dans la suite que le

milieu ne limite pas l'émission, comme cela peut être le cas dans un jet. En Figure II-20a) et b) sont présentées les longueurs d'absorption et de cohérence pour les harmoniques 23 et 33 générées dans l'argon, en fonction de la pression, sans ionisation. Pour tracer la longueur de cohérence, on considère un accord (ou désaccord) de phase sur l'axe, ce qui implique qu'il n'y a pas d'influence de la phase du dipôle. Il ne reste ainsi que les contributions $\Delta\vec{k}_{géo}$ et $\Delta\vec{k}_{atom}$ explicitées dans la section précédente. Pour l'harmonique 23, ces deux termes de dispersion se compensent (L_{coh} diverge) pour une pression de 8 Torr. On observe qu'à très basse pression, la longueur de cohérence est bien plus faible que la longueur d'absorption : l'accord de phase limite alors l'émission. En augmentant la pression, L_{abs} diminue, devenant plus faible que L_{coh} qui diverge fortement à la pression qui permet un accord de phase quasi parfait : c'est l'absorption qui limite l'émission. Signalons que pour l'harmonique 33, la longueur d'absorption est bien plus grande car on se trouve près d'un minimum de Cooper pour la section efficace d'absorption de l'argon.

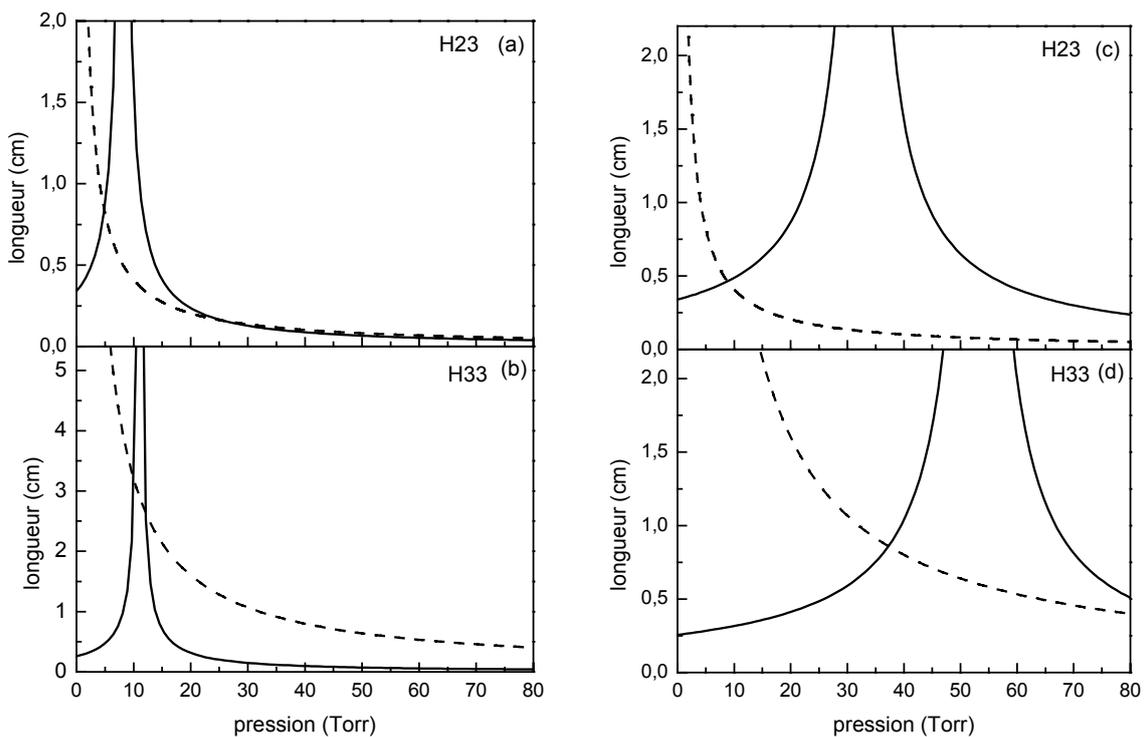


Figure II-20 : Evolution des longueurs d'absorption (trait pointillé) et de cohérence (trait plein) en fonction de la pression d'argon dans le capillaire pour les harmoniques 23 et 33, sans ionisation respectivement (a) et (b), avec ionisation respectivement (c) et (d).

Considérons maintenant le même cas, en ajoutant un taux d'ionisation constant de 4%, ce qui introduit un terme de dispersion supplémentaire dû aux électrons libres : $\Delta\vec{k}_{elec}$. Comme ce terme s'ajoute à la dispersion géométrique, il faut une pression plus élevée pour réaliser l'accord de phase. Ceci explique le décalage en pression de L_{coh} . Ainsi, l'accord de phase limite l'émission sur une plage de pression plus large, avant que l'absorption ne devienne le facteur limitant. Il en est de même pour la gamme de pression où L_{abs} limite l'émission ; on s'attend donc à un maximum de signal moins marqué que dans le cas précédent où l'ionisation est négligée.

Une étude plus détaillée de l'optimisation de la génération d'harmoniques dans les milieux absorbants a établi les conditions que les différentes longueurs doivent satisfaire pour obtenir une émission harmonique optimale, à partir de la formule (II-27) donnant le nombre de photons émis (modèle 1D, Constant *et al.* 1999)

$$N_q \propto \frac{4L_{abs}^2}{1 + 4\pi^2(L_{abs}^2/L_{coh}^2)} \left[1 + \exp\left(-\frac{L_{med}}{L_{abs}}\right) - 2 \cos\left(\pi \frac{L_{med}}{L_{coh}}\right) \exp\left(-\frac{L_{med}}{2L_{abs}}\right) \right] \quad (II-27)$$

Le maximum d'émission est obtenu pour les conditions :

$$\begin{aligned} L_{coh} &> 5L_{abs} \\ L_{med} &> 3L_{abs} \end{aligned} \quad (II-28)$$

On retrouve que le nombre optimal de photons est obtenu lorsque l'émission est limitée par l'absorption. A partir de la relation II-28 et des courbes des Figure II-20c), on peut comprendre la forme en « cloche » du signal d'émission des harmoniques observé en fonction de la pression (Figure II-8). A très faible pression, comme à très haute pression (pour H23), la première condition n'est pas satisfaite : c'est l'accord de phase qui limite. A pression intermédiaire, la condition est remplie et un nombre optimal de photons est généré. Il en est de même pour l'harmonique 33, qui présente une gamme de pression plus large où les conditions (II-28) sont vérifiées, expliquant la saturation observée expérimentalement. Remarquons qu'il est possible (cas de H23) d'obtenir une émission limitée par l'absorption dans un milieu court mais avec une forte densité atomique de façon à remplir la deuxième condition de (II-28) (Schnürer *et al.* 1999). Nous verrons ceci en détail au Chapitre III.

L'accord de phase est donc un processus complexe, mettant en jeu différents paramètres dont l'importance est cruciale, qui détermine d'une part l'efficacité de l'émission et d'autre part les profils spatiaux du rayonnement UVX produit.

2. Description du code de propagation.

La simulation de l'efficacité de génération ainsi que des propriétés spatiales et spectrales de l'émission harmonique se fait en deux temps, par l'utilisation couplée de deux codes. Un premier code est utilisé pour le calcul du dipôle atomique, module et phase en fonction de l'éclairement laser dans le régime de champ fort, basse fréquence. Rappelons, que le point de départ du calcul du dipôle est la recherche des valeurs extrêmes de l'action quasi-classique définie au Chapitre I. On cherche ainsi à déterminer numériquement les éléments composant la matrice $\langle v|x|v' \rangle$ entrant dans l'expression du dipôle $x(t)$ (cf. Chapitre I §C-1).

Il faut ensuite résoudre les équations de propagation du champ dans un milieu non linéaire avec comme terme source la polarisation non linéaire. La résolution numérique est effectuée en utilisant une méthode aux différences finies. Plus précisément, les équations de propagation sont discrétisées dans le plan (r,z) (symétrie cylindrique) sur une grille de taille typique 500×300 points et intégrées par un schéma de type Crank-Nicholson sur la longueur du milieu. Le code permet de calculer la variation du champ harmonique q en fonction des coordonnées cylindriques r et z , donnant ainsi une image du processus d'accord de phase dans le milieu. Comme les différentes grandeurs entrant dans les équations varient lentement dans le temps, les équations de propagation sont résolues sur une grille en temps couvrant l'impulsion laser (champ fondamental). Le nombre de points varie entre 21 et 201 selon la résolution temporelle désirée. Le champ harmonique en sortie de milieu est calculé en amplitude $E_q(r,t)$ et en phase $\varphi_q(r,t)$, d'où sont déduits les profils temporel et spectral. Rappelons que l'ionisation du milieu par le champ fondamental est décrite à partir des expressions ADK des taux d'ionisation (Ammosov *et al.* 1986).

Dans le cas d'une propagation libre (pas de guidage du laser) on procède à la propagation simultanée des champs fondamental et harmonique, en tenant compte des effets de défocalisation du faisceau laser par les électrons libres. Le nombre de photons N_q produits à chaque impulsion laser est obtenu en intégrant l'intensité harmonique en espace et en temps à la sortie du milieu :

$$N_q = \frac{\varepsilon_0 \pi c}{\hbar q \omega} \iint |E_q(r, z, t)|^2 r dr dt \quad (\text{II-29})$$

Le profil harmonique en champ lointain est calculé à partir du profil d'émission en sortie de milieu (champ proche) par une transformée de Hankel, simulant la propagation libre du champ harmonique généré :

$$E_q(r', z') = -ik_q \int \frac{E_q(r, z)}{z' - z} J_0 \left(\frac{k_q r r'}{z' - z} \right) \exp \left[\frac{ik_q (r^2 + r'^2)}{2(z' - z)} \right] r dr \quad (\text{II-30})$$

où J_0 est une fonction de Bessel d'ordre 0. On peut également calculer le spectre de puissance macroscopique d'une harmonique d'ordre q donné. Pour cela, il faut sommer les densités spectrales déterminées, en chaque point à la sortie du milieu, par transformée de Fourier du champ harmonique :

$$I_q(\omega) \propto \int_0^{+\infty} |E_q(\omega, r)|^2 2\pi r dr = \int_0^{+\infty} \left| \int_0^{+\infty} E_q(t, r) e^{i\omega t} dt \right|^2 2\pi r dr \quad (\text{II-31})$$

Dans le cas de la génération d'harmoniques dans un capillaire (propagation guidée), le mode fondamental n'est plus une Gaussienne mais une fonction de Bessel (cf. §2.3 de l'Introduction). Nous avons « forcé » la propagation du faisceau fondamental en imposant le mode fondamental de la fibre creuse. La défocalisation, résultant en un couplage de l'énergie dans les modes d'ordres supérieurs au mode fondamental, n'a pas été simulée : nous nous plaçons dans des conditions où l'ionisation n'est pas trop importante. Pour une fibre de rayon a , le champ fondamental utilisé pour la génération est le mode fondamental EH_{11} de la fibre en amplitude e_{fund} et en phase p_{fund} lorsque $r < a$; il est nul lorsque $r > a$. Nous utilisons les formules déterminées en section 2.2 et 2.3 de l'Introduction.

$$e_{fund} = \begin{cases} J_0^2\left(2,405 \frac{r}{a}\right) & r < a \\ 0 & r > a \end{cases} \quad (\text{II-32})$$

$$p_{fund} = -z \frac{\pi}{\lambda_0} \left[\frac{2,405 \lambda_0}{2\pi a} \right]^2$$

On peut simuler différents profils de densité atomique dans la fibre. Les simulations présentées dans cette partie ont été effectuées en considérant un profil soit Gaussien, soit carré. Le profil Gaussien reproduit au mieux le cas expérimental, lorsqu'il n'y a qu'un seul trou d'injection de gaz dans la fibre. Le profil carré est plus proche du cas où deux trous d'arrivée de gaz existent. Toutefois, le profil de densité atomique n'a que peu d'effet sur la forme des profils d'émission en champ lointain. Par contre, il peut avoir un effet important sur l'évolution du signal émis en fonction de la pression et sur la valeur de la pression optimale. Ainsi, lorsque nous utilisons un profil carré de densité atomique, la pression indiquée est celle qui existe dans le milieu. Dans le cas d'un autre profil de densité, c'est la densité pic que nous indiquons (proche d'une pression amont, avant injection dans le capillaire). Les termes de dispersion atomique, qui entrent en jeu dans l'accord de phase, ainsi que l'absorption sont calculés à l'aide des formules établies dans les sections B-1.1 et B-1.2.

Les simulations numériques permettent de mieux comprendre le processus d'accord de phase dans le capillaire, étant donné qu'il est possible d'activer ou non différents paramètres

impliqués dans la génération. On peut par exemple voir clairement l'incidence de l'absorption, de l'ionisation ou encore de la phase du dipôle atomique sur la génération, de manière plus simple que dans l'expérience.

3. Emission harmonique dans un capillaire.

3.1 Signal émis en fonction de la pression et effet de l'ionisation.

On peut simuler l'évolution du signal harmonique émis en fonction de la pression appliquée au capillaire, et comparer, du moins qualitativement au signal obtenu expérimentalement. Ces simulations sont effectuées en utilisant, dans un premier temps, un profil carré de densité atomique dans la fibre. Tous les termes de dispersion sont pris en compte sauf l'effet de l'ionisation que nous négligeons pour l'instant. Précisons que les simulations numériques donnent un ordre de grandeur du nombre de photons réellement générés. La pression qui est indiquée pour les différentes simulations est celle correspondant au maximum de la distribution de densité.

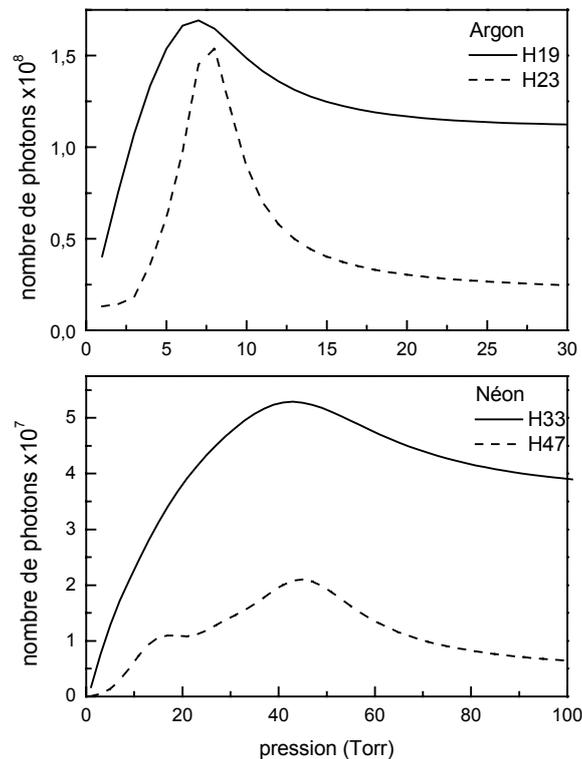


Figure II-21 : Evolution du signal harmonique en fonction de la pression, pour les harmoniques : (a) 19 (trait plein) et 23 (trait pointillé) générées dans l'argon à $I=2.10^{14} \text{ W/cm}^2$ (b) et 33 (trait plein) et 47 (trait pointillé) obtenues dans le néon à 4.10^{14} W/cm^2 . Le profil de densité atomique est carré.

On observe dans les simulations une évolution identique à celle observée expérimentalement. Le signal harmonique augmente avec la pression, passe par un maximum à une pression donnée, puis diminue et finit par saturer. On retrouve donc clairement le fait qu'il existe une pression P_{opt} qui optimise la génération d'harmonique dans un capillaire, quelque soit l'ordre de l'harmonique ou le gaz utilisé. Ceci confirme l'interprétation faite précédemment sur l'accord de phase. Ces courbes sont illustrées par la Figure II-21a pour les harmoniques 19 et 23 générées dans l'argon, et par la Figure II-21b pour les harmoniques 33 et 47 générées dans le néon. On observe alors clairement un décalage de pression optimale ; par exemple, l'harmoniques 23 générée dans l'argon présente un optimal d'émission à la pression de 8 Torr, alors qu'elle de 47 Torr pour l'harmonique 45, générée dans le néon.

Ce décalage des pressions optimales entre l'argon et le néon, peut être expliqué par la différence de dispersion entre les deux gaz. Par exemple, pour l'harmonique 23 générée dans l'argon, à la pression optimale de 8 Torr, on a une dispersion atomique $\Delta k_{atom}=8,5\text{cm}^{-1}$ qui compense quasi parfaitement le terme de dispersion géométrique $\Delta k_{géo}=-8,2\text{cm}^{-1}$ de la propagation guidée qui, lui, ne dépend que de l'ordre de non linéarité considéré. Dans le néon, pour les mêmes conditions, il faut une pression de 41 Torr pour que $\Delta k_{atom} = 8,15\text{cm}^{-1}$. Il est donc nécessaire d'avoir une pression plus de 5 fois plus élevée pour compenser la même dispersion géométrique. On comprend ainsi pourquoi les pressions optimales observées expérimentalement, et par les simulations ne sont pas les mêmes dans le néon et dans l'argon.

En Figure II-22 a) et b) sont présentées les évolutions en fonction de la pression, respectivement, des harmoniques 19 et 23 générées dans l'argon ainsi que les harmoniques 33 et 47 générées dans le néon, pour un profil gaussien de la densité atomique dans le capillaire. Il apparaît trois différences principales avec les courbes de la Figure II-21 où le profil de densité est carré :

- la pression optimale est décalée vers les plus hautes pression de près d'un facteur 5 pour l'argon, et 7 pour le néon.
- le maximum de signal à P_{opt} est environ 3 fois plus faible, quel que soit le gaz.
- au delà de P_{opt} la courbe est plus aplatie ; le maximum est moins marqué

Ces différences s'expliquent par le fait que l'on indique la pression pic, à l'injection au centre de la fibre ; la pression moyenne est alors plus faible pour ce profil Gaussien de densité atomique dans la fibre que pour un profil carré.

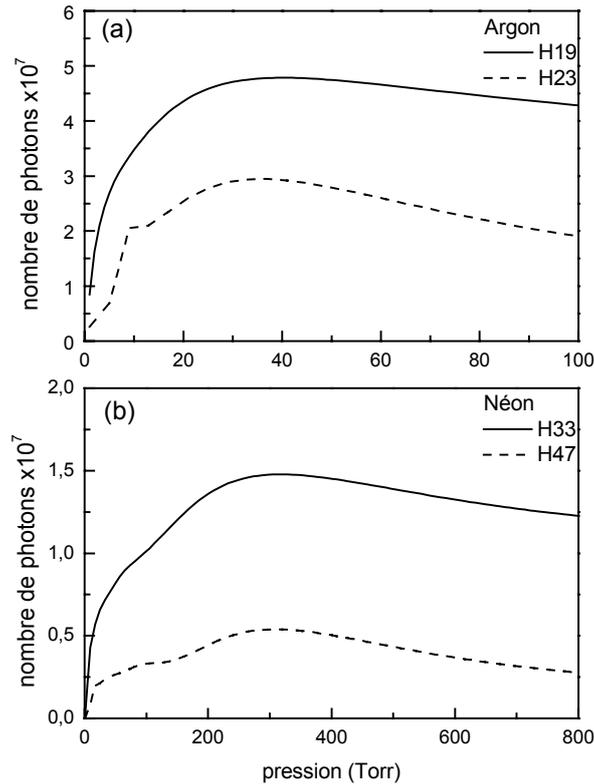


Figure II-22 : Evolution du signal harmonique en fonction de la pression, pour les harmoniques : 19 (trait plein) et 23 (trait pointillé) générés dans l'argon à $I=2.10^{14} \text{ W/cm}^2$ (a) et 33 (trait plein) et 47 (trait pointillé) obtenues dans le néon à 4.10^{14} W/cm^2 . Le profil de densité atomique est gaussien.

Lorsque maintenant on prend en compte l'ionisation, les P_{opt} sont encore plus déplacés vers les hautes pressions. La Figure II-23a) compare le signal de l'harmonique 23 émise dans l'argon en fonction de la pression en prenant en compte l'ionisation du milieu. Il en est de même pour l'harmonique 47 générée dans le néon, illustrée par la Figure II-23b). Le taux d'ionisation, en fin d'impulsion, atteint respectivement 30% et 8%. En plus du fait que l'efficacité de l'émission harmonique est diminuée par l'ionisation, cette dernière introduit un décalage sur la pression optimale pour une harmonique donnée. Ceci se comprend facilement avec l'explication en diagramme de vecteurs d'ondes que nous avons exposée à la section B-1.1. En effet les électrons libres introduisent un terme de dispersion supplémentaire, Δk_{elec} , dirigé dans le même sens que la dispersion géométrique, donc opposé à la dispersion atomique. Il faut donc une pression plus élevée pour que la dispersion atomique, proportionnelle à la densité atomique puisse compenser les autres termes dispersifs et permette un accord de phase efficace.

La diminution du signal maximal s'explique par un accord de phase transitoire pendant la durée de l'impulsion. En effet la densité électronique augmente pendant l'impulsion et introduit un désaccord de phase supplémentaire. Un accord de phase efficace reste cependant possible mais durant une certaine tranche temporelle de l'impulsion et non plus sur toute sa durée (Constant *et al.* 1999). Le champ harmonique est émis efficacement pendant un temps plus court, lorsque l'ionisation est présente. Le nombre de photons générés est donc plus faible. L'étalement du pic s'explique de la même manière : il existe différentes valeurs de P_{opt} durant la durée de l'impulsion. Il y a alors un effet de moyenne sur le signal, rendant le maximum moins marqué. L'accord de ces simulations avec les courbes expérimentales (Figure II-14) est bon, même si la valeur absolue des pressions n'est pas reproduite. Nous reproduisons particulièrement bien l'évolution et la saturation de l'harmonique 47 en fonction de la pression. Il semble donc que l'accord est bon lorsque l'ionisation reste faible.

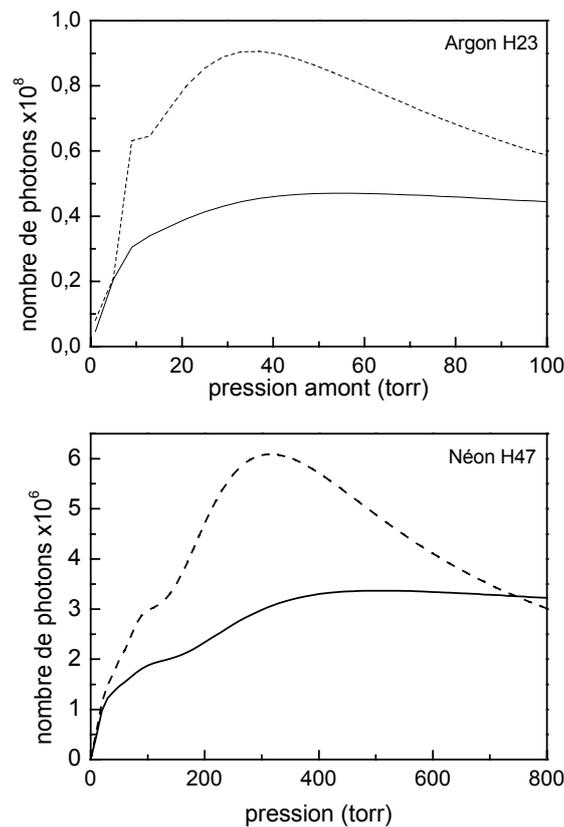


Figure II-23 : Comparaison du signal calculé en négligeant l'ionisation du milieu (trait pointillé) avec celui en la prenant en compte (trait plein) pour (a) l'harmonique 23 générée dans l'argon à $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ et (b) l'harmonique 47 générée dans le néon à $4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

3.2 Variation des caractéristiques de la fibre.

3.2.1 Longueur de milieu et absorption.

Nous pouvons maintenant faire varier les deux grandeurs caractéristiques du capillaire : la longueur L de la fibre donc du milieu générateur ainsi que sa section, à savoir le rayon interne a de la fibre. La première simulation, illustrée en Figure II-24a), considère la génération de l'harmonique 23 dans l'argon pour un éclairement de 2.10^{14} W/cm², sans prise en compte de l'ionisation ni de l'absorption du gaz, avec un profil carré de densité atomique, pour deux longueurs de fibre, de rayon interne 100µm. On observe clairement l'existence d'une pression optimale de génération de 8 Torr dans le capillaire. Le signal harmonique émis augmente de 8.10^8 à $2,7.10^9$ photons lorsque la fibre passe d'une longueur de 2cm à 4cm, soit une augmentation d'un facteur 3,3. Il semble donc que l'augmentation du signal ne soit pas quadratique comme l'aurait laissé penser le bon accord de phase. Une raison pour cela est que le parfait accord de phase n'est obtenu que proche de l'axe de propagation. En effet, hors axe intervient le vecteur \vec{K} de la phase atomique associé au gradient radial de l'éclairement, qui introduit un désaccord de phase (cf. Figure II-18). Du fait de la divergence du faisceau harmonique qui fait sortir une partie de l'énergie hors de la zone centrale de parfait accord de phase, la croissance du signal harmonique est ainsi moins rapide que la loi quadratique attendue. Ceci est confirmé par la simulation du signal de l'harmonique 23 pour $L=2$ cm et $L=4$ cm, en négligeant la phase du dipôle ϕ_q , présentée en Figure II-24b). Le signal augmente alors quadratiquement avec la longueur de fibre ($1,65.10^9$ photons pour $L=2$ cm et $6,6. 10^9$ photons pour $L=4$ cm).

Lorsque on introduit l'effet de l'absorption par le milieu, en conservant tous les autres paramètres identiques, cette augmentation en fonction de la longueur du milieu générateur n'existe plus, comme le montre la Figure II-25. On observe que les deux courbes d'émission en fonction de la pression sont parfaitement confondues, que le milieu ait une longueur de 2cm ou de 4cm. De plus le signal maximal ($1,6.10^8$) est inférieur d'un facteur 5 au signal maximal obtenu dans la fibre de 2cm sans absorption. En effet la longueur d'absorption de l'argon à 8 Torr est $L_{abs}=0,23$ cm, bien inférieur à la longueur du milieu. Elle limite donc l'émission (cf. Figure II-20a et discussion correspondante). Par contre, à pression plus élevée, le signal tenant compte de l'absorption sature à une valeur comparable au cas où elle est négligée (2.10^7). C'est la longueur de cohérence qui limite alors l'émission harmonique.

On voit donc clairement que l'absorption est un facteur limitant de l'émission pour l'harmonique 23 de l'argon. En fait on observe le même phénomène pour les différents ordres harmoniques dans les différents gaz. Dans quelques cas exceptionnels, la longueur peut devenir plus grande que la longueur maximale de fibre simulée (4cm). C'est le cas des

harmoniques 29 à 33 générées dans l'argon qui se trouvent près d'un minimum de Cooper pour l'absorption.

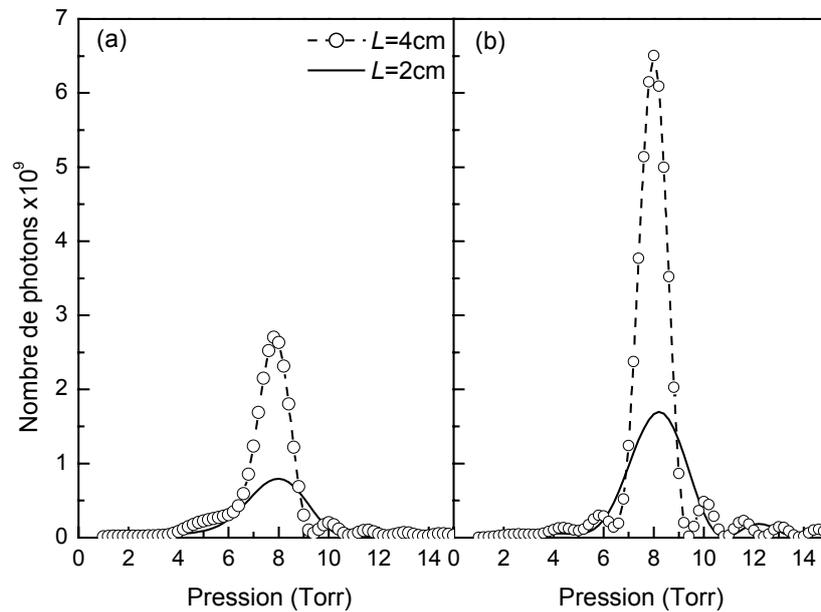


Figure II-24 : Signal de l'harmonique 23 dans l'argon en fonction de la pression dans la fibre, en négligeant l'ionisation et l'absorption du milieu atomique pour un capillaire long de 4cm (trait pointillé + cercles) et de 2cm (trait plein) avec la phase du dipôle atomique ϕ_q (a) et en la négligeant (b).

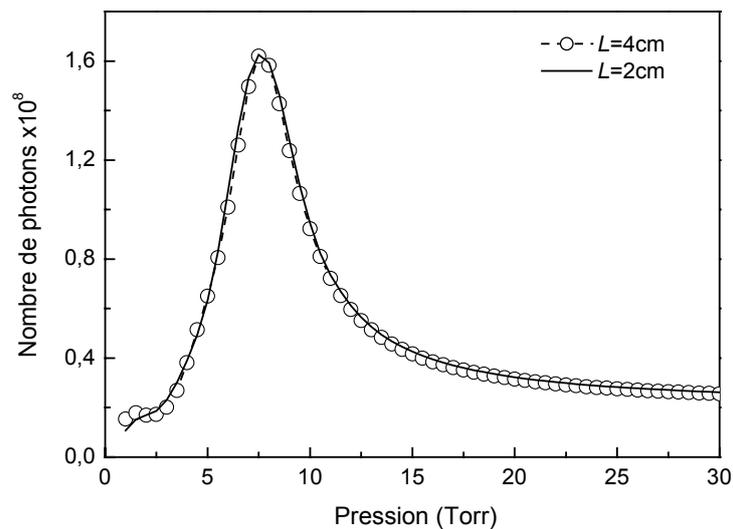


Figure II-25 : Signal de l'harmonique 23 dans l'argon en fonction de la pression dans la fibre, en tenant compte de l'effet de l'absorption du milieu atomique pour un capillaire long de 4cm (trait pointillé + cercles) et de 2cm (trait plein).

Ainsi, en général, l'utilisation d'une fibre permet-elle d'atteindre la limite d'absorption pour la génération d'harmoniques. On vérifie alors les conditions optimales de génération II-28 établies en section B-1.2, comparant les poids respectifs des différentes longueurs caractéristiques de la génération d'harmoniques.

3.2.2 Rayon interne de la fibre.

Etudions maintenant l'effet du rayon interne de la fibre sur le signal harmonique émis. Nous comparons en Figure II-26, le signal de l'harmonique 47 générée dans le néon pour différents rayons internes d'une fibre de 4cm de long, avec un profil carré de densité atomique. L'ionisation est négligée mais l'absorption du milieu est prise en compte. L'éclairement laser est fixé à 4.10^{14} W/cm² quel que soit le rayon interne de la fibre creuse. Ceci implique, d'un point de vue expérimental, de disposer d'un laser présentant une réserve d'énergie suffisante. On peut alors observer deux conséquences de la variation du rayon interne a sur l'émission harmonique.

On observe tout d'abord un clair décalage de la pression optimale lorsque le rayon interne passe de 150 μ m à 50 μ m ; elle augmente de 19 Torr à 171 Torr. Il y a donc un facteur 9 entre les deux pressions optimales, qui s'expliquent par le facteur 3 sur le rayon de la fibre. En effet, seule la dispersion géométrique varie lorsque le rayon interne est changé. Elle s'écrit pour l'harmonique 47 (cf. II-15) :

$$\Delta \bar{k}_{\text{géo}} = -47 \left(\frac{2,405}{a} \right)^2 \frac{\lambda_0}{4\pi} \bar{z} \quad (\text{II-33})$$

La dispersion géométrique est 9 fois plus importante dans le cas de la fibre avec le petit rayon interne. Tous les autres termes de dispersion étant constant, il est nécessaire que le terme de dispersion atomique soit 9 fois plus important pour que les différents termes dispersifs se compensent et permettent un accord de phase efficace. On retrouve ainsi le facteur observé sur la pression optimale des simulations numérique.

L'autre point remarquable est la diminution du signal maximum lorsque le rayon interne diminue de 150 μ m à 50 μ m. Ceci n'est pas dû au processus d'accord de phase qui se reproduit à l'identique mais à une P_{opt} différente, comme nous l'avons montré ci-dessus. Cette diminution de l'émission harmonique est à attribuer tout simplement à la réduction du volume émetteur, qui peut être approximé par un cylindre de volume $V_{150} = \pi a^2 \times L$. Ainsi lorsque la fibre a un rayon interne a' 3 fois plus petit ($a' = a/3$) on obtient un volume émetteur 9 fois plus

petit, $V_{50} = \pi a^2 \times L = V_{150}/9$. On observe bien la diminution d'un facteur 9 du signal harmonique émis lorsque le rayon interne passe de 150 μm à 50 μm .

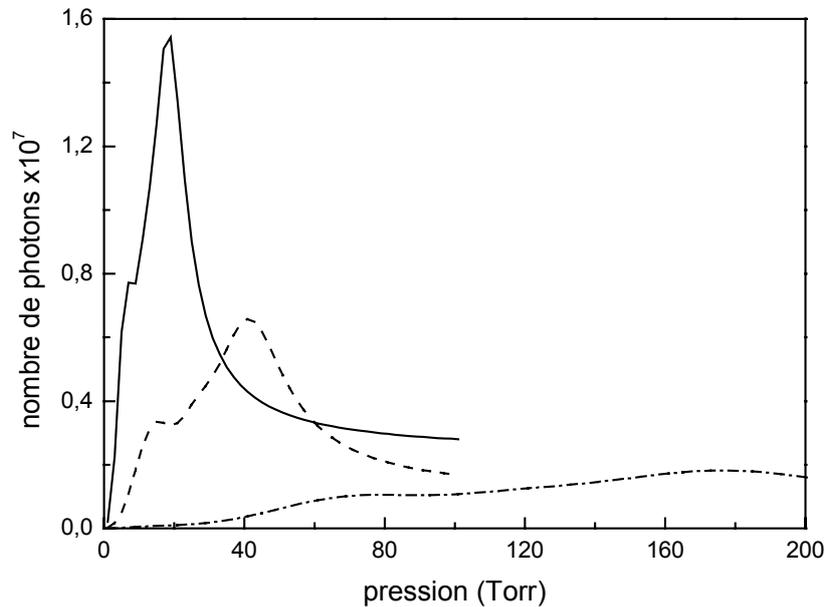


Figure II-26 : Evolution du signal de l'harmonique 47 générée dans le néon à 4.10^{14} W/cm^2 en fonction de la pression dans la fibre de rayon interne a égal à 150 μm (trait plein), 100 μm (trait pointillé) et 50 μm (trait pointillé – point).

4. Etude de l'accord de phase dans un capillaire.

Nous verrons dans cette partie, la manière dont les différents paramètres importants pour l'accord de phase, comme l'ionisation du milieu ou encore la phase du dipôle atomique, influencent la forme des profils d'émission en champ lointain mais aussi les profils spectraux de différentes harmoniques générées dans l'argon et dans le néon.

4.1 Profils d'émission en champ lointain.

Le calcul des profils d'émission en champ lointain des harmoniques est une signature directe de la manière dont se produit l'accord de phase dans le milieu non linéaire. Nous essayons de reproduire au mieux les conditions expérimentales. Ainsi les différentes simulations ont été effectuées pour une fibre de longueur 4cm avec un rayon interne de 100 μm . Le profil de densité atomique est gaussien, permettant ainsi d'être plus fidèle au profil

expérimental. L'absorption est toujours prise en considération, par contre lorsque l'ionisation est prise en compte, le couplage dans les modes supérieurs de la fibre dû à la défocalisation du faisceau par les électrons libres n'est pas simulée. La Figure II-27 illustre les profils spatiaux normalisés en champ lointain des harmoniques 19 et 23 générées dans l'argon pour un éclairement pic de $2 \cdot 10^{14}$ W/cm², en négligeant l'ionisation du milieu. On observe alors clairement une évolution, pour l'harmonique 19 : les profils d'émission sont annulaires, ce qui est la signature d'un accord de phase hors axe, pour les pressions inférieures à la pression optimale $P_{opt}=36$ Torr (cf. Figure II-22a). A partir de la pression optimale le profil d'émission est centré, résultat d'un accord de phase efficace sur l'axe. Au delà de la pression optimale, les profils restent centrés. L'énergie contenue dans les « ailes » du profil spatial diminue en fonction de la pression croissante, et finie par être contenue dans la partie centrale du profil, à P_{opt} . Le même phénomène est observé pour l'harmonique 23 ($P_{opt}=40$ Torr), avec une divergence qui diminue avec la pression croissante. Cette diminution de la divergence avec la pression croissante est très claire sur l'harmonique 23 (5,4mrad à 5Torr, 4mrad à 15Torr et ~ 1 mrad à 40 Torr). Une différence notable entre les profils d'émission de l'harmonique 19 et 23, est l'absence totale d'énergie au centre du profil pour les très basses pressions, dans le cas de l'harmonique 23. Ainsi toute l'énergie est contenue dans les ailes (cf. Figure II-12).

A cet éclairement laser proche de l'éclairement de saturation de l'argon, l'ionisation devient très importante, de l'ordre de 30% à la fin de l'impulsion laser. La pression optimale d'accord de phase se décale donc vers des valeurs plus élevées (60 Torr), du fait de la dispersion introduite par les électrons libres. Cependant l'évolution de profils d'émission annulaires vers des profils centrés en fonction de la pression croissante reste toujours visible (Figure II-28). Les profils présentent alors une forme plus lissée, avec des divergences pour $P < P_{opt}$ légèrement supérieure au cas où l'ionisation était négligée. Par contre, le profil centré à la pression optimale est plus étroit (0,5mrad). Une comparaison des divergences avec celles obtenues sans ionisation ne peut donner qu'un ordre d'idée car il n'y a pas de correspondance directe entre les pressions caractéristiques avec et sans ionisation. Il est clair que ces valeurs sont bien plus faibles que celles obtenues expérimentalement (cf. tableau II-1). Cependant, les simulations présentent un accord qualitatif avec l'expérience permettant de retrouver l'évolution d'un accord de phase hors axe vers un accord centré sur l'axe.

Nous avons également effectué des simulations des profils d'émission en champ lointain pour des harmoniques générées dans le néon d'ordre plus élevé, appartenant au plateau de génération du néon. On obtient un résultat comparable à celui obtenu pour les harmoniques 19 et 23 dans l'argon. Nous reproduisons ainsi qualitativement, une fois de plus, les résultats obtenus expérimentalement. La pression d'accord de phase optimale est décalée vers les valeurs plus importantes, étant donné que la dispersion atomique pour une pression et un ordre de non linéarité donnés est plus faible dans le cas du néon que pour l'argon (cf. B-3.1). Il faut donc une pression plus élevée afin que la dispersion atomique compense la dispersion géométrique plus importante des harmoniques élevées du néon. Une fois de plus

nous observons l'évolution de profils d'émission annulaires vers des profils centrés en fonction de la pression croissante. La Figure II-29 illustre cet effet pour les harmoniques 33 et 47 générées dans le néon à 4.10^{14} W/cm², en négligeant les effets de l'ionisation du milieu. La divergence de l'anneau est cette fois ci clairement visible sur les deux ordres harmoniques et diminue avec la pression (par exemple pour H47 : 5,8mrad à 10 Torr, 4,5mrad à 150 Torr). Par contre les divergences sont légèrement différentes à P_{opt} où les harmoniques sont centrées ; 0,6mrad à 317 Torr pour H33 et 1mrad à 309 Torr pour H47.

Lorsque l'on tient compte de l'ionisation, qui reste très faible à l'éclairement utilisé, environ 8% en fin d'impulsion laser, on retrouve sensiblement les mêmes valeurs de divergence, sauf à la pression optimale ($P_{opt} \sim 500$ Torr), (Figure II-30). Lorsque l'émission est centrée, la divergence est très faible ($\sim 0,3$ mrad). Il semble que les effets spatiaux de l'ionisation introduisent une sélectivité plus important dans les conditions d'accord de phase sur l'axe, s'ajoutant au gradient radial de la phase du dipôle pour empêcher l'accord hors-axe. L'ionisation semble également lisser les distorsions observées dans la partie annulaire des profils dans les simulations négligeant les effets d'ionisation. Ces oscillations peuvent être attribuées à un régime d'accord de phase transitoire. En effet, l'accord de phase hors-axe est rendu possible par le gradient de la phase du dipôle atomique, qui est proportionnelle à l'éclairement laser. Ce gradient de la phase dépend donc également de la variation temporelle de l'éclairement. On peut alors réaliser l'accord de phase hors axe, de manière transitoire, à différents instants dans l'enveloppe temporelle du champ fondamental. L'amplitude de ces oscillations diminue lorsque l'échantillonnage en pas de temps est plus précis. Lorsque l'ionisation est prise en compte, la variation temporelle continue de la densité électronique résulte en un lissage de ces pics.

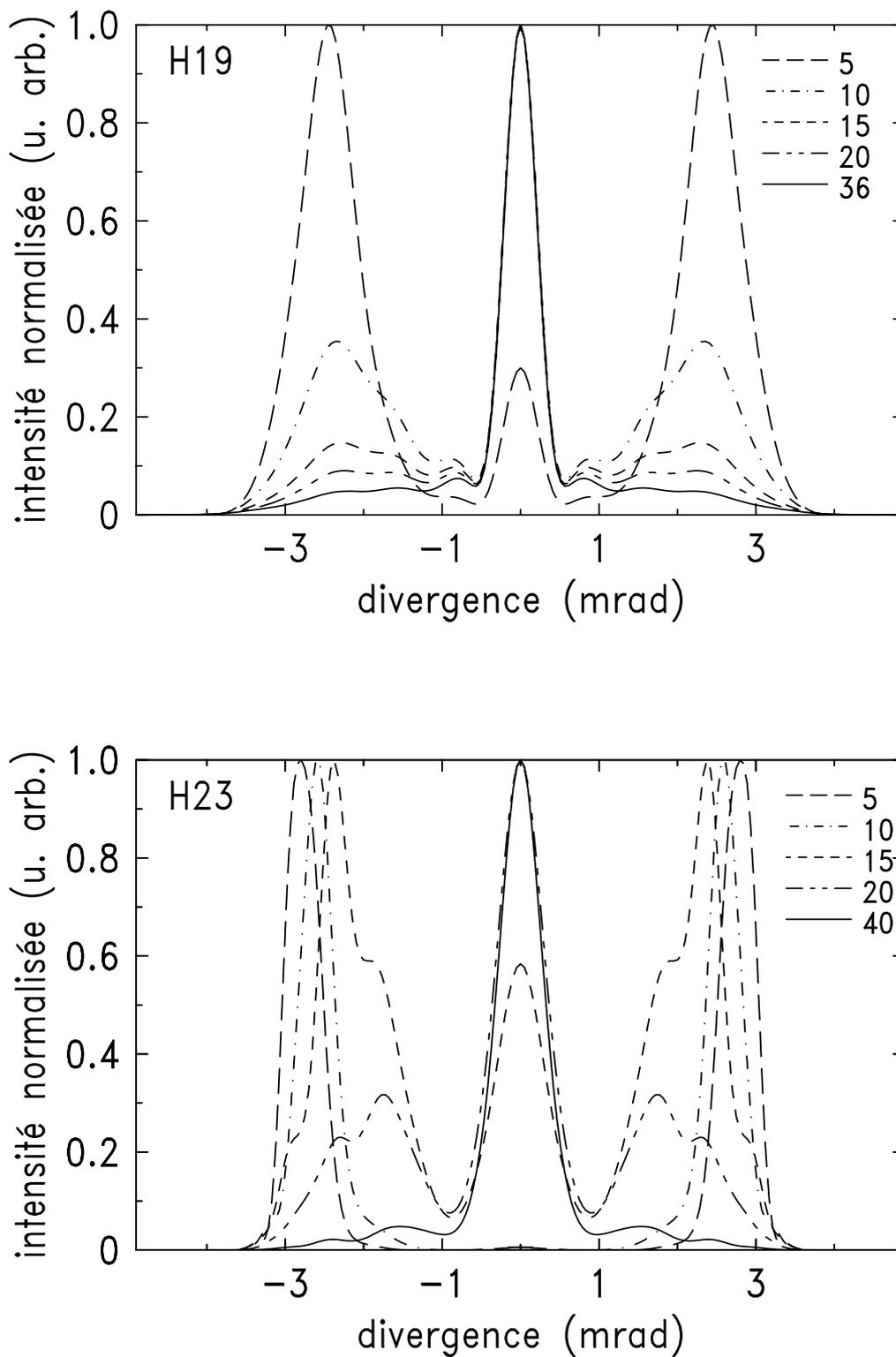


Figure II-27 : Profils d'émission en champ lointain des harmoniques 19 et 23 générées dans l'argon avec un éclairage de $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ pour différentes pressions (en Torr dans la légende). L'ionisation est négligée.

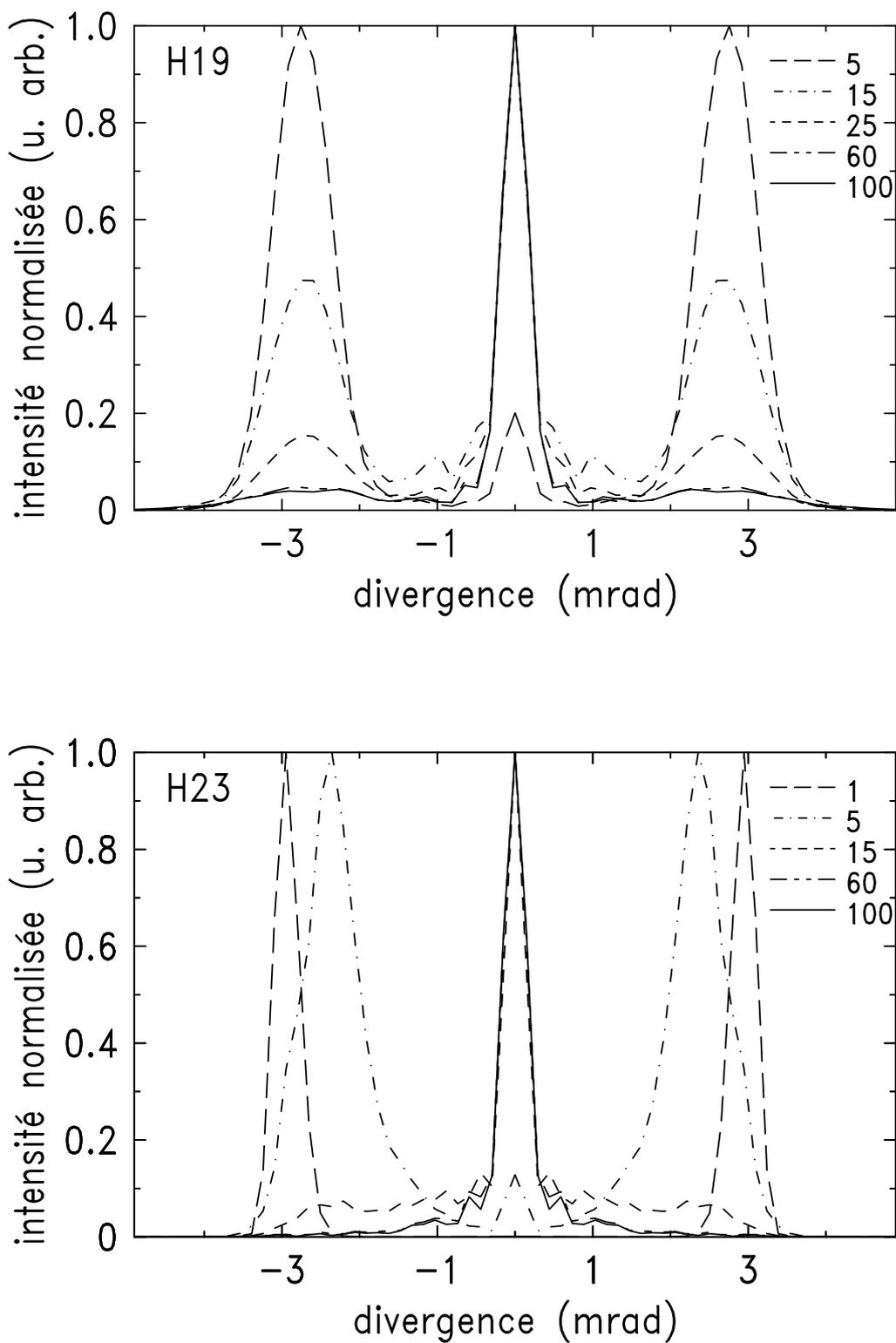


Figure II-28 : Profils d'émission en champ lointain des harmoniques 19 et 23 générées dans l'argon avec un éclairage de $2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ pour différentes pressions (en Torr dans la légende). L'ionisation est prise en compte.

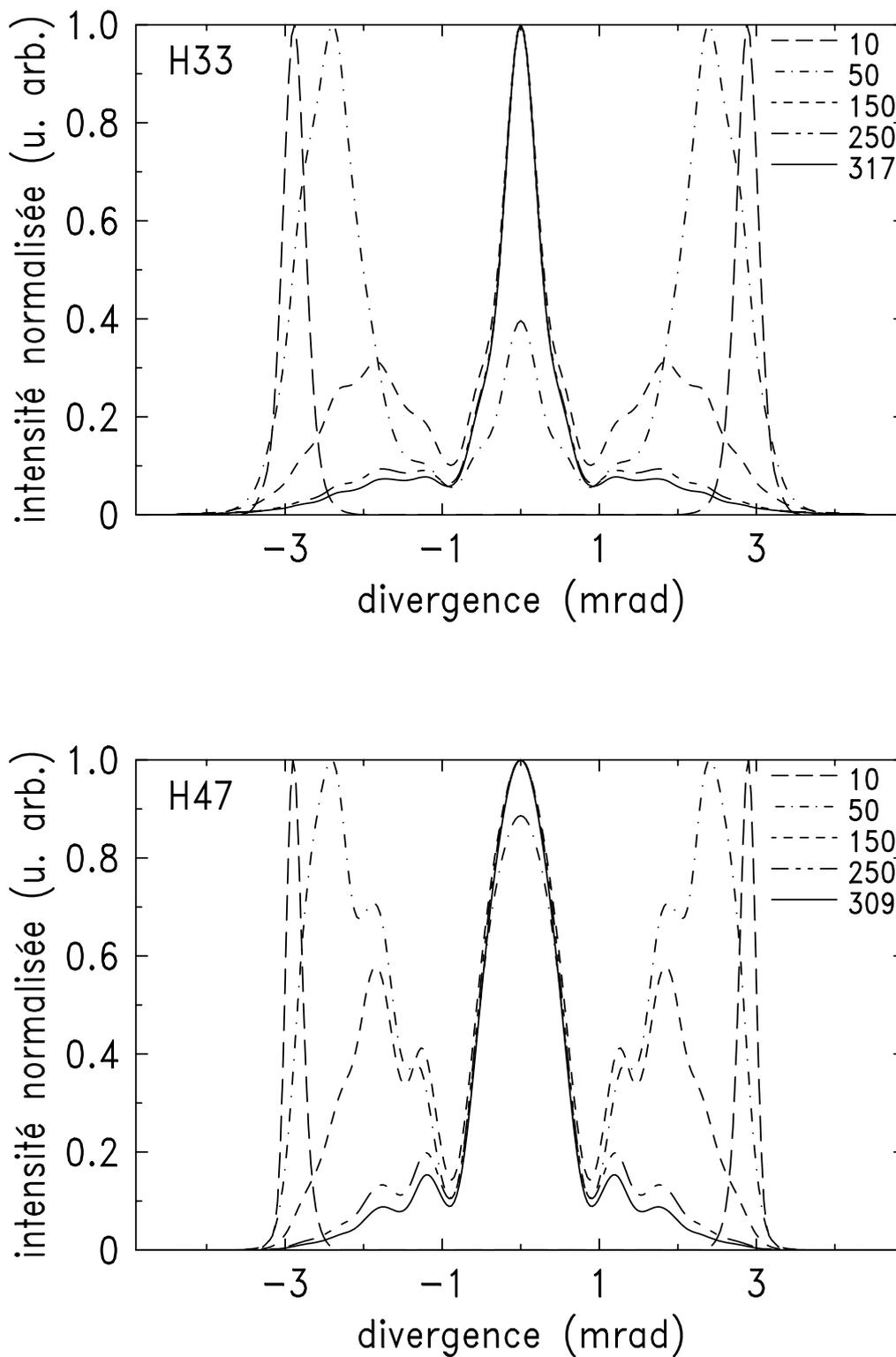


Figure II-29 : Profils d'émission en champ lointain des harmoniques 33 et 47 générées dans le néon avec un éclairage de $4 \cdot 10^{14}$ W/cm² pour différentes pressions (en Torr dans la légende). L'ionisation est négligée.

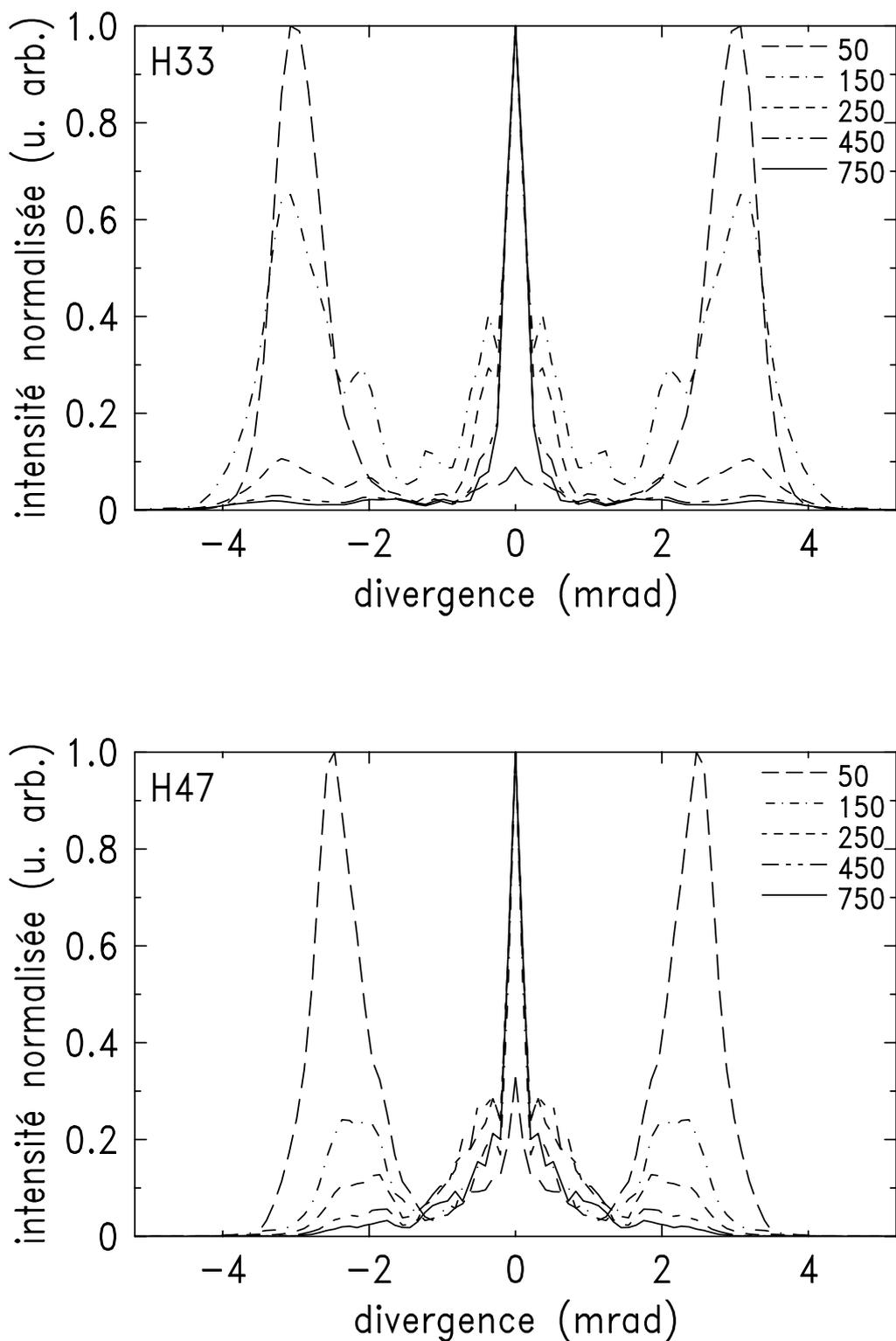


Figure II-30 : Profils d'émission en champ lointain des harmoniques 33 et 47 générées dans le néon avec un éclairage de $4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ pour différentes pressions (en Torr dans la légende). L'ionisation est prise en compte.

Nous avons montré à la section B-1.1, qu'une émission harmonique hors axe efficace est rendue possible par le gradient de la phase du dipôle harmonique $\nabla\phi_q = -\eta_{q,p}\nabla I_L$. L'incidence de cette phase dépendant de la distribution de l'éclairement laser dans le milieu se vérifie facilement dans les simulations. Nous avons simulé le profil d'émission de l'harmonique 47 générée dans le néon avec un éclairement de 4.10^{14} W/cm², avec ou sans phase du dipôle. Nous tenons compte de tous les termes de dispersion, y compris l'ionisation, ainsi que de l'absorption. La Figure II-31, montre que l'émission hors axe n'est rendue possible que par l'existence de la phase du dipôle atomique. Lorsque cette phase n'est pas introduite dans les simulations, l'émission se fait uniquement sur l'axe, quelle que soit la pression appliquée à la fibre.

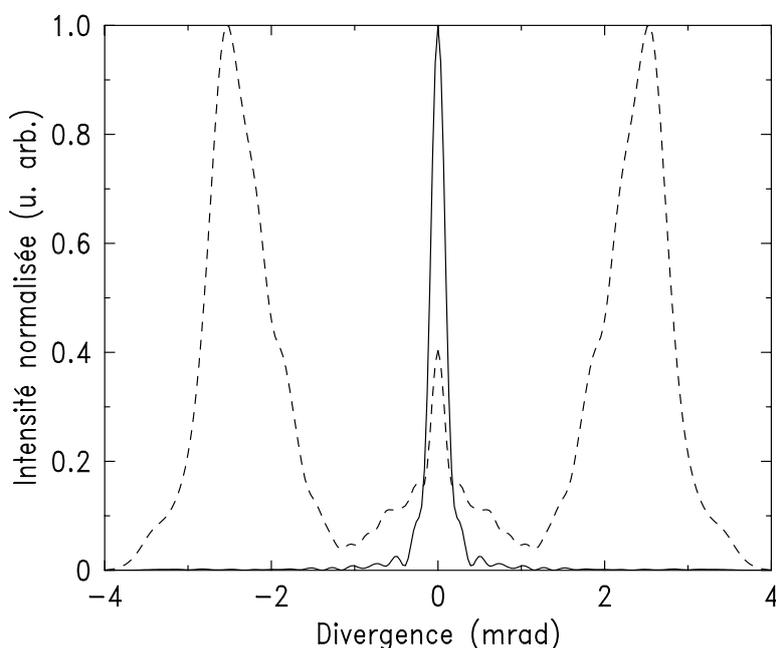


Figure II-31 : Profil d'émission en champ lointain de l'harmonique 47 générée dans le néon à 51 Torr avec un éclairement pic de 4.10^{14} W/cm², en négligeant la phase du dipôle atomique (trait plein) et ou en la prenant en compte (trait pointillé).

Ces résultats vont ainsi à l'encontre des explications données dans (Rundquist *et al.* 1998 et Durfee III *et al.* 1999), justifiant l'émission hors axe par un accord de phase de type Cerenkov. Cet accord de phase hors axe est utilisé notamment dans les guides d'ondes pour la génération de la seconde harmonique du laser propagé (Sutherland 1996). Ceci est analogue au phénomène de rayonnement Cerenkov, où une particule émet un champ électromagnétique qui se propage dans un milieu avec une vitesse plus grande que celle de la lumière. Dans notre cas, si la vitesse de phase du champ harmonique $v_{\phi,q\omega}$ est inférieure à celle de la polarisation

non linéaire $v_{\varphi,\omega}$, l'accord de phase est réalisé sous la condition $v_{\varphi,\omega} \cos\theta = v_{\varphi,q\omega} \left(\left| \vec{k}_q \right| > \left| \vec{k}_1 \right| \right)$. L'angle d'émission θ est déterminé par la dispersion dans le milieu. L'angle maximal est déterminé, à basse pression, par la relation $\vec{k}_q \cos\theta = q\vec{k}_1$, associée à (II-13) ; $\theta_{\max}=3\text{mrad}$. L'émission résultante n'est alors plus quadratique avec la longueur d'interaction, mais linéaire. En effet, il ne s'agit que d'un accord de phase partiel puisque ce n'est que la projection \vec{k}_q sur \vec{k}_1 qui est accordée, d'où une certaine perte de cohérence de l'émission. Au contraire, nos simulations montrent que la phase du dipôle atomique, par l'intermédiaire du gradient radial de l'éclairement peut permettre un accord de phase efficace hors-axe, le diagramme des vecteurs d'onde représentant l'accord de phase pouvant être « bouclé » grâce à ce terme supplémentaire (Figures II-18 et II-31). Par conséquent, même si cet effet Cerenkōv existe, il ne permet pas d'expliquer à lui seul l'accord de phase efficace hors axe et l'émission annulaire qui en résulte. Seule l'existence de la phase du dipôle atomique permet cette émission annulaire à basse pression.

Les simulations des profils spatiaux en champ lointain des harmoniques 33 et 47 générées dans le néon donnent des valeurs de divergence proches de celles obtenues expérimentalement. Par contre les divergences théoriques obtenues pour les harmoniques 19 et 23 de l'argon sont presque deux fois plus faibles que celles observées expérimentalement. Cette différence peut être attribuée au fait que nous ne simulons pas les modes propres de la fibre creuse d'ordre supérieur au mode fondamental. En effet dans le cas de l'argon, les éclaircements utilisés sont plus proche de l'éclairement de saturation du gaz, induisant un fort taux d'ionisation de l'ordre de 30%. Il est alors probable que le faisceau laser, bien que couplé dans le mode fondamental de la fibre, se défocalise au cours de sa propagation. De l'énergie est alors couplée dans les modes propres d'ordre supérieur ; les premiers ordres concernés étant les modes hybrides EH_{12} et EH_{21} . Les amplitudes respectives de ces modes (Marcatili *et al.* 1964) s'écrivent :

$$\text{EH}_{12} = J_0\left(5,52\frac{r}{a}\right) \quad \text{et} \quad \text{EH}_{21} = J_1\left(3,832\frac{r}{a}\right) \quad (\text{II-34})$$

On peut calculer l'atténuation de chacun de ces modes grâce à la relation définie en (II-5). On trouve alors une atténuation, au cours de la propagation sur la longueur de la fibre de 2,7% pour le mode EH_{12} et 5,6% pour le mode EH_{21} . Ceci a été calculé pour un faisceau laser de longueur d'onde centrée à 800 nm et en considérant l'indice de la silice constituant la partie externe de la fibre comme étant égal à 1,5. Ces modes ne sont donc pas très atténués au cours de la propagation. Ainsi si de l'énergie laser est couplée dans le mode EH_{21} , par exemple, ce dernier peut également contribuer à la génération d'harmoniques. La dispersion géométrique induite par ce mode est alors 2,5 fois supérieure à celle induite par le mode fondamentale (cf. relation II-15) ; les conditions d'accord de phase s'en trouvent modifiées. On peut cependant

supposer qu'à pression donnée, le champ harmonique émis par ce mode est plus divergent. Ceci pourrait expliquer pourquoi les divergences des profils d'émission expérimentaux dans l'argon, en présence d'une forte ionisation ne sont pas reproduites par les simulations, qui ne tiennent pas compte de ces modes supérieurs.

En conclusion, une extension du code de propagation semble donc nécessaire afin de pouvoir simuler en toute rigueur le processus de génération dans les fibres creuses remplies de gaz lorsque l'ionisation est importante. Toutefois, les simulations actuelles présentent déjà un bon accord qualitatif avec les expériences à fort éclaircissement. L'accord devient même quantitatif lorsque peu d'ionisation est présente, comme dans le néon, permettant une meilleure compréhension du processus d'accord de phase. Ces simulations montrent, entre autre, l'importance cruciale de la phase du dipôle atomique dans le processus d'accord de phase. Nous allons voir maintenant comment se traduit cet effet d'accord de phase sur les profils spectraux des harmoniques.

4.2 Profils spectraux des harmoniques.

4.2.1 Généralités

Dans cette section nous étudions l'influence des paramètres de génération sur les spectres des harmoniques, dans les mêmes conditions que celles utilisées pour simuler les profils spatiaux en champ lointain. Nous pouvons ainsi comparer directement les effets d'accord de phase sur les spectres harmoniques et les profils d'émission correspondants.

Nous avons déjà montré l'importance de la phase intrinsèque du dipôle atomique $\phi_q(r,t) = -\eta_{q,p} I_L(r,t)$ dans le processus d'accord de phase. Les impulsions laser ultra courtes que nous utilisons provoquent au foyer des variations très rapides aussi bien en espace qu'en temps de l'éclaircissement. Ceci implique des modulations de la phase harmonique de forte amplitude. Elles déterminent notamment les qualités spatiales du faisceau harmonique, comme par exemple les profils d'émission que nous avons mesurés et calculés. Ces modulations déterminent également les propriétés spectrales de l'émission harmonique.

Lorsque l'accord de phase est réalisé de manière quasi idéale, la phase du champ harmonique émis suit celle de la polarisation non linéaire, terme source de l'émission harmonique, lors de la propagation dans le milieu atomique. Nous avons exprimé au Chapitre I la composante d'ordre q de la polarisation non linéaire qui s'écrit :

$$P_q^{NL} = |P_q^{NL}| \exp(i(\phi_q^{NL} - q\omega t)) \quad (\text{II-35})$$

La phase φ_q^{NL} s'exprime en fonction de la phase φ_1 du laser guidé dans le mode fondamental du capillaire et de la phase du dipôle atomique :

$$\varphi_q^{NL} = q\varphi_1 - \eta_q I_L(r, t) \text{ avec } \varphi_1 = \frac{\omega}{c} \int_{z_0}^z n_1(r, z', t) dz' + \varphi_{géo} \quad (\text{II-36})$$

Notons que η_q dépend de la trajectoire considérée pour l'émission harmonique (cf. Chapitre I) La fréquence instantanée, de l'émission harmonique s'écrit alors :

$$\omega(t) = q\omega - \frac{\partial \varphi_q^{NL}}{\partial t} = q\omega \left(1 + \frac{e^2}{2mc\epsilon_0\omega^2} \int_{z_0}^z \frac{\partial N_e(t)}{\partial t} dz' \right) + \eta_q \frac{\partial I_L}{\partial t} \quad (\text{II-37})$$

La variation de l'indice du milieu à une pression donnée, au cours du temps, résulte principalement de la production d'électrons libres lors de l'ionisation du milieu dans l'enveloppe temporelle de l'impulsion fondamentale. Puisque la densité électronique augmente au cours du temps, le terme $\partial N_e / \partial t$ est positif, introduisant un décalage uniquement vers le « bleu » (haute fréquence). Un décalage/élargissement vers le bleu « blue shift » apparaît alors dans le spectre du laser et des harmoniques générées (Wahlström *et al.* 1993, Rae *et al.* 1994). C'est ce que nous avons par exemple observé sur les spectres de l'argon illustrés par la Figure II-6.

Le second terme de l'expression II-37 dépend des variations *temporelles* de l'éclairement laser dans le milieu. Nous avons déjà vu, expérimentalement et théoriquement que les variations *spatiales* de cet éclairement, notamment radial dans le cas de la fibre creuse, permet d'obtenir un accord de phase efficace hors-axe et ainsi une émission harmonique annulaire. Les variations *temporelles* de l'éclairement dans le milieu sont responsables d'une modulation en fréquence de l'émission harmonique. Cet effet est analogue à l'élargissement spectral par automodulation de phase d'une impulsion se propageant dans un milieu Kerr, dont l'indice dépend de l'intensité (Boyd 1992). Comme η_q est positif et qu'il caractérise la trajectoire courte ou la longue, le front montant de l'impulsion laser décale la fréquence harmonique vers le bleu, alors que le front descendant décale cette fréquence vers le rouge. Ce « chirp », négatif, implique un élargissement du spectre harmonique (Salières *et al.* 1995b, Gaarde *et al.* 1999). Cet élargissement est d'autant plus grand que η_q est grand, il sera donc important lorsque la trajectoire longue est prédominante dans la génération de l'harmonique, le « chirp » devenant négligeable lorsque la trajectoire courte prédomine.

Rappelons qu'un des points importants du modèle SFA (Lewenstein *et al.* 1994), est l'existence de deux trajectoires semi-classiques principales de l'électron dans le continuum, qui contribuent à l'émission de l'harmonique à la fréquence $q\omega$. Ces deux trajectoires ont des temps d'oscillations distincts pour une harmonique de la région du plateau. Ainsi la trajectoire

courte τ_C de l'électron a un temps de retour au noyau de l'ordre d'une demi période optique alors que pour la trajectoire longue τ_L , ce temps de retour est de l'ordre d'une période optique. Le facteur η_q peut être approximé comme étant proportionnel au temps passé par l'électron dans le continuum. Ainsi $\eta_{q,C}$ associé à la trajectoire courte est plus petit que $\eta_{q,L}$ associé à la trajectoire longue. Ces deux trajectoires tendent à se confondre en une seule trajectoire pour les harmoniques générées dans la coupure (Antoine *et al.* 1996). La contribution de ces trajectoires à la génération d'harmoniques a été mise en évidence expérimentalement, d'une part dans le domaine spectral (LeDéroff *et al.* 1999, Salières *et al.* 2001), d'autre part dans le domaine spatial (Bellini *et al.* 1998, Lyngå *et al.* 1999).

Ces effets de trajectoires doivent également exister lorsque les harmoniques sont générées dans une fibre creuse remplie de gaz, la sélection entre les trajectoires ne se faisant plus en fonction de la focalisation, mais en fonction de la pression du milieu générateur. Ainsi l'une ou l'autre de ces trajectoires devrait être favorisée dans l'accord de phase dans la fibre en fonction de la pression, selon qu'un fort gradient radial est nécessaire ou non pour réaliser une émission hors axe. Cet effet devrait apparaître sur les spectres d'émission harmonique.

4.2.2 Simulations des spectres dans le cas de l'argon.

La Figure II-32, représente les spectres de l'harmonique 19 générée dans l'argon à un éclairement pic de 2.10^{14} W/cm² pour différentes pressions dans la fibre (conditions équivalentes à celles utilisées pour la Figure II-28). Tous les termes de dispersion sont pris en compte ainsi que l'ionisation du milieu par l'impulsion fondamentale et l'absorption du rayonnement. On remarque tout d'abord une claire asymétrie des spectres pour toutes les pressions avec un côté bleu plus intense que le rouge. De plus, à faible pression, le pic central est entouré de deux pics latéraux de forte énergie, dont l'intensité diminue nettement à haute pression. Ces pics latéraux pourraient être associés à la trajectoire longue qui induit un fort « chirp », alors que le pic central serait associé à la trajectoire courte (LeDéroff *et al.* 1999, Salières *et al.* 2001, Gaarde *et al.* 1999). Si l'on compare cette évolution à celle observée pour les profils d'émission en champ lointain de l'harmonique 19 (Figure II-28), on observe que l'émission est annulaire lorsque le spectre correspondant est large, avec la majorité de l'énergie contenue dans les ailes. La trajectoire longue semblerait donc être majoritairement impliquée dans l'accord de phase hors axe, lorsque un fort gradient radial de la phase du dipôle est requis, donc un η_q grand. Par contre, à pression élevée, lorsque l'accord de phase est sur l'axe, la trajectoire courte prédominerait. Cependant, une autre explication de ces spectres élargis du côté bleu pourrait être la modulation de phase due aux électrons libres. Afin de vérifier ces conclusions, nous avons effectué des simulations permettant de clairement

distinguer les différentes contributions à l'élargissement de ces spectres dues à l'ionisation et la variation temporelle de la phase du dipôle atomique.

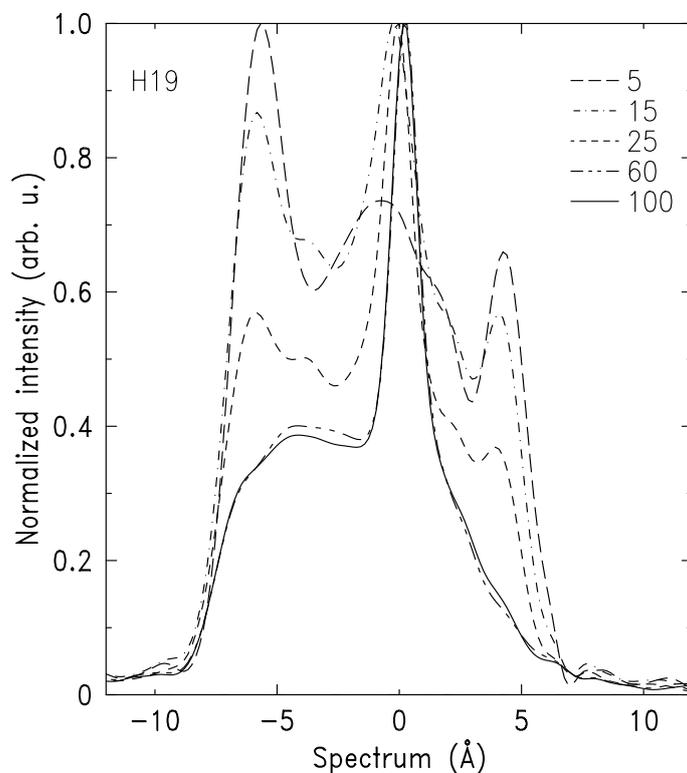


Figure II-32 : Spectre de l'harmonique 19 générée dans l'argon à un éclairement de $2.10^{14} W/cm^2$ pour différentes pressions indiquées en Torr dans la légende.

La Figure II-33 représente une simulation effectuée dans les conditions précédentes sans prendre en compte l'ionisation. On observe toujours des spectres larges mais symétriques avec une contribution plus importante de la trajectoire longue comparativement à la courte à basse pression. Ce rapport est fortement diminué à haute pression. La comparaison entre ces deux simulations permet d'expliquer l'effet de l'ionisation présent dans les courbes de la Figure II-32. Tout d'abord, la variation temporelle de la densité d'électrons libres n'est pas responsable de la largeur des spectres puisque les spectres sans ionisation sont aussi, sinon plus larges que ceux de la Figure II-32. Par contre, c'est la déplétion du milieu atomique par l'ionisation qui provoque l'asymétrie. En effet, le côté bleu du spectre harmonique est généré par le front montant de l'impulsion laser. Lorsque la partie rouge du spectre est générée (front descendant), le milieu a atteint un fort taux d'ionisation (30% au centre du milieu et au maximum de l'impulsion) résultant en une diminution de l'efficacité de génération à cause du dépeuplement du milieu.

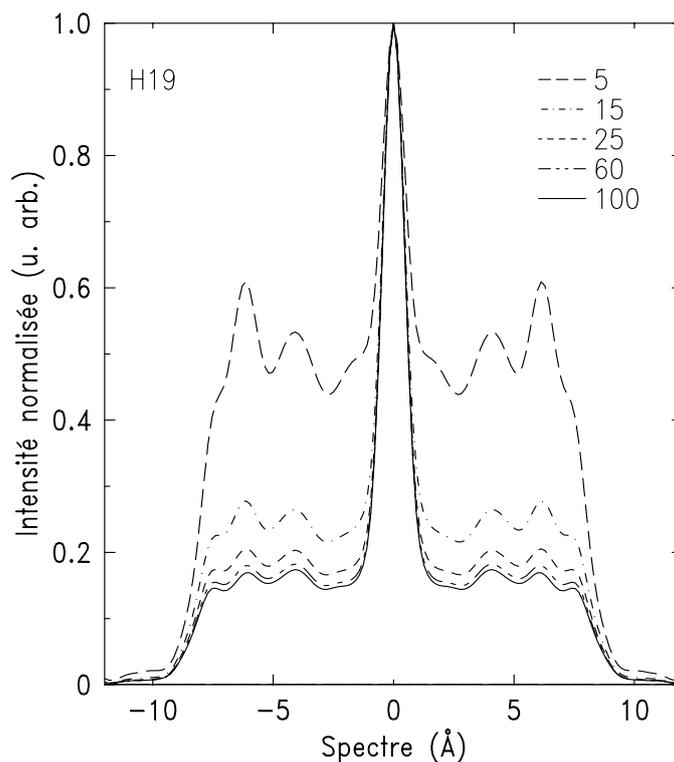


Figure II-33 : Spectre de l'harmonique 19 générée dans l'argon à un éclairement de $2.10^{14} W/cm^2$ pour différentes pressions indiquées en Torr dans la légende en négligeant l'ionisation du milieu.

L'importance de la phase intrinsèque du dipôle atomique sur la forme du spectre est illustrée par la Figure II-34, qui représente une comparaison, pour deux pressions extrêmes, les spectres simulés en négligeant la phase du dipôle pour trois pressions caractéristiques (basse pression 10 Torr, $P_{opt}=60$ Torr et haute pression 100 Torr). L'ionisation est prise en compte. Que ce soit à basse pression ou à pression plus élevée, les spectres calculés en négligeant la phase du champ harmonique sont très différents des précédents. Ils ne présentent qu'un seul pic, très fin, similaire au pic central de la Figure II-32 : le spectre à 10 Torr sans la phase du dipôle présente une largeur à mi hauteur de $2,2 \text{ \AA}$, qui diminue à $1,3 \text{ \AA}$ à 101 Torr. La modulation de la phase du dipôle est donc bien à l'origine de l'élargissement des spectres, élargissement important surtout à basse pression lorsque la trajectoire longue joue un rôle important dans l'accord de phase hors-axe. A plus haute pression, la trajectoire courte prédomine et l'élargissement du spectre est bien moins important même s'il subsiste à haute pression un épaulement du côté bleu du spectre.

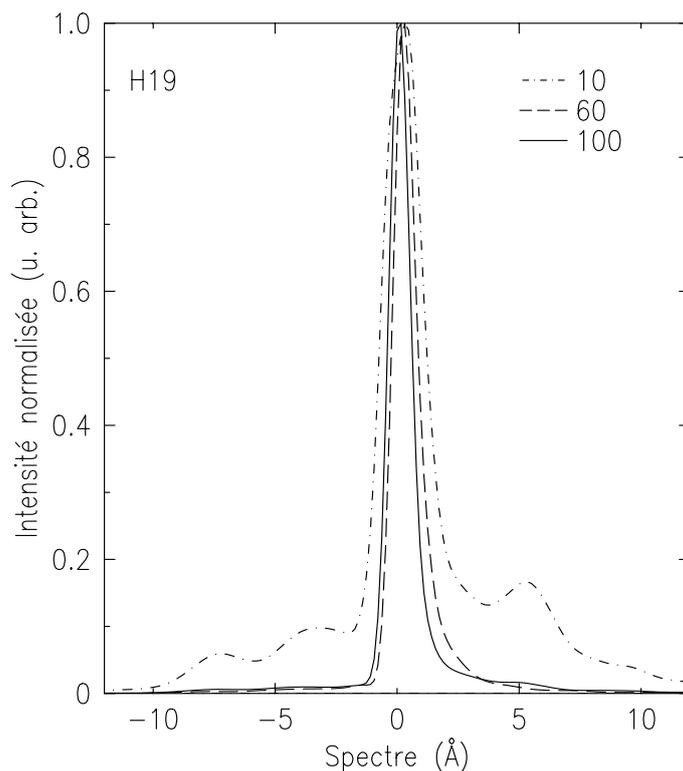


Figure II-34 : Spectre de l'harmonique 19 générée dans l'argon à un éclairement de $2.10^{14} W/cm^2$ pour les pressions indiquées en Torr dans la légende en prenant en compte l'ionisation du milieu et en négligeant la phase du dipôle.

Cet effet a également été observé dans les simulations de l'harmonique 23 de l'argon dans les mêmes conditions que l'harmonique 19. Les spectres, sont illustrés en Figure II-35. L'harmonique 23, évidemment plus étroite spectralement que l'harmonique 19, présente la même diminution de la largeur du spectre avec la pression croissante. L'asymétrie des spectres est une fois de plus le résultat de l'ionisation du milieu, le côté rouge étant partiellement coupé. A 5 Torr, le spectre présente une structure en double pic, contenant la majorité de l'énergie, de largeur à mi hauteur $6,7 \text{ \AA}$. Au fur et à mesure que la pression augmente, l'amplitude des ailes diminue au profit de la partie centrale avec une diminution de la largeur spectrale à $1,4 \text{ \AA}$. On observe alors une sélection claire de la trajectoire courte, puisque la trajectoire longue, qui permettait l'accord de phase hors axe à basse pression est maintenant devenue un facteur de désaccord de phase. Cette interprétation est confirmée par l'évolution parallèle des spectres et des profils spatiaux (Figure II-28). Une fois de plus l'élargissement spectral est du à la modulation de la phase du dipôle atomique. Lorsque cette phase est négligée, les spectres sont alors plus fins, diminuant de 5 \AA à $0,9 \text{ \AA}$ avec la pression croissante.

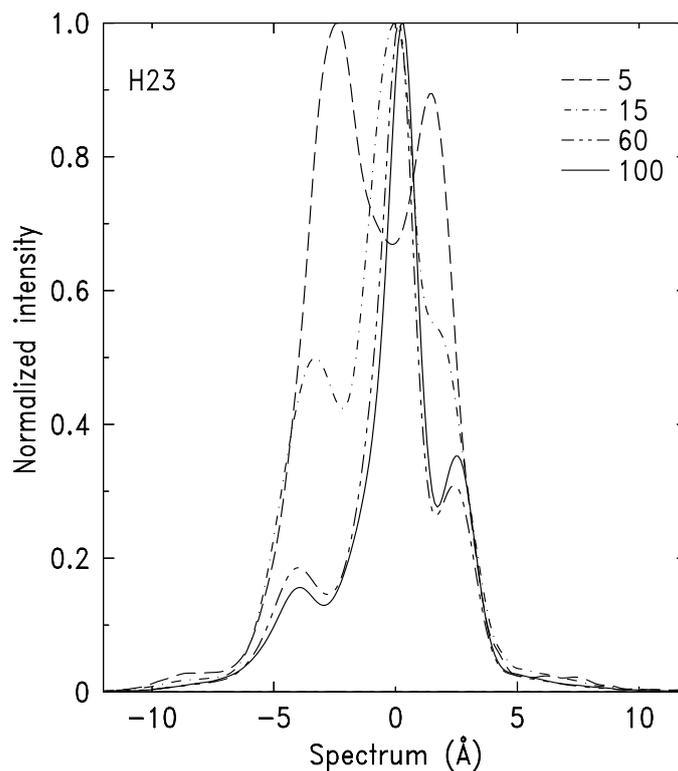


Figure II-35 : Spectre de l'harmonique 23 générée dans l'argon à un éclairement de $2.10^{14} W/cm^2$ pour différentes pressions indiquées en Torr dans la légende.

Ce comportement n'est pas particulier à l'argon, puisqu'on retrouve les mêmes dépendances avec la pression et la phase du dipôle atomique pour les spectres simulés des harmoniques 33 et 47 du néon (Figures II-36 et II-37). Les largeurs spectrales à mi hauteur, diminuent respectivement pour les harmoniques 33 et 47, de 5,1 Å et 4,3 Å à basse pression, à 1 Å et 2 Å à pression élevée. Lorsque la phase est négligée, ces largeurs spectrales ne sont plus que de l'ordre de 0,5 Å quel que soit l'ordre harmonique et la pression dans le capillaire. La séparation en deux trajectoires est ici moins évidente que dans l'argon. La modulation de la phase atomique correspondant à la trajectoire longue induit ici plutôt un élargissement global que des pics satellites comme dans l'argon.

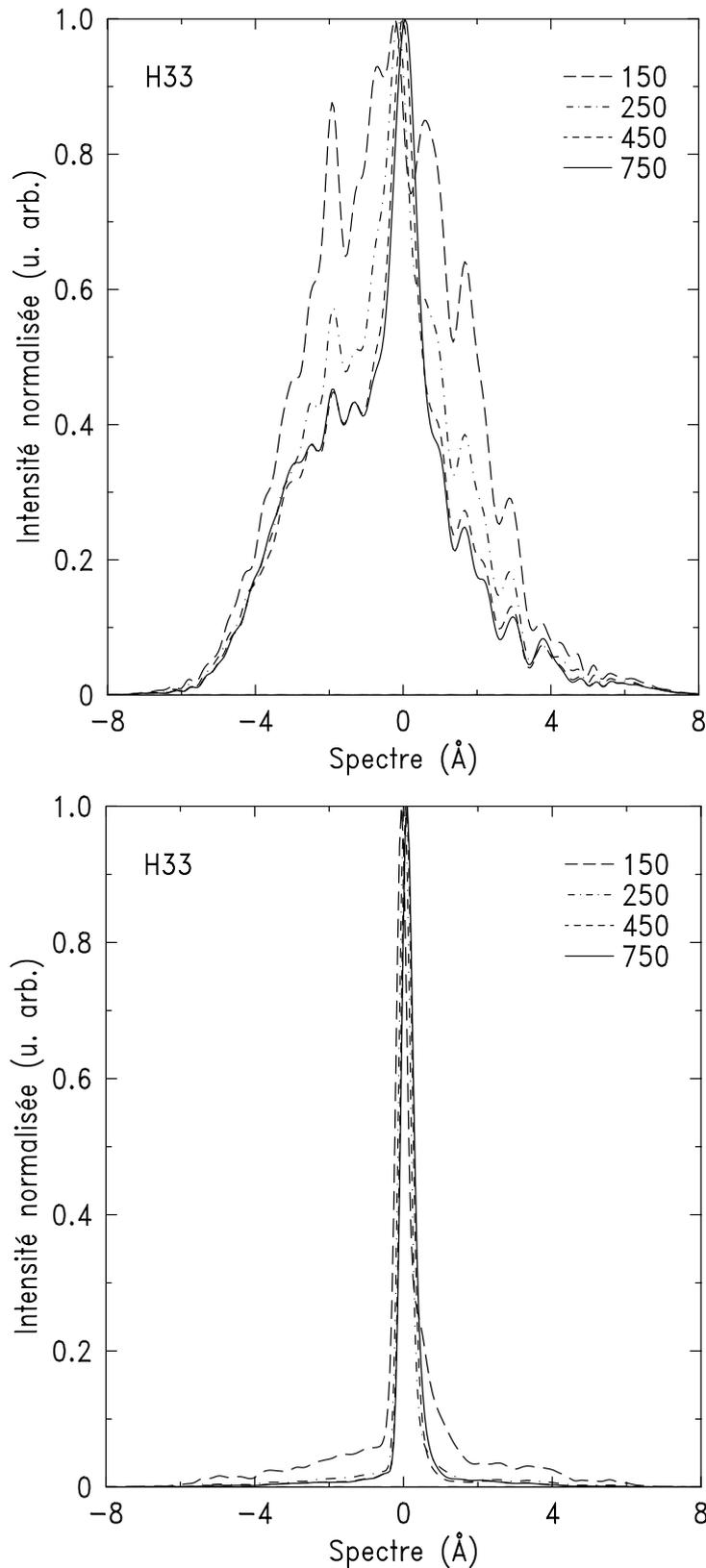


Figure II-36 : Spectres de l'harmonique 33 générée dans le néon à un éclairement de $4 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$ pour différentes pressions indiquées en Torr dans la légende. La phase du dipôle est considérée sur les courbes du haut, alors qu'elle est négligée sur celles du bas.

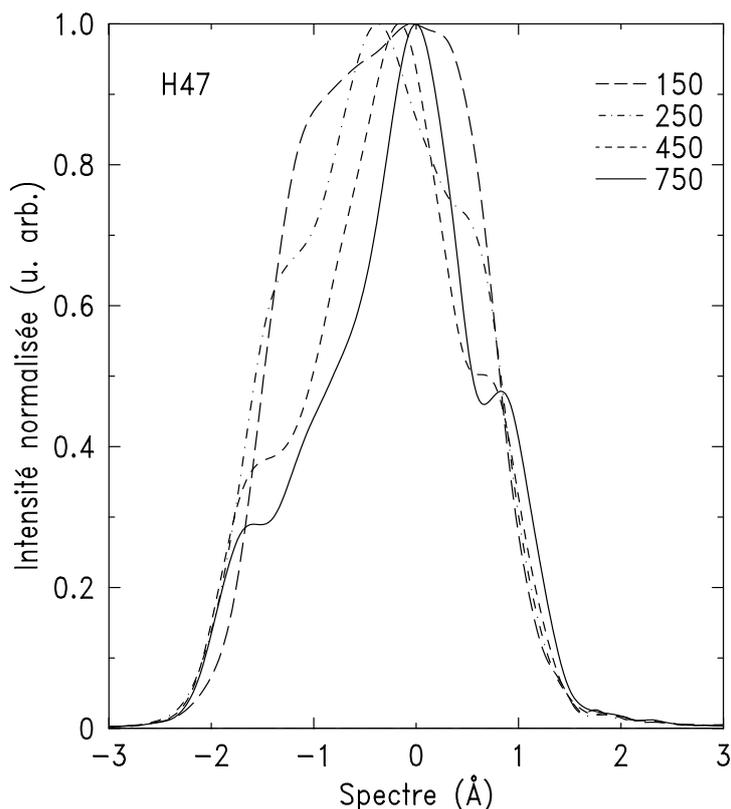


Figure II-37 : Spectre de l'harmonique 47 générée dans le néon à un éclairement de $4.10^{14}W/cm^2$ pour différentes pressions indiquées en Torr dans la légende. La phase du dipôle est prise en compte.

Conclusion.

Nous avons étudié de manière détaillée dans ce chapitre la façon dont l'accord de phase se réalise lors de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans une fibre creuse remplie de gaz. Nous identifions les similitudes et les différences avec la génération dans un jet de gaz pulsé.

Nous avons montré expérimentalement, sur deux systèmes laser différents produisant des impulsions laser de courte durée (de 70 à 30 fs), l'existence d'une pression qui optimise l'efficacité de génération harmonique par un capillaire rempli de gaz, pour différents ordres et systèmes atomiques. Une étude approfondie des profils d'émission en champ lointain des harmoniques démontre une transition, en fonction de la pression appliquée, d'un accord de phase hors axe résultant en une émission annulaire, à un accord de phase sur l'axe produisant une émission efficace sur l'axe de propagation du laser générateur. On obtient ainsi en fonction de la pression, une évolution des profils d'émission similaire à celle observée lors de

la génération dans un jet de gaz en faisant varier la position du foyer laser par rapport au centre du milieu générateur.

Nous avons développé une étude théorique pour interpréter ces résultats expérimentaux, en détaillant les différents facteurs de déphasage entre la polarisation non linéaire (source de l'émission) et le champ harmonique généré : dispersions atomique, électronique, géométrique, phase atomique. Nous montrons que la pression optimale de génération correspond à une compensation de la dispersion géométrique par la dispersion atomique résultant en un bon accord de phase sur l'axe. A plus faible pression, un accord de phase hors axe est rendu possible par le gradient radial de la phase atomique.

Les simulations que nous avons effectuées en utilisant les moments dipolaires atomiques en régime tunnel confirment cette étude et reproduisent de façon qualitative dans le cas de l'argon, et quantitative dans le cas du néon les divergences et évolutions observées expérimentalement. Ces simulations mettent clairement en évidence le rôle crucial de la phase du dipôle atomique dans l'accord de phase hors-axe à basse pression. Ceci va à l'encontre de l'interprétation proposée par l'équipe américaine (Rundquist *et al.* 1998, Durfee III *et al.* 1999) d'un accord de phase de type Cerenköv.

Cette étude théorique nous permet de pousser la réflexion plus loin en révélant que l'évolution observée sur les profils d'émission en fonction de la pression (profils annulaires à centrés) doit être corrélée à un affinement marqué des profils spectraux. En effet, c'est principalement la contribution de la trajectoire quantique dite « longue » qui permet l'accord de phase hors-axe. Or, celle-ci est associée à un spectre large dû à la modulation temporelle rapide de la phase de l'émission harmonique (« chirp »). Ces prédictions motivent une future campagne d'expériences visant à démontrer le rôle crucial de la phase atomique.

Différentes propriétés fondamentales inhérentes à la génération d'harmonique d'ordre élevé dans un gaz, indépendantes du type de milieu utilisé, ont également été montrées. Etant données les longueurs de milieu générateur très importantes qu'il est possible d'atteindre avec une fibre, le phénomène d'absorption par le milieu lui même n'est plus du tout négligeable. Ce processus peut selon les conditions de génération devenir le facteur limitant l'émission harmonique. La variation particulière des sections efficaces d'absorption, notamment dans le néon, peut alors favoriser l'émission des harmoniques d'ordre les plus élevés au détriment des ordres plus faibles. Deux régions distinctes d'émission sont ainsi mises en évidence, l'une limitée par la longueur de cohérence des harmoniques, l'autre par la longueur d'absorption.

Chapitre III : Optimisation de l'émission harmonique dans un jet.

Introduction.

Nous avons déjà évoqué dans le chapitre précédent l'intérêt d'optimiser le flux de photons du rayonnement UVX produit par génération d'harmoniques d'ordre élevé pour des expériences d'application. Bien que le nombre de photons produits ne soit pas toujours la condition fondamentale de la réussite de l'expérience, avoir une source présentant un flux important de photons permet plus de degrés de liberté du point de vue expérimental.

Depuis la découverte du phénomène de génération d'harmoniques, l'optimisation du nombre de photons a été largement étudiée. On peut distinguer les études visant à optimiser la réponse microscopique (maximisation du dipôle harmonique) et celles relatives à l'optimisation de la réponse macroscopique (maximisation de la réponse collective). Au rang des premières se trouvent les études faites en variant les paramètres du laser tels que l'éclairement – la longueur d'onde – la durée ou la nature du gaz. En voici les principales conclusions(cf. Chapitre I) :

- l'efficacité de génération est augmentée lorsque l'éclairement laser augmente jusqu'à l'éclairement de saturation où l'efficacité sature (Wahlström *et al.* 1993). Une grande longueur d'onde (IR) permet de générer efficacement des ordres très élevés alors que les longueurs d'ondes plus courtes sont plus efficaces pour des ordres faibles (Ditmire *et al.* 1995, Preston *et al.* 1996). La combinaison de deux longueurs d'onde fondamentales (laser plus sa deuxième ou troisième harmonique) peut augmenter l'efficacité d'un ordre de grandeur (Watanabe *et al.* 1994).
- une durée plus courte du laser fondamental permet la génération d'ordres encore plus élevés (Christov *et al.* 1996).
- les gaz rares légers sont les plus efficaces pour les ordres élevés (L'Huillier *et al.* 1993) alors que les gaz rares lourds (Balcou *et al.* 1992), les gaz moléculaires (Lyngå *et al.* 1996) ou les agrégats atomiques (Donnelly *et al.* 1997) sont plus efficaces pour les ordres plus faibles.

Notons pour finir que la possibilité d'une mise en forme flexible et précise du profil temporel d'une impulsion femtoseconde intense, est maintenant possible (Zeek *et al.* 2000). Ce contrôle (à l'échelle de quelques fs) permet de manipuler la réponse microscopique de l'atome soumis au champ laser et ainsi de contrôler les caractéristiques spectrales et d'augmenter l'efficacité

de génération des harmoniques d'ordre élevé. Il est notamment possible de canaliser toute l'émission harmonique dans une bande spectrale, rendant le rayonnement quasi monochromatique (Bartels *et al.* 2000). Ces techniques devraient permettre un contrôle plus direct de l'émission harmonique par manipulation de la phase spatiale ou spectrale du fondamental.

L'optimisation de la réponse macroscopique est reliée à la géométrie de l'interaction : (focalisation/guidage du laser, pression et conditionnement du gaz) et à la compétition entre les trois longueurs définies au Chapitre II : longueur de cohérence, d'absorption et du milieu. Augmenter la longueur de cohérence, c'est améliorer l'accord de phase. Nous avons rappelé au Chapitre I que les conditions d'accord de phase lors de la génération d'harmoniques par focalisation d'un faisceau laser dans un jet de gaz dépendaient de la géométrie de focalisation ; l'émission peut être annulaire ou centrée suivant la position du jet par rapport au foyer laser (Salières *et al.* 1995b). Signalons que d'autres schémas d'optimisation ont été proposés, en contrôlant la forme spatiale du faisceau fondamental, par des géométries de focalisation particulières. En produisant deux foyers successifs dans le milieu générateur (Roos *et al.* 1999) il est possible d'avoir un contrôle sur la phase et la distribution d'éclairement longitudinale du laser. L'utilisation d'un mode de Bessel - Gauss du laser fondamental a également été étudiée (Altucci *et al.* 2000). L'étude détaillée de l'accord de phase dans les fibres creuses remplies de gaz, présentée au Chapitre II, a montré la même évolution que dans un jet, d'une émission annulaire à centrée, mais cette fois-ci dépendant de la pression de gaz dans le capillaire. La longueur d'absorption du rayonnement harmonique peut alors devenir le facteur limitant pour un milieu émetteur relativement long et suffisamment dense. Ainsi la densité atomique, peut dans certaines conditions de génération limiter l'émission macroscopique, soit par un effet d'absorption (Schnürer *et al.* 1999, Constant *et al.* 1999), soit par défocalisation du fondamental (Altucci *et al.* 1996). Enfin la longueur du milieu peut être augmentée par le conditionnement du gaz comme une cellule (Spielmann *et al.* 1997, Tamaki *et al.* 1999, Delfin *et al.* 1999)) où l'influence de la longueur du milieu a été étudiée, ou une fibre creuse (Rundquist *et al.* 1998, Constant *et al.* 1999).

Deux études directement reliées aux expériences que nous allons présenter sont l'étude en fonction de la pression de Altucci *et coll.*, et l'étude en fonction de la longueur de Delfin *et coll.*. Dans la première, les auteurs ont observé une augmentation quadratique du signal harmonique avec la pression croissante (à basse pression) puis une saturation et une légère diminution à haute pression, pour les harmoniques proches de la coupure. Cet effet a été attribué à la défocalisation du laser générateur par les électrons libres produit par l'ionisation du milieu. Dans la seconde étude, les auteurs rapportent que la longueur du milieu pour une génération optimale, à basse pression, est plutôt longue (entre 10 et 20 mm selon l'ordre et le gaz étudié). Une émission limitée par l'absorption a été observée pour l'harmonique 17 générée dans l'argon pour un milieu long de 12mm. Pour les harmoniques générées dans le néon (et ceux de la coupure de l'argon), cette émission limitée par l'absorption n'a pas été

atteinte malgré les 20mm de longueur du milieu. L'émission est alors limitée par l'accord de phase.

Dans ce chapitre, nous étudions l'optimisation de l'émission macroscopique dans un jet de gaz, en tentant d'atteindre une émission limitée par l'absorption. Nous avons vu au Chapitre II que ceci était possible avec un milieu long (fibre de plusieurs cm de long), mais est-ce réalisable avec un milieu court plus dense tel qu'un jet, qui présente une souplesse d'utilisation bien supérieure à la fibre ? Nous présentons l'étude de l'efficacité de l'émission harmonique dans un jet long (~3mm), milieu intermédiaire, entre le jet effusif classique (buse cylindrique ~500 μ m) et un milieu très long (fibre creuse ~4cm). Les conditions d'accord de phase, dans ce milieu produit par un jet rectangulaire sont identiques au cas classique exposé en C-2 du Chapitre I. Il faut toutefois tenir compte de l'absorption du milieu, ainsi que de la défocalisation du faisceau fondamental par les électrons libres produits par l'ionisation du milieu atomique.

A. Etude expérimentale des effets de pression et de longueur sur l'efficacité harmonique.

1. Dispositif expérimental.

L'expérience d'optimisation de l'émission harmonique dans un jet pulsé de gaz rare a été réalisée sur le laser LUCA du Drecam. Le dispositif expérimental, illustré en Figure III-1 est basé sur le schéma I-1 du premier chapitre. Les harmoniques d'ordre élevé sont générées en focalisant le laser avec une lentille de 2m de focale dans un jet pulsé au taux de répétition du laser (20Hz). A énergie incidente donnée, on joue sur la taille du diaphragme pour optimiser l'émission harmonique : on cherche le meilleur compromis entre l'éclairement laser au foyer et la taille de la tache focale, donc du milieu émetteur. Le rayonnement harmonique émis sur l'axe de propagation du laser est analysé spectralement à l'aide du spectromètre UVX décrit au Chapitre I. Le signal harmonique est alors détecté par un photomultiplicateur sensible aux longueurs d'onde UVX (Philips 16F), polarisé négativement entre 1,5 et 3 kV, région où le gain est linéaire. Le signal impulsionnel délivré par le détecteur est mis en forme par un circuit intégrateur, puis numérisé par un convertisseur analogique digital qui envoie l'information à l'ordinateur d'acquisition. Ce dernier contrôle également la rotation sous vide du réseau plan. On peut ainsi facilement passer de l'enregistrement d'un spectre d'émission harmonique en faisant tourner le réseau pas à pas, à l'étude d'une harmonique donnée en se positionnant à une valeur fixe.

Le milieu atomique est produit par un jet rectangulaire. La buse de sortie a une dimension $X \times Y$ de $300\mu\text{m}$ par 3mm . Les profils de densité atomique ont été présentés en Figure I-5, lorentzien selon la plus petite des dimensions et quasi carré selon la plus longue. Etant donné que nous focalisons le laser légèrement en dessous de la sortie de la buse, entre $200\mu\text{m}$ et $300\mu\text{m}$, la taille réelle du milieu n'est pas celle des dimensions exactes de la tuyère de sortie. La largeur à mi hauteur du profil de densité selon la grande dimension est de l'ordre de $2,5\text{mm}$, et de $400\mu\text{m}$ dans la plus petite dimension. On peut ainsi étudier l'émission harmonique en fonction de la longueur du milieu, dans les mêmes conditions expérimentales, en particulier de pression pic, simplement en tournant le jet pulsé par rapport à l'axe de propagation passant d'un milieu de $400\mu\text{m}$ (jet court) à $2,5\text{mm}$ (jet long).

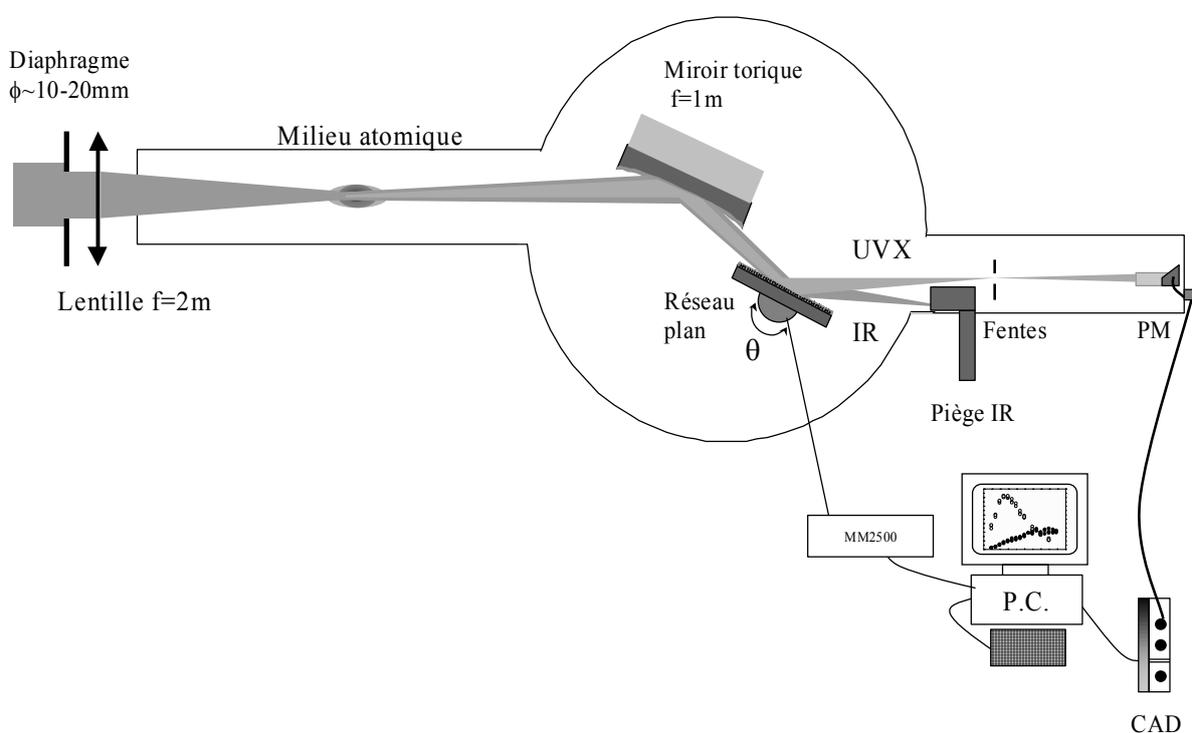


Figure III-1 : Schéma du montage expérimental utilisé pour l'optimisation de l'émission harmonique.

2. Influence de la longueur du milieu générateur sur les spectres

En Figure III-2 sont présentés deux spectres d'harmoniques générés dans le néon avec une pression amont de 850 Torr , obtenus dans des conditions de génération identiques, l'un dans le jet court et l'autre dans le jet long. Le diaphragme était ouvert à 18mm , limitant ainsi l'énergie à 7mJ . L'éclairement estimé est de l'ordre de $4 \cdot 10^{14}\text{W/cm}^2$, donc inférieure à

l'éclairement de saturation du néon, limitant ainsi les effets de défocalisation ou de désaccord de phase induits par les électrons libres. La fente en sortie du spectromètre était ouverte à $100\mu\text{m}$ afin de résoudre les harmoniques d'ordre élevé. L'effet de la longueur du milieu sur l'efficacité harmonique apparaît alors de manière très nette. Les harmoniques du plateau (λ entre 32 et 14nm) générées dans le jet long sont en moyenne 5 fois plus intenses que celles obtenues dans un jet court. L'effet de la longueur du milieu est encore plus impressionnant dans la coupure ($\lambda < 14\text{nm}$), région dans laquelle on obtient un gain d'émission de plus d'un ordre de grandeur. Une étude plus détaillée de l'émission harmonique en fonction de la pression dans le milieu long et court est nécessaire pour mieux comprendre le phénomène.

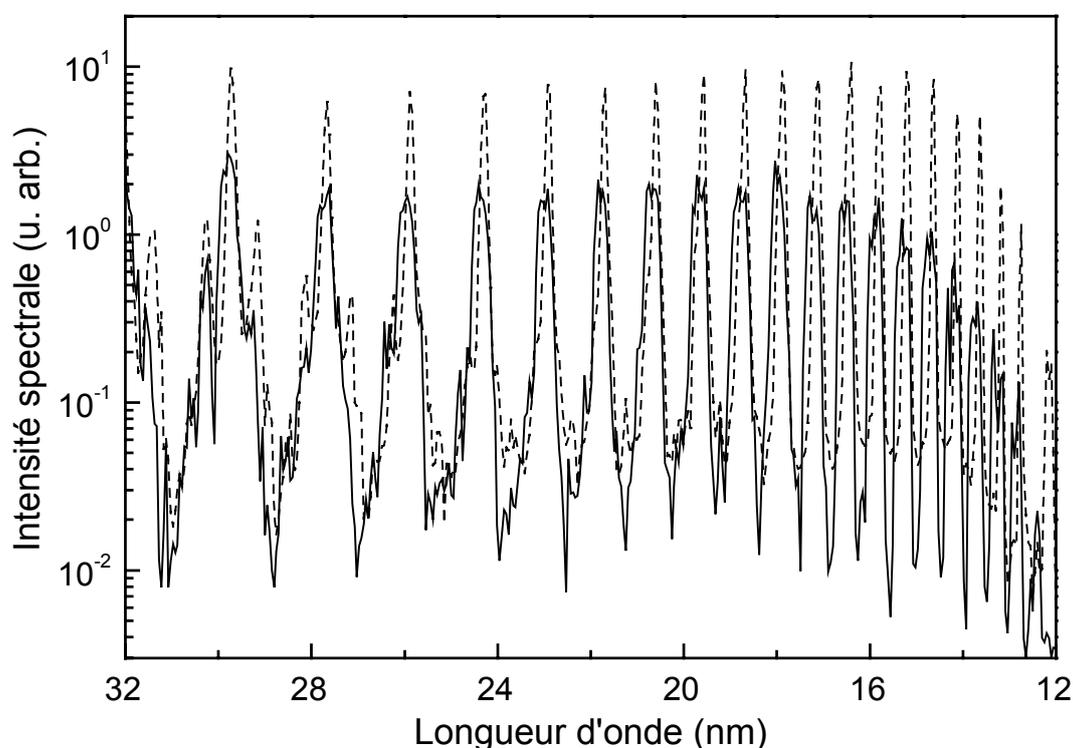


Figure III-2 : Spectres d'harmoniques obtenus dans le néon avec un éclairement laser de 4.10^{14} W/cm^2 et une pression amont de 850Torr. En trait plein est représenté le spectre obtenu dans le jet court ($400\mu\text{m}$) et en trait pointillé celui obtenu dans le jet long ($2,5\text{mm}$).

3. Etude détaillée des effets de pression et de longueur.

Cette étude de l'évolution du signal harmonique en fonction de la pression et de la longueur du milieu générateur a été effectuée de manière systématique pour différents gaz (xénon, argon et néon) ainsi que pour différents ordres. Pour cela nous utilisons le système expérimental présenté ci dessus, en fixant la position du réseau pour sélectionner l'harmonique désirée. Les fentes sont alors ouvertes au maximum (800 μ m) afin de récupérer tout le signal de cette harmonique sans toutefois intégrer le signal des harmoniques voisines (la fenêtre sensible du PM fait 4 \times 8mm). Une fois la longueur d'onde sélectionnée, c'est à dire l'ordre harmonique désiré, on accumule une moyenne de 20 tirs pour chaque point en pression pour une longueur de jet. L'opération est répétée à des conditions expérimentales identiques, en tournant le jet dans l'autre dimension.

En Figure III-3 est représentée l'évolution du signal harmonique en fonction de la pression amont et de la longueur du milieu pour différents gaz et différents ordres. Les niveaux de signal ne sont pas directement comparables entre eux, car les tensions, donc le gain du PM n'étaient pas identiques pour les différents gaz. Par contre la tension du PM est la même pour un ordre harmonique et un gaz donné pour les deux longueurs de milieu ; la comparaison directe du flux harmonique enregistré par le détecteur est donc possible. La barre d'erreur de $\pm 7\%$ pour les harmoniques du plateau comme H23 de l'argon et H47 du néon augmente à $\pm 15\%$ pour les harmoniques de la coupure comme H17 du xénon ou H31 de l'argon. Ceci se comprend facilement car l'harmonique générée dans la coupure du spectre est bien plus sensible aux variations d'éclairement du laser tir à tir ($\sim 7\%$) et donc de l'éclairement dans le milieu.

Les résultats sont relativement différents en fonction de la nature du gaz mais aussi de l'ordre harmonique. On peut ainsi remarquer qu'il n'y a aucun effet de la longueur du milieu sur l'intensité du signal harmonique généré dans le xénon. Par contre l'effet de la longueur est net pour les harmoniques de l'argon et du néon. En effet, le signal maximal de l'harmonique 47 obtenu dans le néon est 4 fois plus intense dans le jet long que dans le jet court. Dans le cas de l'harmonique 23 de l'argon, le signal est 3 fois plus intense dans le jet long, et 10 fois plus important pour l'harmonique 31. Les évolutions en fonction de la pression sont relativement différentes les unes des autres. A part l'harmonique 17 du xénon, les trois autres cas présentent une évolution bien plus rapide en fonction de la pression dans le jet long que dans le jet court. Dans le jet long, après une croissance rapide en fonction de la pression le signal sature avec une légère diminution (b et d), ou peut clairement rediminuer affichant un maximum pour une pression donnée (c). Pour ces trois cas, l'évolution en pression dans le jet court se fait bien plus lentement et est quasi linéaire. Pour l'harmonique 17 du xénon la longueur du milieu n'a aucun effet sur la forme de la courbe ni sur l'intensité du signal émis en fonction de la pression.

Précisons que nous nous sommes placés dans les conditions de focalisation optimales pour chacun des cas. En effet, comme nous l'avons exposé au Chapitre I, les conditions d'accord de phase diffèrent selon que l'on focalise le laser générateur avant ou après le centre du jet (cf. Figure I-19). Les signaux harmoniques les plus élevés ont ainsi été obtenus pour une focalisation après le centre du jet : environ 3,5cm dans le cas de l'argon et du xénon (paramètre confocal $b \sim 15\text{cm}$) et 2,5cm dans le cas du néon ($b \sim 9\text{cm}$).

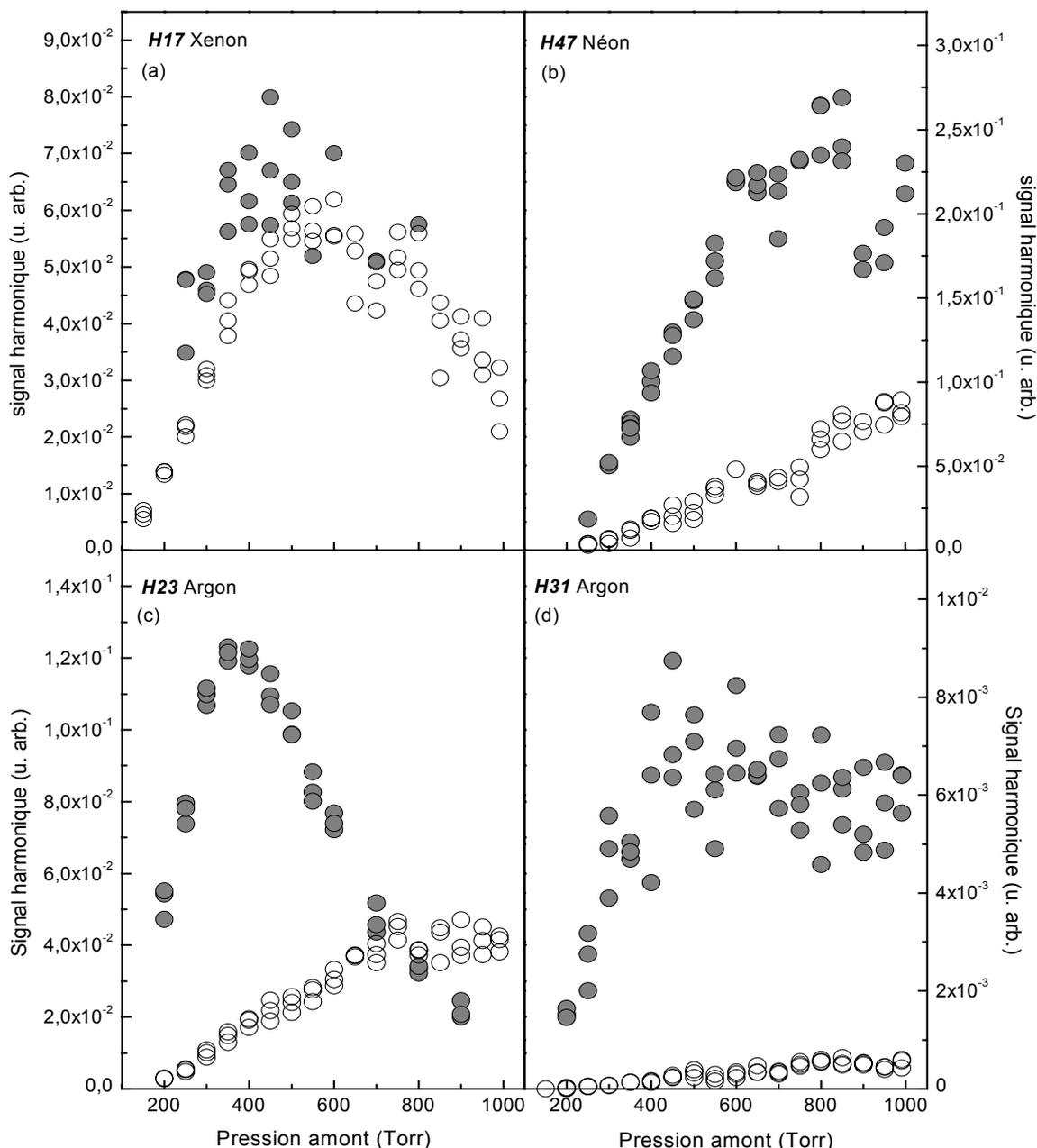


Figure III-3 : Comparaison du signal harmonique généré en fonction de la pression dans un jet long (cercle noir) et un jet court (cercle blanc) dans le cas des harmoniques (a) 17 du xénon, (b) 47 du néon, (c) et (d) respectivement, 23 et 31 de l'argon.

On peut comparer le comportement de l'efficacité harmonique en fonction de la pression dans le jet long à celui observé par (Altucci *et al.* 1996). Leur jet, issu d'une buse cylindrique, avait une dimension de 1,2mm, donc intermédiaire entre nos deux valeurs. Pour H21 de l'argon, ils observent une saturation puis une diminution du signal à bien plus haute pression (>700 Torr amont) que celle observée ici avec le jet long pour H23 (~400 Torr). L'éclairement élevé (4.10^{14}W/cm^2) qu'ils utilisaient est consistant avec l'interprétation du phénomène par la défocalisation du laser, qui ne semble pas compatible avec notre éclairement ($1,8.10^{14} \text{W/cm}^2$). Dans le néon, pour les harmoniques d'ordre inférieur à 55, ils observent une augmentation quadratique dans la gamme de pression étudiée. Dans notre cas (H47), même pour le jet court, on observe une variation quasi linéaire du signal avec la pression. Un effet autre que la défocalisation du fondamental semble donc intervenir ici. Pour mieux comprendre la forme de ces courbes et l'existence d'une pression optimale il est nécessaire de modéliser le nombre de photons harmoniques produits lors de l'interaction non linéaire du laser avec le gaz atomique.

B. Etude théorique et simulations.

1. Etude théorique à l'aide d'un modèle 1D.

1.1 Rappel des longueurs caractéristiques.

Nous avons déjà étudié au Chapitre II l'accord de phase intervenant lors de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les fibres creuses remplies de gaz rare en discutant l'influence des différentes longueurs caractéristiques de la génération du rayonnement. Nous avons défini ces différentes longueurs et la manière dont elles doivent être prises en compte. Nous rappelons ici quelques formules importantes pour la suite.

Les conditions d'accord de phase définissent la longueur de cohérence L_{coh} sur laquelle le champ harmonique se construit efficacement. L'absorption détermine, quant à elle, la longueur d'absorption L_{abs} sur laquelle le champ harmonique émis est atténué d'un facteur e , et L_{med} est la longueur du milieu atomique. La formule III-1 déterminée par (Constant *et al.* 1999) détermine selon un modèle à une dimension le nombre de photons harmoniques générés dans un milieu absorbant :

$$N_q \propto \frac{4L_{abs}^2}{1 + 4\pi^2 \left(\frac{L_{abs}^2}{L_{coh}^2} \right)} \left[1 + \exp\left(-\frac{L_{med}}{L_{abs}}\right) - 2 \cos\left(\pi \frac{L_{med}}{L_{coh}}\right) \exp\left(-\frac{L_{med}}{2L_{abs}}\right) \right] \quad (\text{III-1})$$

Dans un premier temps, nous allons utiliser ce modèle simple pour tenter de reproduire les courbes expérimentales et mettre en lumière l'influence respective de chacune des longueurs. L_{med} et L_{abs} sont des grandeurs pouvant être déterminées avec précision ; seule la détermination de L_{coh} pose problème spécialement pour un modèle 1D. Détaillons maintenant les différents termes utilisés reproduire les données expérimentales. La longueur d'absorption est déterminée de manière identique à celle exposée au Chapitre II, à partir des sections efficaces de photoabsorption du gaz à la longueur d'onde de l'harmonique désirée, à savoir :

$$L_{\text{abs}} = \frac{1}{2r_0 \lambda_q f N(r, z, t)} \quad (\text{III-2})$$

La longueur de cohérence dépend pour sa part de plusieurs termes, induits par le milieu dispersif : la dispersion atomique et électronique, déjà déterminées au chapitre précédent. Rappelons que ces contributions s'écrivent respectivement comme III-3 et III-4 :

$$\Delta \vec{k}_{\text{atom}} = \frac{q}{\lambda_0} N(r, z, t) \left(4\pi^2 \alpha_1 + r_0 \left(\frac{\lambda_0}{q} \right)^2 f_1 \right) \vec{z} \quad (\text{III-3})$$

$$\Delta \vec{k}_{\text{elec}} \approx -q \frac{e^2 N_e(r, z, t)}{m \varepsilon_0 4\pi c^2} \lambda_0 \vec{z} \quad (\text{III-4})$$

où $N_e(r, z, t)$ est la densité d'électrons libres produits par l'ionisation (\vec{z} est le vecteur unitaire selon l'axe de propagation). Nous supposons une faible déplétion du milieu ; donc N_e s'exprime comme une fraction de la densité atomique : $N_e(r, z, t) = \alpha N_0(r, z, t)$ où N_0 est la densité atomique initiale dans le milieu. La densité atomique est : $N(r, z, t) = (1 - \alpha) N_0(r, z, t)$.

Il reste à définir les termes de dispersion induits par la focalisation du laser dans le milieu : la dispersion géométrique $\Delta \vec{k}_{\text{géo}}$ et le gradient de la phase du dipôle atomique $\vec{K} = -\eta \vec{\nabla} I_L$. La dispersion géométrique est liée à la phase de Gouy qui s'écrit : $-\tan^{-1}\left(\frac{2z}{b}\right)$ (déphasage de π par passage au foyer du faisceau fondamental). La dispersion introduite par cette phase, est donc :

$$\Delta \vec{k}_{\text{géo}} = -(q-1) \frac{\partial}{\partial z} \left(\tan^{-1}\left(\frac{2z}{b}\right) \right) = -\frac{2}{b} (q-1) \frac{1}{1 + \left(\frac{2z}{b}\right)^2} \quad (\text{III-5})$$

où b est le paramètre confocal et z la distance entre le foyer et le jet.

Le gradient de la phase du dipôle atomique dépend lui aussi de la coordonnée longitudinale z au travers de la distribution spatiale de l'éclairement laser : $I(z) = \frac{I_0}{\left(1 + \left(\frac{2z}{b}\right)^2\right)}$. Etant donnée

la variation temporelle de l'éclairement dans l'impulsion laser, on se place en un point donné de l'enveloppe temporelle de l'éclairement (au maximum). On obtient ainsi :

$$-\eta \vec{\nabla} I_L = \eta \frac{8z}{b^2} \frac{I_0}{\left(1 + \left(\frac{2z}{b}\right)^2\right)^2} \quad (\text{III-6})$$

Les expressions III-5 et III-6 supposent un faisceau fondamental Gaussien de paramètre confocal b . Comme le laser LUCA, utilisé pour l'expérience, était en fait deux fois limité par la diffraction, on le modélise en faisant intervenir le facteur $M^2=2$, qui caractérise la déviation au faisceau Gaussien (cf. Chapitre IV). La tache focale est alors déterminée par :

$2w_0 = 2M^2 \frac{f}{D} \lambda$ et le paramètre confocal (distance autour du foyer où l'éclairement est divisé

par 2) par : $b = 2\pi M^2 \left(\frac{f}{D}\right)^2 \lambda$, où D est l'ouverture du faisceau. Pour finir, la longueur de cohérence L_{coh} , longueur sur laquelle le champ harmonique se construit efficacement, s'écrit :

$$L_{coh} = \frac{\pi}{\left|\Delta \vec{k}_{atom} + \Delta \vec{k}_{elec} + \Delta \vec{k}_{géo} + \vec{K}\right|} \quad (\text{III-7})$$

1.2 Fit des courbes expérimentales à l'aide d'un modèle 1D.

On peut maintenant tracer la dépendance du signal harmonique émis en fonction de la pression dans le milieu d'après la formule III-1. Les courbes expérimentales données en fonction de la pression amont en Figure III-3 sont ici tracées en fonction de la pression dans le jet en supposant un facteur, compris entre 10 et 20 selon le gaz, entre les deux pressions (cf. Altucci *et al.* 1996). De plus, elles sont mises à l'échelle verticale pour correspondre à l'échelle (arbitraire) des points théoriques. Ceci peut être fait, à condition de garder les mêmes facteurs correctifs (S pour l'amplitude et P pour la pression), pour un gaz et un ordre harmonique donné, pour les courbes mesurées respectivement dans les milieux court et long.

Les résultats de cette comparaison entre données expérimentales et courbes théoriques sont illustrés en Figure III-4 dans le cas du néon et en Figure III-5 dans le cas de l'argon.

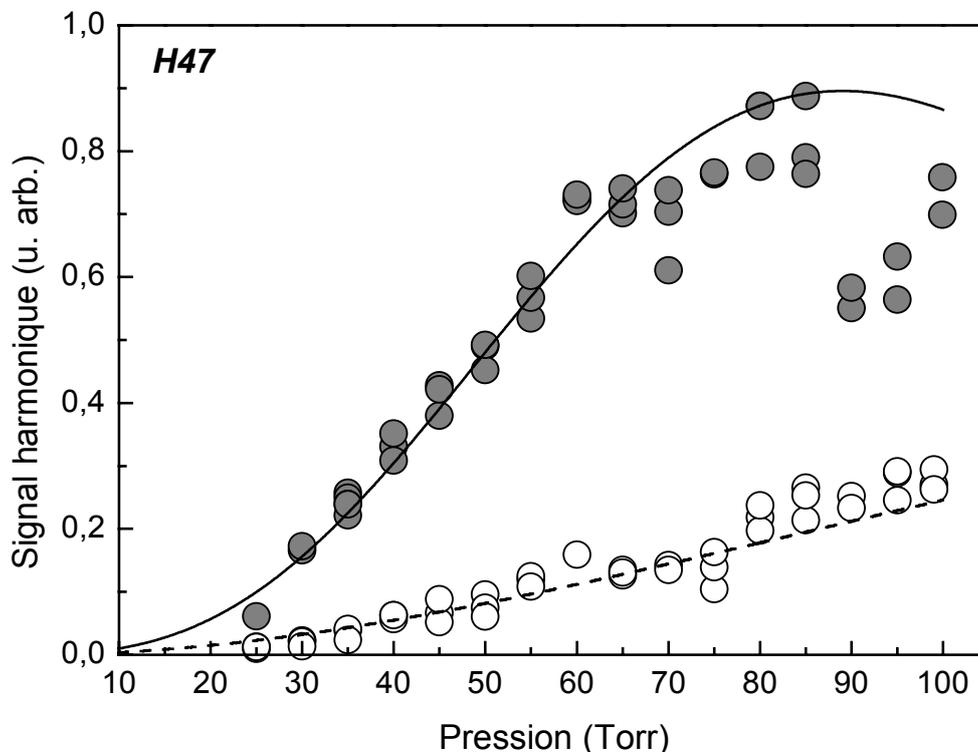


Figure III-4 : Comparaison du signal expérimental de l'harmonique 47 générée dans le néon en fonction de la pression dans un jet long (cercle noir) et un jet court (cercle blanc) avec les courbes théoriques du modèle de Constant et al., respectivement en trait plein et pointillés.

Dans le cas du néon, l'éclairement au foyer était estimé à $4 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$ et le paramètre confocal, à $b=9\text{cm}$. Pour η , qui ne joue ici qu'un rôle marginal, nous prenons une valeur de $25 \cdot 10^{-14} \text{rad. W}^{-1} \text{cm}^2$, correspondant à la pente moyenne d'une harmonique dans le plateau (cf. Chapitre I). On suppose une faible ionisation (0,3%). La distance foyer-jet permettant la meilleure comparaison théorie expérience est $z=-2,5\text{cm}$. Malgré la simplicité du modèle, l'accord obtenu avec les expériences est remarquable, aussi bien dans le jet long (2,5mm) que dans le jet court (600 μm). Il faut souligner que même s'il y a un certain nombre de paramètres plus ou moins ajustables dans le modèle, leur valeur est fixée à l'identique pour les deux longueurs de milieu. La reproduction de l'écart entre les deux courbes expérimentales est ici le point important.

Les mêmes comparaisons ont été effectuées dans le cas des harmoniques 23 et 31 générées dans l'argon avec un éclairage de l'ordre de $1,5 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$ (Figure III-5). Les conditions optimales de génération étaient obtenues avec un faisceau de paramètre confocal $b=15\text{cm}$. On procède de manière identique au cas du néon pour fitter les courbes expérimentales par les courbes théoriques, en gardant les mêmes coefficients de correction S et P, aussi bien pour les deux différents ordres que pour les deux longueurs de milieu. Signalons tout de suite que le facteur correctif sur la pression n'est pas le même pour l'argon (~ 20) que pour le néon (~ 10). La première raison de cette différence est la masse atomique différente des deux espèces atomiques. En effet, étant donné l'aspect dynamique du jet pulsé, les atomes de deux gaz différents n'auront pas la même vitesse, même si la pression amont, avant détente, est identique. Le deuxième point, sûrement dominant, est le fait que le laser générateur n'est pas focalisé exactement à la même distance en dessous de la sortie de buse, impliquant une densité locale dans le jet plus faible, par exemple, lorsque le foyer est plus éloigné de la sortie de buse, pour une même pression amont. On peut alors voir sur la Figure III-5 que les variations en fonction de la pression dans les deux milieux sont bien reproduites dans le cas de l'harmonique 23 de l'argon. L'effet de l'ionisation est ici encore supposé faible (2,5%). Le facteur η a la même valeur que précédemment (harmonique dans le plateau). Les courbes calculées sont obtenues pour une focalisation du laser environ 3,5cm après le centre du jet.

Par contre l'accord est moins bon pour l'harmonique 31 de l'argon, qui se trouve dans la coupure du spectre harmonique. Les différents paramètres « ajustables » du fit sont identiques à ceux utilisés pour l'harmonique 23, puisque les courbes expérimentales ont été obtenues dans les mêmes conditions, simplement en changeant la position du réseau pour varier l'ordre. La seule valeur différente est celle de η qui est ici supposée trois fois plus faible puisque H31 se trouve dans la coupure du spectre (cf. Chapitre I). L'évolution du signal harmonique en fonction de la pression est bien reproduite dans le cas du jet court mais il n'en est pas de même dans le cas du milieu long. Un décalage notable entre les courbes expérimentale et théorique est observé à basse pression. De plus, le signal calculé diminue très fortement après la pression optimale, présentant également d'autres maxima à plus haute pression, alors que la courbe expérimentale présente une certaine saturation avec une très légère diminution.

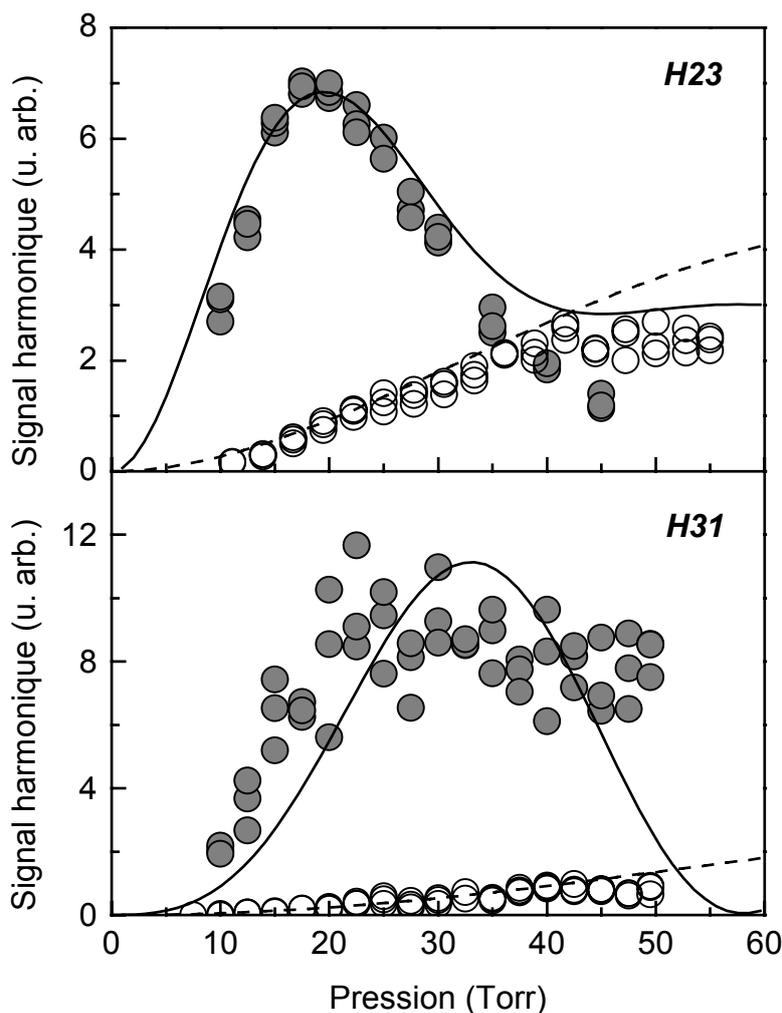


Figure III-5 : Comparaison du signal expérimental des harmoniques 23 et 31 générées dans l'argon en fonction de la pression dans un jet long (cercle noir) et un jet court (cercle blanc) avec les courbes théoriques du modèle de Constant et al. (1999), respectivement en traits pleins et pointillés.

Bien que les résultats expérimentaux de l'évolution du signal harmonique peuvent être, dans certains cas, bien reproduits par le modèle 1D de Constant et coll., validant ainsi ce modèle, il semble tout de même nécessaire de faire des simulations plus poussées. En effet ce modèle fait appel à certaines approximations. Tout d'abord, il s'agit d'un modèle 1D qui ne prend pas en compte, par exemple, la possibilité d'un accord de phase hors axe. Ensuite, la valeur du η n'est pas très bien connue et on impose arbitrairement une certaine valeur, donc une trajectoire contribuant principalement à l'accord de phase. Enfin une forte approximation concerne l'ionisation du milieu. On est amené à sous estimer l'effet de l'ionisation dans l'accord de phase car dans ce modèle à une dimension, les électrons libres deviennent très vite

limitant dans l'accord de phase. De plus leur effet de défocalisation du faisceau fondamental n'est pas pris en compte, ne traduisant pas les changements d'éclairement dans le milieu. Cet effet des électrons libres est d'autant plus important que l'éclairement dans le milieu est proche de l'éclairement de saturation et que la densité atomique est élevée. Ceci pourrait expliquer pourquoi le calcul reproduit très bien les courbes expérimentales obtenues dans le néon pour un éclairement où l'ionisation est faible ($4 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$). Si ceci est toujours le cas pour l'harmonique 23 de l'argon, l'harmonique 31 dans la coupure du spectre est bien plus sensible aux variations d'éclairement dans le milieu donc à l'effet de l'ionisation.

Ces différentes comparaisons entre le calcul et les résultats expérimentaux semblent toutefois démontrer une certaine « compétition » entre les différentes longueurs caractéristiques du milieu : L_{coh} , L_{abs} et L_{med} . Notamment la longueur d'absorption semble jouer un rôle très important, comme nous l'avons déjà souligné dans le cas de la génération dans les fibres creuses remplies de gaz. Pour mieux comprendre ces évolutions expérimentales, nous avons effectué des simulations plus poussées.

2. Simulations 3D.

Nous avons utilisé le code de propagation décrit au Chapitre II pour des calculs ab initio du signal harmonique émis en fonction de la pression pour deux longueurs de jet différentes. Ces calculs, dans lesquels nous pouvons tenir compte ou non, de l'effet de l'absorption ou de la défocalisation du faisceau fondamental par les électrons, permettent de mettre en évidence le phénomène limitant l'émission harmonique. Ainsi on propage d'abord le faisceau fondamental dans le milieu dont l'indice est modifié spatialement par les électrons libres produits par l'ionisation, pouvant aboutir à une défocalisation du faisceau. Le champ harmonique est ensuite propagé et le nombre de photons émis à la sortie du milieu calculé. Le profil temporel de l'impulsion est décrit sur 21 points.

La Figure III-6 illustre le nombre de photons générés par impulsion en fonction de la pression dans les jets de gaz de différentes longueurs, pour les harmoniques 47 et 23 générées respectivement dans le néon et l'argon. La comparaison est faite avec les conditions expérimentales pour lesquelles le facteur correctif en pression a été légèrement augmenté ($\sim 30\%$). Dans le cas de H47 du néon, les paramètres permettant d'obtenir le meilleur accord avec les résultats expérimentaux sont un éclairement de $4 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$, un paramètre confocal $b=9\text{cm}$ et une focalisation 2,5cm après le centre du milieu atomique dans le cas du jet long (2,5mm) et 2,25cm dans le cas du jet court (600 μm). Dans les deux cas l'absorption du milieu est prise en compte. Si la défocalisation ne joue pas de rôle très important dans le cas du néon car l'ionisation est faible (1,4% en fin d'impulsion), la prise en compte de l'absorption du

milieu permet un accord remarquable entre théorie et expérience, reproduisant ainsi parfaitement le rapport entre les signaux émis dans les milieux long et court.

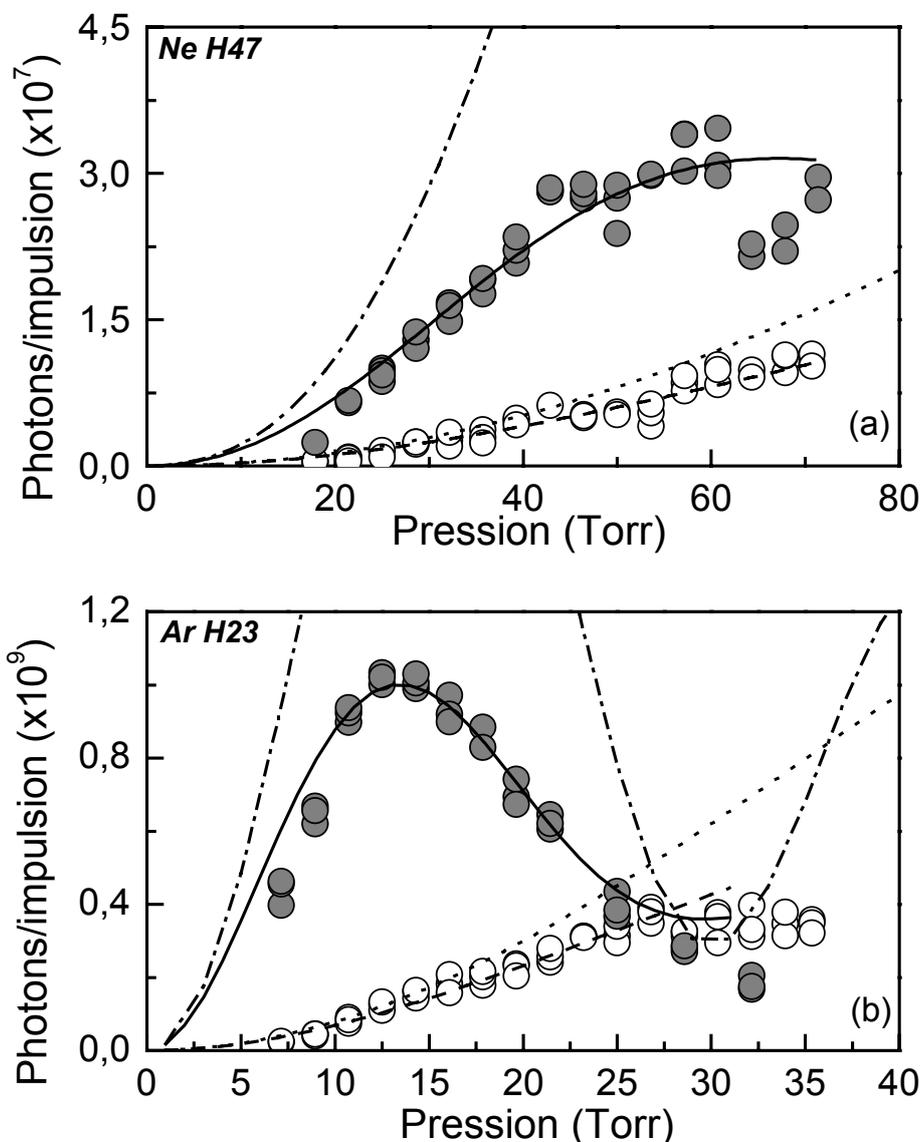


Figure III-6 : (a) Comparaison du signal expérimental de l'harmonique 47 générée dans le néon à un éclairement de $4 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ en fonction de la pression dans un jet long (cercle noir) et un jet court (cercle blanc) avec les courbes du calcul ab initio ; respectivement pour le milieu long et court en trait plein et pointillés lorsque l'absorption est prise en compte et en trait pointillé-point et points lorsqu'elle est négligée .

(b) Comparaison du signal expérimental de l'harmonique 23 générée dans l'argon à un éclairement de $1,6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ en fonction de la pression dans un jet long et court avec les courbes du calcul ab initio (les conventions de tracé sont identiques au (a)).

Si l'absorption n'est pas prise en compte, l'émission par le jet court n'est que légèrement modifiée alors que celle du jet long est fortement augmentée : d'une part la pression optimale est décalée vers des valeurs plus élevées (85 Torr au lieu de 65 lorsque l'absorption est prise en compte), d'autre part, le rapport des signaux émis dans les jet long et court ne reproduit plus le rapport observé expérimentalement (facteur 9 au lieu de 3,5 à une pression de 60 Torr). Négliger l'absorption donne des résultats théoriques qui ne reproduisent plus l'observation, et ce d'autant plus que le milieu émetteur est long.

Un très bon accord entre calcul 3D et expérience est également trouvé dans le cas de l'harmonique 23 générée dans l'argon lorsque l'absorption est prise en compte. Les paramètres du calcul sont maintenant un éclairement de $1,6 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$ produisant un taux d'ionisation de l'ordre de 5,4% en fin d'impulsion. La position du foyer par rapport au jet est $z = -3,5 \text{cm}$, le milieu long mesure 2,5mm et le court $500 \mu\text{m}$. Lorsque l'absorption n'est plus prise en compte, les calculs ne reproduisent plus les courbes expérimentales : d'une part la forme des dépendances en pression n'est plus la bonne, d'autre part le rapport des signaux émis dans les deux milieux n'est plus reproduit (facteur 13 au lieu de 7 à la pression optimale de 15 Torr). Bien que l'ionisation reste faible (5,4%) pour l'éclairement que nous avons utilisé, l'effet des électrons libres commence à jouer un rôle, spécialement à haute pression quand la densité d'électrons est élevée. L'éclairement dans le milieu est réduit par un début de défocalisation, diminuant ainsi le nombre de photons émis, permettant un bon accord entre les points calculés et les points expérimentaux (Figure III-7).

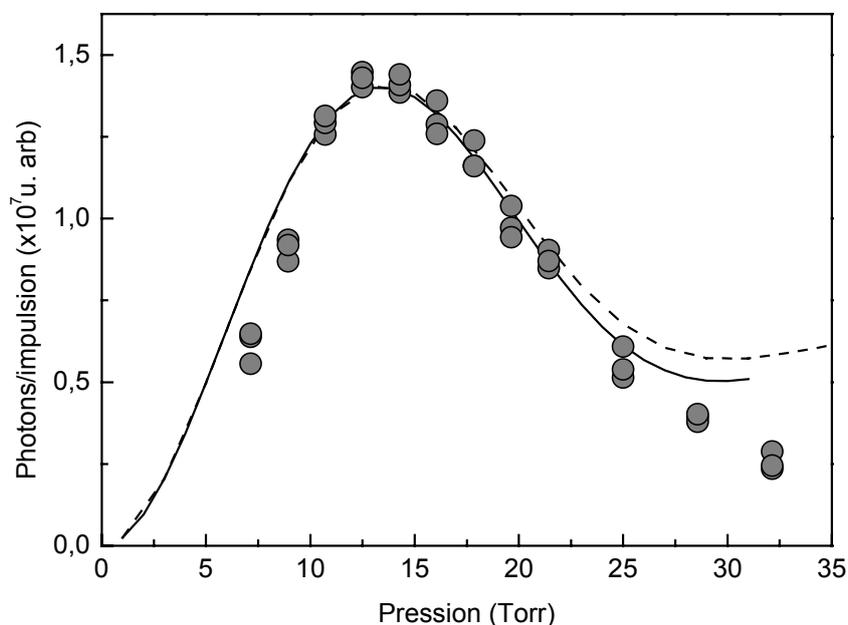


Figure III-7 : Signal expérimental de l'harmonique 23 générée dans l'argon en fonction de la pression dans un jet long (cercle noir). La courbe théorique du calcul 3D en trait plein tient compte de la défocalisation du fondamental, alors que celle en pointillé la néglige. Dans les deux cas l'absorption est prise en compte.

Lorsque la défocalisation est négligée, la courbe calculée s'éloigne de plus en plus de la courbe expérimentale lorsque la pression augmente. Sur cet exemple de l'harmonique 23 de l'argon apparaît donc clairement d'une part l'effet de l'absorption et d'autre part un début d'effet de défocalisation du fondamental sur le nombre de photons harmoniques émis. Nous pouvons maintenant interpréter, sans ambiguïté, la forme en « cloche » obtenue pour H23 dans le jet long : la saturation du signal à $P_{opt} \sim 15$ Torr est clairement due à l'absorption alors que la diminution du signal à plus haute pression est provoquée par la diminution de la longueur de cohérence comme le montre la simulation sans absorption. La défocalisation n'a ici qu'un rôle marginal.

Étudions maintenant plus en détail le cas de l'harmonique 31 générée dans l'argon, dont les points expérimentaux n'étaient pas reproduits par le modèle 1D. Le cas de l'harmonique 31 est notablement différent des deux cas précédents par deux aspects. Tout d'abord, elle se trouve près d'un minimum de Cooper, c'est à dire que la section efficace de photoabsorption est très faible, inférieure à 1 Mbarn, par conséquent la longueur d'absorption est très grande, de l'ordre de 1 cm à une pression de 25 Torr dans le milieu atomique (cf. B-1.1). Ainsi même dans le cas du jet long, la longueur du milieu est inférieure à la longueur d'absorption sur une large gamme de pression. L'absorption ne limite donc pas l'émission harmonique et c'est ce que nous avons vérifié dans les simulations. Celles qui sont présentées dans la suite tiennent compte de ce phénomène d'absorption qui ne modifie que faiblement les courbes. De plus, l'harmonique 31 générée dans l'argon à un éclairement de $1,6 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$ se trouve clairement dans la coupure du spectre harmonique. L'efficacité de génération de cette harmonique varie donc bien plus vite avec l'éclairement laser dans le milieu et devrait donc être plus sensible au phénomène de défocalisation du faisceau fondamental par les électrons libres au cours de sa propagation.

Cet effet est illustré en Figure III-8 ; dans le cas du jet court (500 μm) la défocalisation ne joue aucun rôle, les deux courbes calculées sont confondues, car le milieu n'est pas assez long pour que le front d'onde du laser accumule un déphasage suffisamment important. Ces cas sont représentés en trait pointillé et points sur la Figure II-8. Par contre, dans le milieu long (2,5mm), l'effet est très important. Lorsque la défocalisation du fondamental est prise en compte, la courbe théorique reproduit bien le comportement de la courbe expérimentale. Lorsqu'elle est négligée, le signal de l'harmonique 31 dans l'argon continue de croître en fonction de la pression et ne présente pas de maximum dans la gamme de pression considérée, contrairement à la courbe expérimentale qui sature puis diminue légèrement. Le rapport des signaux émis dans le jet long par rapport au court n'est alors évidemment plus reproduit, alors que cela est le cas lorsque la défocalisation est prise en compte. On peut noter la très grande dispersion des points expérimentaux, en particulier à haute pression, qui est une indication que l'éclairement dans le milieu fluctue de façon non négligeable : aux fluctuations de l'énergie laser ($\sim 7\%$) s'ajoutent les non linéarités des phénomènes d'ionisation et de défocalisation.

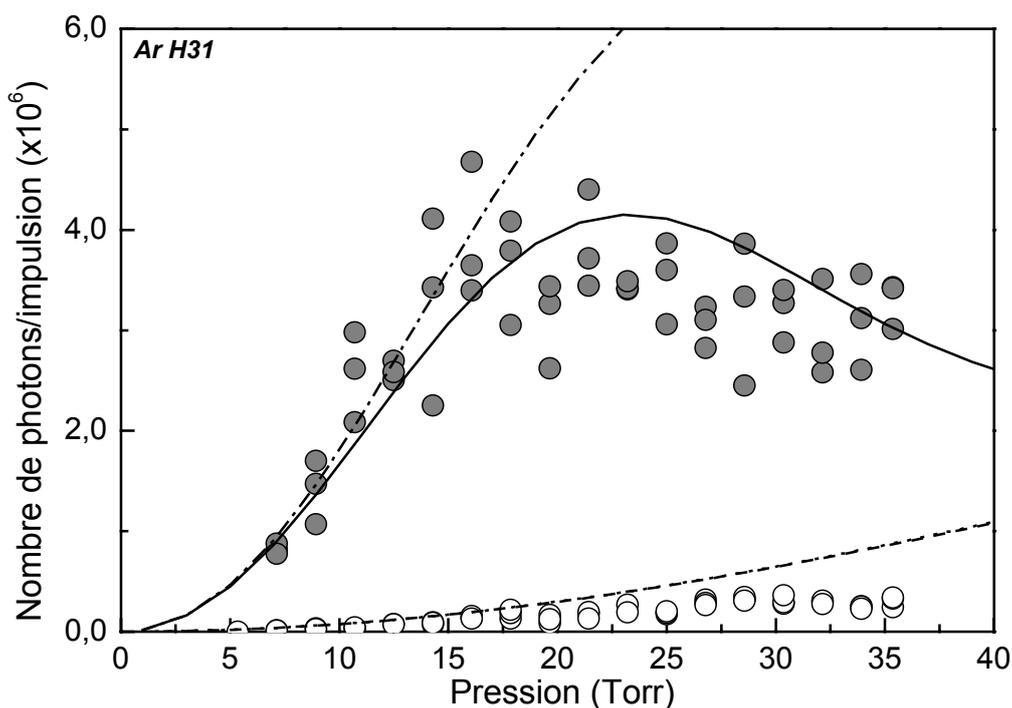


Figure III-8 : Comparaison du signal expérimental de l'harmonique 31 générée dans l'argon à un éclairement de $1,6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ en fonction de la pression dans un jet long (cercle noir) et un jet court (cercle blanc) avec les courbes du calcul ab initio ; respectivement pour le milieu long et court en trait plein et pointillés lorsque la défocalisation est prise en compte et en trait pointillé-point et points lorsque elle est négligée .

On observe donc que, pour un même gaz, en considérant deux harmoniques différentes, les effets limitant l'émission harmonique ne sont pas les mêmes. En effet pour une harmonique du plateau, comme l'harmonique 23 dans l'argon ou encore l'harmonique 47 dans le néon, dans nos conditions expérimentales, le facteur limitant l'émission est l'absorption par le milieu atomique. Par contre pour une harmonique de la coupure, comme l'harmonique 31 de l'argon, le facteur limitant est la défocalisation du faisceau fondamental par les effets d'ionisation du milieu, qui affecte plus les harmoniques d'ordre élevé dans la coupure.

3. Discussion en fonction des longueurs caractéristiques de la génération.

Afin de faire apparaître plus clairement le rôle de chaque longueur caractéristique de l'émission harmonique, reprenons la discussion effectuée au Chapitre II (§B-1.2) dans le cas de la génération d'harmoniques dans les capillaires remplis de gaz. Les conditions optimales pour une émission efficace dans un milieu absorbant ont été déterminées par (Constant *et al.* 1999). Ces conditions optimales sont caractérisées par les inégalités :

$$\begin{aligned} L_{coh} &> 5L_{abs} \\ L_{med} &> 3L_{abs} \end{aligned} \tag{III-8}$$

Nous nous plaçons dans le cas où l'accord de phase est efficace sur l'axe, résultant en une émission centrée. Considérons tout d'abord l'évolution des longueurs de cohérence et d'absorption en fonction de la pression pour une harmonique du plateau, comme par exemple l'harmonique 23 générée dans l'argon. On suppose un taux d'ionisation constant, de l'ordre de 2,5%, ainsi qu'une densité atomique homogène sur la longueur du milieu. Pour cette harmonique du plateau, η est fixé à 25 (cf. Chapitre I). Les autres paramètres comme l'éclairement et la position du foyer par rapport au jet sont identiques à ceux utilisés pour les simulations présentées précédemment.

La Figure III-9 illustre la variation simultanée des longueurs de cohérence et d'absorption avec la pression dans le milieu, respectivement en trait plein et pointillé. Dans le jet court, 500 μ m, la longueur du milieu L_{med} limite l'émission jusqu'au delà de 40 Torr, il faut donc atteindre des pressions très élevées, supérieures à 100 Torr pour vérifier les conditions optimales déterminées par la relation III-8. Dans le jet long, 2,5mm, il existe une gamme de pression, représentée en grisé sur la Figure III-9, dans laquelle les relations optimales d'émission sont vérifiées conduisant à un maximum d'émission. La première relation est vérifiée pour les pressions inférieures à ~24 Torr (à l'exception des pressions très faibles) alors que la deuxième ne se réalise que pour des pressions supérieures à ~18 Torr. Le signal harmonique émis augmente donc en fonction de la pression très rapidement (le rapport L_{med}/L_{abs} augmente) jusqu'à ce que cette gamme de pression soit atteinte, présente alors un maximum, puis diminue à plus haute pression à cause du désaccord de phase (le rapport L_{coh}/L_{abs} diminue). Bien que la pression optimale ne soit pas exactement la même que celle prévue par les simulations 3D, ce modèle simple permet néanmoins de mieux comprendre l'observation expérimentale d'un net maximum, malgré les différentes approximations faites. Les courbes correspondant à l'harmonique 47 générée dans le néon sont similaires à celles de la Figure II-9 (la pression optimale d'accord de phase est simplement décalée vers les hautes pressions du fait de la faible dispersion atomique du néon par rapport à l'argon).

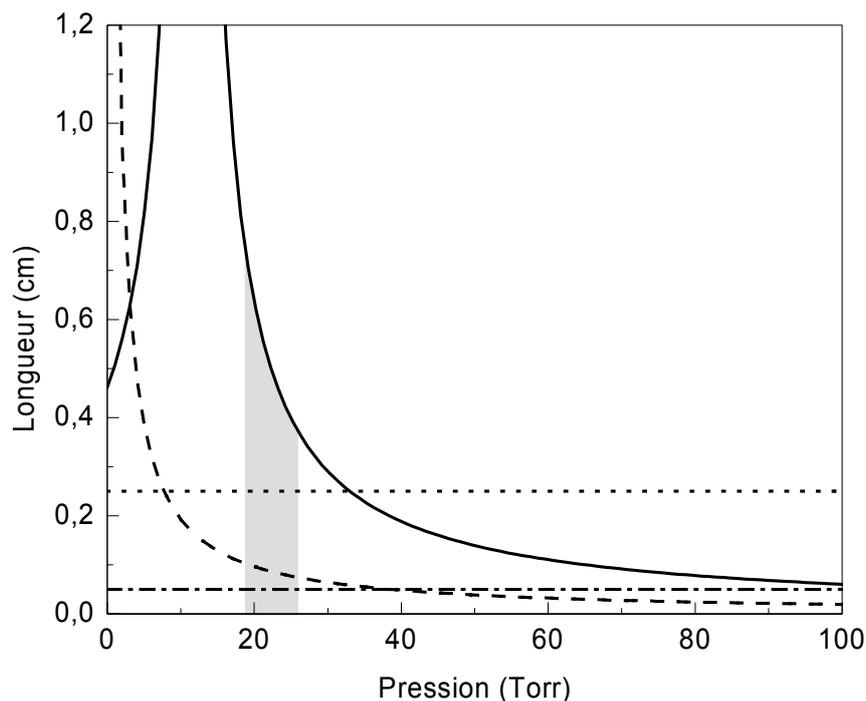


Figure III-9 : Evolution des longueurs de cohérence (trait plein) et d'absorption (trait pointillé) en fonction de la pression dans le cas de l'harmonique 23 générée dans l'argon à un éclairement de $1,6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. La longueur du milieu long (2,5mm) est représentée en points et celle du milieu court (500µm) en pointillé-points.

Le cas de l'harmonique 31 générée dans l'argon est très différent du cas précédent. Les simulations 3D ont montré que dans le cas du jet long, l'émission était limitée par la défocalisation. On peut se demander quelles seraient les conditions optimales de génération si ce dernier effet pouvait être surmonté (par exemple avec des impulsions plus courtes pour diminuer le taux d'ionisation). C'est ce qu'illustre la Figure III-10. La très grande longueur d'absorption n'est jamais inférieure à la longueur du milieu que nous avons utilisé (2,5mm) dans la gamme de pression étudiée expérimentalement. Il faut atteindre 140 Torr pour que L_{med} devienne légèrement plus grande que L_{abs} . Dans ces conditions, il est évident que les relations III-8 déterminant les conditions optimales d'émission ne sont jamais satisfaites pour la taille du milieu émetteur utilisé et la gamme de pression étudiée. Ainsi la longueur de cohérence limite l'émission, à faible pression. Lorsque L_{coh} devient supérieure à L_{med} et comme L_{abs} est bien plus grande, c'est la longueur du milieu, constante avec la pression, qui limite l'émission harmonique. A haute pression, la longueur de cohérence devient de nouveau le facteur limitant. Pour atteindre une émission limitée par l'absorption, il faudrait un milieu très long, de l'ordre de 3 cm. Il n'existerait alors qu'une très étroite gamme de pressions, de

seulement quelques Torr, pour laquelle les conditions d'émission optimale sont vérifiées (représentée en grisée). Une telle longueur de milieu est techniquement impossible en utilisant un jet, mais est facilement obtenue dans une fibre.

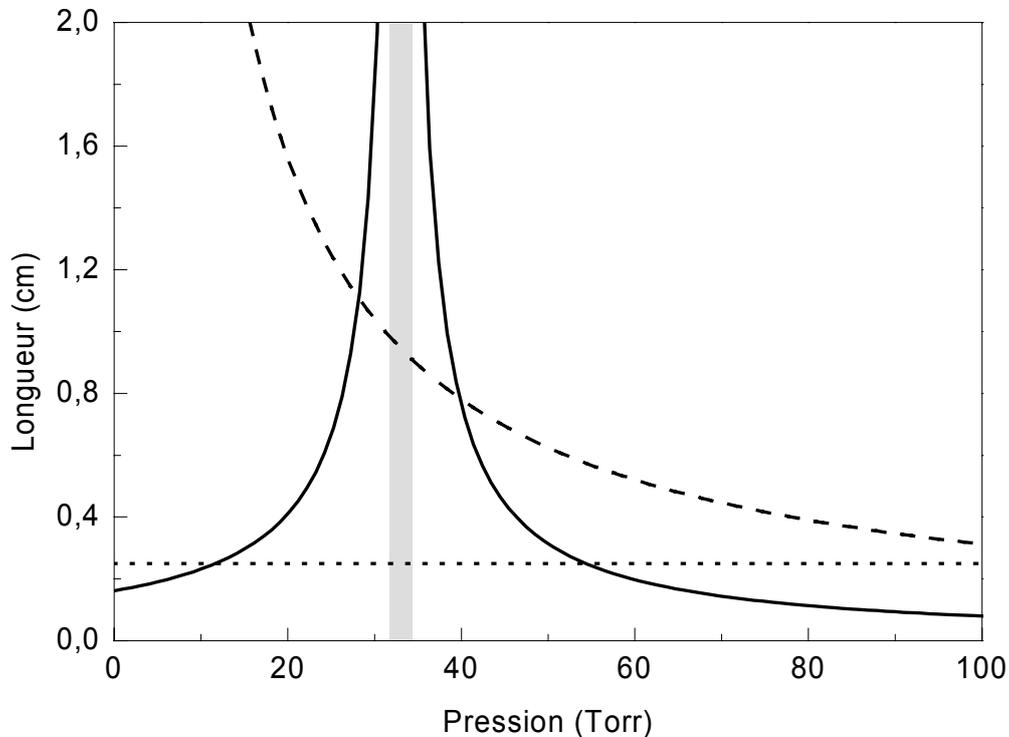


Figure III-10 : Evolution des longueurs de cohérence (trait plein) et d'absorption (trait pointillé) en fonction de la pression dans le cas de l'harmonique 31 générée dans l'argon à un éclairement de $1,6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. La longueur du milieu long (2,5mm) est représentée en points.

C. Mesure absolue du nombre de photons harmoniques émis.

Nous avons montré dans la section précédente qu'il était possible d'atteindre une émission limitée par l'absorption pour des harmoniques élevées, en utilisant un jet long pulsé. La question est maintenant de savoir quel est le nombre absolu de photons générés à la source pour les différentes harmoniques. Afin d'obtenir une bonne mesure, précise, il est nécessaire de calibrer la transmission du spectromètre UVX utilisé dans nos expériences.

1. Calibration du spectromètre UVX.

La calibration de la transmission du spectromètre UVX est faite en utilisant le rayonnement harmonique lui même. Le schéma expérimental utilisé pour caractériser cette transmission est illustré par la Figure III-11. Le rayonnement harmonique est généré en focalisant le laser LUCA dans un jet de gaz rare pulsé long avec une lentille de deux mètres de focale. L'utilisation de différents gaz (xénon, argon et néon), qui présentent chacun un spectre plus ou moins étendu, permet d'obtenir un rayonnement UVX, partiellement accordable entre 62 et 13 nm. Le rayonnement harmonique ainsi produit est analysé spectralement par un premier spectromètre UVX identique à celui utilisé pour les mesures absolues de nombre de photon que l'on cherche à caractériser (cf § I.1 du chapitre I).

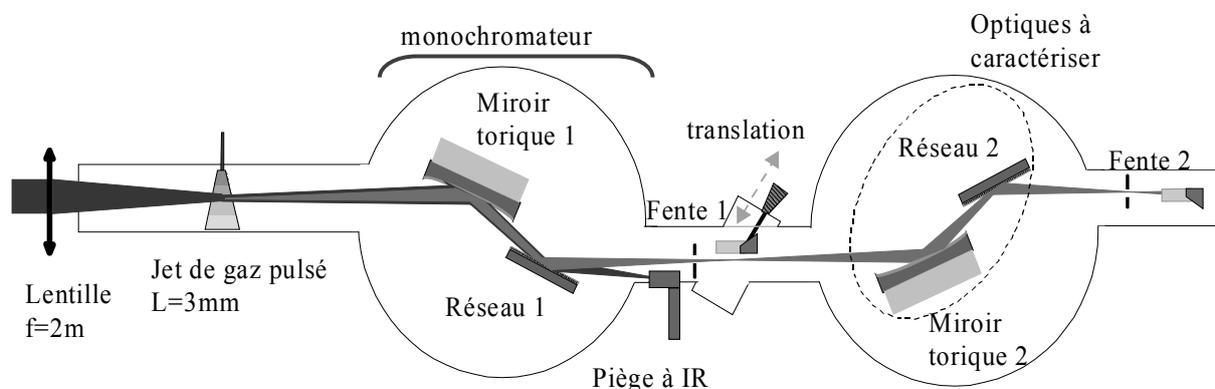


Figure III-11 : Schéma du montage expérimental utilisé pour caractériser la transmission du spectromètre UVX.

Ce premier spectromètre est utilisé comme un monochromateur en positionnant le réseau à la position adéquate afin de sélectionner une longueur d'onde harmonique. Le signal est détecté après la fente 1 de sortie par un photomultiplicateur 16F (n°250) noté Pm_1^a polarisé à une certaine tension, variable selon le gaz utilisé, donnant un gain G_1^a (I signale que le détecteur est placé après le premier spectromètre et a la référence du détecteur, ici 16F 250). La détection de ce signal nous fournit donc un niveau de signal de référence $S_1 = I \times G_1^a$ où I est le signal incident sur le détecteur. Ce détecteur, monté sur une translation contrôlable sous vide, peut être retiré de l'axe de propagation du faisceau, permettant ainsi l'analyse du faisceau par le deuxième spectromètre. Le deuxième spectromètre, composé des optiques à caractériser, est réglé, en positionnant le réseau afin de transmettre efficacement la longueur d'onde du rayonnement UVX incident. Le signal est alors détecté à l'aide d'un deuxième

photomultiplicateur 16F (n°271) placé après la fente 2 de sortie (réglée à la même ouverture que la fente 1). Ce signal s'écrit alors comme : $S_2 = I \times T_{spectro} \times G_2^b$, où 2 caractérise la position du détecteur après le deuxième spectromètre, b sa référence (16F 271) et $T_{spectro}$ la transmission du spectromètre utilisé pour les mesures absolues du nombre de photons harmoniques. On obtient alors le système d'équations :

$$\begin{aligned} S_1 &= I \times G_1^a \\ S_2 &= I \times T_{spectro} \times G_2^b \end{aligned} \quad (III-8)$$

Les signaux de référence et transmis sont moyennés sur plusieurs milliers de tirs laser afin d'augmenter la statistique et la précision de la mesure.

Signalons que l'alignement du second spectromètre a été vérifié en enregistrant des spectres harmoniques après avoir positionné le premier réseau dans son ordre 0. Le rayonnement UVX incident n'est alors pas dispersé spectralement, le faisceau arrivant sur le deuxième spectromètre étant alors composé de toutes les longueurs d'onde générées. Tout se passe alors comme si le spectromètre, dont la transmission doit être caractérisée, était placé directement après la source harmonique. Seul le niveau de signal est atténué par la double réflexion sur les optiques composant le premier spectromètre. On peut alors conclure, en comparant les spectres ainsi obtenus avec ceux enregistrés directement avec le premier spectromètre, du bon alignement des optiques à caractériser. Etant donné que les mesures des signaux de référence et transmis ont été effectuées avec des détecteurs différents, pouvant donc avoir des gains différents, la première série de mesure a été reprise, dans les mêmes conditions expérimentales, en inversant la position des deux photomultiplicateurs. On obtient alors le nouveau système d'équations :

$$\begin{aligned} S_1' &= I \times G_1^b \\ S_2' &= I \times T_{spectro} \times G_2^a \end{aligned} \quad (III-9)$$

La transmission totale du spectromètre, sur la gamme de longueur d'onde accessible est obtenue en couplant les systèmes d'équations III-8 et III-9 :

$$T_{spectro} = \sqrt{\frac{G_1^b \times G_1^a \times S_2' \times S_2}{G_2^b \times G_2^a \times S_1' \times S_1}} \quad (III-10)$$

La tension appliquée à un photomultiplicateur donné pour la détection du signal dépendait évidemment de sa position après le premier ou le deuxième spectromètre. En effet après le deuxième spectromètre, la tension appliquée doit être plus grande afin d'augmenter le gain pour compenser la perte de signal due à la transmission des optiques. Les rapports des

gains $\sqrt{\frac{G_1^a}{G_2^a}}$ et $\sqrt{\frac{G_1^b}{G_2^b}}$ respectivement des photomultiplicateurs a et b sont calculés à partir des

courbes de calibration en fonction de la tension du signal détecté. La Figure III-12 illustre l'évolution du signal détecté normalisé en fonction de la tension appliquée pour les photomultiplicateurs a et b .

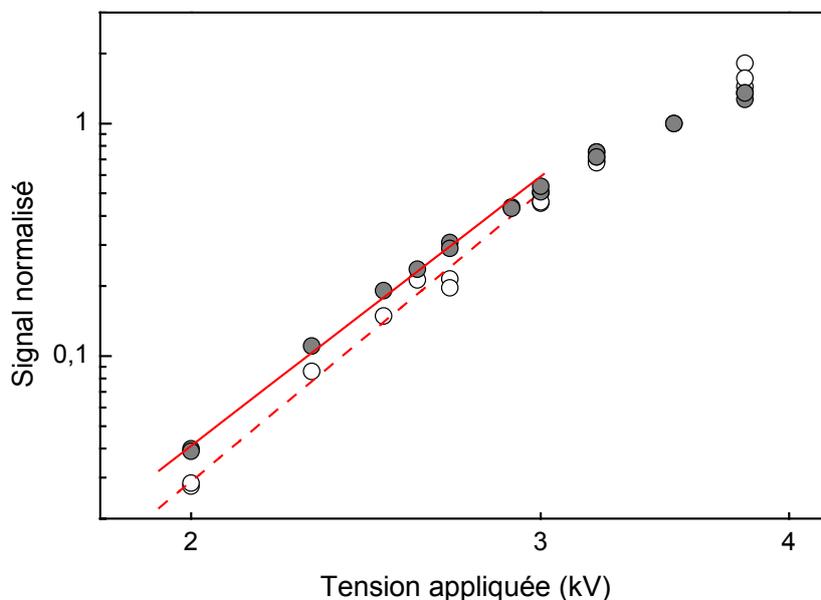


Figure III-12 : Evolution du signal détecté, après normalisation, par les photomultiplicateurs a (cercle blanc) et b (cercle noir) en fonction de la tension appliquée pour la détection. En trait plein et pointillés sont présentés les fits de la partie linéaire du signal.

Le comportement global de chaque détecteur en fonction de la tension est identique. Après une évolution linéaire du gain avec la tension croissante (en échelle log-log), se produit une rupture de pente à haute tension correspondant à un début de saturation. Les deux détecteurs diffèrent par la valeur de pente dans leur région linéaire de gain. Pour le photomultiplicateur a l'évolution linéaire du gain présente une pente de 7,1 (indiquant que le gain varie comme la puissance 7,1 de la tension appliquée) alors que pour le détecteur b cette pente est de 6,6. On peut alors, à partir de ces courbes, déterminer le rapport des gains des photomultiplicateurs utilisés en fonction des tensions appliquées à chacun d'eux pour les mesures, donc en fonction de leur type et de leur position dans le montage expérimental utilisé (cf. Figure III-11).

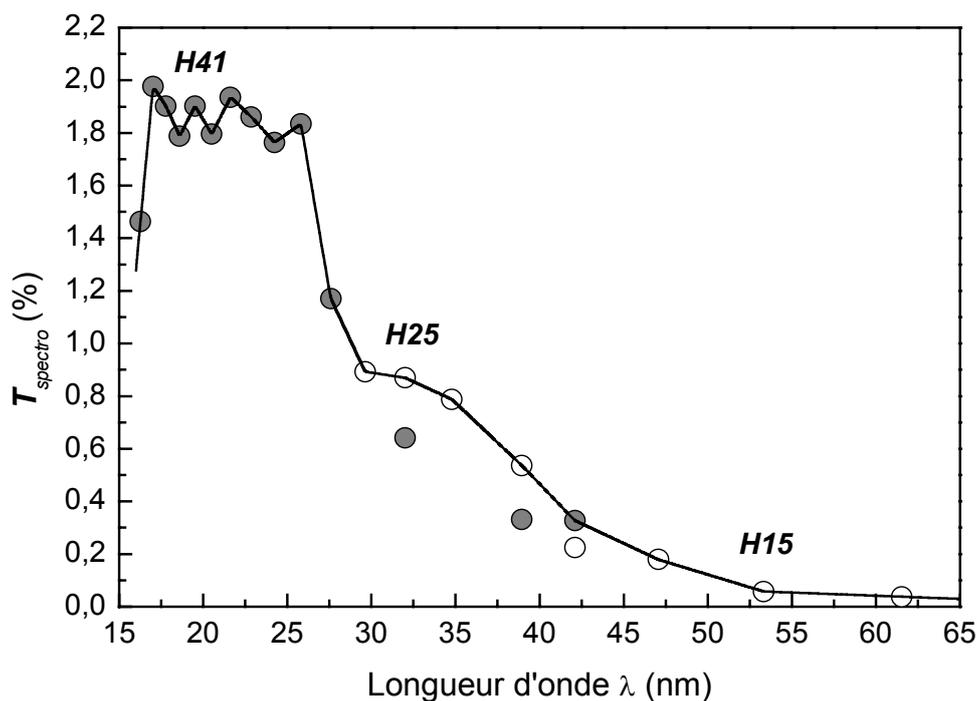


Figure III-13 : Transmission mesurée du spectromètre en fonction de la longueur d'onde en utilisant les harmoniques d'ordre élevé générées dans l'argon (cercle blanc) et le néon (cercle noir). En trait plein est illustrée l'interpolation des mesures.

Comme déjà expliqué au Chapitre I, le spectromètre est optimisé autour de 15nm et favorise donc la réflexion de ces courtes longueurs d'onde par rapport aux plus grandes, donc des ordres harmoniques élevées par rapport aux plus faibles. Nous avons donc généré les harmoniques d'ordre faible dans l'argon pour mesurer la transmission du spectromètre aux plus grandes longueurs d'onde et celles d'ordre plus élevé dans le néon, où le spectre est plus étendu. On profite ainsi de l'efficacité de génération plus importante dans l'argon (par rapport au néon) pour compenser une partie des pertes de signal introduites par la faible efficacité de diffraction du réseau dans la gamme de longueurs d'onde allant de 62nm à 30nm. Les résultats de ces mesures de transmission du spectromètre en fonction de la longueur d'onde incidente sont représentés en Figure III-13. Cette figure permet d'en déduire la précision en comparant la transmission déduite des mesures dans le néon et dans l'argon. On en déduit une précision de la mesure de l'ordre de $\pm 15\%$.

2. Mesure du nombre absolu de photons.

2.1 Principe de la mesure.

La mesure du nombre de photons est effectuée, après optimisation du rayonnement harmonique produit dans un jet long de gaz, en plaçant un détecteur UVX calibré après la fente de sortie du spectromètre dont la transmission a été caractérisée précédemment. Le schéma expérimental est identique à celui présenté en Figure I-2 du Chapitre I, exception faite du système d'imagerie escamotable (galettes de micro canaux) qui a été remplacé par une photodiode UVX, montée sur une translation contrôlable sous vide. La première étape consiste à enregistrer, avec un photomultiplicateur, les spectres d'harmoniques résolus pour en fermant la fente de sortie du spectromètre. Nous connaissons alors, dans ces conditions de génération, la position exacte à laquelle il est nécessaire de placer le spectromètre pour sélectionner une harmonique d'ordre q donné. Cette harmonique est alors détectée par la zone sensible de la photodiode, placée sur l'axe de propagation, après avoir ouvert les fentes au maximum (1mm) afin de transmettre tout le signal. Nous avons vérifié qu'une seule harmonique était détectée en bougeant le réseau de part et d'autre de la position optimale, le signal tombant alors à zéro.

2.2 Le détecteur.

La photodiode UVX utilisée pour les mesures du nombre de photons nous a été prêtée par le Service des Diagnostics Expérimentaux de la DAM. Il s'agit d'une photodiode UDT XUV 100C à semi-conducteur de Silicium. Un photon d'énergie $h\nu$ absorbé crée une paire électron trou dans le semi-conducteur, en excitant un électron de la bande de valence vers la bande de conduction. Cette transition n'est possible que lorsque l'énergie du photon est supérieure ou égale à la largeur de bande interdite ($E_g = E_c - E_v$) du semi-conducteur considéré (1,12eV pour Si). Ceci limite l'emploi des photodiodes de Silicium à la détection de longueurs d'ondes inférieures à 1,1 μ m. Lorsque l'énergie du photon incident est bien supérieure à la largeur de bande interdite, l'électron excité dans la bande de conduction, par collisions avec les autres électrons du réseau, peut produire des électrons secondaires. Du fait des pertes d'énergie par couplage avec les phonons il faut plus d'énergie à l'électron primaire que les 1,12eV du gap pour exciter un électron secondaire. Les études ont montré que le nombre total d'électrons excités par un photon d'énergie $h\nu$ est de (Poletto *et al.* 1999) : $h\nu(eV)/3,65$.

Pour nos mesures, la photodiode n'était pas polarisée, nous détectons directement à l'aide d'un picoampèremètre, le courant induit par la séparation de charges associée à la

création des paires électron-trou. La précision de mesure de cet appareil était de 0,1pA. Le nombre de photons détectés par la photodiode en fonction du courant lu sur le picoampèremètre peut, en première approximation, être écrit comme :

$$N_{ph,mes} = \frac{3.65 \times I_{mes}}{h\nu \times f \times e} \quad (\text{III-11})$$

où $h\nu$ est l'énergie du photon incident sur le détecteur, f le taux de répétition du laser, e la charge de l'électron et I_{mes} le courant détecté par le picoampèremètre. En toute rigueur, il faudrait tenir compte, pour la réponse spectrale de la photodiode, des épaisseurs respectives de la région de charge d'espace du silicium (t_s) et de l'oxyde de surface (t_d). Dans notre cas, la couche t_d d'oxyde de silicium (SiO_2), dite zone morte car elle absorbe une part non négligeable du rayonnement UVX avant qu'elle n'atteigne la zone sensible, présente une épaisseur de l'ordre de 75\AA . La région de charge d'espace (Si où les électrons sont collectés) est de $10\mu\text{m}$ alors que la longueur de diffusion L des électrons secondaires est de $200\mu\text{m}$. Ces différentes régions sont illustrées sur la Figure III-14. Le rendement théorique de la photodiode, exprimé en électrons par photon incident en fonction de l'énergie $h\nu$ du photon incident peut alors s'écrire (Reverdin *et al.* 1994) :

$$R(E) = \frac{h\nu}{3,65} K(E) = \frac{h\nu}{3,65} e^{(-\mu_d(h\nu)t_d)} \left[1 - \frac{e^{(-\mu_s(h\nu)t_s)}}{\mu_s(h\nu)L + 1} \right] \quad (\text{III-12})$$

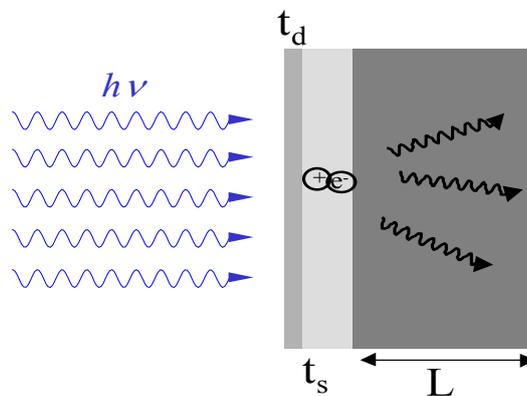


Figure III-14 : Schéma des différentes grandeurs caractéristiques du rendement théorique du semi conducteur de silicium.

Le nombre de photons incidents sur la photodiode s'écrit alors en tenant compte de ce rendement théorique comme :

$$N_{ph,mes,K(E)} = \frac{3.65 \times I_{mes}}{h\nu \times f \times e} \times \frac{1}{K(E)} \quad (\text{III-13})$$

L'absorption du rayonnement par la couche d'oxyde est critique surtout pour les basses énergies de photons, donc pour les ordres harmoniques faibles, comme on peut le voir sur la Figure III-15 illustrant la variation de ce rendement théorique en fonction de l'énergie de photon incidente sur le détecteur. Les valeurs des coefficients d'absorption ne sont pas très bien connues pour un rayonnement d'énergie inférieure à 30eV, mais nous pouvons supposer, par extrapolation de la courbe qu'il reste supérieur à 50% pour les harmoniques les plus faibles que nous avons calibrées. Cette correction à la formule III-11 ne sera pas prise en compte dans la suite, correspondant à une sous estimation du nombre de photons harmoniques mesuré.

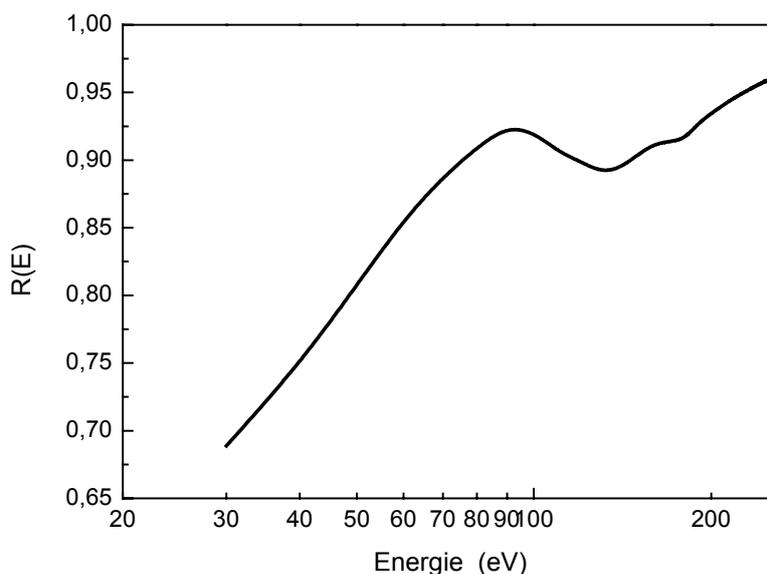


Figure III-15 : Rendement théorique de la photodiode en fonction de l'énergie de photon.

Cette photodiode a été préalablement calibrée sur la ligne SA23 de rayonnement synchrotron du LURE à Orsay. La méthode de calibration repose sur la comparaison des mesures du nombre de photons en bout de ligne SA23 par la photodiode (de type UDT XUV 100C) avec celles d'un bolomètre (Reverdin *et al.* 1994, Troussel *et al.* 1994). Ce bolomètre fonctionne comme un wattmètre, capable de mesurer des densités de puissance supérieures à 10^{-7}W/cm^2 . Signalons que la sensibilité spectrale de ce détecteur est plate sur une gamme très étendue d'énergie de photon (de 5eV à 5keV). La courbe représentant le nombre de photons mesuré à l'aide de la photodiode se compare très bien à celle obtenue avec le bolomètre, qui a une incertitude de 5%. La Figure III-16 représente une comparaison du nombre de photons mesuré avec la photodiode et le bolomètre.

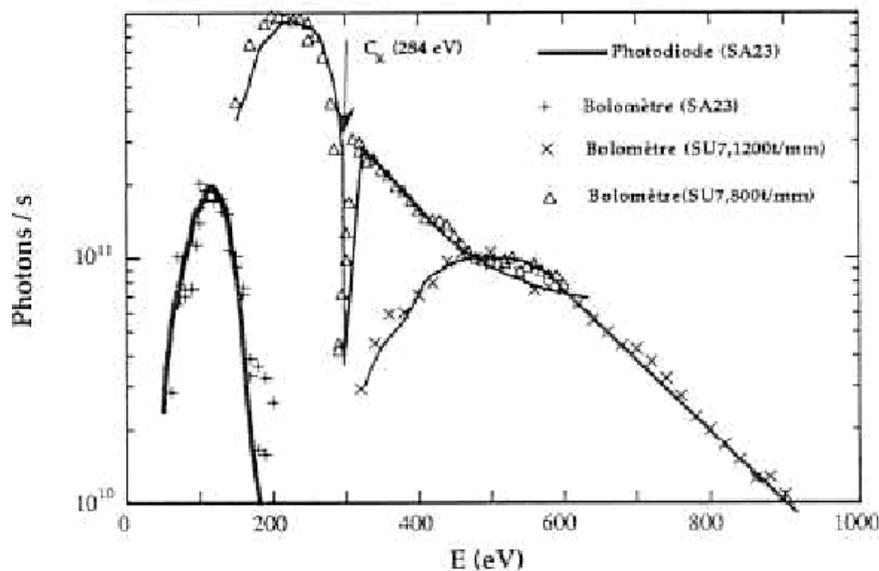


Figure III-16 : Comparaison du nombre de photons mesurés sur la ligne SA23 avec un bolomètre (+) et avec la photodiode UDT XUV 100C (en trait plein épais) extraite de (Troussel et al. 1994).

La photodiode Silicium est très sensible à la lumière visible ainsi qu'à l'IR. Un soin particulier doit donc être porté afin d'isoler ce détecteur de la lumière infrarouge diffusée dans l'enceinte lorsque le faisceau laser générateur est piégé après le spectromètre, afin d'éviter un signal de bruit de fond important. Nous avons donc placé la photodiode dans une « boîte » prévue à cette effet isolant la face arrière du détecteur. Devant la surface sensible du détecteur ont été placés deux filtres d'aluminium de 1000\AA chacun. Ces filtres extrêmement fins peuvent avoir des micro trous distribués aléatoirement, mais en superposant deux filtres on augmente considérablement le filtrage global. L'efficacité de cette isolation a été vérifiée en envoyant une fraction d'énergie IR directement sur la photodiode protégée par les filtres, le courant alors détecté étant nul. Ces filtres en aluminium ont une transmission qui dépend bien sûr de leur épaisseur mais aussi de l'énergie du photon incident. Leur transmission $T_{filtres}$ a été caractérisée en enregistrant des spectres harmoniques dans l'argon et dans le néon, avec et sans ces filtres devant le photomultiplicateur. Le rapport de ces spectres donne la transmission des deux filtres en fonction de la longueur d'onde, illustrée en Figure III-17. Une fois de plus, les grandes longueurs d'ondes, donc les harmoniques d'ordre faible, sont les plus atténuées à cause de la fine couche d'oxyde d'aluminium (Al_2O_3) présente à la surface des filtres. La courbe théorique est calculée pour une épaisseur d'aluminium de 1800\AA plus une épaisseur totale d'oxyde d'aluminium de 250\AA ; les valeurs expérimentales correspondent bien à celles prévues théoriquement.

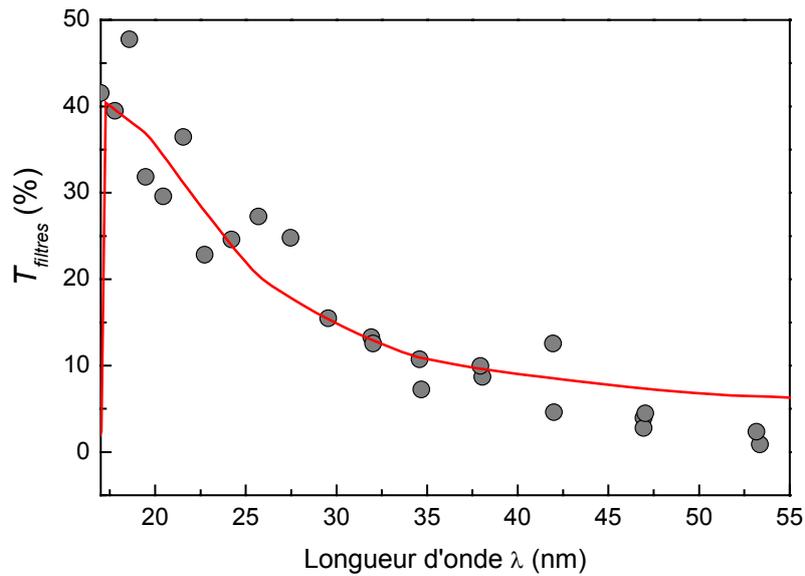


Figure III-17 : Transmission des deux filtres d'aluminium de 1000\AA mesurée avec les harmoniques d'ordre élevé (cercle noir) en fonction de la longueur d'onde. En trait plein est représentée la transmission théorique des deux filtres.

2.3 Résultats.

Les différents éléments servant à la sélection des harmoniques ainsi qu'à leur détection étant absolument calibrés en longueur d'onde, nous pouvons maintenant déduire des courants délivrés par la photodiode le nombre de photons harmoniques générés, à la source, par la formule :

$$N_{ph,source} = \frac{N_{ph,mes}}{T_{filtres} \times T_{spectro}} \quad (\text{III-14})$$

La mesure de l'énergie laser E , dans les conditions optimales de génération d'harmoniques permet de calculer l'efficacité de conversion ε par :

$$\varepsilon = \frac{N_{ph,source} \times h\nu(eV) \times 1,6 \cdot 10^{-19}}{E(J)} \quad (\text{III-15})$$

La Figure III-18a illustre le nombre absolu de photons à la source dans les conditions optimales pour les harmoniques d'ordre élevé générées dans le xénon, l'argon et le néon.

Signalons que nous ne pouvons pas mesurer le nombre de photons des harmoniques de longueur d'onde inférieure à 17nm ($q > 47$) étant donnée la coupure des filtres aluminium à cette longueur d'onde, les rendant totalement absorbants. Rappelons que nous n'avons pas tenu compte de $K(E)$ (relation III-12), les nombres de photons représentés sur la figure ne sont donc qu'une valeur minimale. Ils peuvent être en réalité deux fois plus élevés, particulièrement pour les ordres faibles (de 15 à 19 dans le xénon et l'argon). On voit ainsi que le nombre de photons produits par impulsion pour les harmoniques du plateau, est de $8 \cdot 10^9$ dans le xénon, de 2 à $5 \cdot 10^9$ dans l'argon et entre 1 et $4 \cdot 10^7$ dans le néon. Les éclaircements de génération sont respectivement : $7 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$, $1,8 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$ et $4 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$. Ces nombres de photons correspondent à des courants d'intensité allant de quelques picoampères à plusieurs dizaines de picoampères selon l'ordre harmonique et le gaz considéré.

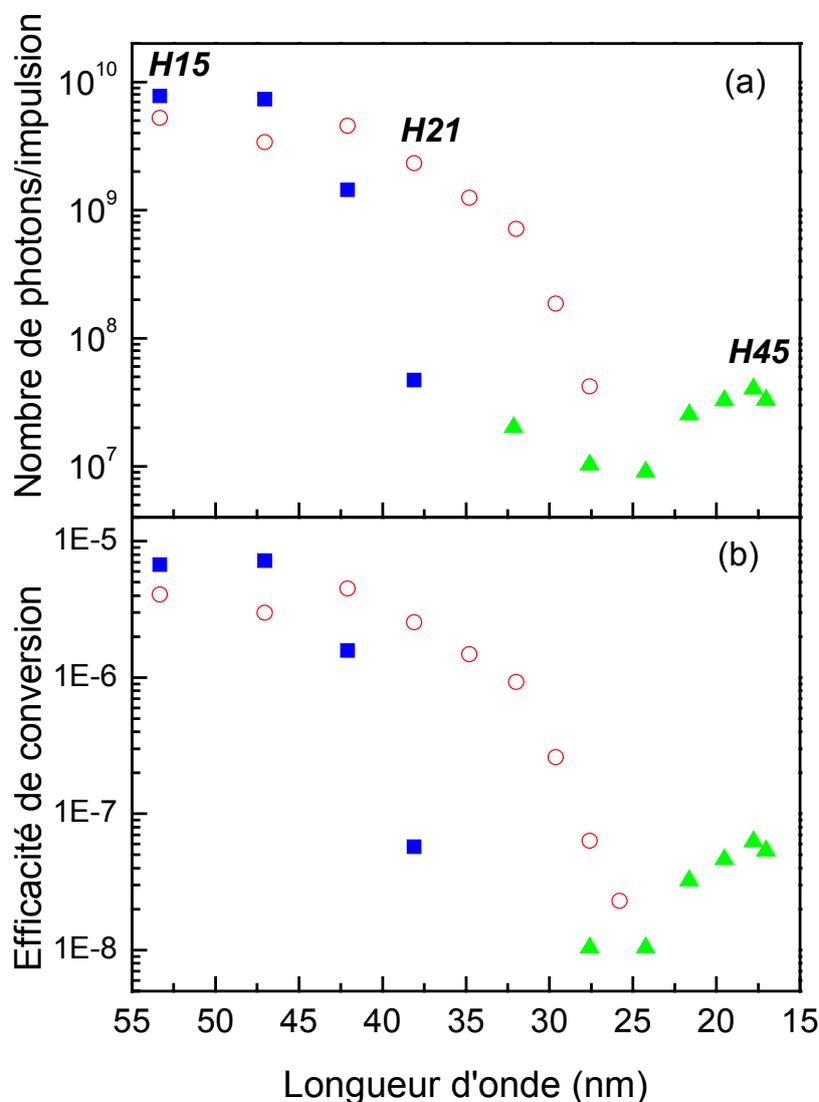


Figure III-18 : (a) Nombre absolu de photons harmoniques à la source et (b) efficacité de conversion en fonction de la longueur d'onde pour les harmoniques générées dans le xénon (carrés), l'argon (cercles) et le néon (triangles).

On peut donc noter que le nombre de photons générés dans un jet long est 5 fois plus important dans le cas de l'argon et près d'un ordre de grandeur plus élevé dans le cas du néon comparativement à la courbe I-12 présentée au Chapitre I. Le nombre de photons générés dans le xénon reste quant à lui identique. Cette augmentation dans le cas des deux gaz rares les plus légers peut être reliée à l'augmentation de la longueur du milieu par rapport à la longueur d'absorption, remplissant ainsi de manière plus complète les conditions optimales d'émission III-7. Cet effet peut aussi être observé sur les différents ordres harmonique du néon étant donné que les ordres élevés sont favorisés par rapport aux ordres les plus faibles (4 fois plus de photons pour H47 que pour H29). Les efficacités de conversion correspondant à ces mesures sont reportées sur la Figure III-18b. Elles varient de 8.10^{-6} dans le xénon, à 4.10^{-6} dans l'argon et 6.10^{-8} dans le néon, pour les harmoniques du plateau.

D. Comparaison avec d'autres résultats.

1. Nombre de photons obtenus avec des lasers ultra - courts.

Il est intéressant de comparer les nombres de photons générés ainsi que les efficacités de génération que nous avons mesurés dans nos conditions expérimentales (laser générateur de durée d'impulsion 70fs) avec les résultats récents obtenus avec les lasers IR ultra – courts, de durée d'impulsion de l'ordre de 5fs. Les harmoniques sont générées dans un tube servant de cellule (cf. Chapitre I) ; la longueur du milieu est de 3mm. Les auteurs prétendent obtenir une émission limitée par l'absorption jusqu'à 10nm. Les mesures du nombre de photons reportées dans Schnürer *et al.* (1999), effectuées avec une photodiode UDT (XUV 50C) conduisent aux efficacités de conversion reportées en Figure III-19. Les harmoniques dans l'argon sont générées à un éclairement de $2.10^{15}W/cm^2$, celles dans le néon, à $5.10^{14}W/cm^2$. Nous avons déjà expliqué au Chapitre I que les spectres d'émission harmonique obtenus avec des lasers générateurs de très courte durée présentent un plateau d'émission plus étendu, car l'éclairement de saturation du gaz est plus élevé pour ces courtes durées. Nous comparons donc les efficacités de conversion dans le plateau des différents gaz, les ordres supérieurs étant évidemment moins générés avec 70fs qu'avec 5fs. Les efficacités de conversion mesurées dans les deux cas sont tout à fait comparables. Pour ces ordres harmoniques, pouvant être qualifiés d'intermédiaires, l'utilisation d'un laser ultra court n'apporte rien en efficacité de génération une fois que les conditions optimales d'émission limitée par l'absorption sont atteintes. En effet, ces harmoniques sont générées efficacement bien avant l'éclairement de saturation et ne bénéficient pas, comme les ordres très élevés, d'une augmentation de ce dernier. Cette tendance a été reproduite dans des simulations publiées par (Tempea *et al.* 2000), dont nous reproduisons les résultats en Figure III-20. Ces simulations

de génération dans le néon en fonction de la durée de l'impulsion fondamentale ont été effectuées dans les mêmes conditions d'éclairement (10^{15}W/cm^2), l'efficacité de génération étant mesurée après la distance de propagation pour laquelle le champ émis est maximal. La diminution de la durée de l'impulsion fondamentale permet d'augmenter clairement l'efficacité de génération des harmoniques à partir de l'ordre 65 de non linéarité. Pour des ordres plus faibles, la courte durée d'impulsion n'apporte aucun gain significatif.

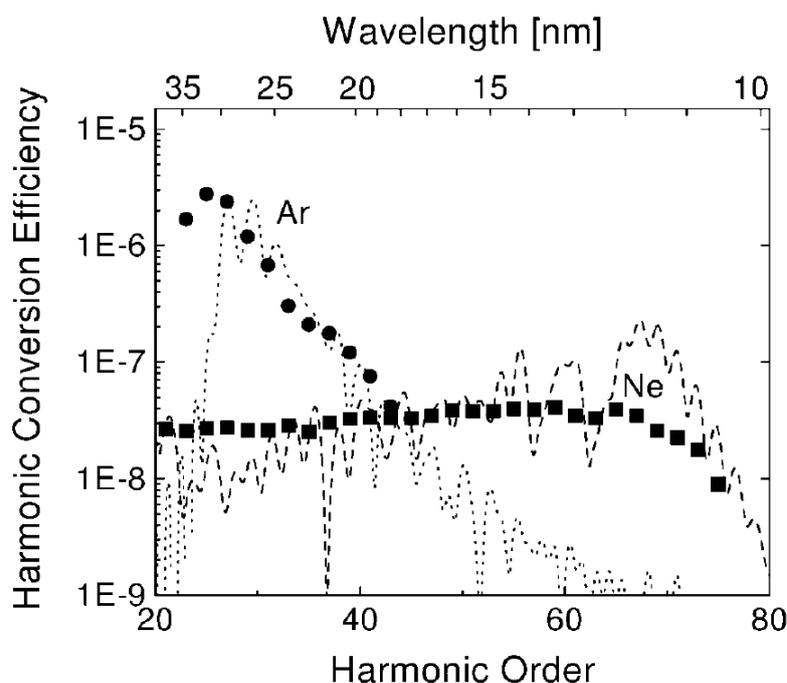


Figure III-19 : Efficacité de conversion en fonction de la longueur d'onde pour les harmoniques générées dans l'argon (disque) et le néon (carré) par un laser de durée d'impulsion 5fs. En trait points et pointillés sont représentés les spectres respectifs calculés (d'après Schnürer et al. 1999).

Le système laser optimal dépend donc du type d'application souhaité : s'il faut une très courte durée d'impulsion UVX, le laser 5fs est évidemment préférable. Si par contre le nombre de photons UVX est le facteur primordial, il vaut mieux utiliser le laser 70fs pour une raison simple : la réserve d'énergie disponible sur ce système (plusieurs dizaines voire centaines de mJ contre moins d'un mJ pour le laser 5fs) permet de réaliser l'éclairement de génération pendant une durée et sur un volume bien plus importants, d'où un nombre de photons générés plus élevé. Du fait de la plus grande durée d'impulsion on a besoin de plus d'énergie pour atteindre l'éclairement de génération mais en même temps on le réalise plus longtemps et on produit donc plus de photons harmoniques (l'efficacité de conversion étant la même). De plus, la réserve d'énergie peut être utilisée pour moins focaliser le laser et réaliser

ainsi un volume générateur plus important. Une claire mise en évidence de ces effets est que le nombre absolu de photons mesuré dans notre cas est d'environ un facteur 20 supérieur à celui rapporté dans (Schnürer *et al.* 1999), ce qui est un facteur non négligeable pour de nombreuses applications. En effet ils ont mesuré $3 \cdot 10^8$ et $1,8 \cdot 10^6$ photons par harmonique, respectivement pour le plateau de l'argon et du néon.

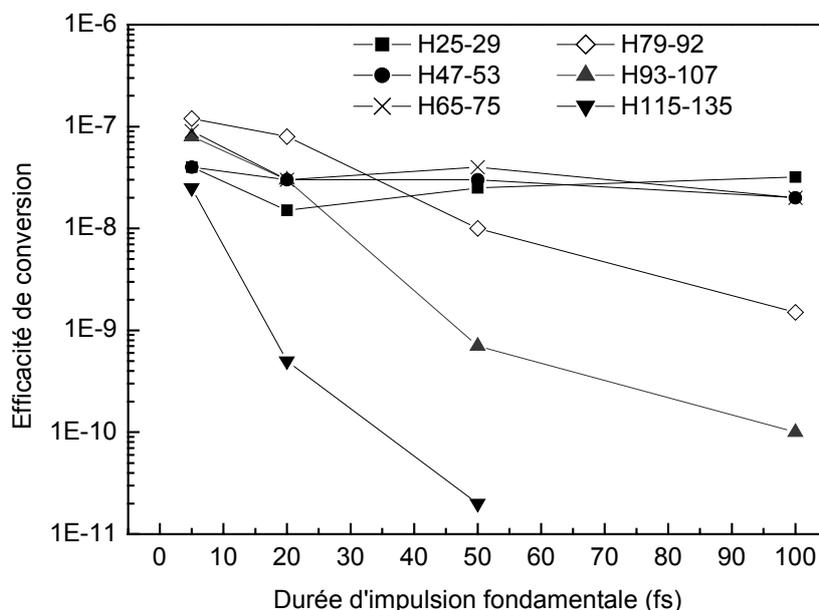


Figure III-20 : Efficacité de conversion calculée en fonction de la durée d'impulsion du fondamental pour les harmoniques générées dans le néon (d'après Tempea *et al.* 2000).

D'autres résultats (Tamaki *et al.* 1999) ont été obtenus dans une cellule de longueur variable mais avec un laser générateur de durée plus longue (100fs). Les conditions optimales de génération : une longueur du milieu de 7mm et une pression de 30 Torr, ont permis de générer 10^8 photons pour l'harmonique 49 de l'argon, soit plus d'un facteur 2 de plus que lors de notre expérience. Ces résultats restent cependant controversés car le nombre de photons mesuré correspond à une efficacité prétendue de l'ordre de 10^{-6} à 16,3nm, ce qui est un ordre de grandeur supérieur à celle reportée par tous les autres groupes. De plus les auteurs ne fournissent aucune interprétation plausible à cette augmentation de l'efficacité.

2. Nombre de photons obtenus lors de la génération dans les fibres creuses.

Comparons maintenant avec les résultats obtenus en générant les harmoniques dans les fibres creuses. Les premiers à avoir généré efficacement des harmoniques d'ordre élevé dans des capillaires remplis de gaz a été l'équipe américaine de Murnane et Kapteyn (Rundquist *et al.* 1998), en utilisant un laser de 20fs de durée d'impulsion. Ils ont alors mesuré à l'aide d'une photodiode à vide 2.10^7 photons par harmonique pour les harmoniques 23 à 31 générées dans l'argon, en couplant seulement 150 μ J d'énergie laser dans la fibre, ce qui correspond à une efficacité de 10^{-6} . Les efficacités que nous avons mesurés pour les harmonique 23 et 25 étaient comparables, mais chutaient ensuite pour les harmoniques 27 à 31 de quelques 10^{-7} à quelques 10^{-8} , ces harmoniques se trouvant dans la coupure. Deux phénomènes peuvent expliquer leurs résultats. Tout d'abord, la plus courte durée d'impulsion de leur laser repousse la coupure du spectre, permettant de générer plus efficacement les ordres élevés. De plus, ces harmoniques sont proches d'un minimum de Cooper, où la section efficace d'absorption est très faible. L'utilisation d'un milieu plus long ou de l'ordre de la longueur d'absorption à ces longueurs permet ainsi d'optimiser la génération.

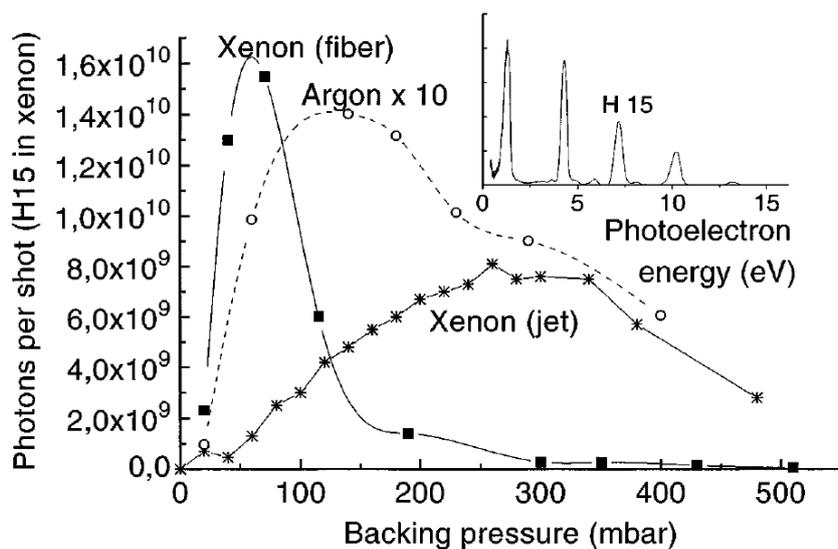


Figure III-21 : Comparaison du nombre de photons de l'harmonique 15 du xénon générée dans une fibre (carrés) ou dans un jet (étoiles) dans les conditions optimales respectives (d'après Constant *et al.* 1999).

L'utilisation d'une fibre creuse remplie de gaz semble donc efficace pour certains ordres harmoniques correspondant à des grandes longueurs d'absorption. Ces cas sont cependant relativement rares. Il a ainsi été montré par (Constant *et al.* 1999), en comparant le

nombre de photons générés pour l'harmonique 15 du xénon dans une fibre et dans un jet dans les conditions optimales de génération de chacun des systèmes, que le gain n'était pas significatif. Il n'est que d'un facteur 2 pour cette harmonique caractérisée par une courte longueur d'absorption ($L_{abs}=1,2\text{mm}$ à 8mbar) (Figure III-21). Seule la fin de la fibre contribue efficacement à l'émission harmonique. La fibre creuse ne présente donc un intérêt que pour certaines harmoniques particulières de l'argon.

Conclusion.

Dans ce chapitre, nous avons effectué une étude approfondie de l'optimisation harmonique dans un jet en faisant varier la longueur et la pression du milieu atomique. Les études expérimentales ont révélé des comportements très différents suivant l'ordre et la nature du gaz. Si dans le xénon il n'y a pas de différence entre jet long (2,5mm) et jet court (0,5mm), dans le néon et l'argon, l'émission est en général nettement plus efficace avec le jet long. Dans ce dernier cas, les courbes en fonction de la pression présentent soit une saturation à haute pression (H31 dans l'argon, H47 dans le néon), soit une forme en « cloche » (H23 dans l'argon) similaire à celle observée dans les fibres au Chapitre II.

Après avoir rappelé les principaux facteurs pouvant limiter l'émission harmonique, nous avons effectué des simulations pour interpréter ces différences de comportement. Les simulations 3D ab initio reproduisent à la fois remarquablement les évolutions expérimentales (forme des courbes) et quantitativement le rapport entre les efficacités dans les jets long et court. Ceci permet de mettre en évidence les différents phénomènes limitant l'efficacité de l'émission :

- longueur du milieu (le jet court limite toutes les harmoniques sauf pour H17 dans le xénon)
- longueur d'absorption (H17 dans le xénon, H47 dans le néon, H23 dans l'argon à la pression optimale)
- longueur de cohérence (H23 dans l'argon à haute pression)
- défocalisation du laser (H31 dans l'argon)

Grâce à un modèle simple 1D, faisant intervenir les valeurs relatives des trois longueurs caractéristiques de l'émission harmonique, on reproduit étonnamment bien la plupart des tendances expérimentales permettant d'en tirer une interprétation simple. Ce modèle se révèle utile pour déterminer les conditions optimales d'émission dans un cas donné.

Une conclusion importante est qu'il est possible d'obtenir une émission limitée par l'absorption pour des harmoniques élevées générées dans un jet pulsé de gaz, à condition que ce dernier soit suffisamment long avec un profil de densité approprié. On retrouve ainsi l'importance de l'absorption pour les harmoniques du plateau, à condition que les longueurs

du milieu et de cohérence ne soient pas les facteurs limitants. Par contre, pour les harmoniques de la coupure, spécifiquement dans l'argon, où l'absorption ne joue qu'un rôle limité, étant donnée l'importance de la longueur d'absorption par rapport à la longueur du milieu, c'est la défocalisation du faisceau fondamental par les électrons libres produits par l'ionisation du milieu qui limite l'émission harmonique.

Après avoir optimisé l'émission harmonique, nous avons voulu mesurer le nombre absolu de photons générés. Une calibration du spectromètre UVX étant nécessaire, nous avons montré la possibilité d'utiliser la source de rayonnement harmonique comme source de caractérisation de la réponse d'optiques par la mesure de transmission du spectromètre UVX utilisé pour les mesures d'optimisation. Cette calibration ainsi que l'utilisation d'une photodiode UVX calibrée a permis une mesure précise du nombre de photons harmoniques générés dans les conditions optimales (en jet long) pour les harmoniques d'ordre intermédiaire. Les efficacités de génération mesurées sont comparables à celles obtenues avec des lasers ultra courts, considérés pourtant comme étant les plus efficaces pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Lorsque la limite d'absorption est atteinte, le seul moyen « macroscopique » d'augmenter encore le nombre de photons générés, est d'augmenter soit la durée d'émission (avec une limitation imposée par l'ionisation), soit la section du volume d'émission, nécessitant dans les deux cas plus d'énergie pour atteindre un éclairement donné. C'est ce que nous avons montré en obtenant des nombres de photons 1 à 2 ordres de grandeur supérieurs à ceux rapportés par les équipes autrichienne et américaine. Ce gain peut être fondamental pour la réussite de nombreuses applications.

Pour finir, la comparaison du niveau d'émission harmonique obtenu dans un jet long avec celui obtenu dans un capillaire permet de conclure que la génération dans une fibre n'optimise le flux émis que dans certains cas particuliers (harmoniques de la coupure de l'argon), les conditions d'accord de phase étant très similaires pour la génération dans un jet ou dans une fibre.

Chapitre IV : Focalisation du rayonnement UVX par génération d'harmoniques.

Introduction.

Au cours de ces dernières années, la source de rayonnement UVX par génération d'harmoniques d'ordre élevé dont nous disposons au laboratoire a été caractérisée sous différents aspects. Nous avons mesuré le nombre de photons qu'il est possible de produire, comme nous l'avons montré au chapitre précédent. Nous avons également caractérisé la cohérence propre (LeDéroff *et al.* 2000a) et la qualité spatiale du faisceau (LeDéroff *et al.* 1998), pour l'harmonique 13 générée dans le xénon. Dans la dernière étude, la distribution spatiale de l'éclairement harmonique au foyer d'un miroir sphérique multicouche ($f=20\text{cm}$) a été caractérisée, en termes du facteur de qualité de M^2 . Le facteur M^2 peut être interprété comme une mesure de l'écart entre le faisceau et un faisceau gaussien ($M^2=1$). La caractérisation d'un faisceau par son facteur de qualité est développé dans l'article de Siegmann (Siegmann 1990) dont nous rappelons ici le résultat principal. Si on définit la taille $w_x(z)$ d'un faisceau, à l'abscisse z et dans la dimension X, comme la variance de la distribution spatiale d'éclairement, alors $w_x(z)$ varie avec z suivant une loi :

$$w_x^2(z) = w_{x0}^2 + M_x^4 \frac{\lambda^2}{\pi^2 w_{x0}^2} (z - z_{x0})^2 \quad (\text{IV-1})$$

où w_{x0} est la taille au foyer en z_{x0} . La divergence D_x du faisceau (pour z tendant vers l'infini) peut alors s'écrire comme :

$$D_x = 2M_x^2 \frac{\lambda}{\pi w_{x0}} \quad (\text{IV-2})$$

On voit ainsi que deux faisceaux ayant la même taille au foyer peuvent présenter en champ lointain des divergences qui sont dans le rapport de leurs facteurs M^2 respectifs. Inversement, la taille en champ lointain étant donnée, la taille au foyer sera d'autant plus petite que M^2 sera faible (≥ 1) : on dira que le faisceau est M^2 fois limité par la diffraction. La mesure de la taille $w_x(z)$ dans la région où elle varie rapidement permet de déterminer le facteur de qualité M^2 , ce qui constitue une caractérisation intrinsèque du faisceau. Dans certaines conditions de génération, à basse pression, il a été montré que le faisceau harmonique était deux à trois fois

limité par la diffraction, ce qui est équivalent au facteur de qualité du laser générateur. Une taille au foyer du faisceau de l'ordre de $10\mu\text{m}$ a été mesurée pour la focale $f=200\text{mm}$.

Afin de réfléchir sous une incidence proche de la normale et ainsi de focaliser efficacement (aberrations faibles) un rayonnement UVX, il est nécessaire d'utiliser des optiques multicouches. Ces optiques composées d'un empilement de différentes épaisseurs de deux matériaux différents permettent d'obtenir de bonnes réflectivités en incidence proche de la normale pour certaines gammes de longueur d'onde. Différents types d'optiques multicouches sont utilisés depuis de nombreuses années sur les sources de rayonnement synchrotron ou encore les sources X par plasma, permettant d'atteindre des résolutions spatiales sub-microniques. Les systèmes optiques qui ont été utilisés sont : un miroir sphérique simple (Raab *et al.* 1991, Brown *et al.* 1988), deux miroirs sphériques en configuration de Kirkpatrick-Baez (Thompson *et al.* 1987) ou encore un objectif de Schwarzschild (Berreman *et al.* 1990, Chauvineau *et al.* 1986). Ces résolutions spatiales très poussées sont utilisées dans l'imagerie UVX d'objets physiques et biologiques.

L'obtention de tailles au foyer petites permet également d'augmenter les éclaircissements que l'on atteint avec une source UVX, ce qui peut être très utile pour les applications. Différentes tentatives pour observer des processus non linéaires en utilisant le rayonnement harmonique ont d'ores et déjà été réalisées. Par exemple, une harmonique d'ordre élevé est focalisée dans un gaz dans le but de produire une transition à deux photons UVX non résonante (Bouhal *et al.* 1997, Van Woerkom *et al.* 1997, Kobayashi *et al.* 1998). Ces tentatives ont été infructueuses sauf dans le cas où des ordres faibles (H5 ou H9 d'un laser à 800nm) ont été utilisés (Kobayashi *et al.* 1998, Descamps *et al.* 2001).

En vue d'augmenter l'éclaircissement que l'on peut atteindre, nous avons mesuré la taille d'un faisceau harmonique au foyer d'une lentille de Bragg – Fresnel par une technique de Foucaultage. Après un bref rappel du mode de fonctionnement et des propriétés d'une telle optique, nous présenterons les mesures de la taille au foyer ainsi qu'une estimation de l'éclaircissement atteint. Nous présenterons également une tentative de mesure du front d'onde harmonique par la technique de Shack – Hartmann utilisant une matrice de lentilles de Bragg - Fresnel. Ces expériences ont été réalisées avec une équipe du Laboratoire de Spectroscopie Atomique et Ionique d'Orsay.

A. Principe d'une lentille de Bragg – Fresnel.

1. Rappels généraux.

La lentille que nous avons utilisée associe, comme son nom l'indique, la diffraction de Bragg, qui permet de sélectionner une longueur d'onde, et la diffraction de Fresnel qui permet

de focaliser le rayonnement. Nous rappelons brièvement ces deux principes ainsi que le mode de fonctionnement de la lentille utilisée pour focaliser le rayonnement UVX par génération d'harmoniques.

Diffraction de Bragg.

Afin d'obtenir une bonne réflectivité aux longueurs d'onde harmoniques, il est nécessaire d'utiliser des optiques multicouches. Ces optiques consistent en un empilement alterné de couches, d'épaisseur comparable à la longueur d'onde à réfléchir, de deux matériaux différents. Ces matériaux, un lourd (Z élevé) et l'autre léger (Z faible), sont choisis pour la différence que présentent leurs indices de réfraction dans le domaine UVX. Les rayons de longueur d'onde λ incidents sur l'optique multicouche sous un angle θ sont alors réfléchis par diffraction sur les différents plans atomiques. Les rayons réfléchis par les différents plans interfèrent constructivement si la longueur d'onde est liée à la périodicité du milieu par la loi de Bragg : $2d \sin(\theta) = m\lambda$ où d est la distance interréticulaire et m l'ordre de diffraction. Les différents paramètres de l'optique multicouche (nature des matériaux, nombre de couches, épaisseurs respectives de chaque couche) sont choisis pour obtenir le meilleur pouvoir réflecteur pour une longueur d'onde λ et un angle θ donnés. Une optique multicouche permet ainsi de réfléchir une certaine bande spectrale, et de monochromatiser, partiellement, le rayonnement incident.

Diffraction de Fresnel.

Pour mieux comprendre le principe de focalisation par diffraction de Fresnel, considérons la figure d'interférence de deux ondes sphériques monochromatiques et cohérentes, l'une issue de S_1 et l'autre collectée par S_2 . Les amplitudes respectives de ces ondes s'écrivent : $\vec{A}_i(\vec{r}_i) = \vec{a}_i \exp(\pm k \cdot r_i + \delta_i)$ où $i=1, 2$ et r_1, r_2 les distances respectives d'un point P aux deux sources. La distribution d'intensité en P , pour $a_1=a_2=1$, contient un terme d'interférence :

$$I(P) = 2[1 + \cos(k \cdot (r_1 + r_2) - \phi)] \quad (\text{IV-3})$$

où ϕ est la différence de phase constante entre les deux sources S_1 et S_2 (on posera $\phi=0$). Le maximum d'intensité est alors obtenu pour :

$$\begin{aligned} \cos(k \cdot (r_1 + r_2)) &= 1 \\ k \cdot (r_1 + r_2) &= n\pi \end{aligned} \quad (\text{IV-4})$$

où n est pair (minimum pour n impair). Les équations (IV-4) décrivent une famille d'ellipsoïdes de révolution d'axe (S_1S_2) et de foyers S_1 et S_2 . La différence entre les longueurs des grands axes de deux ellipses consécutives, l'une associée à un maximum d'intensité, l'autre à un minimum, est $\lambda/2$. La différence entre deux ellipses présentant un maximum d'intensité est alors λ . La Figure IV-1 illustre dans le plan méridien une famille d'ellipses isophases issues de l'interférence entre les deux sources. La réalisation d'une optique de Bragg-Fresnel consiste à créer une surface équivalente à ces ellipses isophases sur une optique réfléchissant les longueurs d'onde UVX, à savoir une optique multicouche. Les plans constituant la multicouche sont placés tangentiels aux ellipses isophase. On peut voir sur la Figure IV-1 qu'il est nécessaire d'ajuster la distance entre les deux sources afin d'obtenir la famille d'ellipses adéquates aux paramètres (d et θ) définis par la multicouche pour une longueur d'onde λ donnée. Cet « hologramme » inscrit sur la surface réfléchissante est équivalent à un réseau de pas variable en deux dimensions qui permet de focaliser un rayonnement issu de S_1 en S_2 . La détermination précise de la surface qu'il est nécessaire de graver dans le multicouche est donnée dans (Michette *et al.* 1993, Idir 1994, Erko *et al.* 1996.).

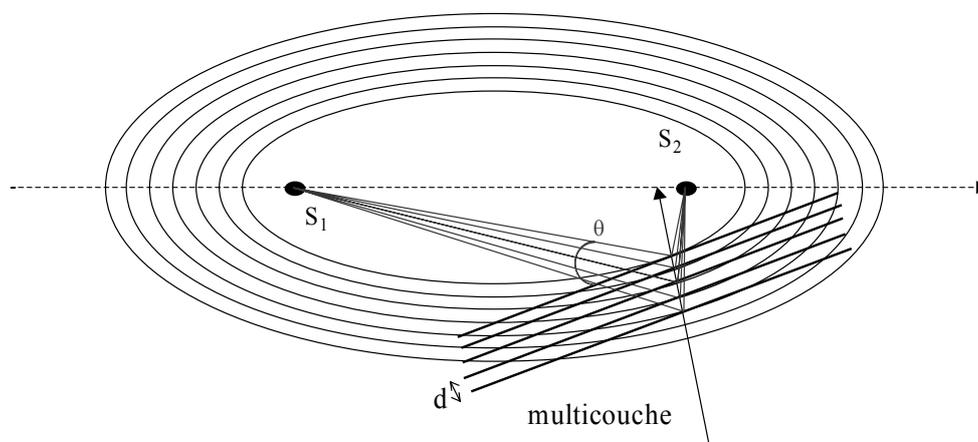


Figure IV-1 : Principe de construction d'une optique de Bragg – Fresnel à partir des ellipses isophases.

Plus l'angle de rasance diminue, plus les gravures deviennent elliptiques. Pour une incidence normale, les gravures sont des cercles concentriques. La Figure IV-2 représente schématiquement une demi-lentille de Bragg-Fresnel multicouche elliptique. L'empilement alterné de deux métaux est représenté par des zones claires et sombres. Les gravures elliptiques réfléchissantes, de pas continûment variable, alternent avec des zones non

réfléchissantes, permettant ainsi une focalisation bidimensionnelle par diffraction du rayonnement incident. La différence de chemin optique entre deux zones consécutives est de $\lambda/2$. Les zones opaques empêchent les rayons dont les chemins optiques diffèrent d'un multiple impair de $\lambda/2$ de contribuer à l'amplitude du rayonnement focalisé en S_2 . Les zones transparentes permettent aux rayons de différence de chemin optique λ d'interférer constructivement au point S_2 , augmentant considérablement l'intensité en ce point.

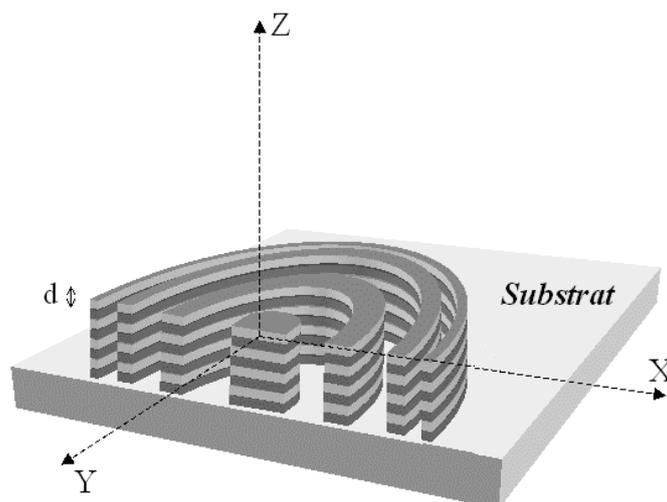


Figure IV-2 : *Lentille de Bragg-Fresnel multicouche elliptique (focalisation bidimensionnelle).*

Il existe un autre type de lentille de Bragg-Fresnel (LBF) que celle représentée en Figure IV-2, dans lequel les gravures « en relief » et en « creux » sont pareillement réfléchissantes (multicouches) pour λ et θ donnés. La profondeur relative des gravures est alors calculée pour que les deux systèmes de zones (n pair/impair) réfléchissent des rayons qui sont en phase au foyer (profondeur= $\lambda/2\cos\theta$). L'amplitude du champ est alors deux fois celle du champ focalisé par un seul système. C'est une lentille de ce type que nous avons utilisée.

2. Principales caractéristiques d'une optique de Bragg-Fresnel.

2.1 Expression du rayon et de l'épaisseur des zones.

Dans cette section nous allons rappeler les grandeurs caractéristiques d'une LBF, dont dépend la focalisation. La principale caractéristique d'une LBF est le nombre N de traits

constituant le réseau à deux dimensions. Le rayon des gravures et la focale de la lentille dépendent de ce nombre de traits pour une longueur d'onde donnée. Afin de simplifier le calcul et la représentation graphique, on considère dans la suite une zone de Fresnel en transmission (ou lentille de Fresnel notée LF), focalisant le rayonnement de longueur d'onde λ issu de A en un point B, représenté sur la Figure IV-3. Rappelons qu'une zone de Fresnel est une succession de zones opaques et transparentes (transmission ~ 1), de pas continûment variable focalisant le faisceau par diffraction. Les différentes grandeurs que nous allons définir sur cet exemple sont directement transposables aux LBF en réflexion pour un angle d'incidence θ quelconque.

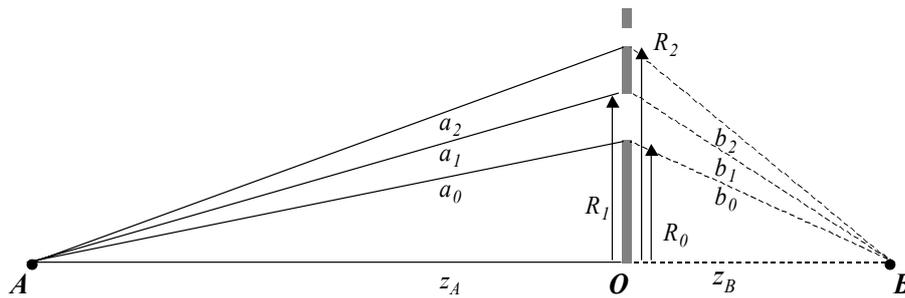


Figure IV-3 : Diagramme des trajets des rayons lumineux de A vers B au travers d'une demi-zone de Fresnel.

Par construction de la LF, la différence de chemin optique entre deux zones consécutives est de $\lambda/2$. Le trajet optique direct AOB a une longueur $z_A + z_B$; un rayon touchant le bord de la première zone de rayon r_0 a un trajet : $a_0 + b_0 = z_A + z_B + \Delta$. On peut ainsi écrire que le trajet optique d'un rayon touchant le bord de la $n^{\text{ième}}$ zone s'écrit :

$$a_n + b_n = z_A + z_B + \Delta + \frac{n\lambda}{2} \quad (IV-5)$$

$$\left(R_n^2 + z_A^2\right)^{\frac{1}{2}} + \left(R_n^2 + z_B^2\right)^{\frac{1}{2}} = z_A + z_B + n_\Delta \frac{\lambda}{2}$$

où $n_\Delta = n + 2\Delta/\lambda$. Pour les longueurs d'onde UVX que nous considérons ici, on a $n_\Delta \lambda \ll z_A + z_B$. De plus la focale f de la lentille, par analogie avec la formule des lentilles minces, satisfait à :

$\frac{1}{f} = \frac{1}{z_A} + \frac{1}{z_B}$. La relation (IV-5) conduit à une expression simple du $n^{\text{ième}}$ rayon R_n :

$$R_n^2 = n_\Delta \lambda f = n \lambda f + 2 f \Delta \quad (IV-6)$$

Lorsque la source est suffisamment éloignée de la lentille $\Delta \sim 0$, l'équation IV-6 devient :

$$R_n^2 \approx n\lambda f = nR_1^2 \quad (\text{IV-7})$$

L'épaisseur d_n de la $n^{\text{ième}}$ zone est alors définie par la différence des rayons au carré de deux zones consécutives :

$$R_n^2 - R_{n-1}^2 = (R_n + R_{n-1})(R_n - R_{n-1}) \approx 2R_n d_n \quad (\text{IV-8})$$

Cette relation implique en développant le terme de gauche à l'aide de la relation IV-7 :

$$d_n \approx \frac{\lambda f}{2R_n} = \frac{R_n}{2n} \quad (\text{IV-9})$$

2.2 Distance focale et profondeur de champ.

Les différentes gravures définissent une forme de réseau de diffraction bidimensionnel. Il existe donc, en théorie un nombre infini m d'ordres de diffraction, positifs et négatifs, qui focalisent la lumière en $f_m = f/m$. L'existence de différents foyers, fonction de l'ordre de diffraction, est l'une des principales différences entre une LBF ou une zone de Fresnel et une lentille mince classique. Cependant l'efficacité de diffraction dans chaque ordre diminue en m^{-2} ; elle devient donc négligeable dans les ordres élevés.. Dans la suite nous ne considérerons que l'ordre 1 de diffraction ainsi que l'ordre 0, non focalisé.

D'après la relation IV-9, la distance focale f d'une LBF est inversement proportionnelle à la longueur d'onde incidente car : $f\lambda \propto R_1^2$. Lorsque le rayonnement incident n'est pas monochromatique, comme c'est le cas du rayonnement harmonique, il existe différents foyers sur l'axe de focalisation, associés chacun à une longueur d'onde. Considérons, à titre d'exemple, deux longueurs d'ondes λ_1 et λ_2 ($\lambda_1 > \lambda_2$) réfléchies et focalisées efficacement par la LBF en deux foyers successifs, notés respectivement F_1 et F_2 , sur l'axe de focalisation. La distance séparant les deux foyers est donnée par :

$$\Delta f = f_2 - f_1 = \frac{\lambda_1 - \lambda_2}{\lambda_2} f_1 \quad (\text{IV-10})$$

Par analogie avec une lentille mince, il est possible de définir une ouverture numérique $f_{\#}$, donnée par le rapport de la focale de la lentille et de l'ouverture du faisceau. L'ouverture numérique d'une LBF s'écrit, en utilisant la relation IV-9 :

$$f_{\#} = \frac{f}{2R_n} = \frac{d_n}{\lambda} \quad (\text{IV-11})$$

Elle détermine la taille minimale qu'il est possible d'atteindre lorsqu'on image une source ponctuelle, égale à d_n , largeur de la dernière zone éclairée par le faisceau incident. Ainsi plus l'ouverture du faisceau sur la lentille et l'efficacité de collection sont grandes, plus la taille au foyer est petite. Dans le cas d'une source étendue, la taille de l'image est la convolution de la taille géométrique et de la limite de diffraction du faisceau. De même, une petite taille au foyer implique une profondeur de champ z_{pc} faible. Cette dernière est définie comme la longueur sur laquelle l'éclairement maximal reste supérieur ou égal à 80% de l'éclairement au foyer. Toujours par analogie avec les lentilles simples, on peut estimer cette profondeur de champ comme :

$$z_{pc} = \left(\frac{f}{R_n} \right)^2 \lambda = \frac{4d_n^2}{\lambda} \quad (\text{IV-12})$$

B. Mesure de la tache focale au foyer d'une lentille de Bragg-Fresnel.

1. Dispositif expérimental.

Le dispositif expérimental utilisé pour mesurer la taille de la tache focale au foyer d'une optique diffractive est illustré sur la figure IV-4. Les harmoniques d'ordre élevé sont générées en focalisant le laser LUCA dans un jet long (3mm) de néon ; l'énergie est limitée à 15mJ par impulsion afin d'éviter une trop forte détérioration du front d'onde du faisceau harmonique par les effets d'ionisation. La focalisation du faisceau laser (ouverture de 22mm sur lentille de 2m de focale), conduit à un éclairement laser de l'ordre de 7.10^{14} W/cm². Nous avons de plus utilisé un faisceau fondamental annulaire en plaçant une pastille de 8mm de section au centre du faisceau. Un diaphragme de diamètre interne 6mm permet de bloquer la majeure partie de l'IR tout en laissant passer le rayonnement UVX, dont la divergence est au moins deux fois plus faible que celle du fondamental (Peatross *et al.* 1994). Le faisceau UVX est alors focalisé par une lentille de Bragg-Fresnel placée à 1,25m de la source.

L'optique LBF, développée initialement pour focaliser le rayonnement d'un laser X à 21,2nm (Rus *et al.* 1997), est du type « double système » de zones réfléchissantes, décrit précédemment. La profondeur des gravures est de 57nm. La LBF est couverte d'un dépôt multicouche de Mo/Si ayant théoriquement une réflectivité de l'ordre de 35% sous une incidence de 22,5° par rapport à la normale de la surface. Le réseau de diffraction de Fresnel, pour sa part, est gravé par faisceau d'électrons dans un rectangle vertical de dimension 3×8mm² (Figure IV-4) ; grand axe horizontal des ellipses. Etant donné cette dimension

particulière, justifiée par la forme du faisceau laser X, la largeur de la dernière zone dans la dimension verticale est $d_{n,v}=0,14\mu\text{m}$, $d_{n,h}=0,39\mu\text{m}$ dans la dimension horizontale. Dans notre cas, le faisceau harmonique, qui a une ouverture estimée de 5mm au niveau de la lentille, ne recouvre pas totalement la zone gravé : la taille du dernier trait illuminé est encore de $0,39\mu\text{m}$ dans la dimension horizontale, elle passe à $0,23\mu\text{m}$ dans la dimension verticale. Pour une source ponctuelle, on devrait observer un facteur 1,7 entre les tailles de la tache au foyer de la lentille mesurées dans les dimensions horizontale et verticale. Nous nous sommes concentrés sur l'étude de l'harmonique 37 (21,6nm) pour laquelle la réflectivité de la multicouche est la plus proche de l'optimum. Etant donné la largeur de la bande passante centrée à 21,2nm de l'ordre de 2nm, on peut attendre que 2 autres ordres harmoniques soient réfléchis efficacement (H35 et H39), comme nous le verrons dans ce chapitre à partir des mesures de réflectivité.

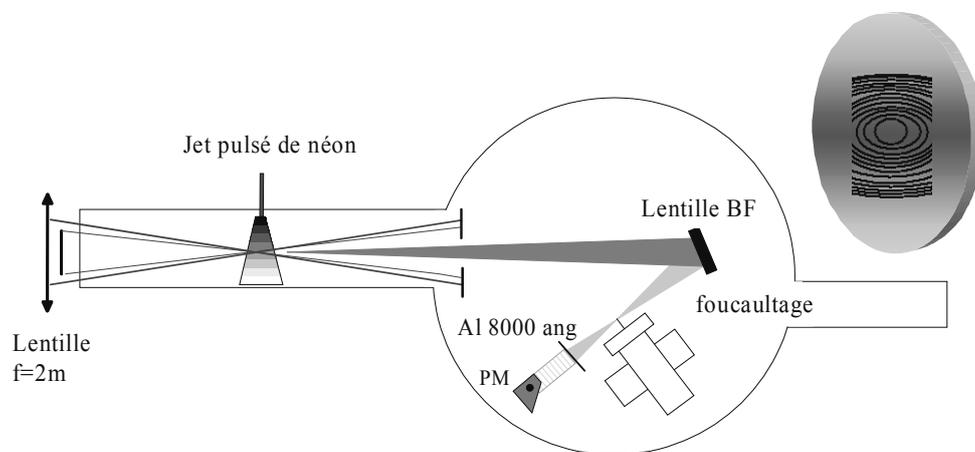


Figure IV-4 : Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la mesure de la taille au foyer d'une lentille de Bragg-Fresnel.

La lentille de Bragg-Fresnel est une optique diffractive ; l'ordre 1 de diffraction focalisé est colinéaire à l'ordre 0 non focalisé du réseau bidimensionnel. Cet ordre 0 contient l'IR et les ordres harmonique faibles, réfléchis par la première couche de l'optique, mais aussi les harmoniques 35 à 39 qui sont efficacement réfléchies par le multicouche. L'ordre 1 focalisé de l'harmonique 37 que nous cherchons à étudier est donc superposé à un fort bruit de fond. Pour réduire ce bruit, nous avons placé un filtre d'aluminium de 8000\AA d'épaisseur devant le détecteur (photomultiplicateur Phillips 16F). Ce filtre n'a pas été placé avant la lentille afin d'éviter toute dégradation du front d'onde du faisceau harmonique, qui se traduirait par un élargissement de la tache au foyer de l'optique.

La taille au foyer de la lentille de l'harmonique 37 est mesurée par une technique de Foucaultage. Cette technique classique de l'optique consiste à déplacer progressivement une lame dans le faisceau au niveau du foyer et à mesurer l'énergie transmise. Dans notre cas, en raison du fort bruit de fond dû à l'ordre 0, il est impossible d'utiliser une simple lame. Afin de

séparer de l'ordre 0 la contribution de l'ordre 1 focalisé, il est nécessaire de la remplacer par une fente, dont la largeur a été fixée à $40\mu\text{m}$. Outre le fait que trois longueurs d'ondes harmoniques sont réfléchies efficacement, compliquant ainsi la mesure, les ordres 35, 37 et 39 sont focalisées en trois foyers distincts F_{35} , F_{37} et F_{39} , respectivement distants de 52, 55 et 58mm de la surface de la lentille (Figure IV-5).

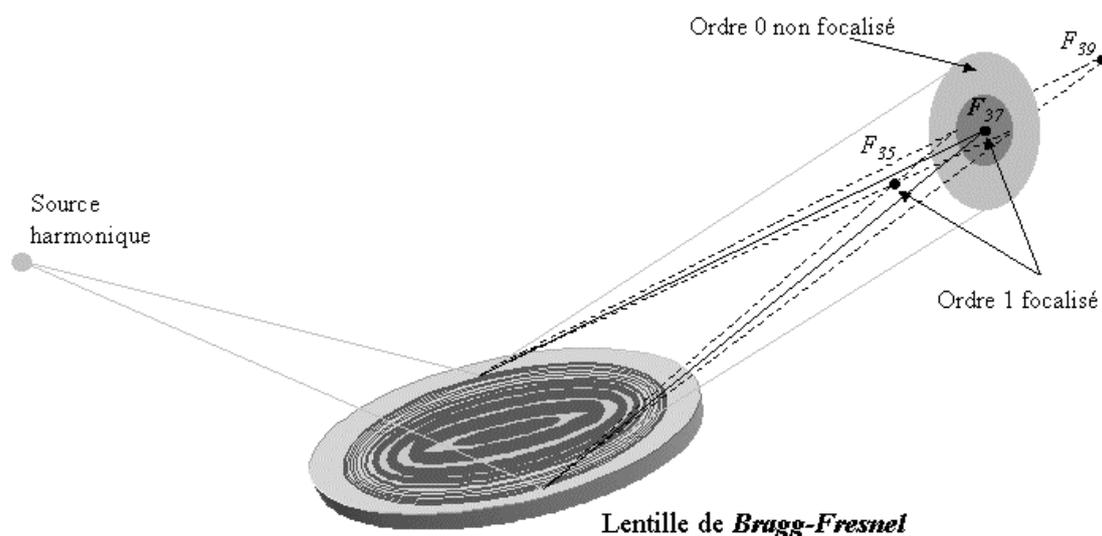


Figure IV-5 : Schéma de la focalisation par une LBF des harmoniques 35, 37 et 39 en trois foyers distincts F_{35} , F_{37} et F_{39} ainsi que de la distribution d'éclairement dans le plan focal de H37 focalisé.

2. Principe de la mesure.

La fente de $40\mu\text{m}$ utilisée pour la mesure de la taille au foyer de la LBF est montée sur un ensemble de trois platines motorisées, permettant de la déplacer dans le faisceau selon trois directions, respectivement X horizontal, Y vertical et Z axe de propagation. Le pas minimum des déplacements selon X et Y est $0,44\mu\text{m}$ alors qu'il est de $0,78\mu\text{m}$ selon Z. Le signal transmis en fonction de la position de la lame est mesuré avec un photomultiplicateur polarisé à -3kV , mis en forme par un circuit intégrateur et visualisé sur un oscilloscope LeCroy 9362. La séquence déplacement – acquisition des données est automatisée, pilotée par un ordinateur qui communique avec les translations motorisées et l'oscilloscope par bus GPIB. Pour une position Z donnée, on démarre avec la lame positionnée en X par exemple. L'oscilloscope acquiert typiquement 20 traces avant de transférer le signal $S(X)$ moyen à l'ordinateur. La mesure de $(X, S(X))$ est alors répétée en ajoutant un pas δx . Lorsque la fente est déplacée au

voisinage d'un foyer harmonique, la mesure inclut toujours la contribution de l'ordre 0 non focalisé ainsi que l'ordre 1 focalisé des harmoniques adjacentes, ainsi que l'illustre la figure IV-6a. Lorsque la fente est hors des faisceaux, ceux-ci sont occultés par une des deux lames constituant la fente. A mesure que le signal est transmis à travers de la fente, on voit apparaître l'ordre 0 de la LBF, puis la contribution des ordres harmoniques focalisés avant et après le foyer que l'on veut étudier, et enfin la contribution de l'harmonique focalisée que l'on étudie. Ce signal qui croît par « paliers » jusqu'à un maximum lorsque la première lame constituant la fente découvre le faisceau, diminue de manière symétrique lorsque la seconde lame recouvre à son tour le faisceau total. Nous avons concentré notre étude sur le dernier palier du signal maximum qui correspond au foyer que l'on cherche à mesurer ; les pas δX (δY) sont de $0,44\mu\text{m}$. Le signal brut ainsi enregistré est présenté en Figure IV-6b.

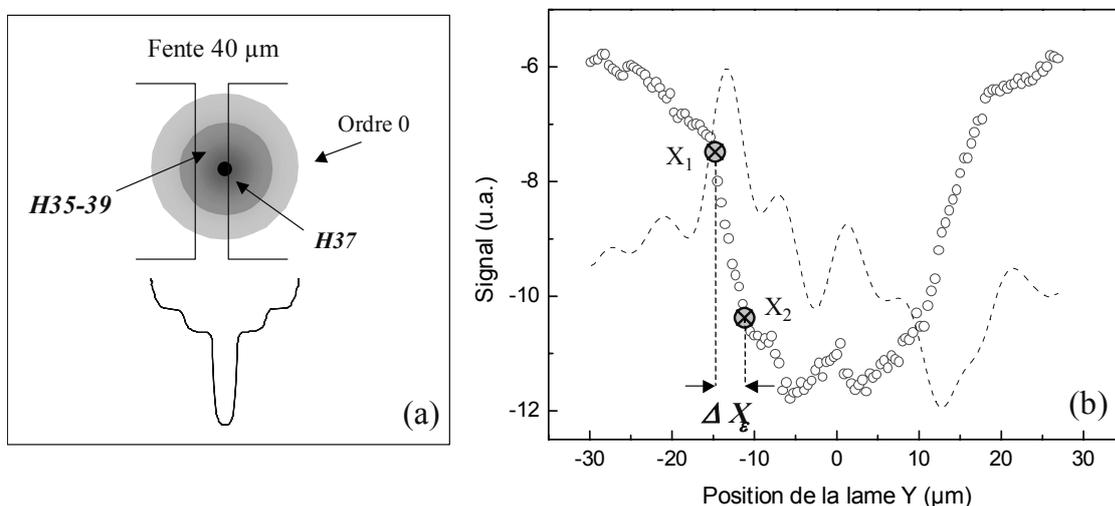


Figure IV-6 : (a) Schéma du signal transmis par la fente. (b) Profil d'une coupe brute selon Y (cercle) et sa dérivée (pointillé).

La méthode généralement utilisée pour caractériser la distribution spatiale d'éclairement au foyer d'une lentille consiste à déterminer le profil radial $I(r,z)$ pour différentes positions z . Dans le cas où la distribution d'éclairement présente une symétrie cylindrique autour de l'axe Z , on obtient $I(r,z)$ par une inversion d'Abel. On peut alors déterminer la variance $w(z)$ de la distribution d'éclairement autour de la position du foyer et déterminer la taille au foyer conformément à l'équation IV-1. Cette méthode n'est cependant pas applicable dans notre cas. L'inversion d'Abel utilise la dérivée seconde du signal enregistré ; la moindre fluctuation de signal entraîne de fortes discontinuités dans la dérivée seconde mais aussi première sans aucune signification physique. L'effet de ces fluctuations

sur la dérivée première et a fortiori sur la seconde peut être observée sur la Figure IV-6b (en trait pointillé).

Le dépouillement des données brutes est effectué en utilisant la méthode exposée dans (LeDéroff 1999), qui dispense du calcul de la dérivée du signal, très sensible aux diverses fluctuations. Cette technique, appliquée de façon systématique à chaque profil $S(X)$, consiste à déterminer le plus petit intervalle $[X_1, X_2]$ qui renferme une fraction ε de l'énergie totale E contenue dans la tache de focalisation. En Figure IV-6b sont représentées les bornes X_1 et X_2 telles que : $|S(X_1) - S(X_2)| = \varepsilon |E_{\max} - E_{\min}|$, où $|E_{\max} - E_{\min}|$ est l'énergie totale dans l'ordre focalisé. Afin de simplifier l'analyse, nous modélisons la distribution de l'éclairement harmonique par une fonction Gaussienne à deux dimensions, normalisée :

$$I(x, y, z) = \frac{2}{\pi w_x(z) w_y(z)} \exp\left(-\frac{2x^2}{w_x^2(z)}\right) \exp\left(-\frac{2y^2}{w_y^2(z)}\right) \quad (\text{IV-13})$$

Il est important de préciser que ceci ne permet bien évidemment pas de qualifier le faisceau comme Gaussien, puisque aucune condition n'est imposée à la phase spatiale du champ¹. Le signal transmis à travers la fente, s'écrit :

$$S\left(\frac{\Delta X_\varepsilon}{2}\right) - S\left(-\frac{\Delta X_\varepsilon}{2}\right) = \text{erf}\left(\frac{\Delta X_\varepsilon}{\sqrt{2} w_x(z)}\right) = \varepsilon \quad (\text{IV-14})$$

Dans l'analyse que nous avons effectuée nous avons fixé ε égal à 70%, ce qui conduit à partir de la relation IV-14 à :

$$\Delta X_\varepsilon = 1,04 w_x(z) \quad (\text{IV-15})$$

La même procédure, automatisée, est utilisée indépendamment dans la dimension Y de la tache focale pour déterminer ΔY_ε et $w_y(z)$. L'incertitude sur ΔX_ε , ΔY_ε est de $\pm 0,4 \mu\text{m}$. La détermination de cette incertitude est développée en Annexe 1.

3. Mesure de la taille du faisceau harmonique au foyer de la LBF.

En figure IV-7a sont présentés les profils $S(Y)$ obtenus dans une coupe verticale du faisceau harmonique au foyer de la LBF avec une fente de $40 \mu\text{m}$, d'une part au foyer de la

¹ Un faisceau est qualifié de Gaussien lorsque le champ présente une distribution Gaussienne en amplitude *et* en phase.

LBF, d'autre part à une distance $z=6,6\mu\text{m}$ avant le foyer. Le profil est très régulier, avec une légère asymétrie entre les deux côtés de la coupe. Cette asymétrie est due au fait que les deux lames constituant la fente ne sont pas alignées dans le même plan avec une précision meilleure que $5\mu\text{m}$. Les lames n'étant pas parfaitement coplanaires, elles coupent le faisceau en deux positions z différentes sur l'axe, ce qui explique que la pente puisse être plus raide d'un côté que de l'autre, ou que l'épaule dans la pente soit plus important d'un côté que de l'autre. L'analyse en énergie donne pour $\varepsilon=70\%$; $\Delta Y_\varepsilon=2,4\pm 0,4\mu\text{m}$: 70% de l'énergie harmonique totale focalisée est contenue dans une tache de $2,4\mu\text{m}$ de diamètre. Le profil en Figure IV-7a est identique à celui observé dans (Schnürer *et al.* 2000), où les auteurs ont mesuré pour un faisceau à 13nm une taille au foyer d'une zone de Fresnel en transmission, de diamètre $600\mu\text{m}$ et de focale 1cm ($d_n=0,65\mu\text{m}$). Ils ont estimé une taille au foyer $w_0=1,2\mu\text{m}$ en supposant une distribution d'éclairement Gaussienne. Signalons toutefois que la pente du profil analysé ne contient que 3 points, ce qui implique une très forte incertitude de mesure qui n'est malheureusement pas précisée. Dans le cas de la seconde coupe en Figure IV-7a, effectuée environ $6,6\mu\text{m}$ avant le foyer, la pente est clairement moins raide, avec en plus un épaulement dans la pente (vers $Y\sim 12\mu\text{m}$). La largeur du faisceau contenant 70% de l'énergie est alors ΔY_ε de $5,4\pm 0,4\mu\text{m}$, soit deux fois plus large que pour la coupe au foyer. Cet élargissement rapide du faisceau reflète la très courte profondeur de champ. Elle est théoriquement de $10\mu\text{m}$ ($\pm 5\mu\text{m}$) dans nos conditions de focalisation (IV-12).

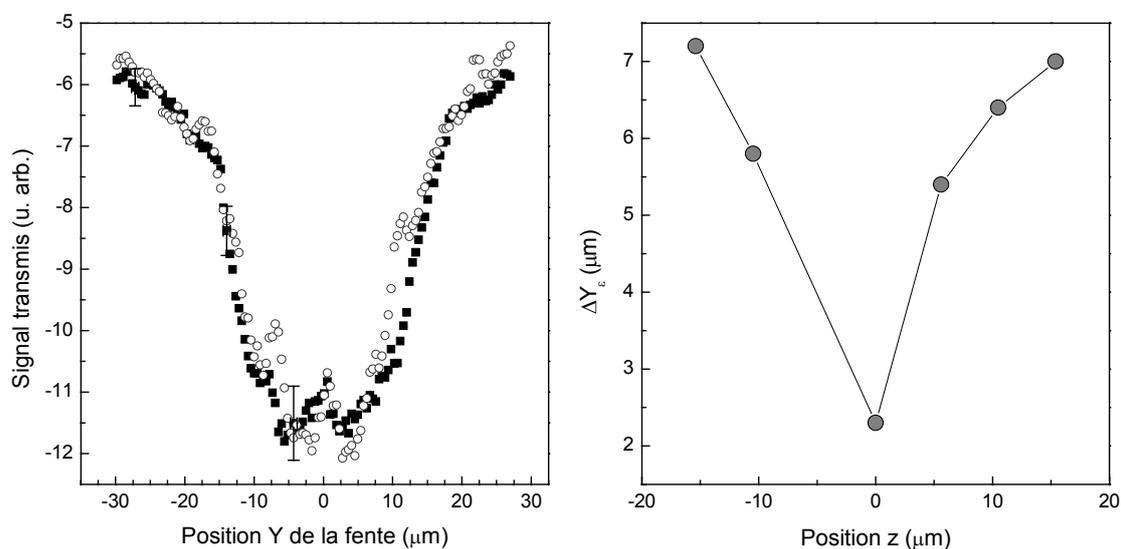


Figure IV-7 : (a) Coupe verticale de l'harmonique 37 au foyer de la LBF (carré) et $6,6\mu\text{m}$ avant le foyer (cercle). (b) Variation de la taille ΔY_ε en fonction de la position axiale Z.

Nous avons ensuite étudié la variation de la taille du faisceau en fonction de la position axiale Z en effectuant des pas δZ de l'ordre de $5\mu\text{m}$, (Figure IV-7b). On observe un élargissement de la taille du faisceau d'un facteur de l'ordre 2,5 pour une position de coupe de $Z=5\mu\text{m}$ avant le foyer : la taille du foyer a doublé sur $4\mu\text{m}$, ce qui est en accord avec la profondeur de champ théorique dans les limites de l'incertitude expérimentale.

Il est intéressant d'étudier plus en détail la distribution d'éclairement sur l'axe Z d'une LBF. Sur l'axe de focalisation ($r=0$), $I(z)$ a une forme relativement simple donnée par (Michette *et al.* 1993) :

$$I(z) = I_0 \frac{\sin^2\left(\frac{\pi n R_1^2}{\lambda z}\right)}{\cos^2\left(\frac{\pi R_1^2}{2\lambda z}\right)} \quad (\text{IV-16})$$

Cette distribution d'éclairement présente des maxima importants lorsque $\frac{\pi R_1^2}{2\lambda z} = (2p+1)\frac{\pi}{2}$,

c'est à dire pour $z = \frac{f}{m}$ où $m=2p+1$ sont les différents ordres de diffraction focalisés

introduits au §2.2. Il est nécessaire d'effectuer un développement limité à proximité de la position f/m du foyer, le dénominateur de la relation IV-16 étant nul pour $z=f/m$. On obtient alors, au premier ordre, $I(z)\Big|_{z=\frac{f}{m}} \approx 4n^2 I_0$, et cela quel que soit l'ordre de diffraction m de la

LBF considéré. Le maximum d'éclairement dépend donc uniquement du nombre de gravures illuminées par le faisceau incident. Nous avons représenté en Figure IV-8, la distribution axiale de l'éclairement pour le premier ordre de diffraction de la LBF que nous avons utilisée pour nos conditions expérimentales ($n=5360$, $f=5,5\text{cm}$, $\lambda=21,6\text{nm}$).

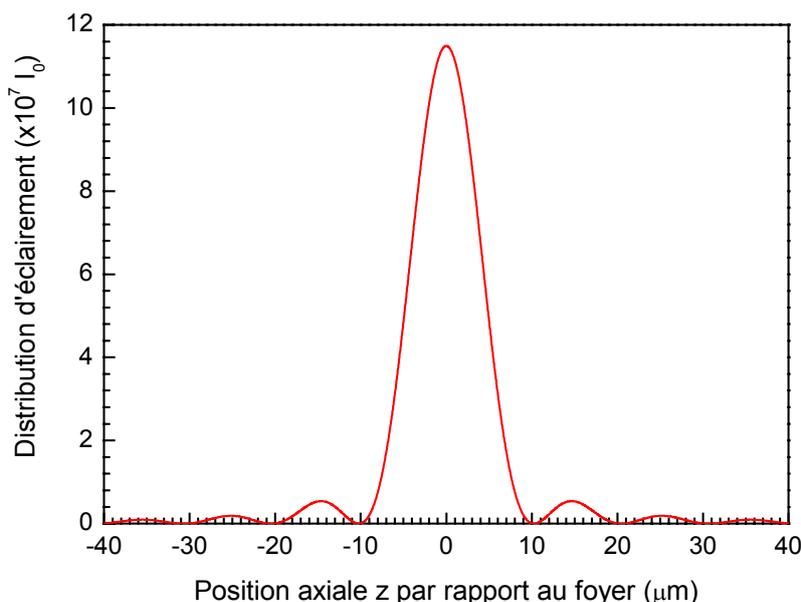


Figure IV-8 : Distribution d'éclairement théorique selon l'axe Z par rapport au foyer.

La courbe en Figure IV-8 permet de comprendre l'élargissement du faisceau sur $\pm 10\mu\text{m}$. L'éclairement sur l'axe au foyer z_0 est maximal et diminue d'un facteur 20 pour une position $z_0 \pm 15\mu\text{m}$: ceci traduit nécessairement, en supposant une redistribution uniforme de l'éclairement hors axe, une augmentation de la section du faisceau d'un facteur 4,5. De plus il existe des positions $z=z_0 \pm 10\mu\text{m}$ pour lesquelles l'éclairement sur l'axe est quasi nul, résultat d'interférences destructives ; le faisceau devrait alors présenter une forme annulaire. Ceci doit se traduire par un épaulement dans le profil de coupe obtenu en translatant une fente dans le faisceau. Cette variation particulière de l'éclairement sur l'axe, montrant une transition continue et « périodique » d'un profil centré à annulaire, permet d'expliquer, tout du moins qualitativement l'épaulement observé sur le second profil de coupe ($Y \sim 12\mu\text{m}$) présenté en Figure IV-7a. Le rapport des éclairements théoriques sur l'axe en z_0 et en $z_0 - 6,6\mu\text{m}$ est de l'ordre de 5, qui traduit une augmentation de la taille du faisceau d'un facteur 2,25. Cet élargissement est observé expérimentalement dans les limites de l'incertitude de mesure (Figure IV-7b). L'augmentation de plus d'un facteur 3 de la taille du faisceau sur une distance z de $15\mu\text{m}$ est compatible avec la prédiction théorique.

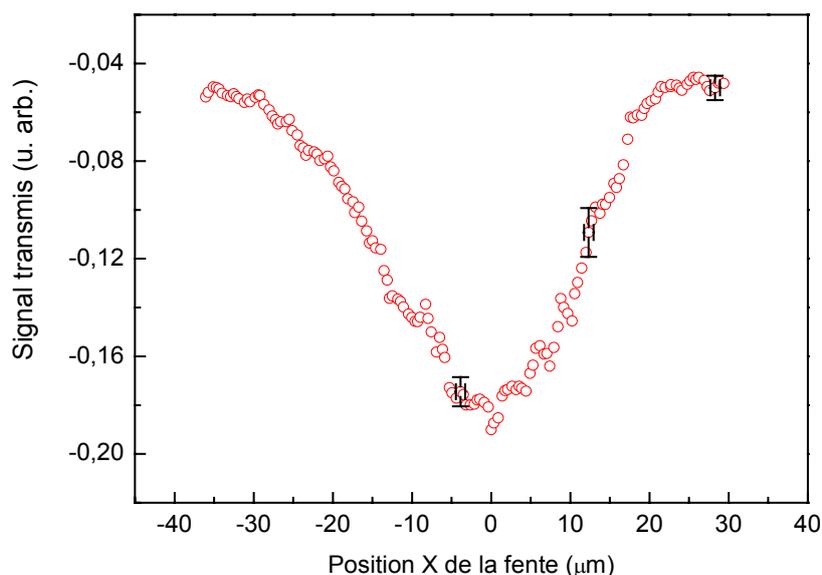


Figure IV-9 : Coupe horizontale de l'harmonique 37 au foyer de la LBF.

Nous avons également déterminé la taille de la tache harmonique selon la direction X en utilisant la même méthode d'analyse. Etant donné que la zone gravée dans cette direction n'est large que de 3mm, la largeur de la dernière zone est de $0,39\mu\text{m}$, soit deux fois plus large que la gravure en Y (grand axe des gravures horizontal). La figure IV-9 présente une coupe effectuée avec la fente de $40\mu\text{m}$ selon la direction X, à la position supposée du foyer de

l'harmonique 37. On observe tout d'abord que la largeur du « plateau » correspondant à la convolution de la taille du faisceau avec la largeur de la fente est bien moins grande, ce qui est un premier indice d'une taille au foyer plus grande. L'analyse à 70% de l'énergie donne une largeur $\Delta X_e = 4,8 \pm 0,4 \mu\text{m}$, ce qui correspond à une tache deux fois plus large que celle mesurée en Y. Il n'est cependant pas possible d'expliquer cette différence de taille uniquement par la différence de largeur des dernières zones horizontale et verticale. Cette explication n'aurait de sens que pour une tache limitée par la diffraction, dont la taille est donnée par les dimensions des dernières zones. Il est donc probable que nous n'ayons pas réussi à « accrocher » le foyer pour cette coupe horizontale.

La très courte profondeur de champ de ce type de lentille a déjà été mise en évidence à l'aide des coupes en Y. Nous avons donc étudié la variation de ΔX_e sur une plus large gamme de valeurs de Z, avec un pas d'échantillonnage moins fin, afin d'observer deux foyers successifs prévus par la relation IV-10. La figure IV-10 montre deux foyers successifs attribués à l'harmonique 37 et 39. La pas en Z étant assez grand, il est probable que les plus petites tailles ne sont pas les tailles minimales. Cependant on observe clairement deux positions z_1 et z_2 pour lesquelles ΔX_e est petit par rapport aux autres positions Z. Ces deux positions peuvent être assimilées aux foyers respectifs de l'harmonique 37 et 39. On mesure expérimentalement une séparation de 3,5mm entre les deux foyers successifs, de l'ordre de celle donnée théoriquement par la formule IV-10 (3mm).

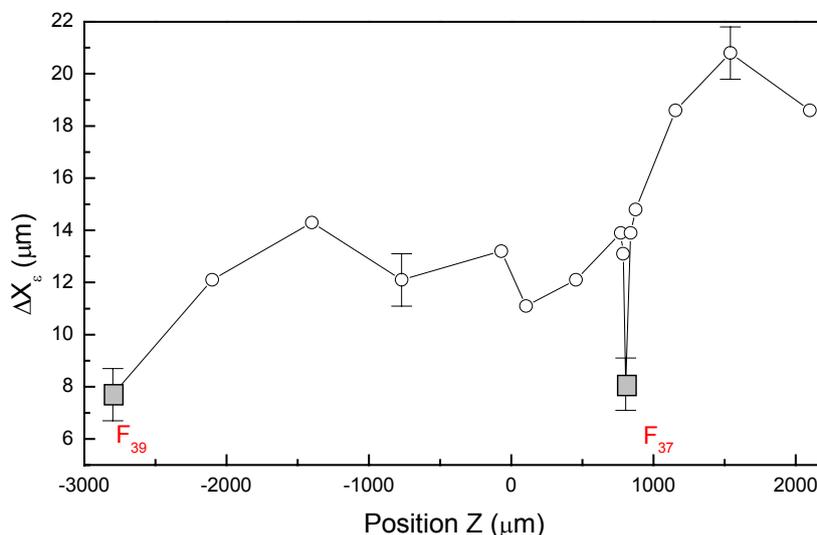


Figure IV-10 : Variation de la taille ΔX_e en fonction de la position Z (cercle). Observation de deux foyers successifs (carré).

Finalement, les dimensions mesurées pour une tache au foyer de la LBF contenant 70% de l'énergie totale du faisceau harmonique sont $\Delta X_e \times \Delta Y_e = 4,8 \times 2,4 \mu\text{m}^2$ ($\pm 0,4 \mu\text{m}$ dans chaque dimension). Les dimensions attendues théoriquement, pour une source ponctuelle et une focalisation limitée par la diffraction, sont de $0,8 \times 0,5 \mu\text{m}^2$. Les valeurs que nous avons mesurées sont donc 4 à 6 fois plus grandes que celles attendues, compte tenu de l'incertitude de mesure. Cet élargissement de la taille du faisceau au foyer de la LBF peut avoir différentes causes, difficiles à quantifier.

Cet élargissement peut être attribué aux caractéristiques de la source harmonique :

- (i) les plus petites dimensions atteignables sont obtenues dans le cas d'un faisceau limité par la diffraction, donc une source ponctuelle. Dans notre cas, la source harmonique a une dimension finie estimée à environ $60 \mu\text{m}$ pour l'harmonique 13 (Le Déroff *et al.* 1998). Il en est de même pour l'harmonique 37, ce qui implique que l'on image cette source avec un facteur de réduction (22 dans notre cas). Il est difficile de donner une estimation de la taille de la source puisqu'il n'existe pas de mesure du facteur M^2 à cette longueur d'onde. Si on suppose que les mesures effectuées pour l'harmonique 13 sont transposables au cas de l'harmonique 37, la taille de la source peut être estimée grossièrement à $40 \mu\text{m}$. L'image de la source a alors une section de $2 \mu\text{m}$.
- (ii) l'ionisation du milieu peut affecter la forme du front d'onde de l'impulsion harmonique, particulièrement dans les conditions de milieu long et haute pression dans lesquelles nous avons travaillé afin d'optimiser le flux.

Les autres causes d'élargissement peuvent être attribuées à l'optique diffractive et à la technique de mesure :

- (i) il est actuellement impossible d'un point de vue technologique, de réaliser parfaitement la structure Bragg-Fresnel théorique qui permet de focaliser le rayonnement provenant d'un point S_1 en S_2 . En effet cette structure issue des ellipses isophases (§I.1), devrait avoir des caractéristiques 3D complexes qu'il n'est pas possible de graver en volume pour l'instant.
- (ii) les légers écarts entre l'angle de Bragg pour optimiser le pouvoir réflecteur de la multicouche et l'angle d'incidence sur la lentille pour lequel les gravures ont été optimisées peuvent élargir la taille du faisceau au foyer de la lentille.
- (iii) compte tenu de la faible profondeur de champ, l'échantillonnage en position selon Z n'était peut être pas assez fin.

4. Estimation de l'éclairement atteint à 21,6nm.

Maintenant que nous connaissons la taille réelle du faisceau focalisé par la LBF, il reste à déterminer la réflectivité et l'efficacité expérimentale de diffraction de la lentille pour estimer correctement l'éclairement atteint à 21,6nm.

4.1 Réflectivité de la LBF.

Comme nous l'avons déjà précisé, la LBF que nous avons testé a été conçue initialement pour focaliser un faisceau laser X à 21,2nm, donc monochromatique. Nous avons mesuré la réflectivité du dépôt multicouche de Mo/Si à l'aide du rayonnement harmonique en plaçant une enceinte contenant la LBF ainsi qu'un détecteur UVX après le spectromètre. La réflectivité de la multicouche est obtenue en comparant un spectre d'émission enregistré avant réflexion par la LBF et un spectre obtenu après réflexion par l'optique. Afin d'enregistrer ces deux spectres dans les mêmes conditions de génération, nous avons monté le détecteur (photomultiplicateur 16F) sur une rotation motorisée, qui permet de contrôler sous vide sa position. On passe donc très facilement d'une mesure directe du spectre « incident », en plaçant le détecteur avant la LBF, à une mesure du spectre après réflexion (Figure IV-11a). Le rapport des deux spectres donne la réflectivité de l'optique multicouche, illustrée par la Figure IV-11b. La réflectivité d'une optique multicouche dépend principalement de trois paramètres :

- (i) le choix des matériaux est fait de sorte que la différence entre les indices des deux matériaux est la plus importante possible, assurant ainsi une meilleure réflectivité aux interfaces. Le matériau lourd ne doit cependant pas être trop absorbant.
- (ii) le paramètre de division, défini comme le rapport de l'épaisseur de la couche composée de l'élément lourd par l'épaisseur de la bicouche.
- (iii) le nombre de bicouches déposées permet elle aussi d'optimiser la réflectivité de l'optique.

La courbe de réflectivité expérimentale de la multicouche constituant la LBF est en bon accord avec la courbe théorique à partir de 32nm. Pour des longueurs d'ondes plus élevées le signal réfléchi est trop faible pour avoir une mesure précise. L'incertitude sur la mesure varie de 15% à 40% selon la gamme de longueur d'onde et le niveau du signal réfléchi par la LBF. La réflectivité de la lentille n'est donc que de 6,5% à 21,6nm (H37) alors qu'elle est théoriquement de 32% à 21,2nm, longueur d'onde à laquelle le dépôt a été optimisé. De plus on observe que les harmoniques 35 et 39 sont elles aussi réfléchies plus ou moins efficacement, l'harmonique 35 étant réfléchi à 2,5% et la 39 à 6%. La présence de ces

longueurs d'ondes supplémentaires complique la mesure de la taille du faisceau au foyer de la lentille, comme nous l'avons expliqué précédemment. Une optimisation du dépôt multicouche à la longueur d'onde de l'harmonique étudiée (21,6nm) permettrait bien sûr d'augmenter l'éclairement atteint au foyer de la LBF mais aussi d'être plus sélectif spectralement.

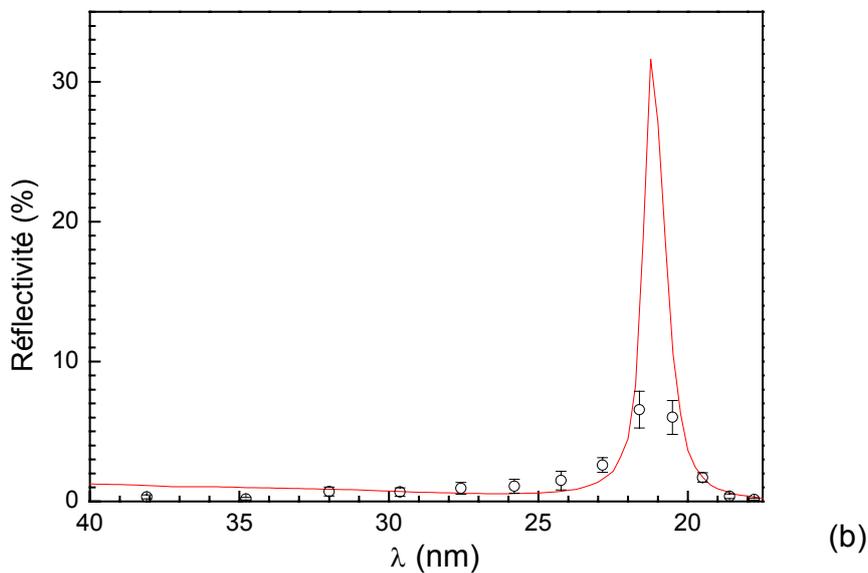
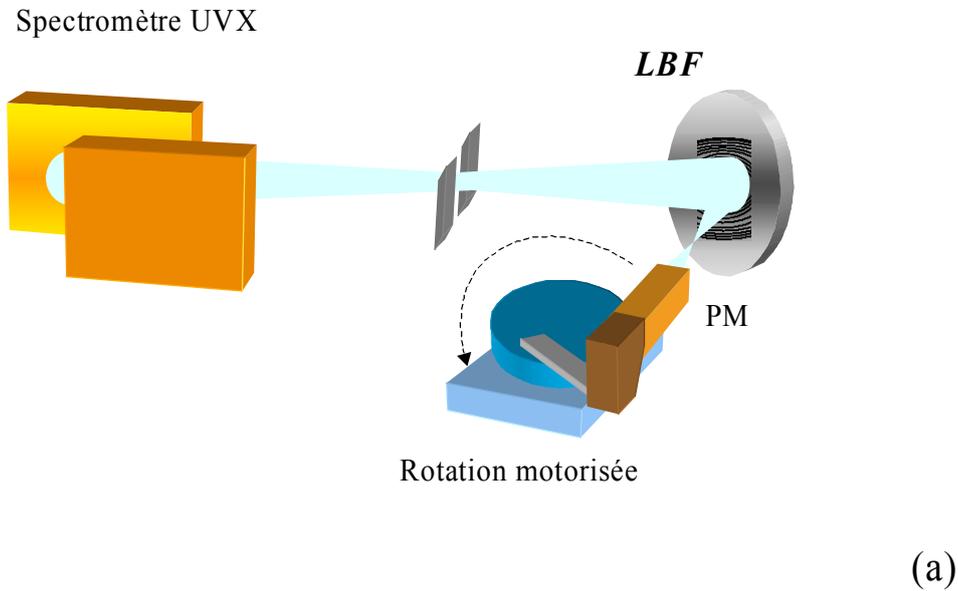


Figure IV-11 : (a) Schéma du principe de la mesure de réflectivité de la LBF. (b) Courbe de réflectivité en fonction de la longueur d'onde mesurée (cercle) et théorique (trait plein).

4.2 Efficacité de diffraction dans l'ordre 1 de la LBF.

Nous définissons l'efficacité de diffraction dans l'ordre 1 de la LBF pour l'harmonique 37 comme le rapport de l'énergie contenue dans la tache focalisée et de l'énergie réfléchie (ordre 0 + ordre 1). Dans notre étude, les conditions expérimentales de génération dans le néon sont telles que les harmoniques 35 à 41 sont générées dans le plateau et ont par conséquent des amplitudes équivalentes. On notera respectivement $A_{35} \sim A_{37} \sim A_{39}$ les flux harmoniques incidents sur la LBF. La mesure du signal S total réfléchi par la LBF, comprenant les ordres 0 et 1 de diffraction des harmoniques les plus efficacement réfléchies (35 – 37, les autres étant négligées) est effectuée en retirant totalement la fente du faisceau (ce signal est représenté par la figure A-1 en Annexe pour $X=0$; $S=0,22 \pm 0,03$). Ce signal S est la somme des contributions des différentes harmoniques :

$$S = \alpha_{35} A_{35} + \alpha_{37} A_{37} + \alpha_{39} A_{39} \quad (\text{IV-17})$$

avec $A_i = A_i^0 + A_i^1$, où i est l'ordre de l'harmonique et 0, 1 définissent respectivement les ordres 0 et 1 de la LBF. Les coefficients α_i sont les réflectivités de la LBF mesurées aux longueurs d'onde λ_i en Figure IV-11b (en%) :

$$S = \sum_{35}^{39} \alpha_i A_{37} = 15 A_{37} = 15 (A_{37}^0 + A_{37}^1) \quad (\text{IV-18})$$

En figure IV-7a, on mesure S' , le signal de l'harmonique 37 contenu dans la tache focalisée :

$$S' = \alpha_{37} A_{37}^1 = 6,5 A_{37}^1 \quad (\text{IV-19})$$

L'efficacité de diffraction dans l'ordre 1 de l'harmonique 37 est définie par la relation :

$$eff = \frac{A_{37}^1}{A_{37}^0 + A_{37}^1} \quad (\text{IV-20})$$

En couplant les relations IV-18, IV-19 et IV-20, on obtient une efficacité de diffraction $eff=30 \pm 4\%$. Cette valeur est proche de l'efficacité maximale de diffraction qu'il est possible d'obtenir avec une telle lentille diffractive. Si d est la période de la LBF (largeur g de la zone en relief, d-g de la zone en creux, également réfléchissante), A la fraction de champ incident réfléchi par chacune des zones, l'efficacité théorique de diffraction dans l'ordre 1 est donnée par (Michette *et al.* 1993) :

$$eff_{théo} = \frac{4A_1^2 \sin^2 \left(\pi \frac{g}{d} \right)}{\pi^2} \quad (\text{IV-21})$$

L'efficacité maximale de diffraction qu'il est possible d'obtenir est de 40% lorsque $g/d=1/2$ et $A=1$.

4.3 Eclairement atteint et perspectives.

Compte tenu des mesures absolues de photons que nous avons effectuées au chapitre III, nous pouvons estimer avec précision l'éclairement UVX qu'il est possible d'atteindre avec la lentille diffractive. La taille du faisceau, la réflectivité et l'efficacité de diffraction de la LBF ayant été établies, il reste à déterminer la durée de l'impulsion harmonique. Des mesures récentes ont confirmé la courte durée des impulsions harmoniques, inférieure à la durée du laser générateur (Toma *et al.* 2000). Les auteurs donnent une durée de 10fs pour l'harmonique 15 générée dans l'argon par une impulsion fondamentale de 40fs. On peut donc supposer en première approximation (théorie des perturbations $\tau_q = \tau_1/\sqrt{q}$) que l'harmonique 37 est plus de deux fois plus courtes, donc de l'ordre de 6,5fs. Une mesure de durée n'est cependant pas nécessaire dans notre cas, car la lentille est assimilable à un réseau de diffraction qui va étirer temporellement l'impulsion. La durée de l'impulsion réfléchiée et focalisée par la LBF est directement proportionnelle au nombre de zones $n/2$ qui diffractent les rayons incidents en phase. La durée de l'impulsion harmonique focalisée peut alors être estimée à $\tau_{37}=195\text{fs}$ par la formule $\tau_q = \frac{n}{2} \frac{2,7}{q}$, où 2,7fs est la période optique à 800nm.

Le nombre de photons mesuré dans les conditions optimales de génération est de 4.10^7 photons par impulsion. La tache elliptique au foyer de la LBF de dimension $4,8 \times 2,4$ contient 70% de l'énergie totale de l'harmonique (70% de A_{37} dans $s=9\mu\text{m}^2$). L'éclairement pic atteint au foyer de la lentille, compte tenu de la réflectivité R de l'optique et de son efficacité de diffraction ϵ_{ff} , est donné par :

$$I_q = 2 \frac{N_q \times E_q \times 1.6.10^{-19}}{s \times \tau_q} \times 0,7 \times R \times \epsilon_{ff} \quad (\text{IV-22})$$

où N_q et E_q sont respectivement le nombre de photons et l'énergie de photon de l'harmonique d'ordre q . L'éclairement atteint dans cette expérience de focalisation par LBF de l'harmonique 37 à 21,6nm est donc de l'ordre de $I_{37}=5.10^8\text{W/cm}^2$.

Il est toutefois bon de signaler que cet éclairement pic n'est qu'une borne inférieure de ce qu'il est possible de réaliser ; en effet, la tache au foyer de la LBF est fortement elliptique, probablement à cause d'un problème d'échantillonnage de mesure. On peut supposer une tache circulaire au foyer de la LBF de diamètre $2,4\mu\text{m}$. De plus le dépôt multicouche étant optimisé à la longueur d'onde de 21,2nm et non à celle de l'harmonique 37, on doit pouvoir

obtenir une réflectivité de l'ordre de 40% à 21,6nm en optimisant les paramètres de dépôt. L'éclairement atteignable dans ces conditions à 21,6nm avec le rayonnement harmonique serait alors de l'ordre $I_{37}=7.10^9\text{W/cm}^2$.

Cette extrapolation peut être poussée plus loin en considérant une longueur d'onde plus grande, pour laquelle le nombre de photons harmoniques générés est plus important. Considérons par exemple l'harmonique 21 générée dans l'argon pour laquelle nous avons mesuré plus de 10^9 photons par impulsion. L'hypothèse de départ est que l'on conserve les caractéristiques de focalisation de la LBF, donc sa focale et la taille de la dernière zone éclairée fixée à $0,23\mu\text{m}$, pour conserver une tache au foyer circulaire de diamètre $2,4\mu\text{m}$. La taille du dernier trait étant proportionnelle à la longueur d'onde λ (relation IV-9), il est nécessaire d'augmenter le nombre de gravures dans le même rapport que la longueur d'onde. Le nombre de gravures nécessaires pour conserver $d_n=0,23\mu\text{m}$ à cette longueur d'onde $\lambda'=38,1\text{nm}$ est $n'=\frac{\lambda'}{\lambda}n \approx 9630$ où $\lambda=21,2\text{nm}$, $n=5360$. L'étirement temporel de l'impulsion harmonique est alors plus important, atteignant $\tau_{21}=600\text{fs}$. Le dépôt multicouche de la lentille doit également être changé puisque le couple Mo/Si est peu réfléchissant dans cette gamme de longueur d'onde. Il est toutefois théoriquement possible d'obtenir des réflectivités de plus de 66% à 38,1nm en utilisant un dépôt multicouche de Sc/Si. L'éclairement qui devrait alors théoriquement être atteint est $I_{21}=2.10^{11}\text{W/cm}^2$.

L'avantage des LBF est la possibilité de focaliser fortement le rayonnement incident en dehors de l'axe d'incidence tout en effectuant une sélection spectrale. Les principaux problèmes de ce type de lentille sont d'une part l'allongement temporel induit par le nombre de traits éclairés et d'autre part la faible réflectivité des optiques dans la gamme de longueur d'onde UVX. L'augmentation de l'éclairement atteignable à plus grande longueur d'onde est également étroitement liée au progrès des dépôts multicouche et à l'association de nouveaux couples de métaux. L'allongement temporel étant d'autant plus important que les longueurs d'onde sont grandes ; il semble que ces optiques ne soient pas plus efficaces que les miroirs sphériques multicouche. Par contre les LBF semblent être indiquées pour les plus courtes longueurs d'ondes.

Ces lentilles, très utilisées dans des techniques d'imagerie à haute résolution spatiale comme la microscopie X (Erko *et al.* 1996), peuvent être utilisées pour la mesure du front d'onde du rayonnement incident en adaptant la technique de Shack – Hartmann, bien connue dans le visible, dans le domaine UVX. Nous présentons brièvement la première tentative d'application de cette technique à la caractérisation du front d'onde harmonique.

C. Tentative de mesure directe du front d'onde harmonique.

1. Principe de la méthode.

La méthode que nous avons utilisée dans la tentative de mesure du front d'onde du rayonnement harmonique est basée sur le principe de Shack – Hartmann transposé au domaine UVX. Elle consiste à analyser la surface d'onde du rayonnement à l'aide d'une matrice de lentilles et d'un capteur CCD placé au plan focal de la matrice.

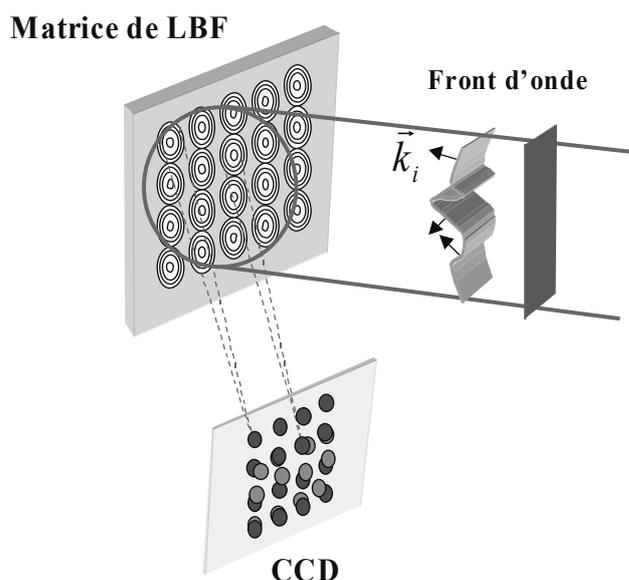


Figure IV-12: Principe de l'échantillonnage d'une surface d'onde par la technique de Shack–Hartmann.

La figure IV-12 illustre ce principe de fonctionnement. La matrice est constituée dans notre cas d'un réseau de lentilles de Bragg – Fresnel conçues selon le principe présenté précédemment. Cette matrice de LBF échantillonne la surface d'onde de la manière suivante : chaque lentille LBF_j de la matrice focalise une partie ΔS_j du front d'onde en un point donné du plan focal (foyer). Localement, la surface ΔS_j peut être assimilée à une onde plane de vecteur d'onde \vec{k}_j , que l'on peut déterminer à partir de la position du foyer. En effet, lorsque le front d'onde incident est plan, les foyers sont régulièrement espacés sur le détecteur, puisque tous les vecteurs d'ondes locaux arrivent sous le même angle d'incidence sur les lentilles. Par contre, lorsque la surface d'onde présente une courbure, les vecteurs d'ondes locaux sont réfléchis et focalisés sous des angles différents par les LBF, ce qui se traduit par un déplacement dans le plan focal. On déduit \vec{k}_j de ce déplacement des foyers.

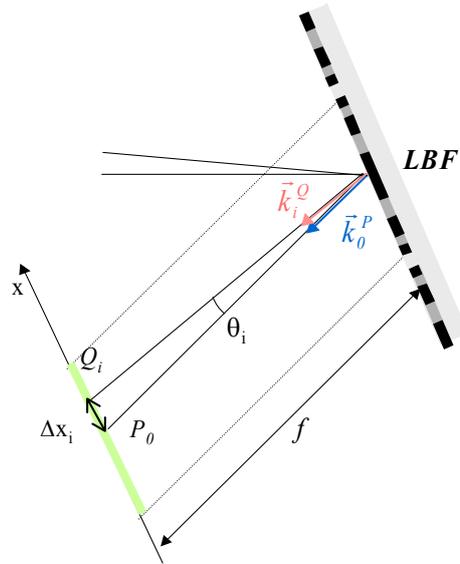


Figure IV-13: Action d'une LBF de longueur focale f sur la portion de phase qu'elle échantillonne.

Nous avons illustré le principe de la mesure sur le schéma en figure IV-13 pour une LBF de la matrice. Supposons d'abord un vecteur d'onde local \vec{k}_0^P arrivant sous le « bon angle » d'incidence pour la focalisation par la LBF (référence). Le rayon correspondant est alors focalisé en P_0 sur le détecteur. Si maintenant le vecteur d'onde local \vec{k}_i^Q arrive avec une incidence légèrement différente θ_i , caractéristique d'une courbure locale de la surface d'onde, le rayon correspondant sera focalisé en un point Q_i distant de P_0 de Δx_i . Cette variation de l'incidence vérifie la relation :

$$\tan \theta_i = \frac{\lambda}{2\pi} \varphi'(x_i) \quad (\text{IV-23})$$

où $\varphi'(x_i)$ est la dérivée de la phase de l'onde incidente en x_i . On a de plus $\tan \theta_i = \frac{\Delta x_i}{f}$, ce qui impose la relation :

$$\varphi'(x_i) = \frac{2\pi}{\lambda f} \Delta x_i \quad (\text{IV-24})$$

Il est donc possible, en enregistrant les différentes positions Δx_i (Δy_i) des foyers focalisés par la matrice de LBF sur le détecteur CCD, de déterminer les dérivées partielles en x_i et y_i $\varphi'_{x_i}(x_i, y_i)$ ($\varphi'_{y_i}(x_i, y_i)$) afin de reconstruire la phase $\varphi(x, y)$ caractérisant la surface d'onde du rayonnement incident. En pratique il est nécessaire d'évaluer x_i comme étant la position du barycentre de la distribution d'éclairement radiale au foyer des LBF.

2. Dispositif expérimental et résultats préliminaires.

Le dispositif expérimental utilisé est identique à celui représenté en Figure IV-4. La LBF a été remplacée par une matrice de Shack – Hartmann (SH) constituée de 200 LBF de 1 mm de diamètre régulièrement espacées de 200 μ m, fonctionnant sous incidence de 22,5°. Le dépôt multicouche est constitué d'une alternance de Sc/Si, censé assurer théoriquement une réflectivité de plus de 60% à 38,1nm (H21). De plus ce couple de matériau présente une faible bande passante coupant la plupart des autres ordres harmoniques et limitant la réflectivité des ordres voisins à moins de 10%. Les différentes longueurs d'ondes focalisées ainsi que l'ordre 0 des LBF ne devraient donc pas être un problème pour la détection des foyers. Le support servant au Foucaultage a bien évidemment été retiré, ainsi que le photomultiplicateur. Une caméra CCD amincie, placée à 50cm de la matrice, est utilisée pour la détection des foyers. Etant donné la sensibilité de la caméra à l'IR, deux filtres Al auto-supportés de 1000Å, de diamètre 8mm, ont été placés entre la matrice SH et le détecteur de sorte que la surface d'onde de l'impulsion harmonique ne soit pas détériorée avant échantillonnage. Chaque lentille, constituée de 18 zones dont la dernière a une largeur de 13 μ m, a une focale de 50cm. Compte tenu des mesures sur la LBF présentées précédemment, on peut s'attendre à une taille au foyer pour chaque lentille de l'ordre de 50 μ m. Il est important que les foyers soient de petite dimension afin d'éviter qu'ils ne se recouvrent dans le plan du détecteur et ainsi avoir une bonne résolution de mesure. Le rayonnement harmonique est généré en focalisant un faisceau IR annulaire à 2.10¹⁴W/cm² dans un jet long d'argon. L'échantillonnage du front d'onde du rayonnement harmonique conduit à une succession de foyers enregistrés avec la CCD (1 point \Leftrightarrow 1 LBF). La Figure IV-14 représente une image monocoup. Différentes observations peuvent être faites sur cette image.

La section du faisceau harmonique au niveau de la matrice de SH est d'environ 6mm, permettant d'éclairer une vingtaine de LBF. Ce nombre de points est cependant trop faible pour effectuer une analyse précise de la position du barycentre de la distribution d'éclairement correspondant à chaque lentille. En effet les algorithmes de reconnaissance de forme utilisés pour ce genre d'analyse nécessitent 5 à 10 fois plus de points de mesure pour être précis et efficaces. Il serait possible d'augmenter la surface insolée par le rayonnement harmonique en se plaçant plus loin de la source d'émission, à environ 5m. Le flux harmonique détecté est alors réduit de plus d'un facteur 20 ce qui rend alors difficile l'acquisition monocoup d'images. Une accumulation de plusieurs tirs risque d'introduire des variations de la position des foyers indépendantes de la qualité de la surface d'onde mais corrélées à des fluctuations de pointée du rayonnement incident.

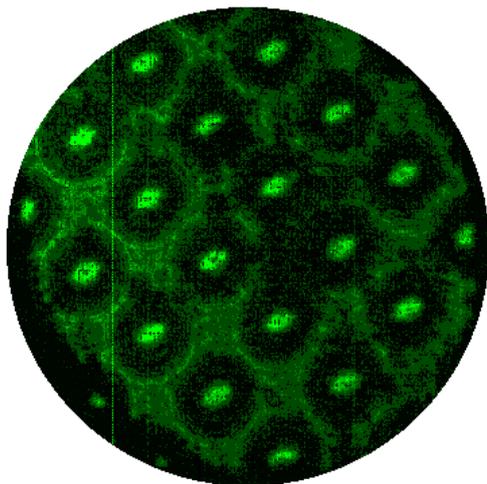


Figure IV-14: *Taches de focalisation du rayonnement harmonique par la matrice de Shack – Hartmann.*

Les zones circulaires les plus sombres de l'image sont les LBF avec en leur centre le faisceau focalisé, qui présente un diamètre de $200\mu\text{m}$. Ces taches ont une forme légèrement elliptique et annulaire ; la distribution d'éclairement est minimale au centre du faisceau focalisé. Comme nous l'avons expliqué à la section B-3. de ce chapitre, il existe des positions sur l'axe de focalisation pour lesquelles la distribution d'éclairement est quasi nulle sur l'axe, résultant en un faisceau annulaire. Cette image illustre le fait que nous n'avons pas réussi, à cause de divers problèmes techniques, à placer le détecteur exactement au foyer de la matrice SH et explique par là même la dimension du faisceau focalisé. Malgré de nombreuses tentatives de positionnement au foyer de la matrice, dans le temps laser qui nous était imparti, il nous a été impossible de trouver la bonne position du détecteur pour observer des foyers de l'ordre de $50\mu\text{m}$. Les taches intenses présentaient quasi constamment la même section sur tout l'intervalle exploré en z , qui était de l'ordre de la profondeur de champ de l'harmonique 21 focalisée ($z_{pc}=\pm 0,9\text{cm}$). Le dispositif expérimental ne permettait pas une exploration ni plus large, ni un échantillonnage plus fin. De même, nous n'avons pas observé de variation du front d'onde en fonction des conditions de génération, qui doivent normalement avoir lieu notamment en présence d'ionisation du milieu. Le front d'onde semble régulier étant donné la disposition régulière des faisceaux focalisés. Il semble donc que la résolution du système ne soit pas suffisante.

Nous nous sommes alors intéressés aux causes possibles de ce manque de précision. Nous avons effectué des mesures de réflectivité du dépôt multicouche de Sc/Si dans lequel sont gravées les LBF. Les résultats de cette mesure expérimentale sont comparés avec la courbe théorique en Figure IV-15. On remarque que la multicouche n'est absolument pas sélective à la longueur d'onde désirée de l'harmonique 21 ($38,1\text{nm}$), la réflectivité étant 10

fois plus faible que la valeur calculée. De plus les ordres harmoniques adjacents sont fortement réfléchies, ce qui empêche de visualiser les foyers désirés sur la matrice CCD. Il s'est avéré par la suite que ce dépôt multicouche était fortement détérioré, avec un « décollage » des couches, qui interdit une bonne réflectivité et sélectivité, et rend difficile la détection au foyer de la matrice SH. Il est également probable que les gravures formant les LBF, optimisées pour une certaine longueur d'onde (38,1nm), ne remplissent pas correctement leur rôle de focalisation.

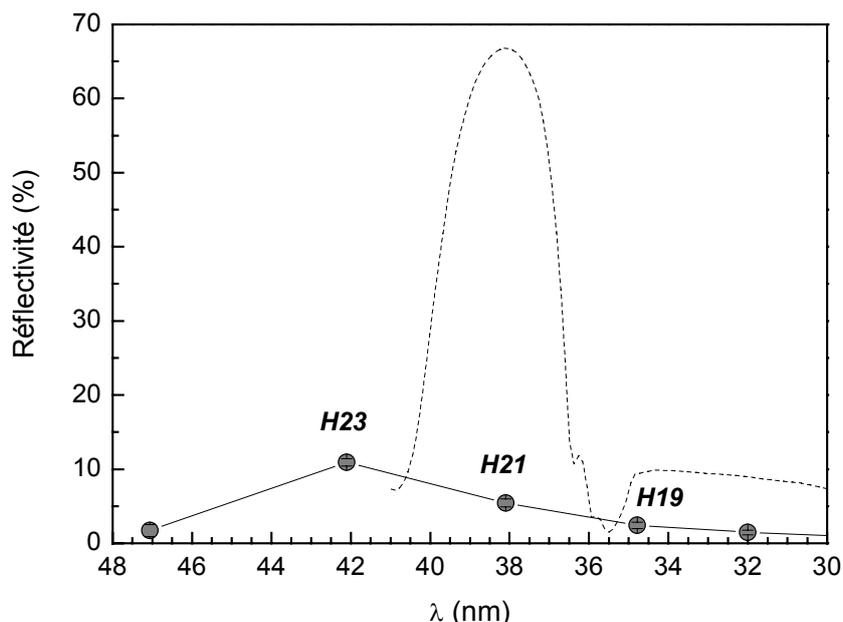


Figure IV-15: Réflectivité du dépôt multicouche de Sc/Si mesuré expérimentalement avec les harmoniques (cercle noir) et théorique (trait pointillé).

Sachant que l'harmonique 23 est mieux réfléchi que la 21, il est intéressant de tracer les distributions d'éclairement sur l'axe de ces deux longueurs d'ondes (Figure IV-16). On constate alors qu'au voisinage de la position $z_0=50\text{cm}$, pour laquelle la distribution axiale d'éclairement de l'harmonique 21 est maximale, et la surface du faisceau petite, correspond à un minimum d'éclairement pour l'harmonique 23, donc un faisceau large avec une forme plus ou moins annulaire (par exemple en $z_0+0,5\text{cm}$ et $z_0-0,5\text{cm}$, 0,5cm étant le pas des mesures en Z). La tache focalisée de l'harmonique 21 est donc constamment noyée dans un large faisceau de l'harmonique 23. Ce bruit de fond est d'autant plus gênant que l'harmonique 23 est 2 fois mieux réfléchi par la multicouche. Il est donc très difficile, dans ces conditions, de détecter des foyers successifs suffisamment intenses, utilisables pour reconstruire la surface d'onde harmonique.

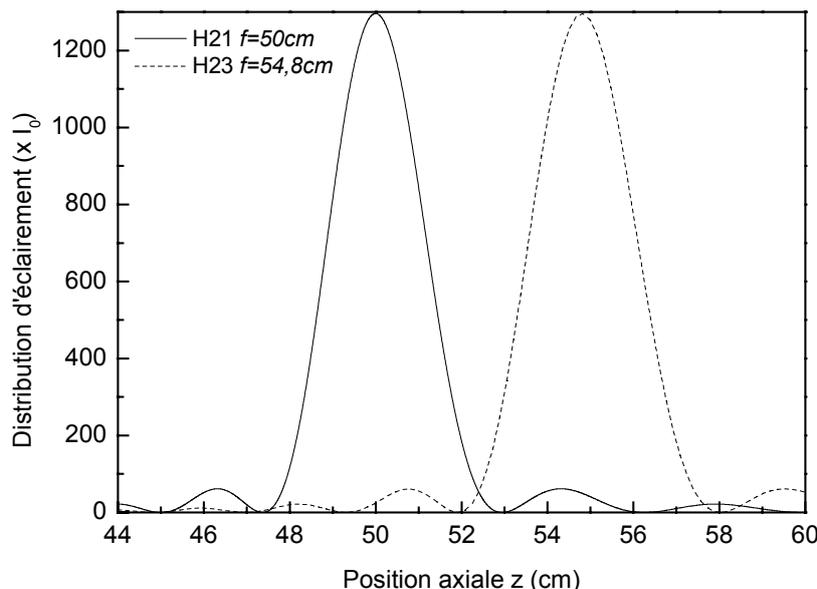


Figure IV-16: Distribution d'éclairement théorique selon l'axe Z pour l'harmonique 21 (trait plein) et 23 (trait pointillé).

Bien qu'il n'ait pas été possible d'effectuer une mesure du front d'onde de l'harmonique 21 durant cette expérience, nous avons néanmoins cerné les différents problèmes. Il est nécessaire d'avoir une meilleure réflectivité et surtout une meilleure sélectivité du dépôt multicouche dans lequel sont gravées les LBF pour espérer faire une mesure du front d'onde et en observer les variations en fonction des conditions de génération. Les problèmes que nous avons rencontrés sont purement techniques et devraient pouvoir être résolus pour une prochaine tentative. En effet, l'équipe du LSAI, avec qui nous avons collaboré au cours de cette expérience, a démontré la possibilité de mesurer le front d'onde d'un faisceau laser X produit par décharge dans un capillaire (Le Pape *et al.* 2001a). La matrice SH utilisée était similaire à la nôtre, à ceci près que le rayonnement laser X étant monochromatique, il n'était pas nécessaire d'utiliser un dépôt multicouche qui sélectionne une certaine gamme spectrale. Il n'existe qu'un seul plan focal, ce qui facilite la détection. De plus le flux élevé permet de placer la matrice assez loin de sorte qu'un grand nombre de lentilles sont éclairées. Il ne semble donc pas y avoir de problème fondamental lié à la technique de mesure, même s'il n'a pas été possible de reconstruire la surface d'onde de l'impulsion harmonique, cette expérience reste la première tentative de mesure directe, qui devrait se solder par un résultat concluant dans un avenir proche.

Conclusion.

Après un rappel des différentes propriétés et grandeurs des optiques diffractives, comme les zones de Fresnel ou les lentilles de Bragg - Fresnel, nous avons présenté les premières mesures de focalisation d'un rayonnement UVX produit par génération d'harmoniques d'ordre élevé par une lentille de Bragg - Fresnel. Le faisceau au foyer de l'optique diffractive présente alors une forme elliptique, de dimension $4,8 \times 2,4 \mu\text{m}^2$ contenant 70% de l'énergie harmonique incidente. Cette forme particulière est due à la conception de la lentille prévue initialement pour un faisceau laser X à 21,2nm. Cette expérience a également été l'occasion d'observer différentes propriétés de ce type d'optiques, comme l'existence de foyers successifs pour un rayonnement incident polychromatique, la faible profondeur de champ ainsi que la distribution d'éclairement sur l'axe caractéristique des optiques diffractives.

Les mesures de réflectivité et d'efficacité de diffraction de la lentille de Bragg - Fresnel, associées aux mesures de nombre de photons permettent d'estimer l'éclairement atteint à 21,6nm dans les conditions de l'expérience ($I_{37}=5.10^8 \text{W/cm}^2$). Cet éclairement reste faible principalement à cause de l'astigmatisme lié à l'optique et à la mesure de la tache au foyer de la lentille mais aussi en raison de la faible réflectivité réelle de la multicouche. Une extrapolation supposant une tache circulaire et une meilleure réflectivité permet d'estimer des éclairements à 21,6nm et 38,1nm respectivement de l'ordre de 10^{10}W/cm^2 et 2.10^{11}W/cm^2 . L'estimation de l'éclairement atteint a été l'occasion d'insister sur l'allongement temporel introduit par les gravures constituant la lentille, qui est d'autant plus important que la longueur d'onde est élevée.

Nous avons également présenté des résultats préliminaires de mesure de la surface d'onde d'une impulsion harmonique à 38,1nm par une méthode de Shack - Hartmann transposée au domaine des longueurs d'onde UVX, qui permet d'échantillonner le front d'onde. La matrice est constituée de 200 lentilles de Bragg - Fresnel gravées dans un dépôt multicouche de Sc/Si. Bien que l'expérience avec les harmoniques n'ait pas abouti, principalement à cause de problèmes techniques, dans la mesure utilisant des harmoniques, la faisabilité a d'ores et déjà été démontrée sur un laser X. Il ne fait aucun doute qu'il sera possible d'effectuer ce type de mesure sur le rayonnement harmonique dans un avenir proche.

Les principaux problèmes rencontrés dans ces deux expériences sont dus à la faible réflectivité et sélectivité des dépôts multicouches mesurées par rapport à celles attendues théoriquement. Il est nécessaire, pour une utilisation efficace du rayonnement UVX produit par génération d'harmoniques, de continuer à progresser dans ce domaine de recherche. Ainsi, bien que les lentilles de Bragg - Fresnel introduisent un allongement temporel de l'impulsion, elles permettent une focalisation hors axe efficace du rayonnement, ce qui peut s'avérer utile pour la réalisation d'une expérience.

Chapitre V : Interférométrie spatiale à deux sources harmoniques.

Introduction.

Durant les dernières années, de nombreuses applications de l'émission harmonique ont été rapportées dans différents domaines de la physique, utilisant pour cela les propriétés uniques de cette nouvelle source UVX. Après un bref rappel des différentes applications réalisées et à venir, nous nous concentrerons sur les expériences d'interférométrie UVX qui seront détaillées au cours des deux chapitres à venir.

Les propriétés de courte durée et de synchronisation naturelle des impulsions harmoniques avec le laser générateur sont particulièrement bien adaptées à des expériences de type pompe – sonde. L'étude résolue à l'échelle femtoseconde de phénomènes ultra rapides en physique atomique, moléculaire ou du solide est ainsi rendue possible dans l'UVX. Un exemple d'application en physique atomique est la spectroscopie d'états excités (2p,3p) de l'hélium, où les sections efficaces de photo ionisation et les durées de vies des états ont pu être mesurées avec une bonne précision (Larsson *et al.* 1995, Gisselbrecht *et al.* 1999). En physique moléculaire, le rayonnement harmonique a été utilisé pour mesurer les durées de vie d'états de Rydberg prédissociatifs du C₂H₂ (Sorensen *et al.* 2000) Une des premières applications du rayonnement harmonique a été faite en physique du solide, pour étudier la dynamique des états de surface d'un échantillon de Ge :As (Haight *et al.* 1993). Récemment, nous avons réalisé à Saclay, en collaboration avec F. Quéré, S. Guizard et Ph. Martin du SRSIM, une expérience de spectroscopie de photoélectrons dans le domaine UV (UPS) résolue en temps avec les harmoniques. Le but était d'étudier la dynamique de relaxation d'électrons dans la bande de conduction d'isolants. L'harmonique 25 générée dans l'argon (pompe) était utilisée pour exciter les électrons dans la bande de conduction dont on sondait l'énergie à différents instants avec le laser IR. Les temps de relaxation mesurés pour ces électrons de haute énergie sont particulièrement longs par rapport à ceux des électrons en bas de bande de conduction (Quéré *et al.* 2000).

La qualité de faisceau des harmoniques permet de bien focaliser le rayonnement UVX (cf. chapitre IV) et devrait permettre d'atteindre des éclaircissements UVX jamais atteints, rendant possible l'observation de processus non linéaires dans cette gamme spectrale. Une transition à deux photons non résonnante dans l'hélium a déjà été rapporté par (Kobayashi *et al.* 1998) et confirmée récemment par (Descamps *et al.* 2001). Même s'il s'agissait d'ordres harmoniques relativement faibles (<H11), les progrès rapides de la technologie laser et de

l'optimisation de l'émission harmonique devraient permettre l'extension à des ordres plus élevés dans un avenir proche.

Les applications futures des harmoniques impliqueront probablement la génération d'impulsions sub-femtosecondes. Il s'agira alors de générer, contrôler, détecter et enfin utiliser des impulsions attosecondes ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$). En effet le rayonnement harmonique semble être un candidat très prometteur pour la génération d'impulsions ultra courtes, étant donné que le processus de génération est ultra rapide (recollision de l'électron avec l'ion parent dans le modèle semi-classique cf. Chapitre I). L'émission d'impulsions attosecondes toutes les demi périodes du champ laser, prévue théoriquement (Antoine *et al.* 1996a), a récemment été démontrée expérimentalement (Paul *et al.* 2001). Une localisation temporelle attoseconde de l'émission harmonique a également été observée (Papadogiannis *et al.* 1999). Différents schémas, basés sur des simulations, ont été proposés pour isoler une unique impulsion attoseconde du train d'émission. Citons, pour exemple, l'idée de générer les harmoniques avec la combinaison de deux impulsions laser de fréquences légèrement différentes, polarisées perpendiculairement, produisant ainsi une polarisation elliptique dépendante du temps pour le laser générateur (« cellule de Pockels atomique ») pour générer les harmoniques (Corkum *et al.* 1994, Corkum 1996, Antoine *et al.* 1997b). Une première tentative de mise en œuvre expérimentale de cette méthode a été rapportée dans (Altucci *et al.* 1998). Une méthode plus directe, est l'utilisation d'un laser ultra court ($\sim 5\text{fs}$) pour isoler une seule impulsion attoseconde (Krausz *et al.* 1998). Enfin, une dernière technique pour générer des impulsions ultra courtes serait la compression du « chirp » de l'émission harmonique (cf. Chapitre II) (Schafer *et al.* 1997, Salières *et al.* 1998, Salières *et al.* 2001). La réalisation expérimentale de telles impulsions est actuellement le sujet d'une intense activité dans plusieurs laboratoires, et fait l'objet d'un réseau européen regroupant 10 laboratoires.

Nous allons maintenant nous intéresser plus en détail à une propriété importante du rayonnement harmonique : la cohérence. On peut distinguer deux catégories de sources UVX. D'une part les sources n'ayant pas de cohérence propre, le processus de génération étant incohérent, comme le rayonnement synchrotron hors onduleur ou les sources d'émission X d'un plasma créé par laser. D'autre part il existe les sources dont le processus de génération est partiellement cohérent ou cohérent. C'est le cas du rayonnement synchrotron d'un onduleur, du laser X par décharge dans un capillaire ou par plasma laser et enfin des harmoniques d'ordre élevé générées dans un gaz, qui sont certainement la source présentant la plus forte cohérence propre. Chacune de ces dernières sources présente un flux cohérent suffisant pour permettre la réalisation d'applications telles que l'interférométrie.

Cependant, les différentes techniques d'interférométrie utilisées dans le domaine visible ou proche IR sont difficiles à transposer en l'état au domaine des longueurs d'onde UVX. En effet l'utilisation de ces courtes longueurs d'ondes, rapidement absorbées par la matière, nécessite en général des optiques en réflexion, présentant de plus une très bonne planéité. En outre, la réflectivité des matériaux pouvant être utilisés à ces longueurs d'onde

reste faible pour les incidences non rasantes, imposant soit des traitements multicouches soit des contraintes supplémentaires sur les géométries des expériences. Il faut noter de plus que lorsque la cohérence intrinsèque du faisceau UVX est faible, il est nécessaire de laisser propager le faisceau sur de longues distances avant que la longueur de cohérence atteigne une dimension suffisante pour les applications. Cette nécessité ne facilite évidemment pas la mise en œuvre expérimentale de mesures interférométriques utilisant ce genre de sources, sans pour autant les rendre impossibles.

On peut classer les techniques interférométriques en deux catégories : d'une part l'interférométrie à division de front d'onde et d'autre part l'interférométrie à division d'amplitude. Les interféromètres à division du front d'onde utilisés dans le domaine UVX sont de deux types. Soit par transmission, tels les fentes d'Young, soit par réflexion tels les miroirs de Lloyd ou les miroirs de Fresnel. Ces derniers systèmes nécessitent une excellente qualité de surface, afin que l'interféromètre en réflexion rasante soit utilisable dans la gamme de longueur d'onde UVX. Un interféromètre à bi-miroir de Fresnel a permis de faire une mesure précise et directe de l'indice de réfraction de matériaux dans l'UVX, en particulier près des seuils d'absorption en utilisant le rayonnement produit par synchrotron (Svatos *et al.* 1993, Polack *et al.* 1995, Joyeux *et al.* 1999). La cohérence spatiale nécessaire à ce type d'expérience était obtenue en se plaçant à grande distance de la fente de sortie du monochromateur. Le même type d'interféromètre a ensuite été utilisé pour caractériser une surface de Niobium en présence d'un champ électrique statique élevé (Zeitoun *et al.* 1998, Albert *et al.* 1999). Cette mesure constitue un diagnostic des phénomènes se produisant avant le claquage électrique dans les cavités supra-conductrices radiofréquences. La source UVX utilisée était un laser X à 21,2nm présentant elle aussi une faible cohérence spatiale propre. Il est alors nécessaire, comme pour le rayonnement synchrotron, de se placer à grande distance de la source pour acquérir de la cohérence de propagation, déterminant ainsi une cellule de cohérence de dimension finie¹. De plus le taux de répétition de ce type de laser X reste à ce jour très faible (1tir/20min). Un dernier exemple est l'utilisation d'un interféromètre à miroir de Lloyd, utilisé pour caractériser en 2 dimensions la densité électronique d'un plasma de décharge de densité pic de l'ordre de 10^{19} e⁻/cm³ (Rocca *et al.* 1999). La source UVX utilisée était un laser X pompé par décharge capillaire à 46,9nm qui présente une cohérence spatiale propre élevée et un taux de répétition de quelques Hz. Par contre la durée d'impulsion (1ns) est bien plus grande que celle du laser X pompé par laser (2ps) (Klisnick *et al.*, 2001a, 2001b).

Les interféromètres à division d'amplitude, de type Michelson ou Mach – Zehnder sont relativement délicats à mettre en œuvre dans le domaine des courtes longueurs d'ondes.

¹ Une source incohérente de diamètre d , définit à une distance R une cellule de cohérence dont la dimension est proportionnelle à $\lambda R/d$ (Théorème de Van Cittert - Zernicke) très inférieure à la section du faisceau : le flux cohérent ne représente qu'une faible fraction du flux total.

En effet, il est nécessaire d'utiliser une lame séparatrice à division d'amplitude efficace dans le domaine UVX. L'équipe de Livermore a réalisé une expérience d'interférométrie à division d'amplitude utilisant un laser X à 15,5nm pompé par le laser Nova de Livermore (Celliers *et al.* 1995). La source laser X présente une cohérence longitudinale de l'ordre de 150 μ m pour une durée d'impulsion 350ps. L'interféromètre de type Mach-Zehnder utilisait une lame séparatrice, constituée d'une membrane multicouche de 400 μ m d'épaisseur, sélective à 15,5nm. Cette membrane très difficile à réaliser permettait la division du faisceau laser X incident en deux parties relativement d'égales amplitudes. Cet interféromètre a permis de mesurer le profil de densité électronique dans un plasma stationnaire qui était placé sur le chemin optique d'un des deux bras (DaSilva *et al.* 1995, Wan *et al.* 1997). Un second type d'interféromètre à division d'amplitude dans l'UVX basé sur un Michelson à récemment été réalisé, optimisé à 13,9nm (Hubert 2001). Si la possibilité d'observer des franges d'interférence a été démontrée, il n'a pas encore été utilisé pour sonder un objet déphasant. Il a par contre permis de mesurer la cohérence temporelle du laser X utilisé. Dans ces techniques d'interférométrie à division d'amplitude, le recouvrement spatio-temporel des faisceaux qui doivent interférer est délicat compte tenu de la courte durée des impulsions ainsi que de leur faible étendue spatiale.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé étant un phénomène « piloté » par le laser fondamental, il a été proposé par (Zerne *et al.* 1997) une technique alternative. Cette méthode, consistant à générer deux sources harmoniques séparées spatialement mais mutuellement cohérentes, produisant donc un champ d'interférences après recouvrement des champs harmoniques issus de ces deux sources, permet d'effectuer de l'interférométrie dans le domaine UVX sans utiliser d'optique spécifique dans cette longueur d'onde.

Après quelques rappels sur les propriétés de cohérence spatiale et temporelle du rayonnement harmonique, nous exposerons la technique d'interférométrie à 2 sources spatialement séparées. Nous montrerons qu'elle permet d'obtenir des informations importantes sur la cohérence temporelle des impulsions harmoniques. Enfin nous décrirons les premières applications de cette méthode à la caractérisation d'objets déphasants.

A. Génération de deux sources harmoniques mutuellement cohérentes séparées spatialement.

1. Rappel des propriétés de cohérence.

Peu de mesures directes de la cohérence spatiale ou temporelle du rayonnement UVX produit par génération d'harmoniques d'ordre élevé ont été réalisées à ce jour. Les rappels que nous exposons dans cette partie sont principalement issus de (Born et Wolf 1980) pour les

aspects généraux et de (LeDéroff 1999) en ce qui concerne plus précisément les mesures de cohérence spatiale du faisceau harmonique.

1.1 Cohérence propre.

La cohérence propre d'un rayonnement qualifie la corrélation des champs électromagnétiques dans le faisceau pendant la durée τ_{imp} de l'impulsion. La fonction de cohérence mutuelle pour deux points P_1 et P_2 de la section transverse d'un faisceau est définie par² :

$$\Gamma_{12}(\tau) = \langle E_1(t + \tau)E_2^*(t) \rangle \quad (V-1)$$

Le degré complexe de cohérence mutuelle d'un faisceau est obtenu en normalisant la fonction de cohérence V-1 :

$$\gamma_{12}(P_1, P_2, \tau) = \frac{\Gamma_{12}(\tau)}{\sqrt{\Gamma_{11}(0) \times \Gamma_{22}(0)}} = \frac{\langle E_1(t + \tau)E_2^*(t) \rangle}{\sqrt{\langle |E_1|^2 \rangle \langle |E_2|^2 \rangle}} \quad (V-2)$$

La corrélation des champs en P_1 et P_2 donne alors lieu à des interférences lorsque les rayons correspondants se recouvrent. Considérons maintenant les champs $E_1(P, t)$ et $E_2(P, t)$ les champs rayonnés par ces deux points en P à l'instant t . On peut alors définir τ comme le délai introduit entre ces champs par la différence de chemin optique dans un dispositif interférométrique quelconque. La distribution de l'éclairement au point P est donnée par la formule classique d'interférence pour une onde partiellement cohérente :

$$I(P) = \langle |E(P, t)|^2 \rangle = \langle |E_1(P, t)|^2 \rangle + \langle |E_2(P, t)|^2 \rangle + 2\Re \left[\langle E_1(P, t)E_2^*(P, t) \rangle \right] \quad (V-3)$$

Cette relation peut encore être écrite sous la forme suivante, en tenant compte de l'expression (V-2)³ :

$$I(P) = I_1(P) + I_2(P) + 2\sqrt{I_1(P)I_2(P)}|\gamma_{12}(\tau)|\cos(\arg \gamma_{12}) \quad (V-4)$$

² $\langle \rangle$ représente la moyenne temporelle du produit des champs complexes en P_1 et P_2 .

³ $\langle |E_n(P, t)|^2 \rangle = I_n(P)$

La distribution d'éclairement peut alors être modulée par le $\cos(\arg\gamma_{12})$ en fonction de la valeur d'un de ses paramètres. On observe alors une succession de franges sombres et claires dont la visibilité, ou le contraste s'écrit :

$$V = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} = 2 \frac{\sqrt{I_1(P)I_2(P)}}{I_1(P) + I_2(P)} |\gamma_{12}| \quad (\text{V-5})$$

On peut alors distinguer trois cas :

- $|\gamma_{12}| = 1$, on retrouve la figure d'interférence de deux ondes totalement cohérentes.
- $|\gamma_{12}| = 0$, il n'y a plus de franges d'interférences, la distribution d'éclairement est uniforme, caractérisant deux ondes totalement incohérentes.
- $0 < |\gamma_{12}| < 1$, les franges sont partiellement brouillées résultant en une diminution du contraste des franges observées conséquence d'une cohérence partielle.

Il y donc une relation directe entre la visibilité des franges d'interférences observées et le degré de cohérence γ_{12} . On distingue en général la cohérence spatiale ou transverse de la cohérence temporelle ou longitudinale.

1.1.1 Cohérence spatiale.

La cohérence spatiale correspond à la corrélation des champs en P_1 et P_2 , deux points de la section transverse du faisceau à délai nul ($\tau=0$). Une première mesure du degré de cohérence spatiale $\gamma_{12}(0)$ a été faite par Ditmire et coll. (1996) avec une expérience de type trous d'Young. Une bonne cohérence était mesurée à faible éclairement laser, se dégradant à fort éclairement. Plus récemment, une expérience de caractérisation approfondie de la cohérence transverse dans toute la section du faisceau de l'harmonique 13 générée dans le xénon a été réalisée en utilisant un interféromètre à bi-miroir de Fresnel (LeDéroff *et al.* 2000a). Le faisceau harmonique, collimaté, incident est séparé en deux parties quasi égales après réflexion sur deux blocs superpolis de silice accolés suivant un petit angle le long d'une arête commune constituant le bi-miroir. Ces deux parties se recouvrent au cours de leur propagation et on observe l'interférence des rayons qui passent respectivement par les points P_1 et P_2 dans chacune des sections droites des demi faisceaux. La conception de cet interféromètre est telle que, pour une distance fixe du détecteur par rapport au bi-miroir, on sonde la corrélation pour tous les couples de points distants d'une même valeur $P_1P_2=d$. Il est alors possible de réaliser une véritable cartographie à deux dimensions du degré de cohérence du faisceau en mesurant la variation du contraste des franges en fonction de la distance au détecteur pour une condition de génération du faisceau harmonique donnée. Pour un diamètre de faisceau de l'ordre de 3mm, un degré de cohérence supérieur à 0,5 est mesuré sur toute la

pupille de 3mm de diamètre, dans les meilleures conditions de génération. Cette expérience a également permis d'étudier l'effet des différents paramètres de génération comme la densité d'électrons libres produits par l'ionisation ou la variation rapide de la phase intrinsèque du dipôle avec l'éclairement, qui dégradent le degré de cohérence lorsque leur contribution à l'accord de phase devient trop importante. Malgré ces effets, le degré de cohérence reste supérieur à 0,5 dans une pupille de 2mm.

Le rayonnement UVX produit par génération d'harmoniques est ainsi beaucoup plus cohérent que celui produit à distance d'une source incohérente de même dimension. La cohérence propre de la source harmonique est élevée car, au terme d'un processus de génération cohérent, elle reflète la cohérence du laser fondamental utilisé pour la génération. Les harmoniques d'ordre élevé ont de ce fait, pour l'instant, une cohérence spatiale bien plus élevée que les lasers X produit sur cible solide (Trebess *et al.* 1992, Lu *et al.* 1998, Albert 1999, Rus 1995). Il ne semble cependant pas exister de limitation fondamentale imposant le degré de cohérence spatial actuel des lasers X produit par plasma laser. De nombreuses études sont en cours afin d'améliorer cette propriété. Signalons toutefois que les lasers X produits par décharge dans un capillaire rempli de gaz présente une cohérence transverse relativement élevée sur une large section du faisceau (Marconi *et al.* 1997). La durée de l'émission X ainsi produite est relativement longue, de 700ps à 1ns, comparativement aux durées d'émission X où l'énergie de pompe est amenée par laser (quelques picosecondes à quelques dizaines de femtosecondes).

1.1.2 Cohérence temporelle.

La cohérence temporelle correspond à la corrélation des champs lorsque les points P₁ et P₂ coïncident spatialement, donc en un point donné mais à deux instants différents. Le degré de cohérence temporel est défini par :

$$\gamma_{11}(\tau) = \frac{\langle E(t+\tau)E^*(t) \rangle}{\langle |E|^2 \rangle} \quad (\text{V-6})$$

La largeur $\Delta\tau$ de la fonction $\gamma_{11}(\tau)$, en fonction du délai variable entre les deux impulsions qui interfèrent, mesure le temps de cohérence. Rappelons que la transformée de Fourier de la fonction d'autocohérence $\Gamma_{11}(\tau) = \langle E(t+\tau)E^*(t) \rangle$, n'est autre que le spectre de puissance du rayonnement (théorème de Wiener – Khintchine). La largeur de la distribution spectrale $\Delta\nu$ est alors directement reliée à la largeur $\Delta\tau$ de la fonction d'autocohérence par $\Delta\nu \cdot \Delta\tau \sim 1$. Etant donné la très courte durée des impulsions harmoniques, elles présentent des spectres larges et donc des temps de cohérence faibles. Ces temps de cohérence peuvent même être inférieurs à

la durée d'impulsion en présence d'un « chirp » (cf. Chapitre II). Une mesure directe du temps de cohérence peut être faite avec des interféromètres à division d'amplitude tels que le Michelson, ou le Mach – Zehnder.

1.2 Cohérence mutuelle.

La notion de cohérence mutuelle de deux sources séparées spatialement est légèrement différente. Dans ce cas les points P_1 et P_2 , appartenant respectivement à chacune des deux sources, sont dits « homothétiques ». La visibilité des franges observées dans le champ d'interférence en champ lointain est alors reliée au degré de cohérence mutuelle $\gamma(P_1, P_2, 0)$ pour un délai τ suffisamment petit devant la durée d'impulsion τ_{imp} . Dans le cas où les deux sources sont équivalentes, comme celles produites avec un Michelson désaligné, le degré de cohérence mutuel doit être proche de 1 ; les deux sources sont alors dites « bloquées en phase ». Il est important de rappeler que la cohérence mutuelle de deux sources à délai τ nul n'implique en aucun cas que chaque source soit intrinsèquement cohérente, que ce soit spatialement ou temporellement. Zerme et coll. (1997) ont proposé de générer deux sources harmoniques bloquées en phase séparées spatialement, en focalisant deux impulsions fondamentales jumelles bloquées en phase à deux endroits dans un jet de gaz. Ils ont ainsi pu observer un système de franges en champ lointain à la fréquence harmonique. Selon les conditions de génération des deux impulsions harmoniques (différence d'éclairement aux deux foyers lasers), le contraste des franges variait de 30% à 6% (Zerme *et al.* 1997). Ceci indiquerait que la propriété de cohérence mutuelle des deux impulsions laser était transmise, au moins partiellement, aux deux sources harmoniques d'ordre élevé.

2. Démonstration expérimentale de la cohérence mutuelle.

2.1 Dispositif expérimental.

La première démonstration expérimentale de cette technique d'interférométrie a été réalisée en 1997 au Lund Laser Center en Suède par Zerme et coll. (1997). Les deux sources harmoniques séparées spatialement étaient alors produites par passage du laser fondamental dans un cristal de BBO présentant un léger angle avec l'axe de propagation. Un polariseur projette sur un même axe les polarisations des deux impulsions jumelles (séparées spatialement) ainsi générées. Le système que nous avons utilisé est un interféromètre de type Michelson, permettant un meilleur contrôle de la séparation spatiale entre les deux sources tout en contrôlant le décalage temporel. Ce système a permis une étude précise de la

cohérence temporelle des harmoniques d'ordre élevé (Bellini *et al.* 1998, Lyngå *et al.* 1999). Le dispositif expérimental permettant de générer deux sources harmoniques séparées spatialement et bloquées en phase est représenté en Figure V-1. L'interféromètre utilisé est composé de deux lames séparatrices identiques, chacune d'épaisseur 1cm, ayant le même coefficient de transmission et de réflexion (50%). Lorsque l'impulsion laser fondamentale arrive sur la première séparatrice, la moitié de cette impulsion est réfléchiée vers un premier coin de cube, l'autre partie, identique à la première est transmise vers le second coin de cube. Les deux impulsions jumelles sont alors superposées spatialement après la seconde séparatrice, la première impulsion étant cette fois-ci transmise et la seconde réfléchiée, lorsque l'interféromètre est correctement aligné. On observe alors en sortie de l'interféromètre, une interférence totalement constructive ou totalement destructive selon le retard temporel entre les deux impulsions.

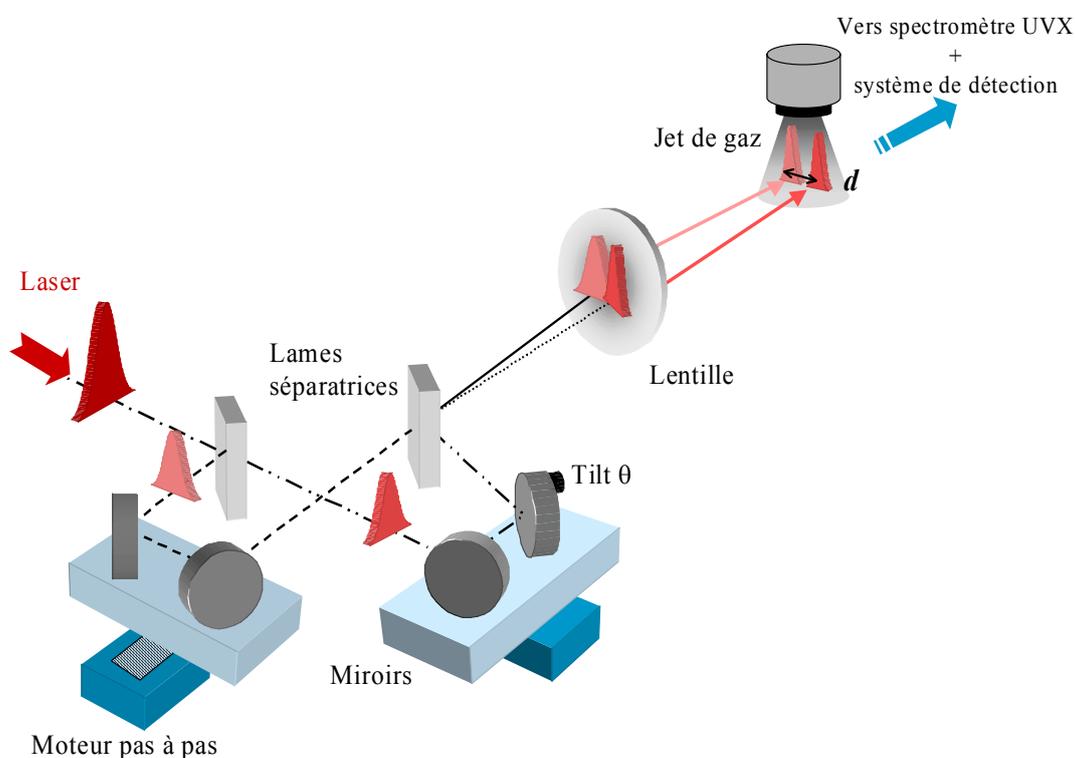


Figure V-1 : *Dispositif expérimental utilisé pour la production de deux impulsions fondamentales jumelles séparées spatialement.*

Il suffit de désaligner légèrement le dernier miroir du second coin de cube pour observer des franges en sortie de l'interféromètre ; les deux impulsions se recouvrent alors avec un léger angle θ . Le fait qu'elles arrivent sur la lentille avec deux angles différents implique que ces deux impulsions sont focalisées à la même position selon l'axe de propagation z du laser mais

en deux points séparés spatialement par d dans le plan perpendiculaire (x,y) à z . Un des deux coins de cubes est motorisé avec une translation micro-contrôle (16PP) permettant d'accomplir la superposition temporelle des deux impulsions produites, rattrapant ainsi la différence de chemin optique introduite par le désalignement de l'interféromètre. Ces deux foyers IR séparés spatialement de d génèrent deux sources harmoniques elles aussi séparées de cette même grandeur. Les deux faisceaux harmoniques ainsi générés peuvent interférer en champ lointain lorsqu'ils se recouvrent spatialement par effet de la diffraction.

Le signal harmonique est tout d'abord analysé par le spectromètre UVX montré en Figure I-2, qui permet de sélectionner la longueur d'onde, donc l'ordre de l'harmonique désiré. La figure d'interférence est alors détectée après la fente de sortie du spectromètre, à l'aide de galettes de micro canaux couplées à un écran phosphore et placées à 65cm du foyer du miroir torique du spectromètre UVX. La figure d'interférence est détectée sous une incidence rasante de 12° , afin d'augmenter la résolution effective des galettes de microcanaux, passant ainsi de $80\mu\text{m}$ à $16\mu\text{m}$. La résolution peut encore être augmentée en inclinant plus fortement les galettes, mais ceci diminue le flux harmonique détecté, réduisant la dynamique de détection. Il faut donc trouver le bon compromis entre résolution et niveau de signal détecté.

2.2 Dépendances des interférogrammes.

A partir du moment où les deux sources harmoniques séparées spatialement sont générées, après avoir créé deux impulsions fondamentales jumelles avec un interféromètre de type Michelson, tout se passe comme dans une expérience de fentes d'Young. En effet, la figure d'interférence est obtenue en laissant diverger les deux faisceaux harmoniques séparés spatialement dans le milieu générateur, qui se recouvrent par effet de la diffraction. On a donc un mélange d'interférométrie à division d'amplitude et à division de front d'onde. Dans un cas idéal, où les deux sources harmoniques, séparées spatialement par d , sont parfaitement bloquées en phase, on peut écrire la distribution d'éclairement dans le plan (x,y) placé à une distance L du foyer des deux sources comme :

$$I(P) = I_1(P) + I_2(P) + 2\sqrt{I_1(P)I_2(P)} \cos\left(2\pi \frac{d}{\lambda_q L} y\right) \quad (\text{V-7})$$

où λ_q est la longueur d'onde de l'harmonique considérée et y la dimension perpendiculaire au réseau de franges. L'interfrange est défini par :

$$\Delta i = \frac{\lambda_q L}{d} \quad (\text{V-8})$$

Δi varie linéairement avec la longueur d'onde harmonique et est inversement proportionnel à la distance qui sépare les deux sources harmoniques, pour une distance de détecteur L fixée.

2.2.1 Variation avec l'ordre de non linéarité.

Nous présentons en Figure V-2 une série de figures d'interférences spatiales de deux sources harmoniques séparées spatialement pour différents ordres de non linéarité. Ces harmoniques ont été générées en focalisant $500\mu\text{J}$ (dans chaque bras du Michelson) avec une lentille de focale 1m dans une jet pulsé de krypton. La séparation spatiale entre les deux sources a été fixée à $d=100\mu\text{m}$. Les figures d'interférences sont enregistrées en tournant le réseau du spectromètre UVX sélectionnant ainsi l'harmonique désirée.

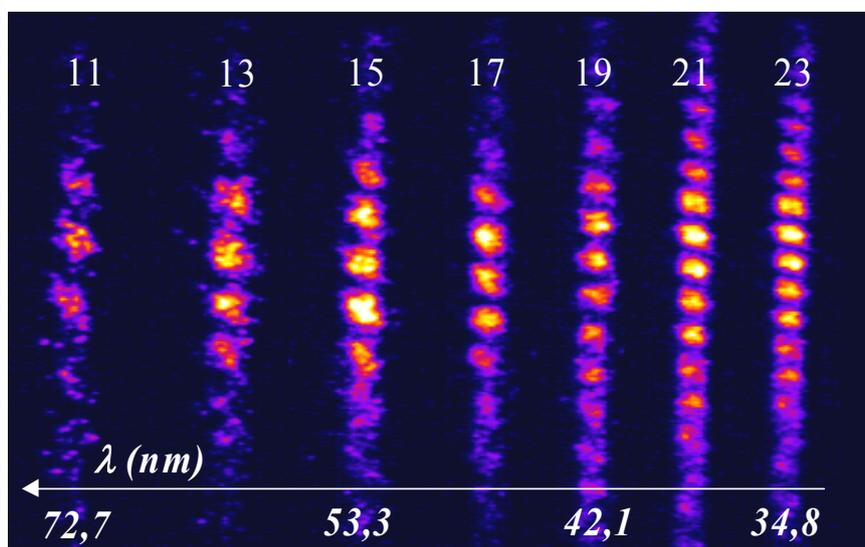


Figure V-2: Variation des interférogrammes en fonction de la longueur d'onde harmonique pour une séparation spatiale $d=100\mu\text{m}$ fixe entre les deux sources.

On observe une nette diminution de l'interfrange en fonction de la longueur d'onde décroissante, comme prévue théoriquement. Cet effet est également illustré en Figure V-3, représentant les valeurs de l'interfrange obtenues selon une coupe dans la direction perpendiculaire au réseau de franges pour deux sources harmoniques séparées de $d=120\mu\text{m}$, en fonction de la longueur d'onde. L'interfrange diminue de $350\pm 14\mu\text{m}$ pour l'harmonique 13 à $186\pm 14\mu\text{m}$ pour l'harmonique 23. Le rapport de ces interfranges correspond bien au rapport des ordres de non linéarité, compte tenu des barres d'erreurs expérimentales. Le meilleur fit

effectué à partir de la formule théorique de l'interfrange (V-8) correspond à une séparation des sources de $d_{\text{th}}=116\mu\text{m}$. Signalons que les valeurs d'interfrange reportés correspondent à l'interfrange réel, dans le plan perpendiculaire à l'axe de propagation. Le contraste des franges reste supérieur à 50% quel que soit l'ordre harmonique observé. La diminution de ce contraste pour les ordres élevés est due au fait que l'interfrange se rapproche de la résolution limite de notre système de détection.

Le fait d'observer de tels interférogrammes avec un contraste de franges de près de 95% pour les ordres les plus faibles, prouve que les deux sources harmoniques générées en deux points différents du milieu atomique sont mutuellement cohérentes, donc bloquées en phase.

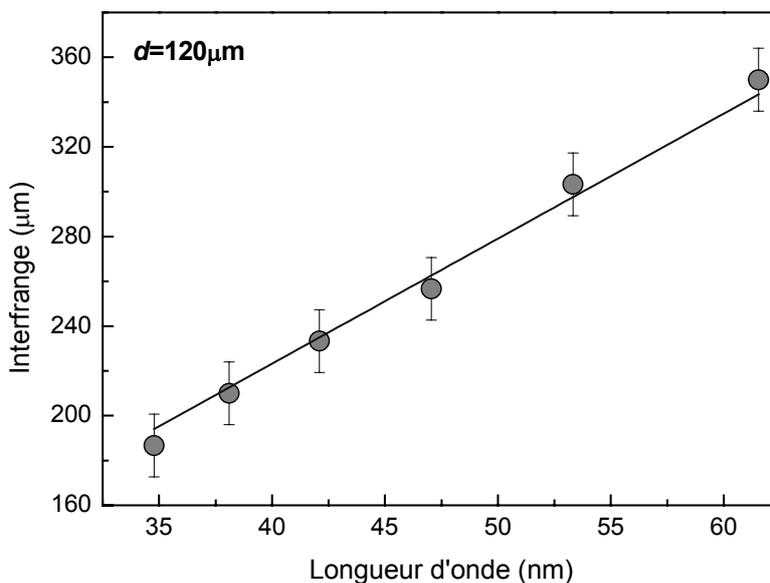


Figure V-3: Comparaison de l'interfrange obtenu pour les différentes harmoniques observées dans le krypton pour une séparation spatiale $d=120\mu\text{m}$ fixe entre les deux sources (cercle noir). En trait plein est représenté le fit linéaire des points expérimentaux.

2.2.2 Variation avec la distance d .

Le second paramètre ayant une incidence sur la valeur de l'interfrange est la distance qui sépare les deux sources. Nous avons séparé verticalement les deux sources pour étudier l'effet sur le contraste des franges. Ceci est illustré en Figure V-4, dans le cas de l'harmonique 17 générée dans le krypton. Les conditions expérimentales sont identiques à celles du §2.2.1. Les franges sont de plus en plus rapprochées au fur et à mesure que l'on augmente la distance entre les deux sources. La variation expérimentale et théorique de cet interfrange en fonction de la distance entre les deux sources pour l'harmonique 17 est illustrée en Figure V-5.

L'interfrange observé diminue de $290 \pm 15 \mu\text{m}$ à $86 \pm 15 \mu\text{m}$, lorsque la séparation entre les deux sources est augmentée de $100 \mu\text{m}$ à $400 \mu\text{m}$. On retrouve donc la variation prévue théoriquement. Le contraste des franges diminue lui aussi entre ces deux valeurs extrêmes de la séparation entre les sources. Il passe ainsi de près de 90% à 35%. La principale explication de cette diminution est la limite de résolution du détecteur utilisé. Lorsque les deux sources sont espacées de $400 \mu\text{m}$, l'interfrange est de l'ordre de la résolution du détecteur. On peut cependant conclure, que les deux sources harmoniques séparées spatialement restent bloquées en phase même lorsque la distance qui les sépare devient importante.

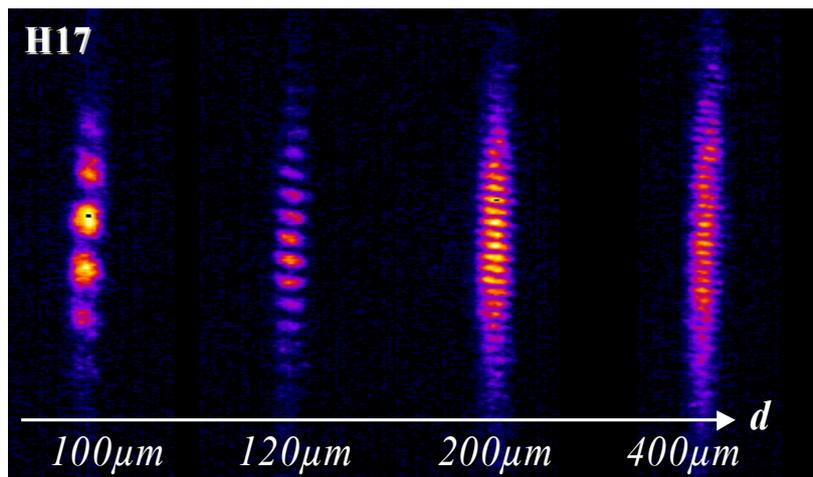


Figure V-4: Variation des interférogrammes en fonction de la séparation spatiale d entre les deux sources pour l'harmonique 17 du krypton.

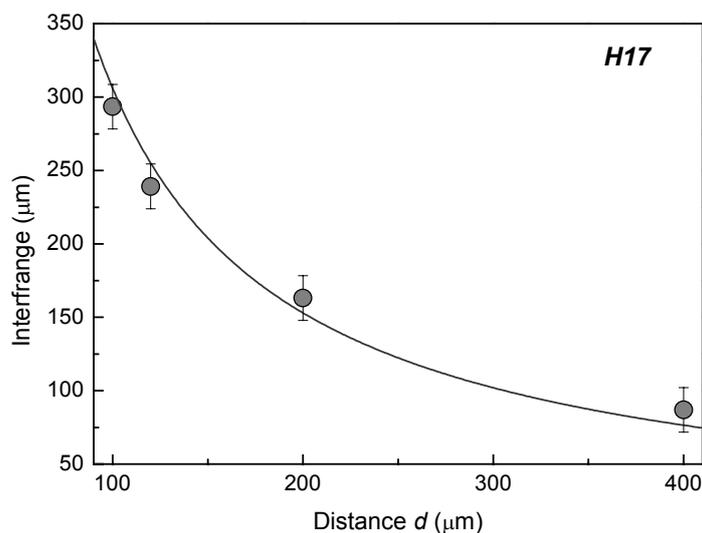


Figure V-5: Comparaison de la variation de l'interfrange expérimental (cercle noir) et théorique (trait plein) pour l'harmonique 17 du krypton en fonction de la séparation spatiale d entre les deux sources.

La robustesse de cette cohérence mutuelle devrait donc permettre d'augmenter encore la distance entre les deux sources, voire même de générer chacune des sources dans un jet indépendant. On ne sera alors plus limité par la dimension transverse du jet qui doit contenir les deux taches focales du laser générateur distantes de d , obligeant à utiliser des lentilles de courtes focales ne favorisant pas l'efficacité de génération. On pourra alors optimiser la génération de chaque source selon la méthode décrite au Chapitre III, optimisant ainsi le flux harmonique généré. De plus le fait d'avoir deux chambres de génération indépendantes permet plus de liberté pour l'utilisation de cette technique d'interférence. Nous verrons plus en détail cette possibilité dans la partie de ce chapitre consacrée aux applications de cette technique interférométrique.

2.2.3 Variation du contraste avec l'intensité relative de chaque bras.

Les interférogrammes présentées dans les paragraphes précédents pour illustrer la variation de l'interfrange en fonction des différents paramètres, ont toujours été obtenus avec les deux bras du Michelson équilibrés en intensité. Une étude théorique et expérimentale de la visibilité des franges en fonction de l'intensité relative des deux bras a été effectuée dans (Zerne *et al.* 1997). La Figure V-6 illustre l'évolution prévue théoriquement. Lorsqu'on augmente la différence d'éclairement entre les deux foyers lasers, on s'attend à ce que le contraste diminue à cause de la différence d'intensité des sources harmoniques générées. C'est ce qui apparaît clairement pour l'harmonique 13. Pour l'harmonique 43, un autre phénomène entre en jeu : c'est la variation rapide de la phase de l'émission harmonique au cours du temps. Si l'on note $\phi_1(t)$ et $\phi_2(t)$ les phases respectives de la première et de la deuxième impulsion harmonique au point d'observation P, au temps t , la distribution d'éclairement instantanée s'écrit alors, à partir de la relation V-7 :

$$I(P, t) = I_1(P, t) + I_2(P, t) + 2\sqrt{I_1(P, t)I_2(P, t)} \cos\left(2\pi \frac{d}{\lambda_q L} y + \phi_1(t) - \phi_2(t)\right) \quad (\text{V-9})$$

Comme le système de franges est obtenu en intégrant temporellement la relation V-9 sur la durée de l'impulsion harmonique, une variation importante de la phase relative des deux impulsions $\phi_1(t) - \phi_2(t)$ durant cette durée résulte en un brouillage important des franges d'interférence. Cette variation temporelle de la phase de l'harmonique a lieu par l'intermédiaire de la dépendance rapide de la phase du dipôle atomique avec l'éclairement laser, comme nous l'avons montré au Chapitre II. Il en résulte une variation temporelle de la

fréquence instantanée de l'harmonique pendant la durée de l'impulsion laser, plus ou moins importante selon la valeur de l'éclairement.

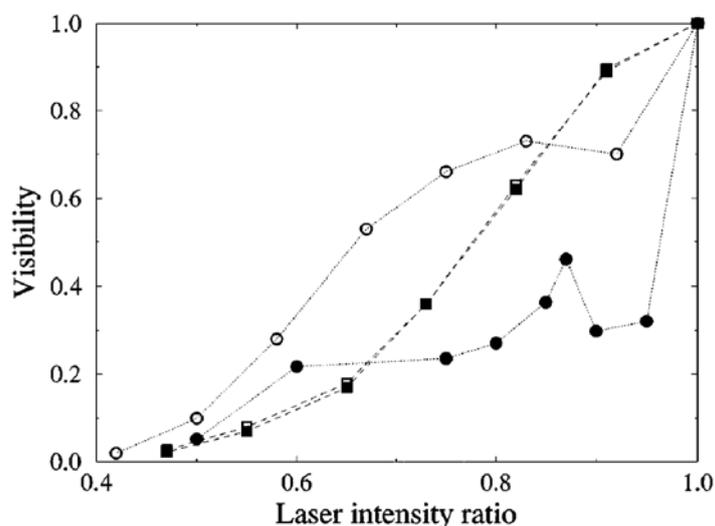


Figure V-6: *Contraste des franges calculé en fonction de l'intensité relative des deux bras de l'interféromètre pour l'harmonique 13 du xénon (carré noir) et 43 du néon (cercle noir). La variation rapide de la phase du dipôle harmonique en fonction de l'éclairement laser est négligée pour les symboles blancs (d'après Zerneck et al. 1997).*

Pour les ordres faibles le brouillage des franges est le même que l'on considère, ou non, la variation temporelle de la phase du champ harmonique car celle-ci n'est pas suffisamment importante. Par contre, on observe une nette différence dans le cas d'une harmonique d'ordre élevé. Ces harmoniques, comme par exemple H43 dans le néon, sont générées à un éclairement plus élevée impliquant un « chirp » important. On n'a donc plus la même fréquence instantanée pour les deux impulsions harmoniques, lorsque l'intensité des deux bras de génération n'est pas équilibrée. Le contraste des franges diminue alors rapidement à cause du déplacement du réseau de franges au cours de la durée de l'impulsion laser. L'expérience a permis d'observer la lente perte de contraste pour les ordres faibles. Par contre il n'a pas été possible, pour l'instant, de mesurer la chute brutale de contraste pour les harmoniques d'ordre élevé du néon, principalement à cause de problèmes de détection. Pour observer la figure d'interférence il est nécessaire de laisser diverger les deux faisceaux sur une certaine distance. Le flux harmonique à ces courtes longueurs d'onde est alors trop faible pour la réponse des détecteurs disponibles.

3. Mesure du temps de cohérence.

3.1 Résultats expérimentaux.

Puisqu'il a été montré que les deux sources harmoniques sont bloquées en phase, elles sont donc l'équivalent de deux répliques d'une impulsion harmonique que l'on aurait envoyée dans un interféromètre à division d'amplitude. On peut donc étudier la cohérence temporelle commune à ces deux impulsions en faisant varier le délai entre elles. Les premières mesures de ce temps de cohérence ont été rapportées dans (Bellini *et al.* 1998, Lyngå *et al.* 1999). Nous effectuons une analyse similaire. Le temps de cohérence est mesuré en variant le délai temporel τ entre les deux impulsions fondamentales générant les harmoniques et en étudiant la décroissance du contraste des franges observé en champ lointain. En Figure V-7 sont présentées deux figures d'interférence en champ lointain pour l'harmonique 17 générée dans l'argon, pour deux délais temporel τ (0fs et +10fs) entre les deux impulsions. Les harmoniques ont été générées avec un éclairement laser de l'ordre de 2.10^{14} W/cm² pour chaque bras, pour des conditions de focalisation telles que le foyer est après le centre du jet. On observe alors clairement deux zones spatiales distinctes d'interférence, une partie centrale, intense contenant la majeure partie de l'énergie avec un temps de cohérence bien plus long que la partie externe. En effet lorsque le délai temporel τ est augmenté à 10fs, on continue à observer des franges d'interférence dans la partie centrale alors qu'elles ont totalement disparu dans la partie externe (Figure V-7b).

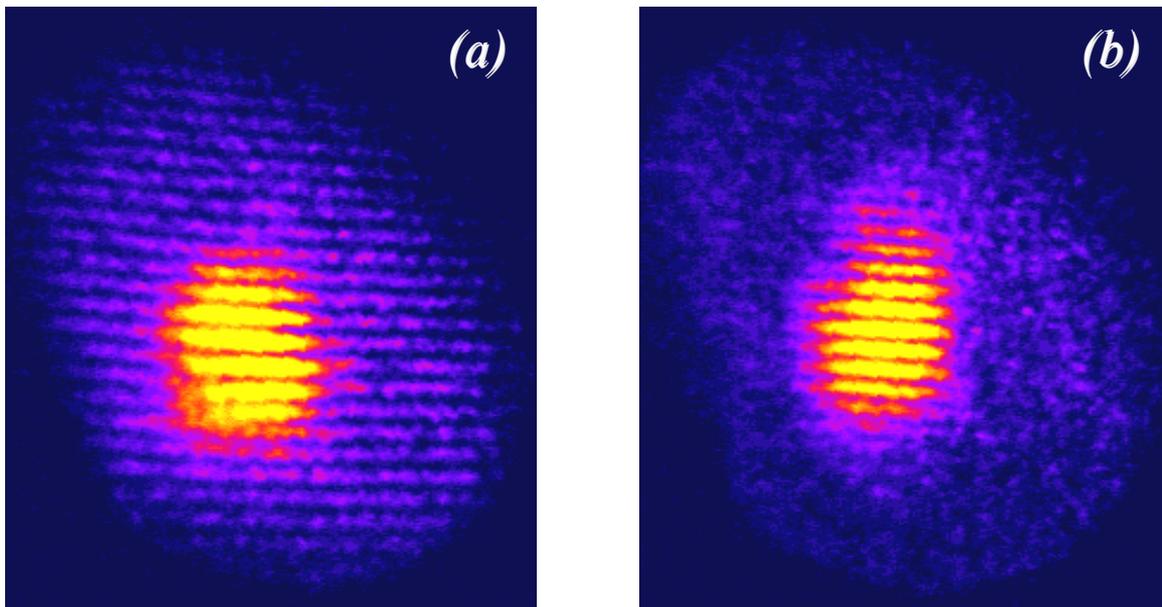


Figure V-7: Figures d'interférence en champ lointain pour l'harmonique 17 pour (a) $\tau=0fs$ et (b) $\tau=+10fs$.

Une étude plus détaillée de la variation du contraste des franges pour ces deux régions spatiales en fonction du retard temporel τ entre les deux impulsions est illustrée en Figure V-8. Pour cela on varie la position du couple de miroirs motorisé à l'aide d'un moteur pas à pas, dont le déplacement minimum correspond à un retard temporel de 0,5fs. Nous avons effectué une exploration en temps avec des pas de l'ordre de 1fs pour la partie externe et 2,5fs pour la partie interne. La visibilité des franges est directement reliée au degré de cohérence temporel défini par la relation V-6, et peut être mesurée expérimentalement. Le temps de cohérence T_c est alors défini comme étant égal à la demi largeur à mi hauteur de la courbe de visibilité des franges en fonction du retard τ tracée en Figure V-8. Comme le spectre de puissance est la transformée de Fourier de la fonction d'autocohérence, la largeur spectrale, définie comme la largeur à mi-hauteur du spectre de puissance, est inversement proportionnelle au temps de cohérence. Le facteur de proportionnalité reliant ces deux grandeurs dépend de la forme de l'amplitude du champ. Dans le cas d'une Gaussienne on a $2T_c\Delta\nu=0,88$. Lorsque l'impulsion considérée n'est pas limitée par la transformée de Fourier, le temps de cohérence est inférieur à la durée de l'impulsion. Les demi largeurs à mi-hauteur du contraste des franges en fonction du délai τ mesurées pour l'harmonique 17 aboutissent à des temps de cohérence, respectivement, pour la région centrale $T_{c,c}$ et externe $T_{c,e}$ de 20 ± 1 fs et 4 ± 1 fs. Les barres d'erreur sur le contraste et le temps de cohérence sont indiqués sur la Figure V-8. Les temps de cohérence que nous avons mesurés correspondent bien à ceux rapportés dans (Lyngå *et al.* 1999) compte tenu du fait que le laser fondamental qu'ils utilisaient avait une durée d'impulsion deux fois plus longue que dans notre cas (110fs contre 60fs).

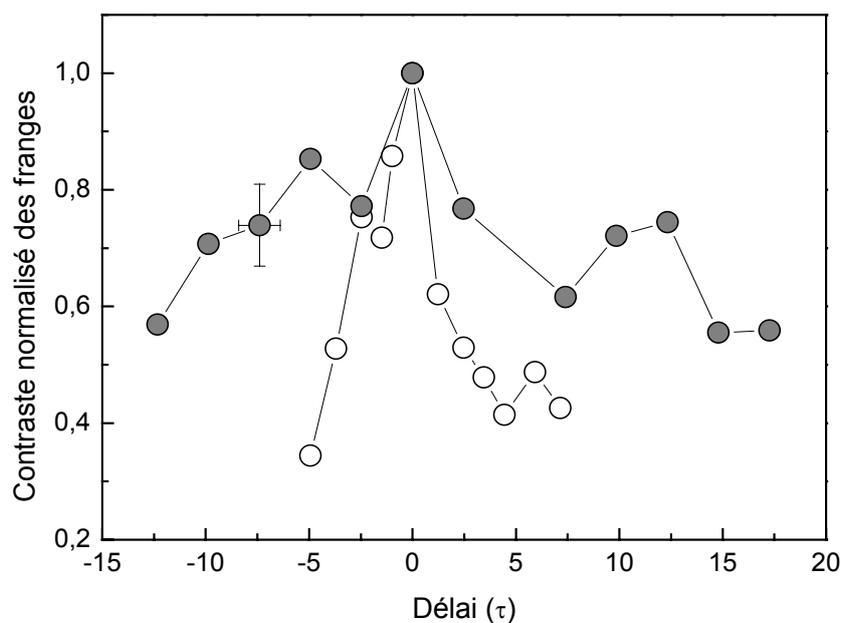


Figure V-8: Visibilité normalisée des franges pour l'harmonique 17 en fonction du retard temporel τ entre les deux impulsions pour la région centrale (cercle noir) et la couronne externe (cercle blanc).

3.2 Interprétation.

Rappelons que lors de la génération d'harmonique d'ordre élevé dans un jet de gaz, la distribution angulaire de l'harmonique émise dépend des conditions de focalisation du laser avant ou après le centre du jet. Nous avons montré précédemment que pour une harmonique du plateau, deux trajectoires différentes, une longue l'autre courte, dominent le processus de génération, influant différemment sur les profils d'émission. La trajectoire longue contribue principalement à l'accord de phase hors axe, correspondant à la partie externe des images présentées en Figure V-7. La variation rapide de la phase du dipôle atomique $\phi_q = -\eta_q I_L$ (cf. Chapitre II) au cours du temps introduit un « chirp » de l'impulsion harmonique d'autant plus important que c'est la plus longue des deux trajectoires principales qui domine l'accord de phase. L'impulsion, plus large spectralement, présente alors un temps de cohérence plus faible compte tenu de la relation V-9. Etant donné que la région externe de la figure d'interférence est due à la contribution de la trajectoire longue à l'accord de phase, le chirp important de l'impulsion explique la courte durée de cohérence dans cette zone. Par contre la partie centrale de la figure d'interférence, résultant d'un accord de phase efficace sur l'axe, auquel contribue principalement la trajectoire courte présente un temps de cohérence bien plus long car le « chirp » de l'impulsion est plus faible. La mesure du temps de cohérence dans ces conditions de génération où les deux trajectoires contribuent différemment à l'accord de phase permet une observation directe du processus de génération. La différence des temps de cohérence dans les deux régions spatiales distinctes, reflète ainsi directement l'effet des différentes trajectoires électroniques sur l'émission harmonique.

La possibilité de générer deux impulsions harmoniques séparées spatialement mais bloquées en phase est un exemple supplémentaire des propriétés uniques du rayonnement harmonique. Cette technique a permis de mesurer le temps de cohérence de l'émission harmonique, mais surtout d'observer l'influence du processus de génération sur ce temps de cohérence. Nous allons maintenant démontrer dans cette dernière partie la possibilité d'utiliser la technique d'interférométrie spatiale pour le diagnostic d'objets déphasants.

B. Application de l'interférométrie spatiale au diagnostic d'objets déphasants.

1. Intérêt des harmoniques d'ordre élevé pour l'interférométrie UVX.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé hérite de la plupart des propriétés du champ laser générateur lors de la conversion de fréquence. Grâce à ces propriétés, la source

harmonique peut apporter une souplesse et une résolution temporelle sans égales à l'interférométrie UVX ouvrant, par la même, une large voie aux applications.

La source de rayonnement UVX par génération d'harmonique, est relativement facile à mettre en œuvre. Elle nécessite simplement un laser capable de délivrer des impulsions ultra brèves peu énergétiques, qui une fois focalisées aux éclaircissements nécessaires dans un gaz rare produisent le rayonnement UVX (cf. Chapitre I). Ces systèmes lasers se généralisent dans les laboratoires. Les impulsions harmoniques ainsi générées, de durée inférieure à la durée de l'impulsion laser (dans notre cas $<60\text{fs}$) sont naturellement synchronisées avec le laser générateur avec un taux de répétition allant de quelques dizaines de Hz au kiloHertz. Le nombre de photons générés par impulsion, allant de l'ordre de 10^{10} à 60nm à 4.10^7 en dessous de 17nm , assure un flux suffisant pour de nombreuses applications interférométriques. La nature discrète du spectre harmonique couplée à la possibilité d'accorder en fréquence les pics harmoniques, permet d'explorer quasi continûment un large intervalle de longueurs d'onde. Les propriétés de cohérence intrinsèque ainsi que la possibilité de générer deux sources harmoniques séparées spatialement ou temporellement (cf. Chapitre VI), sont naturellement des propriétés fondamentales à la possibilité d'effectuer de l'interférométrie dans le domaine des courtes longueurs d'ondes.

Cette expérience comporte deux parties : la première démontre qu'il est possible d'observer un décalage de franges induit par un filtre d'aluminium en « marche d'escalier », la seconde est l'application de la technique à la mesure résolue en temps de la densité électronique d'un plasma dense créé par laser (Descamps *et al.* 2000).

2. Dispositif expérimental.

Ces expériences démontrant la faisabilité d'applications de la technique d'interférométrie spatiale à deux sources séparées spatialement, bloquées en phase ont été réalisées en Suède en collaboration avec l'équipe « harmonique » du Lund Laser Center. Le dispositif expérimental utilisé est représenté en Figure V-9. Il est le même pour les deux expériences d'application effectuées. Le laser générateur est un laser Ti :Saphir délivrant des impulsions à 790nm de 110fs allant jusqu'à 200mJ avec un taux de répétition de 10Hz . L'impulsion IR est divisée en deux parties égales, formant deux impulsions jumelles dans un interféromètre de type Michelson (cf. §2.1). Le léger angle appliqué sur un bras du Michelson, en inclinant le dernier miroir, résulte, après focalisation par la lentille dans un jet de krypton, en deux foyers IR distincts spatialement, séparés de d . Le faisceau est diaphragmé à 11mm en sortie du Michelson, juste avant la lentille de 50cm de focale. Les deux sources harmoniques séparées spatialement sont alors générées avec $0,5\text{mJ}$ dans chaque bras. Dans ces conditions de focalisation, l'éclaircissement pic dans chaque foyer est estimé à 2.10^{14} W/cm^2 .

Un réseau sphérique et une fente de sortie sont utilisés pour sélectionner une harmonique donnée et pour imager, sans grandissement, le source harmonique. Les deux faisceaux harmoniques divergent après le foyer du réseau et se superposent en champ lointain, donnant lieu à un réseau de franges d'interférences. Ces dernières sont observées à une distance de 0,9m du foyer du réseau à l'aide d'un système de galettes de micro canaux, couplées à un écran phosphore et à une caméra CCD. Les interférogrammes, mono coup, observés en champ lointain présentent des contrastes supérieur à 30% sur la quasi totalité de la section du faisceau harmonique. Une technique de Foucaultage avec une lame, au foyer du réseau sphérique nous a permis de mesurer une séparation spatiale de $130\mu\text{m}$ entre les deux foyers harmoniques, correspondant bien à l'interfrange mesuré. Le diamètre de chaque foyer harmonique a été mesuré par la même méthode, et est approximativement de $25\mu\text{m}$ à mi-hauteur. La taille du faisceau harmonique au niveau du détecteur donne une divergence du faisceau harmonique produit dans ces conditions de l'ordre de 4mrad.

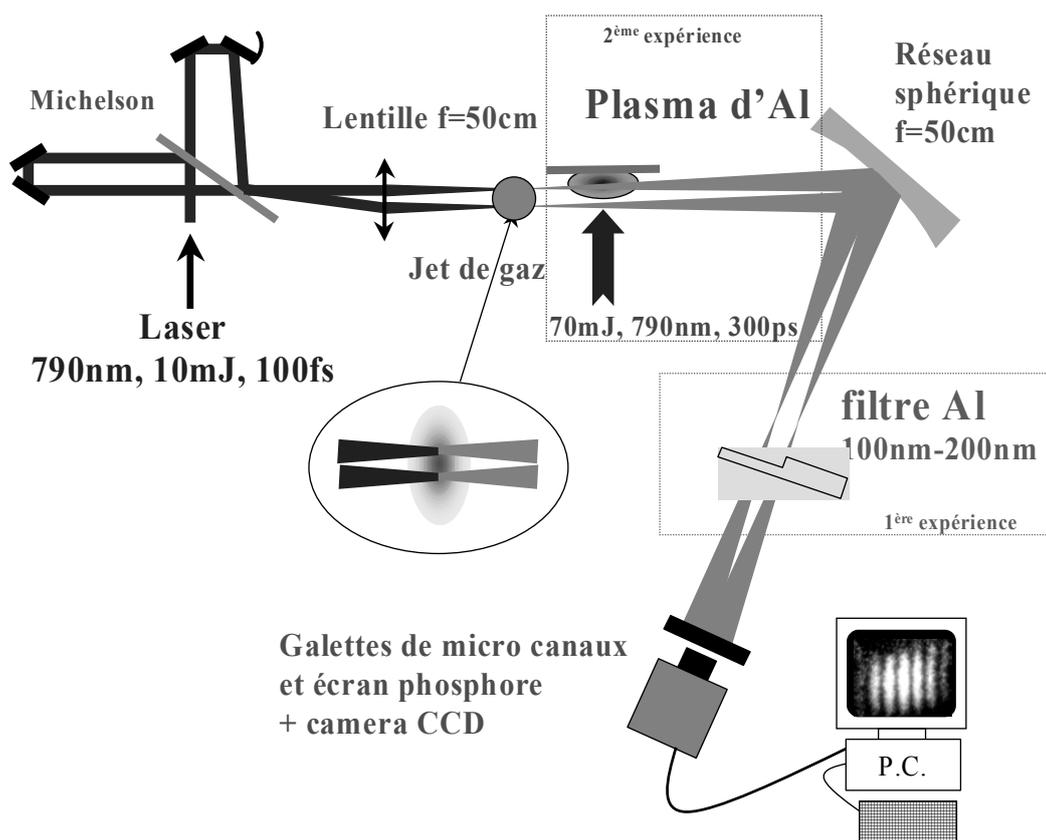


Figure V-9 : Schéma du dispositif expérimental utilisé pour les deux expériences d'application.

Nous allons maintenant détailler les deux études que nous avons effectuées à l'aide de ce dispositif expérimental. Tout d'abord la mesure du déphasage relatif introduit par un filtre d'aluminium en « marche d'escalier », puis la mesure de la densité électronique d'un plasma dense généré par une impulsion laser sub-nanoseconde.

2.1 Etude d'un filtre en « marche d'escalier ».

Nous avons choisi, dans un premier temps, de démontrer la possibilité de mesurer l'influence d'un objet déphasant placé sur le trajet optique d'un des deux bras harmoniques par la technique d'interférométrie spatiale. Pour cela nous avons sondé un filtre d'aluminium en « marche d'escalier » auto-supporté, en utilisant les ordres harmoniques allant de 9 à 15 (88nm à 53nm). L'aluminium a été choisi pour réaliser ces filtres car il présente une transmission relativement bonne ainsi qu'un indice de réfraction différent de 1 dans cette gamme spectrale (Gullikson *et al.* 1994, Smith *et al.* 1985). L'aluminium permet ainsi d'observer un décalage de frange notable avec une épaisseur traversée par le rayonnement UVX relativement faible (afin d'éviter une trop forte absorption). Ces filtres d'aluminium sont constitués d'une première épaisseur de 1000Å, recouverte, sur une moitié de sa superficie, par une seconde épaisseur de 1000Å, constituant ainsi une forme de « marche d'escalier ». La fabrication de ces filtres se fait par évaporation sous vide. Cet objet est placé 15mm après le foyer du réseau sphérique, de façon à ce que les deux faisceaux soient encore séparés spatialement, tout en ayant suffisamment divergé afin de minimiser les effets de diffraction dus au filtre. La figure d'interférence observée sur l'écran phosphore par la caméra CCD peut alors être considérée comme une projection de la partie sondée du filtre d'aluminium. La géométrie de l'expérience est représentée sur la Figure V-9, dans l'encadré intitulé « expérience 1 ».

Afin d'étudier la région de transition entre les deux épaisseurs d'aluminium, il est nécessaire d'avoir une référence absolue. Pour cela, un des deux bras traverse la plus petite des deux épaisseurs, uniforme (faisceau de référence), alors que le second faisceau est placé à cheval sur les deux épaisseurs (faisceau sonde). La Figure V-10 montre des interférogrammes typiques enregistrés pour les harmoniques d'ordre 9 à 13. Ces images correspondent à une intégration du signal sur le détecteur de deux tirs laser consécutifs. Nous avons effectué une transformée de Fourier à deux dimensions afin d'éliminer l'enveloppe spatiale de la distribution d'intensité éliminant ainsi une partie du bruit de fond. La partie supérieure de l'image est le réseau de franges de référence donné par l'interférence des deux parties de chaque faisceau qui traversent la même épaisseur d'aluminium. La partie inférieure de l'image est le réseau de franges incluant la différence de phase acquise par la partie du faisceau sonde qui traverse l'épaisseur supplémentaire de matériau. Un net décalage entre les

deux systèmes de franges est observable de part et d'autre de la région centrale. Cette ligne, relativement floue, correspond à la région de transition entre les deux épaisseurs d'aluminium. La diffraction du rayonnement UVX par ce bord franc et l'absence de système d'imagerie de la zone sondée empêchent d'observer clairement cette région. On peut cependant dans certains cas suivre une même frange de la partie supérieure à inférieure au travers de cette zone. Le décalage de frange $N_{d\acute{e}c}$ est proportionnel à la différence d'épaisseur L vue par les parties des faisceaux qui interfèrent, à la différence d'indice de réfraction Δn et à la longueur d'onde du rayonnement λ_q . On peut alors écrire :

$$N_{d\acute{e}c} = \frac{\Delta n \times L}{\lambda_q} \quad (\text{V-10})$$

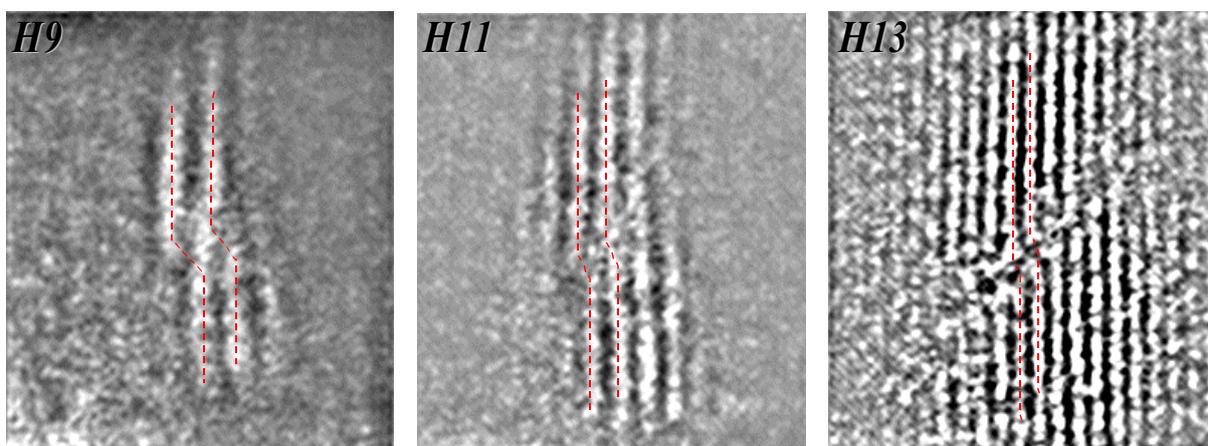


Figure V-10 : Interférogrammes obtenus avec les harmoniques 9, 11 et 13 ayant traversés un filtre d'aluminium en « marche d'escalier ».

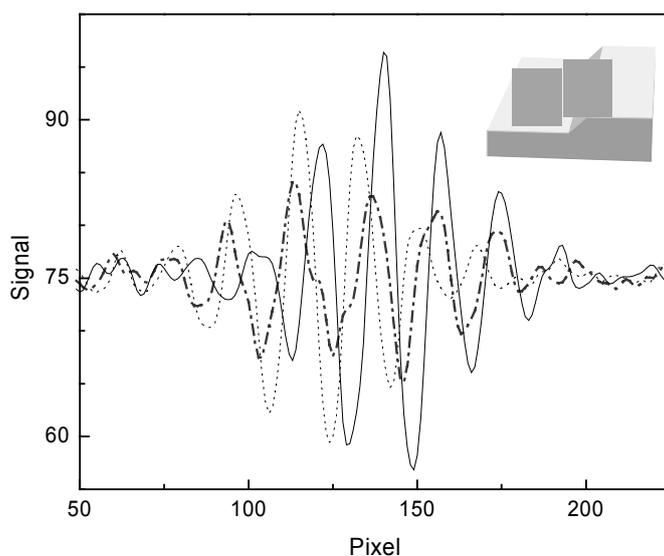


Figure V-11 : Coupes de l'interférogramme obtenu pour H13 dans la partie supérieure (trait point), inférieure (trait plein) et au milieu (trait épais pointillé – point). En insert est représenté un schéma de la structure du filtre .

La Figure V-11 illustre ce décalage de frange par une série de coupes effectuées sur une même image obtenue pour l'harmonique 13, à trois endroits différents : dans les parties supérieure et inférieure ainsi qu'au centre de l'image. Un net décalage de $0,41 \pm 0,06$ frange est observé entre le système de frange de la partie supérieure et inférieure, respectivement représentés en trait point et trait plein. La courbe en trait pointillé - point, est le résultat d'une coupe effectuée sur la partie centrale de l'image, englobant la transition entre les deux épaisseurs d'aluminium. Une transition plus ou moins continue, du premier réseau de franges vers le second peut être observé. Ceci révèle l'existence d'une transition continue, donc une pente entre les deux épaisseurs qui provient de la méthode utilisée pour fabriquer le filtre. En effet, après avoir déposé une première couche, un cache est placé à proximité de ce premier dépôt en recouvrant la moitié. La seconde couche d'aluminium est alors déposée, avec une certaine quantité de matière qui pénètre sous le cache. Le schéma en insert de la Figure V-11 représente la géométrie de la mesure et la forme de l'objet déphasant. Les décalages de frange pour les harmoniques 9, 11 et 15 sont respectivement de $0,70 \pm 0,03$, $0,50 \pm 0,05$ et $0,31 \pm 0,07$. La valeur du saut de frange diminue donc bien en fonction de l'ordre croissant de l'harmonique utilisée pour sonder le filtre d'aluminium.

Connaissant le décalage de frange introduit par la couche d'aluminium, il est possible de retrouver la valeur exacte de son épaisseur. Pour cela il est nécessaire de connaître la variation d'indice Δn avec précision. Etant donné que l'aluminium s'oxyde très vite à l'air, une fine pellicule d'oxyde d'aluminium (Al_2O_3) se forme sur chaque surface, contribuant principalement à la diminution de la transmission du filtre aux grandes longueurs d'onde. L'épaisseur du film d' Al_2O_3 est très variable, de 20Å à 60Å , selon les conditions de dépôt. Cette couche peut être encore plus épaisse si le filtre d'aluminium se trouve dans un environnement humide (Smith *et al.* 1985). Si l'épaisseur d'oxyde est identique sur les deux épaisseurs sondées, le décalage de frange est simplement du à l'aluminium. Par contre si elle est plus grande pour la partie la plus épaisse du filtre, composée de deux couches distinctes d'aluminium, l'indice de réfraction de l'oxyde peut jouer un rôle non négligeable sur le décalage de frange. Nous supposons dans la suite l'existence de quatre couches d'oxyde au total, toutes de même épaisseur. C'est à dire que deux couches d'oxyde contribuent au décalage de frange. La relation V-10 s'écrit maintenant plus précisément comme :

$$\Delta n_{Al} \times L_{Al} + \Delta n_{Al_2O_3} \times 2L_{Al_2O_3} = N_{dec} \lambda_q \quad (V-11)$$

où $L_{Al_2O_3}$ et L_{Al} sont respectivement les épaisseurs de la couche d'oxyde et d'aluminium contribuant au déphasage par les différences d'indice de réfraction $\Delta n_{Al_2O_3}$ et Δn_{Al} . Comme cette équation fait intervenir deux inconnues, il est nécessaire de considérer la transmission T de la couche d'aluminium et des deux couches d'oxydes qui forment la « marche d'escalier » pour la résoudre sans ambiguïté. Nous avons donc mesuré la transmission de chacune des

deux parties du filtre, avec T_1 la transmission de l'épaisseur simple et T_2 celle de la double couche. La transmission T de la matière qui induit le déphasage est $T=T_2/T_1$. Ces trois valeurs sont reportées dans le tableau ci-dessous.

λ_q (nm)	T_1 (%)	T_2 (%)	T (%)
71,8	7,9	2,4	30
60,8	17,1	8,3	48,5
52,7	27	15	55,6

Tableau V-1 : *Transmissions mesurées des deux couches constituant le filtre et rapport T de ces transmissions.*

On peut désormais écrire une deuxième équation qui relie la transmission de l'épaisseur déphasante T aux épaisseurs d'aluminium et d'oxyde par l'intermédiaire de la partie imaginaire k de l'indice de réfraction des deux matériaux. On obtient l'équation :

$$\exp\left[(-k_{Al} \times L_{Al} - k_{Al_2O_3} \times 2L_{Al_2O_3}) \frac{2\pi}{\lambda}\right] = T \quad (V-12)$$

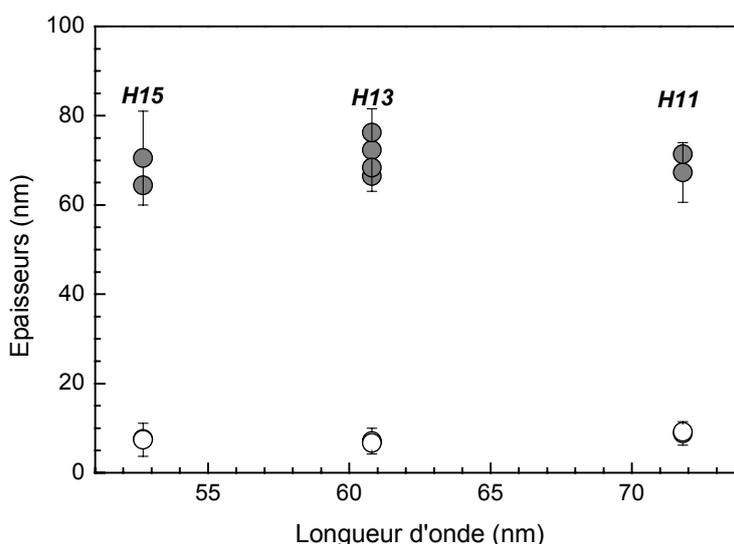


Figure V-12 : *Epaisseurs de la couche d'aluminium (cercle noir) et de la double couche d'oxyde d'aluminium (cercle blanc) déduites du décalage de frange et des transmissions.*

La résolution du système d'équations couplées donné par les relations V-11 et V-12, à partir de la mesure du décalage de frange et de la transmission du filtre, conduit à la détermination de l'épaisseur réelle d'aluminium et d'oxyde d'aluminium contribuant au déphasage d'un faisceau par rapport à l'autre. Les résultats sont illustrés en Figure V-12. L'épaisseur moyenne de la couche d'aluminium déphasante est de $70 \pm 8 \text{ nm}$ et celle d'oxyde d'aluminium de $4 \pm 1 \text{ nm}$. Cette dernière valeur est compatible avec celles rapportées dans la littérature (Smith *et al.* 1985).

Nous avons ainsi démontré qu'il est possible de mesurer, en deux dimensions, le décalage de frange introduit par un objet déphasant placé sur l'axe de propagation des deux faisceaux harmoniques avant qu'ils ne soient superposés et interfèrent. Dans cet exemple, nous profitons simplement de la courte longueur d'onde du rayonnement pour la mesure. Afin de profiter de la courte durée de l'émission harmonique, il est nécessaire d'étudier un processus déphasant qui évolue au cours du temps, comme par exemple la densité électronique d'un plasma produit par laser.

2.2 Mesure de la densité électronique d'un plasma produit par laser.

2.2.1 Rappels sur l'indice de réfraction d'un plasma.

Rappelons tout d'abord l'intérêt d'utiliser des courtes longueurs d'onde pour le diagnostic de plasmas denses. L'indice de réfraction d'un plasma dépend, par l'intermédiaire de la densité électronique N_e , des coordonnées spatiales \vec{r} et temporelle t . Cet indice de réfraction s'écrit comme :

$$n(\vec{r}, t) = \sqrt{1 - \frac{n_e(\vec{r}, t)}{n_{cr}}} \quad (\text{V-13})$$

où n_{cr} est la densité critique, définie par $n_{cr} = \frac{4\pi^2 \epsilon_0 m_e c^2}{e^2 \lambda^2} \approx \frac{1,12 \times 10^{21}}{(\lambda)^2} \text{ cm}^{-3}$, avec λ la

longueur d'onde exprimée en microns. Lorsque la densité électronique est supérieure à la densité critique pour une certaine longueur d'onde, l'indice de réfraction devient imaginaire. L'onde devient évanescence et ne peut pas se propager au travers du plasma. Ainsi plus la longueur d'onde du rayonnement utilisé pour sonder le plasma est courte, plus la densité électronique que l'on peut espérer mesurer est élevée. La densité électronique maximale que l'on peut mesurer avec un faisceau IR à 800nm est alors de $1,75 \cdot 10^{21} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ alors qu'elle est de $2,12 \cdot 10^{23} \text{ e}^-/\text{cm}^3$, pour une longueur d'onde de 72,7nm (H11). L'intérêt d'utiliser un rayonnement UVX et notamment les harmoniques d'ordre élevé apparaît de manière évidente.

En toute rigueur il est nécessaire de considérer un paramètre supplémentaire. Les forts gradients spatiaux de la densité électronique dans les plasmas denses peuvent provoquer la réfraction du faisceau incident. Le schéma de la Figure V-13 illustre l'effet de réfraction d'un plasma dense sur les rayons du faisceau sonde. Le rayon de courbure $R(\vec{r})$ d'un rayon se propageant dans un plasma est exprimé, dans l'approximation de l'optique géométrique, comme :

$$\frac{1}{R(\vec{r})} = \vec{N} \cdot \frac{\vec{\nabla} n(\vec{r})}{n(\vec{r})} \quad (\text{V-14})$$

où \vec{N} est un vecteur unitaire normal à la direction tangente au trajet optique du rayon. En considérant que la densité électronique ne varie que selon r , la relation V-14 devient localement :

$$\frac{1}{R(r, \Phi)} = \cos \Phi \cdot \frac{1}{n(r)} \frac{\partial n(r)}{\partial r} \quad (\text{V-15})$$

où Φ est l'angle de déflexion entre \vec{N} et le gradient de l'indice de réfraction. En utilisant la relation V-13, on peut exprimer l'angle de réfraction, local, en fonction du gradient de densité électronique et de la longueur d'onde λ qui se propage dans le plasma. L'intégration sur le chemin du rayon donne l'angle de réfraction total. La variation de cet angle peut être approximée par :

$$\frac{d}{d\lambda} |\cos \Phi| \propto \lambda \quad (\text{V-16})$$

Cet angle de réfraction est donc d'autant plus grand que la longueur d'onde est élevée.

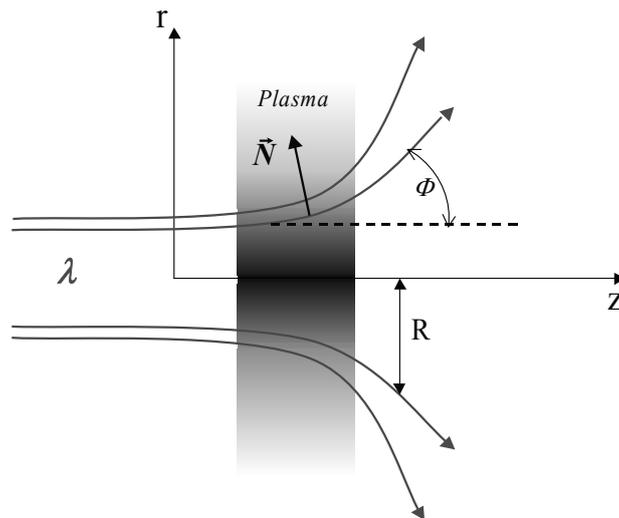


Figure V-13 : Schéma de la réfraction d'un rayonnement de longueur d'onde λ par une densité d'électron variant radialement.

Ce phénomène peut être utilisé pour faire une image du plasma par ombroscopie. Un faisceau de grande section et de grande longueur d'onde éclaire le plasma ainsi qu'une large région entourant ce dernier. La partie du faisceau traversant un fort gradient de densité est réfractée en dehors de l'optique de collection. La présence du plasma se traduit alors par une zone d'ombre dans l'image formée par cette optique sur le détecteur. Cet effet a notamment été utilisé par (Takahashi *et al.* 2000), pour mesurer par réfractométrie X le profil de densité électronique d'un plasma dans lequel un canal est creusé par un faisceau laser. Le faisceau sonde était un laser X à 19,6nm.

Des harmoniques d'ordre élevé ont été utilisées pour mesurer la densité électronique d'un plasma en enregistrant le rapport des signaux de deux harmoniques consécutives (H5 et H7) transmises par le plasma (Theobald *et al.* 1996, Theobald *et al.* 1999). Ces harmoniques étaient générées avec un laser fondamental KrF à 248,5nm de durée d'impulsion 0,7ps. Des densités électroniques supérieures à 10^{23} e⁻/cm³ ont été déduites des résultats expérimentaux. Cependant, de nombreuses approximations sur les caractéristiques propres au plasma sont nécessaires pour déduire la densité électronique des mesures de transmission. Cette mesure de densité électronique reste donc très indirecte.

Le but de notre seconde expérience, réalisée au Lund Laser Center, était de démontrer que la technique d'interférométrie spatiale à deux sources harmoniques séparées spatialement peut être appliquée à la mesure *directe* de la densité électronique d'un plasma. Etant donnée la courte durée de l'émission harmonique, la mesure est résolue temporellement à l'échelle de 100fs.

2.2.2 Cartographie 2D de la densité électronique du plasma.

Le dispositif expérimental est illustré en Figure V-9, dans l'encadré intitulé « expérience 2 ». Le plasma que nous désirons sonder est produit en focalisant une impulsion de 50mJ, de durée 300ps, à 790nm, à l'aide d'une lentille de 17cm de focale sur une feuille d'aluminium de 50µm d'épaisseur. Le faisceau utilisé pour générer le plasma est une partie du laser avant compression et présente une section de l'ordre de 10µm au niveau de la surface de la cible. L'éclairement ainsi atteint au niveau de la zone d'interaction, localisée à 2,5cm après le jet de gaz servant à la génération du rayonnement harmonique, est de quelques 10^{13} W/cm². Contrairement à l'expérience concernant l'étude du filtre d'aluminium, nous avons placé la cible servant à créer le plasma avant le réseau sphérique, directement après le jet de gaz. Ceci permet de réduire au maximum la détection du rayonnement issu de l'émission propre du plasma. En effet, la sélection spectrale du réseau sphérique associée au faible angle solide de collection permet d'éliminer la majeure partie de cette émission propre du plasma, qui pourrait empêcher d'observer les franges d'interférences. La cible est parallèle à l'axe de

propagation des deux faisceaux harmoniques et le faisceau laser qui génère le plasma y est perpendiculaire. Au niveau de la zone d'interaction entre la cible et le laser de pompe, les deux sources harmoniques ont une dimension radiale de $70\mu\text{m}$, pour une séparation entre les deux faisceaux de $100\mu\text{m}$, centre à centre. Les deux sources harmoniques sont telles qu'elles présentent un angle de 45° avec la surface de la cible. On conserve ainsi une référence dans l'interférogramme, le faisceau le plus éloigné du plasma n'étant pas perturbé par le plasma.

Dans un premier temps, afin de vérifier l'alignement, nous regardons la transmission par le plasma du faisceau harmonique le plus proche de la cible. La Figure V-14a représente l'image obtenue de l'harmonique 7 générée dans le krypton (un seul bras) après propagation à proximité de la cible, sans plasma. Un repère rappelant la géométrie de l'interaction est représenté : z est l'axe de sonde (axe de propagation des harmoniques). Le profil d'intensité du faisceau sonde est alors proche d'une Gaussienne. Par contre, lorsqu'un plasma est produit $1,2\text{ns}$ avant le passage de la sonde, le profil n'est plus du tout régulier présentant une forme de « double lobe » (Figure V-14b). Le signal de l'harmonique transmise disparaît dans la région la plus proche de la cible, où la densité électronique ainsi que les gradients sont les plus importants. Ceci est caractéristique de la réfraction du faisceau sonde par la variation rapide de la densité électronique selon différentes directions dans l'espace et semble montrer que le plasma présente une forme sphérique à l'instant où il est sondé par l'harmonique. Il est peu probable que la densité électronique maximale soit supérieure à la densité critique de l'harmonique 7 ($8.10^{22} \text{ e}^-/\text{cm}^3$), car la densité électronique chute très vite au cours de l'expansion du plasma.

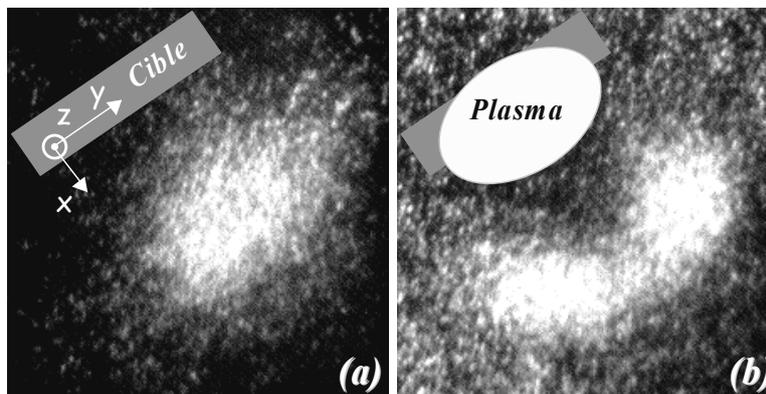


Figure V-14 : Image du faisceau de l'harmonique 7 après propagation à proximité de la cible (a) sans plasma et (b) $1,2\text{ns}$ après la création du plasma.

Par contre il est possible que des raies d'absorption (lié-lié) apparaissent dans le plasma constitué d'atomes d'aluminium 3 à 4 fois ionisés. Un calcul rapide des raies d'absorption de l'atome d'aluminium jusqu'à 5 fois ionisé montre qu'il existe de fortes raies d'absorption à $112,6\text{nm}$ pour l'aluminium 3 fois ionisé. De même, il existe des raies d'absorption à $112,3\text{nm}$

et 112,95nm de l'atome 4 fois ionisé. Rappelons que l'harmonique 7 a une longueur d'onde centrée à 112,8nm. Il est donc probable qu'une bonne partie du faisceau sonde soit absorbée par le plasma dans la région de forte densité électronique. On peut aussi remarquer que l'émission propre du plasma sur la Figure V-14b n'est pas assez forte pour empêcher l'observation du faisceau harmonique sonde. La présence du plasma ainsi que ses effets sur le faisceau sonde est confirmée par cette mesure similaire à une technique d'ombroscopie X par projection (Yamanaka *et al.* 1982).

Lorsque le second bras harmonique est rajouté, on observe en champ lointain les interférences entre les deux faisceaux harmoniques présentées en Figure V-15. Ces figures d'interférence, monocoups, sont obtenues pour l'harmonique 7, sans (a) et avec (b) plasma, dans les mêmes conditions de génération des harmoniques et du plasma que pour les images d'ombroscopie présentées ci dessus. L'interférogramme obtenu sans plasma présente une légère courbure des franges à proximité de la cible. Le faisceau sonde étant extrêmement rasant, ceci peut être dû à de la diffraction de la sonde par le bord du support de la cible. Lorsque le plasma est produit 1,2ns avant le passage des faisceaux sonde et référence, on observe un fort déplacement des franges, par rapport à la position verticale donnée par l'image sans plasma. Ce décalage est plus important dans les régions proches de la cible où la densité électronique est la plus forte. Les franges disparaissent dans les zones de forte densité, près de la surface de la cible à cause des effets d'absorption entre états liés – liés et de réfraction présentés précédemment. On peut notamment observer sur la partie supérieure de la Figure V-15b une tache sans interférences provenant probablement d'une partie réfractée du faisceau sonde qui ne peut plus interférer avec le faisceau référence (deuxième faisceau harmonique), car l'angle entre les deux faisceaux devient trop important. A cause de ces effets d'absorption et de réfraction du faisceau sonde se propageant dans le plasma, il est très difficile d'effectuer une mesure de la densité électronique à partir des interférogrammes enregistrés.

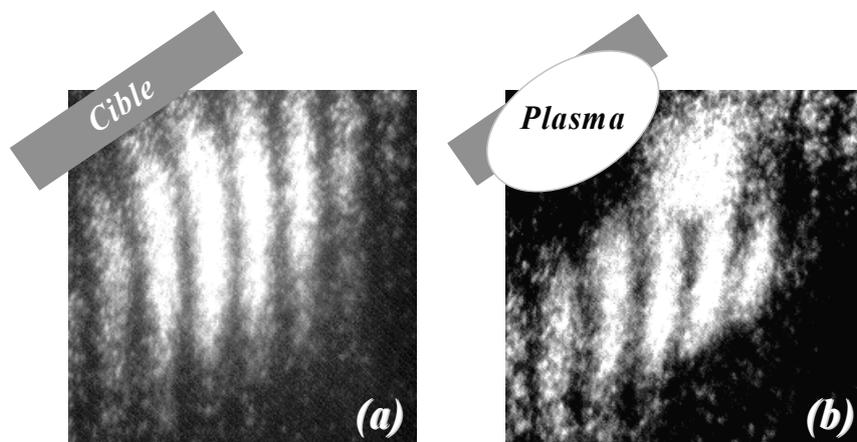


Figure V-15 : Interférogrammes de l'harmonique 7 après propagation à proximité de la cible
(a) sans plasma et (b) 1,2ns après la création du plasma.

L'accordabilité partielle du rayonnement UVX produit par génération d'harmoniques permet de sélectionner une longueur d'onde harmonique plus courte, moins absorbée et moins réfractée, simplement en réglant le spectromètre. Nous présentons, par exemple, en Figure V-16 les réseaux de franges obtenus avec l'harmonique 11 (72nm). Pour cette longueur d'onde, le rayonnement harmonique n'est plus absorbé ou réfracté en présence du plasma. Ceci est également confirmé par des mesures d'ombroscopie effectuées avec cet ordre harmonique. En Figure V-16a, l'interférogramme obtenu sans plasma présente un bon contraste de franges de plus de 50%. Lorsque le plasma est produit, 1,2ns avant le passage de la sonde (Figure V-16b et c), on distingue toujours clairement les franges d'interférences malgré un bruit de fond plus élevé que dans le cas de l'harmonique 7 probablement dû à l'existence d'un plus grand nombre de raies d'émission de l'aluminium dans ce domaine spectral. La position du réseau de franges sans plasma est représenté par les lignes pointillées verticales. Le décalage de franges, d'autant plus important que l'on est proche de la cible, est régulier et se traduit par une inclinaison des franges indiquant un gradient de densité homogène. En effet ce décalage est directement relié à la densité électronique du plasma. Afin de déterminer la densité électronique locale en chaque point du plasma, il est nécessaire d'effectuer une inversion d'Abel, puisque la densité électronique varie selon l'axe de la sonde (plasma sphérique). Le but de cette expérience étant simplement de démontrer le potentiel de la technique pour le diagnostic de plasma, nous ne considérons que la densité moyenne \bar{N}_e selon l'axe de sonde que l'on peut extraire directement du décalage de franges par la formule :

$$N_{dec} = \int_{-L/2}^{L/2} \frac{1-n(x,y,z)}{\lambda} dz \approx \frac{L}{2\lambda} \frac{\bar{N}_e(x,y)}{N_c} \quad (V-17)$$

où λ est la longueur d'onde du rayonnement sonde, N_c la densité critique pour λ et n l'indice de réfraction du plasma défini en V-13. L'intégrale est calculée sur la distance L du plasma traversée par la sonde. La taille du plasma dans la direction de propagation est estimée à environ 100 μ m, à l'instant où il est sondé. Nous pouvons ainsi, en négligeant les effets de réfraction du faisceau sonde, calculer la densité électronique moyenne du plasma en mesurant le décalage de frange :

$$\bar{N}_e(x,y) = \frac{2\lambda N_c}{d} N_{dec} \quad (V-18)$$

En Figure V-16b, l'harmonique 11 sonde n'est pas totalement comprise dans le plasma, de sorte que le bas des franges dans l'image n'est pas perturbé par le plasma. Ceci donne une position de référence, identique à celle obtenue sans plasma (Figure V-16a). Nous pouvons ainsi effectuer une cartographie à deux dimensions de l'expansion du plasma. Des

lignes iso-densité sont représentées en trait pointillé épais, révélant que l'expansion hydrodynamique du plasma se produit perpendiculairement à la surface de la cible d'aluminium. Les densités électroniques moyennes mesurées varient de $9 \pm 2 \cdot 10^{19} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ pour la courbe iso densité la plus éloignée de la surface de la cible à $2,0 \pm 0,2 \cdot 10^{20} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ pour la plus proche. En Figure V-16c, les franges de l'interférogramme sont décalées dans leur totalité, de telle sorte qu'il n'y a plus de position de référence. Cet interférogramme est obtenu en rapprochant la surface de la cible des deux faisceaux harmoniques tout en gardant la séparation spatiale entre les deux faisceaux constante. En prenant le bas du système de frange comme référence, on mesure un décalage de frange à proximité de la surface de l'ordre de $0,85\lambda$, qui correspond à une densité électronique moyenne de $2,6 \pm 0,2 \cdot 10^{20} \text{ e}^-/\text{cm}^3$. Cette valeur est une densité minimale étant donné que le bas des franges peut être lui même décalé par rapport à la position sans plasma.

Précisons que dans toutes ces expériences, le plasma n'est pas imagé ; l'interférogramme est obtenu par projection en champ lointain, le plasma étant placé dans un faisceau sonde divergent. Il s'agit donc plus précisément d'holographie interférométrique et l'image devrait être déconvoluée de la diffraction induite par le plasma. Cet effet est suffisant pour dégrader la résolution spatiale à une valeur de l'ordre de $15\mu\text{m}$ (comme indiqué en Figure V-16b). Cette valeur est estimée à partir de mesures de diffraction par une lame placée à la position du plasma.

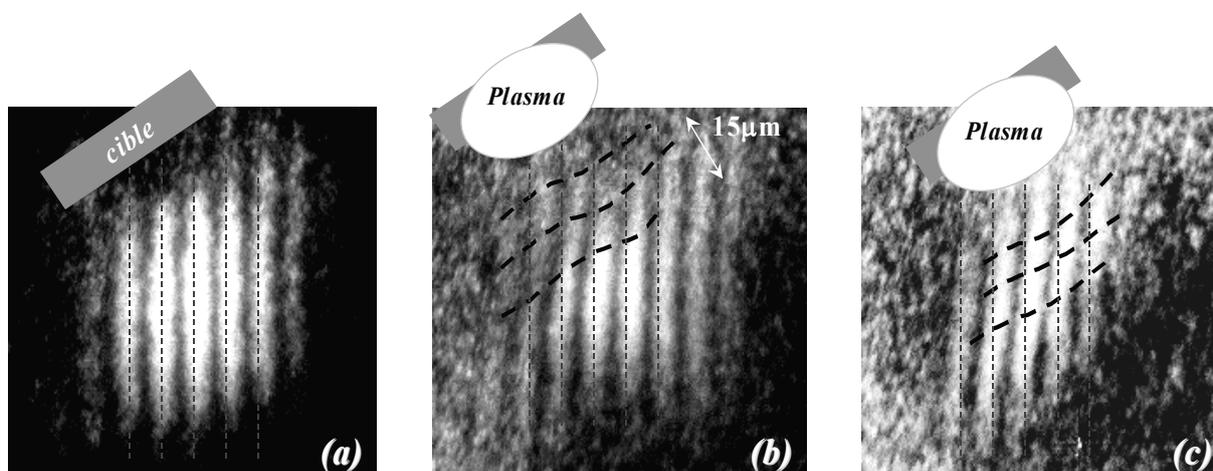


Figure V-16 : Interférogrammes de l'harmonique 11 après propagation à proximité de la cible (a) sans plasma, (b) et (c) 1,2ns après la création du plasma.

Pour donner un ordre de grandeur des densités électroniques que l'on peut attendre après 1ns d'expansion du plasma, une simulation a été réalisée (Hueller 1999), dans le cas d'une expansion mono-dimensionnelle perpendiculaire à la surface de la cible. Rappelons que

les mesures expérimentales laissent plutôt supposer un plasma sphérique et que les simulations ne sont utilisées que pour donner une idée approximative de la densité électronique. La Figure V-17 illustre les résultats de ces simulations, représentant la densité électronique du plasma en fonction de la distance perpendiculaire à la surface de la cible, pour différents délais entre les sondes et le laser de pompe qui produit le plasma. Ces simulations ont été effectuées avec le code d'expansion hydrodynamique - radiatif MULTI 1D (Ramis *et al.* 1988, Merdji 1998). Sans entrer dans les détails, signalons simplement que ce code permet de résoudre les équations hydrodynamiques du plasma couplées aux équations de transfert radiatif. Dans ces simulations, quel que soit le délai entre la pompe et le faisceau sonde, la densité électronique chute de la densité du solide à $10^{21} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ à une distance de quelques microns de la surface de la cible. 1,2ns après la création du plasma, la densité électronique décroît de $2 \cdot 10^{20} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ à proximité de la surface ($\sim 20 \mu\text{m}$) à quelques $10^{19} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ à une distance de $50 \mu\text{m}$. On obtient ainsi des valeurs de densité similaires aux mesures expérimentales, alors que l'on aurait attendu des valeurs plutôt supérieures, du fait de l'expansion mono-dimensionnelle. Ces simulations montrent de plus que des densités électroniques très élevées n'existent qu'à proximité de la surface de la cible sur des distances de quelques microns. Ceci confirme la nécessité d'augmenter la résolution spatiale de cette technique d'interférométrie afin de mesurer de telles densités.

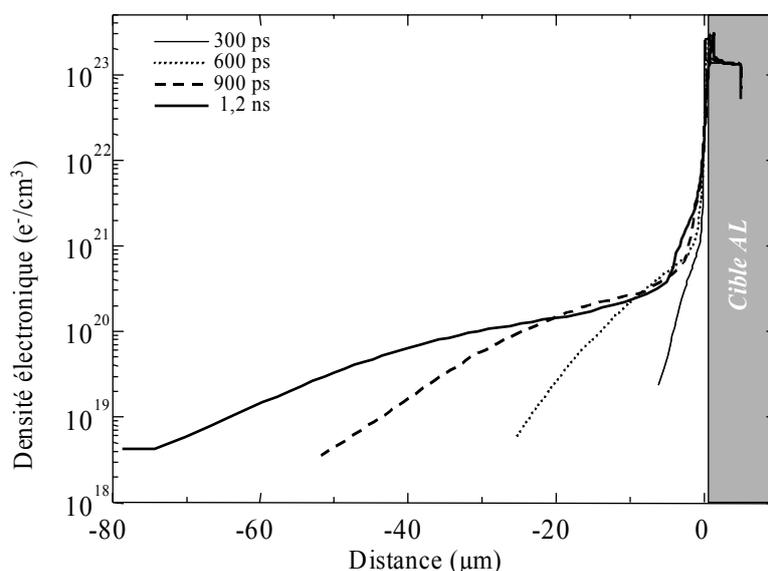


Figure V-17 : Simulation des profils de densité électronique pour différents délais entre la pompe et les sondes indiqués dans la Figure.

Conclusion.

Après avoir rappelé les propriétés fondamentales de cohérence spatiale du rayonnement harmonique, nous avons montré qu'il est possible de générer deux sources harmoniques séparées spatialement mais bloquées en phase (Zerne *et al.* 1997). Les figures d'interférence obtenues en champ lointain présentent un bon contraste (jusqu'à 95%) quel que soit l'ordre de non linéarité de l'harmonique considérée ou encore la distance séparant les deux sources. Ceci démontre que cette propriété de cohérence mutuelle est extrêmement robuste. Cette technique d'interférométrie a permis d'étudier la cohérence temporelle des impulsions harmoniques et de mettre en évidence la différence de temps de cohérence entre les contributions, spatialement séparées, des trajectoires courte et longue intervenant lors de la génération d'harmoniques d'ordre élevé (Bellini *et al.* 1998).

Nous nous sommes ensuite intéressés à la possibilité d'utiliser cette technique pour la caractérisation d'objets déphasants. Une première expérience de faisabilité a permis de montrer qu'il est possible d'observer un décalage des franges harmoniques lorsqu'un filtre d'aluminium en « marche d'escalier » est inséré sur le trajet d'un des deux faisceaux sondes. Le décalage de frange induit dépend de l'indice du milieu et de l'épaisseur de la marche, et permet de remonter à l'une de ces deux grandeurs connaissant l'autre. Si une couche d'oxyde est présente, nous montrons qu'en couplant les mesures de décalage de frange et de transmission, il est possible de remonter aux épaisseurs du matériau et de l'oxyde, connaissant leur indice complexe. Réciproquement, cette technique devrait pouvoir être étendue à la mesure d'indice de réfraction de différents matériaux dans le domaine UVX, par la mesure du décalage de frange induit par une épaisseur parfaitement calibrée dudit matériau. On peut également penser caractériser la qualité de surface d'optiques UVX grâce à cette technique d'interférométrie spatiale.

La deuxième expérience d'application a permis de démontrer la possibilité de mesurer la densité électronique d'un plasma produit par laser. On obtient ainsi une cartographie à deux dimensions de la densité électronique à condition que les gradients de densité ne soient pas trop importants pour réfracter la sonde. A cet égard, la possibilité de changer l'ordre harmonique de la sonde est fondamentale, et permet de plus de s'éloigner des longueurs d'onde pour lesquelles le plasma serait trop absorbant ou trop brillant. Des densités électroniques de plus de $2 \cdot 10^{20} \text{e}^-/\text{cm}^3$ ont été mesurées avec une résolution temporelle de 100fs, permettant de « geler » l'expansion du plasma. Cette mesure interférométrique de la densité est directe, contrairement aux mesures de transmission qui nécessitent de nombreuses hypothèses sur la nature du plasma, et permet de réaliser un « instantané » du profil de densité.

Un des avantages majeurs de cette technique est le fait d'effectuer la division d'amplitude sur le faisceau fondamental. Il n'est donc pas nécessaire de recourir à des

optiques UVX compliquées pour générer deux faisceaux harmoniques mutuellement cohérents. Une évolution de cette technique est cependant nécessaire pour avoir une meilleure résolution spatiale. En effet, le plasma n'est pas imagé ce qui diminue fortement la résolution spatiale et limite la technique actuelle au diagnostic de plasmas de dimension relativement importante. Une optique de collection spécifique, imageant l'objet déphasant sur un détecteur de bonne résolution spatiale permettrait d'observer des variations spatiales de la densité électronique sur de petites dimensions, comme cela est le cas à proximité de la surface de la cible.

Chapitre VI : Interférométrie fréquentielle avec les harmoniques.

Introduction.

Nous avons déjà précisé au Chapitre V A-1.1, les propriétés de cohérence spatiale et temporelle du rayonnement harmonique d'ordre élevé dans les gaz rares. Plus précisément, nous avons vu qu'il est possible de générer, dans un même milieu, deux sources harmoniques mutuellement cohérentes séparées spatialement (Zerne *et al.* 1997). Il est alors possible d'observer des figures d'interférences entre les deux faisceaux lorsque ceux-ci se superposent spatialement en champ lointain. De la même façon, il est intéressant d'étudier la possibilité de produire deux sources mutuellement cohérentes, donc bloquées en phase, non plus séparées spatialement, mais *temporellement*.

Rappelons la définition de la cohérence mutuelle de deux sources S et S' séparées spatialement en considérant deux points P et P' respectivement des sources S et S', séparées spatialement, avec des positions homothétiques. Les champs E et E' rayonnés en P et P' sont dits mutuellement cohérents, ou encore bloqués en phase, s'il existe une corrélation entre ces champs à délai nul ($\tau=0$). Le degré de cohérence spatiale γ en deux points homothétiques s'écrit alors comme :

$$\gamma(P, P', \tau = 0) = \frac{\langle E(P, t), E'(P', t) \rangle}{\sqrt{\langle |E(P)|^2 \rangle \langle |E'(P')|^2 \rangle}} \quad (\text{VI-1})$$

Rappelons que $\gamma(P, P', \tau = 0) \cong 1$, pour deux sources parfaitement cohérentes entre elles. Pour établir l'équivalent temporel, considérons deux impulsions S et S' (même notation), décalées temporellement d'un délai Δt (on suppose $\Delta t >$ durée de l'impulsion), se propageant suivant le même axe et donc superposées spatialement (deux points homothétiques P et P' dans la section spatiale des impulsions sont confondus). Les champs E et E' rayonnés en P, respectivement à l'instant t dans l'impulsion S et t- Δt dans l'impulsion S' (instants « homothétiques » dans les enveloppes temporelles de S et S') définissent un degré de cohérence temporelle mutuelle entre les deux sources :

$$\gamma(P, \tau = \Delta t) = \frac{\langle E(P, t), E'(P, (t - \Delta t)) \rangle}{\sqrt{\langle |E(P)|^2 \rangle \langle |E'(P)|^2 \rangle}} \quad (\text{VI-2})$$

Pour deux sources mutuellement parfaitement cohérentes temporellement on a une fois de plus $\gamma(P, \tau = \Delta t) \cong 1$. Si $\tau = \Delta t + \delta t$, la cohérence temporelle mutuelle des deux sources est considérée à des instants « non homothétiques ».

Afin de démontrer la possibilité de générer deux sources harmoniques séparées temporellement et bloquées en phase, nous avons tout d'abord réalisé une expérience d'interférométrie fréquentielle dans le domaine UVX. Cette expérience permet de définir les conditions optimales de génération de telles sources ; elle renseigne également sur les mécanismes fondamentaux de la génération d'harmoniques. Dans une deuxième partie, nous démontrons la possibilité de généraliser cette propriété de cohérence mutuelle à N impulsions. L'interférométrie fréquentielle dans le domaine UVX ouvre la voie à de nouvelles applications des harmoniques, notamment à la physique des plasmas denses. Nous citerons pour exemple deux expériences de faisabilité réalisées à Saclay.

A. Interférométrie fréquentielle à 2 sources.

Dans cette première partie, nous rappelons, d'une part, le principe de l'interférométrie fréquentielle d'un point de vue général et, d'autre part la transposition de cette technique au domaine UVX en utilisant les harmoniques d'ordre élevé. Nous présenterons ensuite les principales difficultés expérimentales rencontrées. Nous verrons finalement comment l'analyse détaillée des figures d'interférence renseigne sur le processus fondamental de la génération d'harmoniques, notamment sur l'effet de l'ionisation du milieu par l'impulsion fondamentale.

1. Principe de l'interférométrie fréquentielle.

1.1 Rappels.

L'interférométrie dans le domaine des fréquences utilise deux impulsions se propageant sur le même axe, donc superposées spatialement, mais décalées temporellement (Δt). Cette technique est connue et largement utilisée dans le domaine visible (IR). Elle permet, de part la courte durée des impulsions utilisées, de réaliser des diagnostics interférométriques de processus dynamiques se développant à l'échelle de temps inférieure à Δt , avec une résolution temporelle femtoseconde. Par exemple en physique du solide et des plasmas (Tokunaga *et al.* 1992, Geindre *et al.* 1994, Guizard *et al.* 1996, Quéré 2000). Cette méthode interférométrique peut être considérée comme l'analogue temporel de l'expérience

bien connue des fentes d'Young (Colombeau *et al.* 1990), qui est le principe de l'interférométrie spatiale présentée au Chapitre V. Dans ce cas, les deux sources séparées spatialement par une distance d , mais bloquées en phase, rayonnent des fronts d'onde qui se recouvrent par diffraction en champ lointain et interfèrent. L'interfrange dans le domaine des vecteurs d'onde k s'écrit : $\Delta k = \frac{2\pi}{d}$. Pour l'interférométrie fréquentielle, le principe est le même dans le domaine temporel. Ainsi les deux impulsions séparées en temps par un délai Δt , mais bloquées en phase, interfèrent dans le domaine des fréquences après dispersion spectrale dans les ordres de diffraction ≥ 1 par un réseau. L'allongement temporel induit par le réseau, du fait de l'inclinaison du front d'amplitude permet le recouvrement temporel des deux impulsions décalées donnant lieu à des interférences dans le domaine des fréquences dont l'interfrange spectral s'écrit : $\Delta\omega = \frac{2\pi}{\Delta t}$. On voit ainsi clairement l'analogie entre la diffraction et la dispersion spectrale qui conduisent à des figures d'interférence semblables mais dans des espaces différents. L'interférométrie fréquentielle repose donc sur le fait que deux impulsions clairement séparées en temps par un délai supérieur à leur durée propre peuvent conduire à l'observation d'interférences dans le domaine spectral (Piazecki *et al.* 1980, Reynaud *et al.* 1989, Daguzan 1996).

1.2 Formulation mathématique.

Considérons une première impulsion dont le champ électrique est décrit par : $E_1(t) = E_0(t)e^{i\omega_0 t}$. La deuxième impulsion est retardée d'un délai Δt par rapport à la première ; elle peut être également déphasée de $\Delta\phi$ et atténuée par un facteur \sqrt{A} . L'expression du champ électrique de cette deuxième impulsion est alors : $E_2(t) = \sqrt{A}E_0(t - \Delta t)e^{i(\omega_0(t - \Delta t) - \Delta\phi)}$. La transformée de Fourier du champ total $E(t) = E_1(t) + E_2(t)$ s'écrit :

$${}^1 TF[E(t)] = \tilde{E}(\omega) = \tilde{E}_0(\omega - \omega_0) \left\{ 1 + \sqrt{A} e^{i(\omega\Delta t - \Delta\phi)} \right\} \quad (\text{VI-3})$$

D'un point de vue expérimental, cette transformée de Fourier, qui permet le passage du domaine temporel au domaine fréquentiel, est réalisée par le réseau du spectromètre UVX

¹ TF[] est l'opérateur de Fourier défini par $TF[f](\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(t)e^{-i\omega t} dt$

utilisé pour l'analyse spectrale des harmoniques. Dans le plan spectral, on mesure le spectre de puissance du rayonnement harmonique:

$$\begin{aligned} \tilde{I}(\omega) &= |\tilde{E}(\omega)|^2 = \tilde{I}_0(\omega) \left\{ 1 + A + 2\sqrt{A} \cos(\omega\Delta t - \Delta\phi) \right\} \\ \text{avec } \tilde{I}_0(\omega) &= |\tilde{E}_0(\omega - \omega_0)|^2 \end{aligned} \quad (\text{VI-4})$$

Considérons maintenant le cas où les deux impulsions laser ont une enveloppe temporelle

Gaussienne de durée τ . L'éclairement peut donc être écrit comme : $I_0(t) = I_0 e^{-\frac{t^2}{2\tau^2}}$.

L'expression VI-4 devient alors :

$$\tilde{I}(\omega) = \left[\frac{I_0}{2} \tau e^{-\frac{(\omega - \omega_0)^2 \tau^2}{8}} \right] \left\{ 1 + A + 2\sqrt{A} \cos(\omega\Delta t - \Delta\phi) \right\} \quad (\text{VI-5})$$

Pour illustrer le principe l'interférométrie fréquentielle, nous présentons en Figure VI-1, le cas de l'harmonique 17 ($\omega_0 = 4,01 \cdot 10^{16} \text{ s}^{-1}$), les deux impulsions étant séparées par un délai $\Delta t = 400 \text{ fs}$.

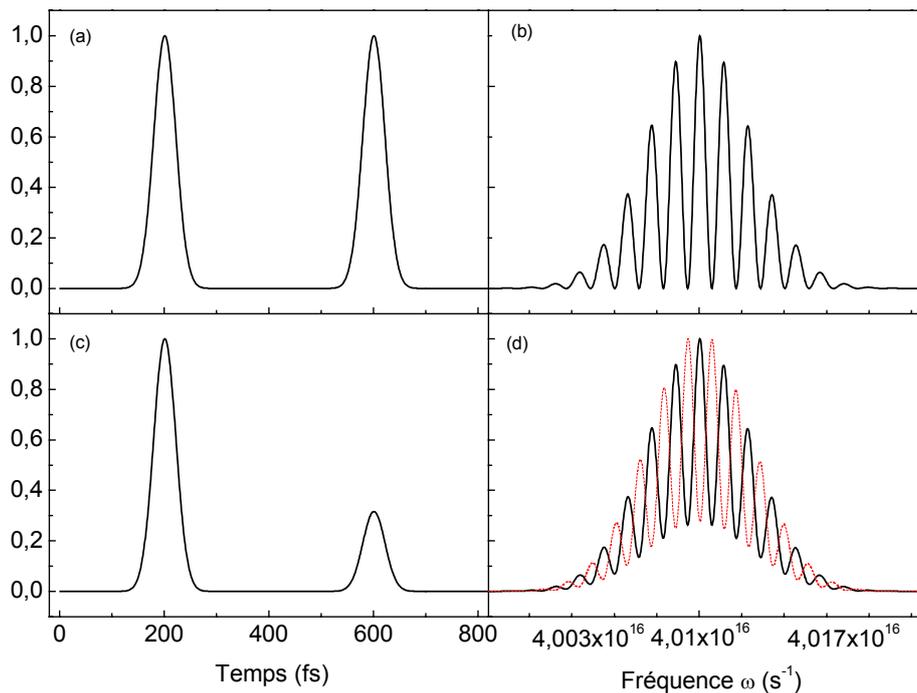


Figure VI-1 : (a) Profil temporel de l'amplitude du champ de l'harmonique 17 et (b) profil spectral correspondant aux deux impulsions identiques. (c) Profil temporel de l'amplitude du champ de l'harmonique 17 avec un facteur d'atténuation $A=0,1$ et (d) profil spectral correspondant sans déphasage entre les deux impulsions (trait plein) et avec un déphasage de π (trait pointillé court).

Lorsque les deux impulsions ont la même amplitude, le spectre obtenu présente une enveloppe Gaussienne (identique au profil spectral d'une impulsion, centrée à la fréquence $\omega_0=4,01.10^{16} \text{ s}^{-1}$ pour l'harmonique 17), modulée par des cannelures, résultat d'interférences constructives et destructives ; l'interfrange varie comme l'inverse du délai temporel Δt : $\Delta\omega = \frac{2\pi}{\Delta t}$. Le contraste des franges C , défini par la relation VI-6 est égal à 1 dans ce cas (Figure VI-1-haut).

$$C = \frac{\text{Max}[\tilde{I}(\omega)] - \text{Min}[\tilde{I}(\omega)]}{\text{Max}[\tilde{I}(\omega)] + \text{Min}[\tilde{I}(\omega)]} \quad (\text{VI-6})$$

Par contre, lorsque la deuxième impulsion est atténuée d'un facteur $A=0,1$ par rapport à la première, le contraste des franges est diminué d'un facteur $\frac{2\sqrt{A}}{1+A}$, abaissant le contraste des franges C de 1 à 0,575 (Figure VI-1-bas). Sur la Figure VI-1 on observe également que, si les deux impulsions sont déphasées de π , correspondant à une demi - période harmonique ($\frac{T_q}{2} = 0,08\text{fs}$ pour l'harmonique 17), la figure d'interférence est alors en opposition de phase par rapport à la précédente. Ce décalage en fréquence, $\delta\omega = \frac{\Delta\phi}{\Delta t}$, vaut $\delta\omega=0,78.10^{13} \text{ s}^{-1}$ dans le cas de l'harmonique 17. Dans la troisième partie de ce chapitre, nous démontrerons que ce décalage de frange, induit par le déphasage d'une impulsion par rapport à l'autre, peut être utilisé pour la caractérisation d'un objet déphasant, dans des expériences de type pompe sonde utilisant les harmoniques d'ordre élevé.

2. Interférométrie fréquentielle avec les harmoniques.

L'application de l'interférométrie fréquentielle dans le domaine UVX est possible, en tirant parti des propriétés remarquables du rayonnement harmonique. Tout d'abord, on produit facilement sans lame séparatrice deux impulsions harmoniques séparées temporellement et mutuellement cohérentes, à partir de deux impulsions laser séparées temporellement. La très courte durée des harmoniques correspond à un profil spectral de quelques nm, assez large pour être modulé par les interférences spectrales (VI-5). L'interfrange spectral, typiquement $\Delta\lambda \sim 1\text{\AA}$ peut alors être résolu avec un réseau de fort pouvoir résolvant (>10000).

2.1 Principales difficultés.

Dans les expériences d'interférométrie fréquentielle réalisées avec des lasers dans le visible ou l'infrarouge, on produit les deux impulsions séparées en temps avec un interféromètre de Michelson. Le champ électrique de départ est divisé en deux champs de même amplitude par une lame semi-réfléchissante. Le retard temporel Δt entre les deux impulsions est ajusté à l'aide d'une ligne à retard installée sur l'un des bras du Michelson. Le spectre des deux impulsions (VI-5) est mesuré avec une caméra CCD placée après le réseau de dispersion.

L'application de l'interférométrie fréquentielle au rayonnement harmonique pose principalement deux problèmes, l'un d'ordre technique, l'autre fondamental. Nous avons vu (§1.1) que l'interfrange dans le domaine spectral est égal à $\Delta\omega = \frac{2\pi}{\Delta t}$, correspondant dans le domaine des longueurs d'onde à :

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{c\Delta t} \quad (\text{VI-7})$$

On voit que l'interfrange diminue quadratiquement avec la longueur d'onde, donc avec l'ordre harmonique. Il est nécessaire d'utiliser un spectromètre de très haute résolution pour observer les franges d'interférence à l'intérieur du profil spectral d'une harmonique d'ordre q donné.

L'autre difficulté est intrinsèque au processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé. Les deux impulsions harmoniques sont produites en focalisant deux impulsions IR, superposées spatialement dans la même région du milieu atomique, mais avec un décalage temporel Δt entre elles. Le processus de génération d'harmoniques est fortement lié à l'ionisation du milieu. Ainsi, au temps t_0 où la première impulsion laser interagit avec le milieu, générant efficacement une première impulsion harmonique, le milieu peut être fortement ionisé. La deuxième impulsion laser, qui se propage dans le milieu atomique au temps $t_0 + \Delta t$, voit un milieu partiellement ionisé où d'une part, le nombre d'atomes émetteurs est moins important qu'au temps t_0 et, d'autre part, des électrons libres sont produits qui vont diminuer l'efficacité de génération de l'impulsion harmonique par défocalisation du fondamental et dégradation de l'accord de phase. Outre le fait que la deuxième impulsion harmonique est bien moins efficacement générée que la première, la forte densité d'électrons libres, qui s'établit rapidement pendant la première impulsion affecte beaucoup la cohérence mutuelle des deux sources et peut conduire à un brouillage des franges (Le Déroff 1999). L'ionisation du milieu pose bien moins de problèmes dans le cas de l'interférométrie spatiale que nous avons exposé au chapitre précédent. En effet, dans le schéma spatial, les deux impulsions lasers qui vont générer les harmoniques, interagissent au même instant en deux

régions différentes du milieu. Si la densité atomique et l'éclairement sont identiques en ces deux régions, les effets de l'ionisation seront strictement identiques ; les champs harmoniques générés sont alors bloqués en phase et interfèrent en champ lointain. Nous avons cherché à déterminer les meilleures conditions expérimentales pour observer des franges spectrales, signature de deux sources harmonique séparées temporellement mais bloquées en phase.

2.2 Dispositif expérimental.

Le dispositif expérimental utilisé dans cette première expérience de démonstration a déjà été présenté dans (Le Déroff 1999, Salières *et al.* 1999). Nous utilisons le spectromètre UVX (cf. Figure I-2 du Chapitre I), dans une version simplifiée. Le système d'imagerie formé par les galettes de micro canaux a été retiré, et le photomultiplicateur d'électrons est placé juste derrière la fente dans le plan focal du système torique + réseau plan à 700 traits/mm. Avec une fente fermée à 16 μ m on atteint une résolution de 0,1Å. La mesure pas à pas du profil spectral de l'harmonique q fait à chaque pas la moyenne de 40 tirs.

Pour produire les deux impulsions fondamentales décalées dans le temps de Δt et superposées spatialement, qui génèrent les deux impulsions harmoniques, nous utilisons une lame biréfringente dont les axes sont tournées à 45° par rapport à la polarisation horizontale du laser. La différence des vitesses de groupe respectivement $v_{g,o}$ et $v_{g,eo}$ suivant les axes ordinaire et extraordinaire du matériau, divise l'impulsion fondamentale unique en deux impulsions d'égale amplitude de durée τ séparées par un temps $\Delta t = e \left(\frac{1}{v_{g,o}} - \frac{1}{v_{g,eo}} \right)$, où e est

l'épaisseur de la lame calibrée. Après la lame les deux impulsions décalées en temps ont des polarisations croisées. On utilise un polariseur qui projette les polarisations de ces deux impulsions sur le même axe, afin qu'elles puissent interférer (cf. schéma du système en Figure VI-2). Ce système a l'avantage d'être très stable, ce qui permet d'accumuler un nombre important de tirs laser sans brouillage des franges. En effet, comme nous l'avons montré précédemment, un déphasage d'une demi période harmonique (1,35/q fs) entre les deux impulsions fondamentales suffit à décaler le système de franges d'une demi-frange, brouillant ainsi totalement la figure d'interférence.

Pour l'expérience, nous avons utilisé principalement deux jeux de lames biréfringentes d'épaisseurs différentes, permettant deux décalages temporels entre les deux impulsions ; 150fs et 450fs. La combinaison de ces lames entre elles, selon l'orientation relative des axes ordinaire et extraordinaire, permet de réaliser différents délais. (150-300-400-600fs) Le système de génération d'impulsions décalées en temps est placé dans la chaîne laser avant compression et amplification du signal afin de ne pas endommager les lames. Le rapport des

amplitudes entre la première impulsion et la deuxième peut être réglé en tournant le polariseur. On peut ainsi diminuer l'intensité de la première impulsion qui ionisera moins le milieu avant le passage de la seconde impulsion. Les harmoniques générées peuvent présenter la même amplitude et être bloquées en phase.

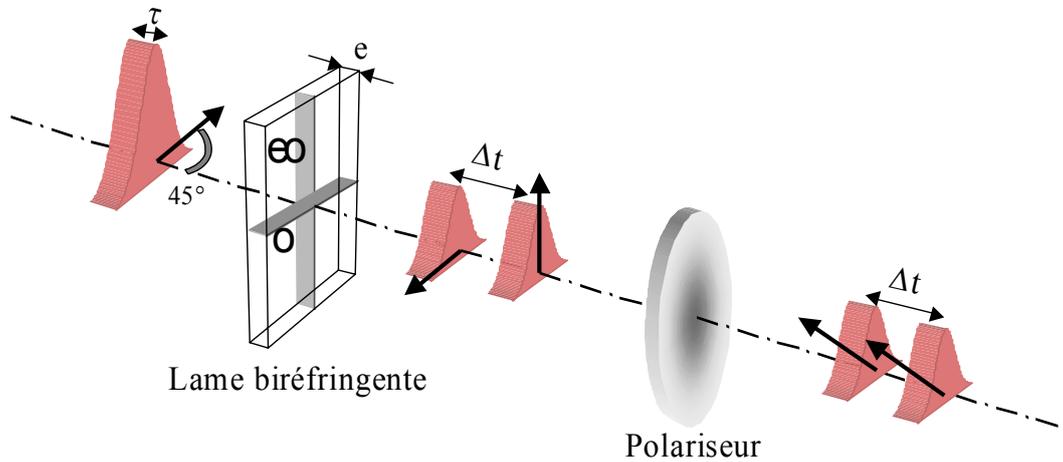


Figure VI-2 : Schéma du principe de réalisation de deux impulsions laser décalées dans le temps utilisant une lame biréfringente et un polariseur.

2.3 Evolution des spectres cannelés avec les paramètres de génération.

2.3.1 Variation de l'interfrange avec l'ordre harmonique q .

Nous présentons, en Figure VI-3, les spectres expérimentaux enregistrés pour les harmoniques 11, 15, 19 et 23 générées dans l'argon avec un éclairement de $2 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$. Ces spectres sont obtenus par interférence spectrale de deux impulsions harmoniques bloquées en phase, décalées d'un délai $\Delta t = 150 \text{fs}$. Les interfranges $\Delta \lambda$ observés sur ces spectres sont respectivement $1,3 \text{\AA}$, $0,75 \text{\AA}$, $0,45 \text{\AA}$ et $0,32 \text{\AA}$ pour les ordres croissants d'harmoniques ci-dessus. D'après la relation VI-7, on peut écrire $\Delta \lambda_q$ comme :

$$\Delta \lambda_q = \frac{\lambda_0^2}{c \Delta t} \frac{1}{q^2} = \frac{\Delta \lambda_0}{q^2} \quad (\text{VI-8})$$

On vérifie que la variation expérimentale de l'interfrange en fonction de l'ordre de non linéarité suit la décroissance quadratique en q^{-2} prévue par l'équation VI-8. Signalons que l'interfrange $\Delta \lambda_{23}$ est très proche de la limite de résolution ($0,1 \text{\AA}$) de notre spectromètre UVX. On peut également observer que les franges restent bien contrastées pour les différents ordres,

bien qu'il y ait une diminution notable de ce contraste avec l'augmentation de l'ordre harmonique. Le contraste C diminue de 90% pour l'harmonique 11 à 67% pour H15, 46% pour H19 et 27% pour H23, à mesure que $\Delta\lambda_q$ se rapproche de la résolution du spectromètre. On note toutefois que, quel que soit l'ordre harmonique, la partie haute fréquence du spectre ($\Delta\lambda$ négatif – côté bleu) est toujours moins modulée que la partie basse fréquence. Cette zone de très faible modulation devient de plus en plus importante avec l'ordre de non linéarité. On peut également noter un interfrange légèrement plus important du côté bleu que du rouge. L'origine de ces deux points remarquables sera discutée plus loin à la section 2.3.4 (Salières *et al.* 1999, Hergott *et al.* 2001).

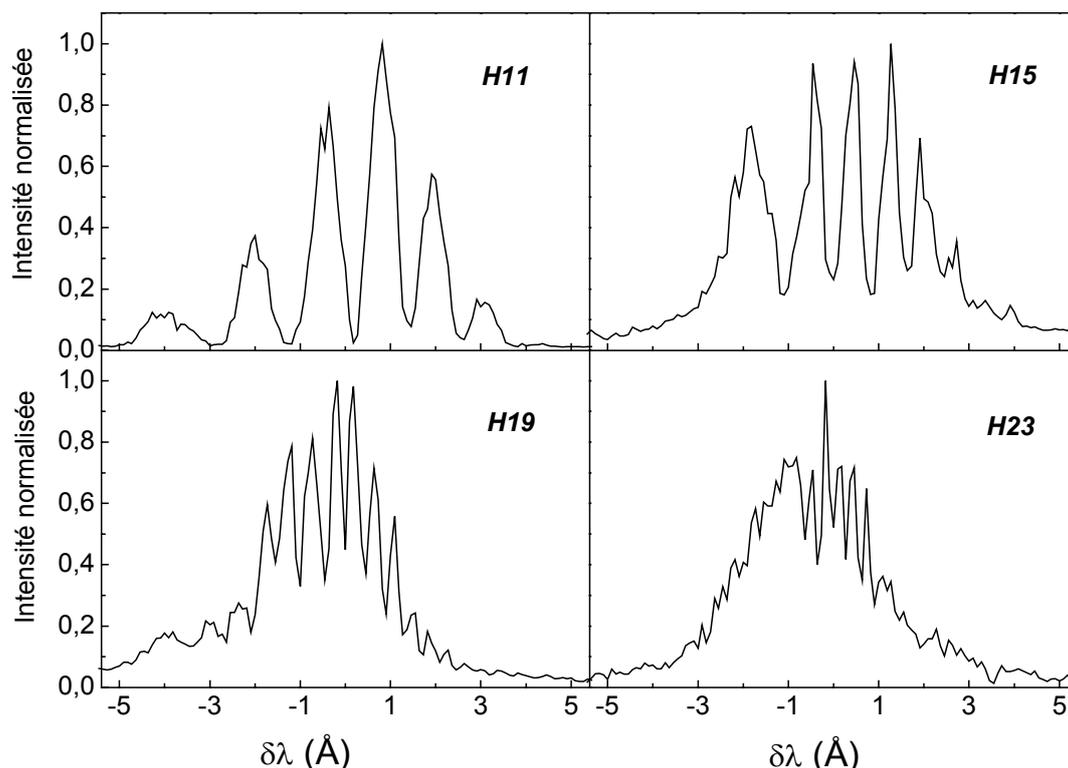


Figure VI-3 : Evolution des spectres cannelés avec l'ordre de l'harmonique, pour deux impulsions décalées de $\Delta t=150\text{fs}$ générées dans l'argon à un éclairement de 2.10^{14}W/cm^2 .

2.3.2 Variation de l'interfrange avec le délai Δt .

Le deuxième paramètre dont dépend l'interfrange (VI-8) pour une longueur d'onde donnée est le décalage temporel Δt entre les deux impulsions bloquées en phase. Les Figures VI-8a et b représentent les profils spectraux mesurés de l'harmonique 11 générée dans l'argon pour $\Delta t=150\text{fs}$ (a, 2.10^{14}W/cm^2) $\Delta t=450\text{fs}$ (b, 3.10^{14}W/cm^2). On observe clairement que

l'interfrange diminue d'un facteur 3 quand le délai Δt augmente dans le même rapport (cf. VI-8). La diminution du contraste pour le grand délai s'explique, d'une part, par la diminution de l'interfrange ($\Delta\lambda$ proche de la résolution limite du spectromètre), d'autre part, par l'éclairement plus important : la première impulsion produit une ionisation plus forte du milieu, affectant la génération de la deuxième impulsion harmonique et dégradant la cohérence mutuelle.

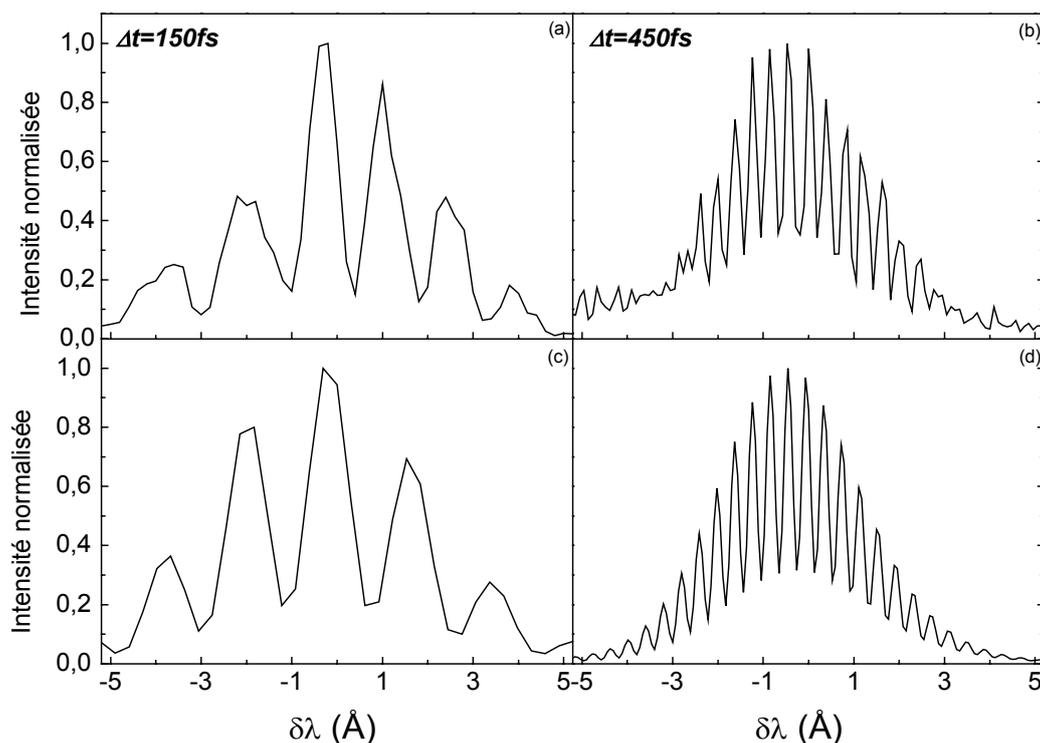


Figure VI-4 : Evolution du spectre pour l'harmonique 11 en fonction du délai Δt entre les deux impulsions. Résultats expérimentaux (a) et (b) et simulations numériques dans les conditions expérimentales (c) et (d).

Cette étude expérimentale a également été effectuée pour l'harmonique 13 de l'argon. En Figure VI-5 nous reportons l'interfrange mesuré en fonction du délai Δt entre les deux impulsions harmoniques ; on vérifie alors que l'interfrange varie bien comme $\frac{1}{\Delta t}$.

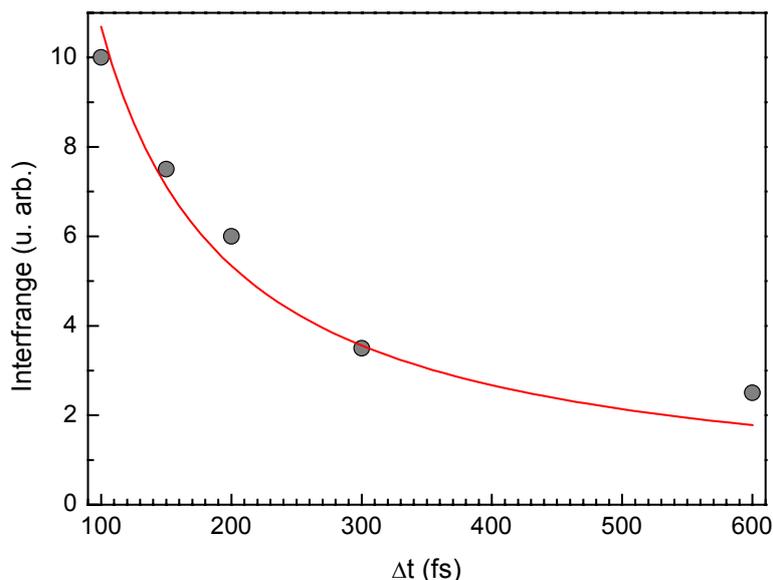


Figure VI-5 : Interfrange $\Delta\lambda_{13}$ mesuré expérimentalement (cercle noir) pour l'harmonique 13 en fonction du délai Δt entre les deux impulsions. En trait plein est représenté un fit des points expérimentaux par la formule VI-7.

En Figure VI-4c et d, sont présentées les simulations effectuées avec le code de propagation dans les conditions expérimentales. Elles reproduisent très bien les résultats expérimentaux, aussi bien l'enveloppe des spectres, que la période ou le contraste des franges. Dans le code de propagation les deux impulsions fondamentales sont modélisées par deux enveloppes temporelles Gaussiennes séparées temporellement. Les simulations retrouvent la diminution du contraste observée expérimentalement pour le plus grand des deux délais temporels. En effet, l'éclairement étant plus important pour le délai $\Delta t=450\text{fs}$, la première impulsion IR ionise plus le milieu, entraînant une défocalisation importante de la deuxième impulsion IR par les électrons libres. Cette défocalisation entraîne une diminution de l'éclairement de plus d'un facteur 4. Les deux impulsions harmoniques ainsi générées n'ont plus la même intensité et le contraste des franges diminue (cf Figure VI-1).

2.3.3 Influence de l'éclairement laser sur les spectres.

L'effet de l'éclairement sur le contraste des franges est illustré sur la Figure VI-6, dans le cas de l'harmonique 15 générée dans l'argon, pour deux impulsions séparées temporellement d'un délai $\Delta t=150\text{fs}$. Lorsque l'éclairement augmente, on observe une

dégradation du contraste du côté bleu du spectre, jusqu'à ce que la modulation disparaisse totalement. On note en même temps une augmentation significative de l'intensité harmonique du côté bleu, alors qu'elle diminue du côté rouge. La modulation du spectre côté rouge reste nette bien que le contraste diminue avec l'éclairement (de près d'un facteur 3 lorsque l'éclairement augmente de 2.10^{14}W/cm^2 à 5.10^{14}W/cm^2). Le même phénomène a été observé sur les harmoniques d'ordre différent.

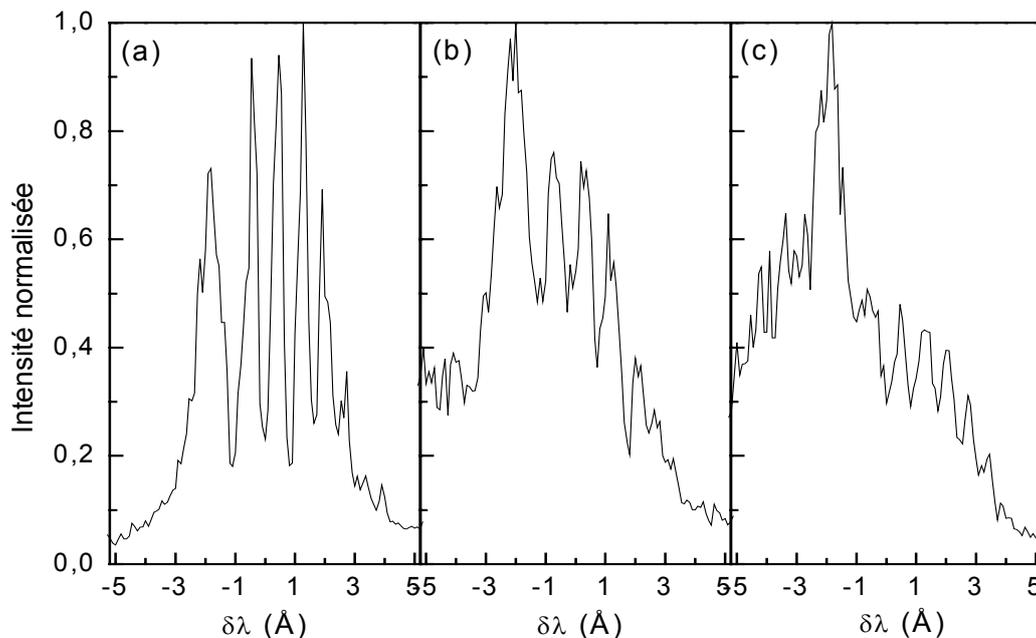


Figure VI-6 : Evolution du spectre de l'harmonique 15 générée dans l'argon en fonction de l'éclairement laser dans le milieu. L'éclairement du fondamental est 2.10^{14}W/cm^2 (a) $3.5.10^{14} \text{W/cm}^2$ (b) et 5.10^{14}W/cm^2 (c).

2.3.4 Asymétrie des spectres expérimentaux.

Contrairement au cas présenté en section 2.3.2, où on observe une diminution globale du contraste des franges (harmonique 11 générée dans l'argon à un éclairement de 3.10^{14}W/cm^2), l'évolution des spectres avec l'ordre harmonique ou encore avec l'éclairement fait apparaître une baisse de contraste plus importante du côté des $\delta\lambda$ négatifs (« bleu »). Ainsi, l'ionisation du milieu par la première impulsion, qui diminue l'efficacité de génération de la seconde impulsion, a également un autre effet. Cet effet supplémentaire, dynamique, est la variation temporelle rapide de la densité d'électrons libres dans le milieu dans le front montant de la première impulsion. Reprenons l'expression de la fréquence instantanée $\omega(t)$ du champ harmonique émis, établie à la section B-4.2.1 du Chapitre II à partir de l'expression de

la phase de la polarisation non linéaire (accord de phase parfait, milieu peu dispersif et focalisation faible du laser générateur) :

$$\omega(t) = q\omega - \frac{\partial\varphi_q^{NL}}{\partial t} = q\omega \left(1 + \frac{e^2}{2mc\varepsilon_0\omega^2} \int_{z_0}^z \frac{\partial N_e(z',t)}{\partial t} dz' \right) + \eta_q \frac{\partial I_L}{\partial t} \quad (\text{VI-9})$$

Le terme $\eta_q > 0$ caractérise la trajectoire contribuant principalement à l'émission harmonique selon que l'on se trouve dans le plateau ou la coupure du spectre ; $N_e(t)$ est la densité électronique instantanée. $N_e(t)$ varie très rapidement près du maximum de la première impulsion fondamentale qui ionise le milieu. Nous avons déjà montré au Chapitre II que le terme $\partial N_e / \partial t > 0$ dans (VI-9) avait pour effet de décaler vers le bleu les fréquences IR et par suite le spectre d'une harmonique. D'autre part la variation rapide au cours du temps de l'éclairement laser dans le milieu, $\eta_q \frac{\partial I_L}{\partial t}$, est à l'origine du « chirp » négatif des harmoniques au cours de la génération.

L'interprétation de l'asymétrie des spectres peut être la suivante. Les fréquences bleues ($\delta\lambda$ négatif) sont générées dans le front montant de la première impulsion fondamentale, en présence des deux gradients temporels de $N_e(t)$ et de l'éclairement $I_L(t)$. Ensuite la partie rouge du spectre de la première impulsion harmonique, tout comme la totalité du spectre de la seconde impulsion ne sont quasiment plus perturbées par la variation de la densité électronique ($N_e(t)$ quasi-stationnaire), du fait de la défocalisation du faisceau laser qui intervient dès le front montant de la première impulsion. Ainsi, les fréquences bleues de la première impulsion harmonique sont plus « chirpées » que celles de la seconde, à cause des variations rapides à la fois de la densité électronique et de la phase intrinsèque, proportionnelle à l'éclairement laser (plus élevé pour la première impulsion). Par contre les fréquences rouges des deux impulsions continuent de présenter des « chirps » similaires, conservant leur cohérence mutuelle. La différence de « chirp » due à la phase intrinsèque peut introduire une variation de l'interfrange comme observé côté bleu en Figure VI-3. La diminution du contraste quant à elle peut être reliée à la variation temporelle de la densité électronique comme illustrée en Figure VI-7, par deux simulations effectuées à l'aide d'un modèle simple à une dimension (LeDéroff 1999). On ne modélise pas ici la variation temporelle de l'éclairement donc l'influence du « chirp » intrinsèque. Dans le modèle, on considère que le taux d'ionisation instantané $\gamma(t)$ est approximé, dans la gamme d'éclairement comprise entre 10^{14} et 10^{15} W/cm², par une loi du type $\gamma(t) = \gamma_0 e^{-\frac{2at^2}{\tau^2}}$. On considère que seule la première impulsion fondamentale ionise le milieu (90%) alors que la deuxième, défocalisée par les électrons libres, ne participe plus à l'évolution de la densité électronique. L'éclairement dans le milieu est atténué, par conséquent l'efficacité de génération de la

seconde impulsion harmonique diminue ($A=0,1$). La densité électronique $N_e(t)$ est obtenue à partir des équations cinétiques VI-10 traduisant l'ionisation dans le milieu en négligeant la recombinaison des électrons (N_a :densité d'atomes neutres).

$$\begin{aligned} \frac{dN_a(t)}{dt} &= -\gamma(t)N_a(t) \\ \frac{dN_e(t)}{dt} &= \gamma(t)N_e(t) \end{aligned} \quad (\text{VI-10})$$

On obtient :

$$N_e(t) = N_a(0)\gamma_0 \int_0^t e^{-\frac{2\alpha t'}{\tau^2}} e^{-\frac{\gamma_0\sqrt{\pi}\tau}{2\sqrt{\alpha}} \text{erf}\left(\frac{\sqrt{2\alpha}}{\tau}t'\right)} dt' \quad (\text{VI-11})$$

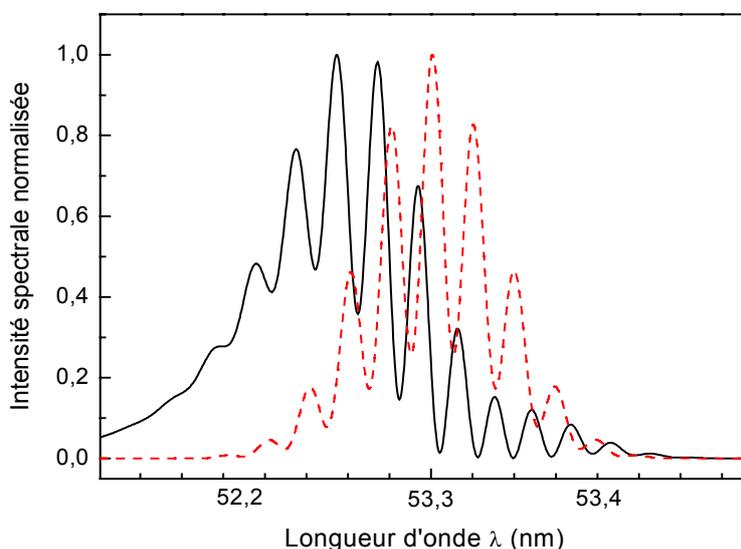


Figure VI-7 : Evolution du spectre cannelé de l'harmonique 15 générée dans l'argon. En trait pointillé : impulsions harmoniques séparées par $\Delta t=400\text{fs}$ sans ionisation du milieu. En trait plein : ionisation du milieu de 90% après passage de la première impulsion fondamentale.

Le spectre de puissance est calculé pour deux impulsions harmoniques (H15) séparées de 400fs. On observe entre les deux profils en Figure VI-7 une très forte diminution du contraste des franges sur la partie bleue du spectre ainsi qu'une intensité plus forte, par rapport au côté rouge. La forte augmentation de $N_e(t)$ sur le front montant de la première impulsion implique une perte de cohérence mutuelle sur la partie bleue du spectre. Le deuxième calcul illustre le spectre de puissance, pour le même délai temporel Δt et le même facteur d'atténuation, sans ionisation. On n'observe alors plus d'asymétrie dans le spectre de

puissance des deux impulsions harmoniques. Ce modèle permet ainsi d'interpréter qualitativement l'asymétrie observée sur les spectres expérimentaux pour les forts éclairagements de génération (Figure VI-6), mais aussi pour les ordres élevés (Figure VI-3). En effet, une harmonique d'ordre élevé est générée efficacement à fort éclairage (transition coupure – plateau), soit plus tard dans l'impulsion laser qu'une harmonique d'ordre plus faible ; l'ionisation est déjà plus développée dans le milieu, affectant d'autant plus l'émission harmonique. Des simulations plus poussées à l'aide du code de propagation sont encore nécessaires pour confirmer ces phénomènes.

En conclusion, nous avons démontré qu'il est possible de transposer la technique d'interférométrie fréquentielle aux harmoniques d'ordre élevé. En focalisant deux impulsions laser IR séparées d'un délai Δt dans un milieu atomique, on génère deux impulsions harmoniques séparées de Δt et bloquées en phase. Les conditions expérimentales sont choisies pour limiter l'ionisation du milieu qui dégrade la cohérence mutuelle des deux sources. Les mesures expérimentales semblent également indiquer l'existence d'un « chirp » négatif des impulsions harmoniques, en accord avec des études récentes aussi bien expérimentales (Chang *et al.* 1998, LeDéroff *et al.* 2000) que théoriques (Salières *et al.* 1998).

B. Interférométrie fréquentielle à 4 sources.

Après avoir démontré qu'il était possible de générer deux impulsions harmoniques bloquées en phase et séparées en temps, nous nous sommes intéressés à la possibilité d'étendre cette technique à un nombre plus important d'impulsions séparées en temps. Cette technique d'interférométrie fréquentielle est bien connue dans le visible, comme tel était le cas pour l'interférométrie fréquentielle à deux sources. Signalons simplement les interférences dans un Fabry Perot, équivalentes à des interférences spatiales à N ondes suivant les réflexions multiples du faisceau laser dans la cavité. On observe alors une succession de franges dont la finesse dépend du nombre de réflexions dans la cavité, soit du nombre de faisceaux qui interfèrent.

Le principe de l'interférométrie fréquentielle à N sources harmoniques est alors identique au cas précédent de deux sources ; le fait d'avoir N champs qui interfèrent joue essentiellement sur la finesse F des franges observées, inversement proportionnelle au nombre d'impulsions N qui interfèrent. Il est clair que les difficultés inhérentes à l'ionisation, que nous avons vues dans le cas de l'interférométrie fréquentielle à deux sources, sont encore plus importantes dans le cas de la généralisation à N ondes. Les franges devant être plus fines, la résolution du spectromètre UVX limite le nombre d'impulsions utilisables pour l'interférométrie. De plus, il n'est pas possible de produire un train d'impulsions fondamentales suffisamment courtes et intenses pour que chacune génère efficacement des

harmoniques. Dans un premier temps, nous rappellerons le formalisme mathématique de l'interférométrie fréquentielle à N sources. Nous présenterons ensuite une première mise en évidence expérimentale avec 4 impulsions séparées en temps.

1. Généralités.

1.1 Formulation mathématique.

On considère N impulsions de champ électrique, décrits successivement par :

$$\begin{aligned}
 E_1(t) &= E_0(t)e^{i\omega_0 t} \\
 E_2(t) &= \sqrt{A}E_0(t - \Delta t)e^{i\omega_0(t - \Delta t) + i\delta_1} \\
 &\vdots \\
 E_N(t) &= \sqrt{A}E_0(t - (N-1)\Delta t)e^{i\omega_0(t - (N-1)\Delta t) + i\delta_{N-1}}
 \end{aligned}
 \tag{VI-12}$$

On suppose que les N-1 impulsions après $E_1(t)$ sont toutes atténuées par le même facteur \sqrt{A} , et séparées entre elles par le même délai temporel Δt . Cette hypothèse se justifie en considérant que l'ionisation du milieu a principalement lieu pendant la première impulsion, comme cela était le cas pour l'interférométrie à deux sources. Nous considérons également un déphasage relatif $\delta_n = n\delta_1$ du champ électrique E_n (à partir de $n=2$) par rapport à $E_1(t)$. La

transformée de Fourier du champ total $E(t) = \sum_1^N E_n(t)$ s'écrit alors :

$$\begin{aligned}
 \tilde{E}(\omega) &= \tilde{E}(\omega - \omega_0) \left\{ 1 + \sqrt{A}e^{i\delta_1}e^{-i\omega\Delta t} + \dots + \sqrt{A}e^{i\delta_{N-1}}e^{-i\omega(N-1)\Delta t} \right\} \\
 &= \tilde{E}(\omega - \omega_0) \left\{ 1 + \sqrt{A} \sum_1^{N-1} e^{i(\delta_n - n\omega\Delta t)} \right\} \\
 &= \tilde{E}(\omega - \omega_0) \left\{ 1 + \sqrt{AS} \right\}
 \end{aligned}
 \tag{VI-13}$$

La somme S des exponentielles dans l'équation VI-13 est une série géométrique ; elle a pour expression :

$$S = e^{i(\delta_1 - \omega\Delta t)} \frac{1 - e^{i(N-1)(\delta_1 - \omega\Delta t)}}{1 - e^{i(\delta_1 - \omega\Delta t)}}
 \tag{VI-14}$$

Le spectre de puissance de ce rayonnement s'écrit alors :

$$\begin{aligned}\tilde{I}(\omega) &= |\tilde{E}(\omega - \omega_0)|^2 |1 + \sqrt{A}S|^2 \\ &= |\tilde{E}(\omega - \omega_0)|^2 (1 + ASS^* + \sqrt{A}(S + S^*))\end{aligned}\quad (\text{VI-15})$$

Finalement le spectre de puissance total devient² :

$$\tilde{I}(\omega) = \tilde{I}_0(\omega) \left\{ 1 + A \frac{\sin^2\left(\frac{N-1}{2}(\omega\Delta t - \delta_1)\right)}{\sin^2\left(\frac{(\omega\Delta t - \delta_1)}{2}\right)} + 2\sqrt{A} \cos\left(\frac{N}{2}(\omega\Delta t - \delta_1)\right) \frac{\sin\left(\frac{N-1}{2}(\omega\Delta t - \delta_1)\right)}{\sin\left(\frac{(\omega\Delta t - \delta_1)}{2}\right)} \right\} \quad (\text{VI-16})$$

Si on suppose maintenant que les termes de phase relative sont nuls et que les différents champs ne sont pas atténués (le facteur d'atténuation A est alors égal à 1), on retrouve, après quelques développements trigonométriques, la formule bien connue d'interférence entre N champs identiques :

$$\tilde{I}(\omega) = \tilde{I}_0(\omega) \frac{\sin^2\left(\frac{N}{2}\omega\Delta t\right)}{\sin^2\left(\frac{\omega\Delta t}{2}\right)} \quad (\text{VI-17})$$

Ainsi le spectre de puissance de N impulsions identiques présente, à l'intérieur de l'enveloppe correspondant à une impulsion, une succession de franges brillantes et sombres, dont la période dans le domaine des fréquences est $\Delta\omega = \frac{2\pi}{\Delta t}$ (cf. interférométrie à deux sources).

Nous avons cependant un paramètre supplémentaire qui va déterminer la finesse des franges, et qui est inversement proportionnel au nombre d'impulsions. Ce terme de finesse est la conséquence de la modulation supplémentaire, N fois plus rapide.

La Figure VI-8 compare les spectres de puissance de H17, calculés respectivement pour 2 et 4 impulsions. Le calcul à 2 impulsions est identique à celui de la Figure VI-1 ($\Delta t=200\text{fs}$, $A=0,1$). Par contre, dans le spectre de 4 impulsions harmoniques (H17), décalées entre elles d'un délai $\Delta t=200\text{fs}$, on observe un rétrécissement d'un facteur 2 de la largeur des franges principales ($L_{\delta_0,4}=0,72.10^{14} \text{ s}^{-1}$ au lieu de $L_{\delta_0,2}=1,44.10^{14} \text{ s}^{-1}$ pour deux sources) et l'apparition de pics satellites, compliquant la structure de l'interférogramme. La périodicité des franges principales reste la même que celle dans le cas de deux sources. Ce rétrécissement de la largeur des franges pour 4 impulsions, et l'apparition des pics satellites se comprennent très facilement à partir de l'équation VI-17, qui peut se réécrire comme :

² On retrouve pour $N=2$ et $\delta_1=A\phi$ l'expression VI-4 du spectre de puissance déterminée pour l'interférence fréquentielle entre deux impulsions harmoniques au §1.2.

$$\tilde{I}(\omega) = \tilde{I}_0(\omega) \times 16 \cos^2\left(\frac{\omega\Delta t}{2}\right) \cos^2\left(\frac{\omega 2\Delta t}{2}\right) \quad (\text{VI-18a})$$

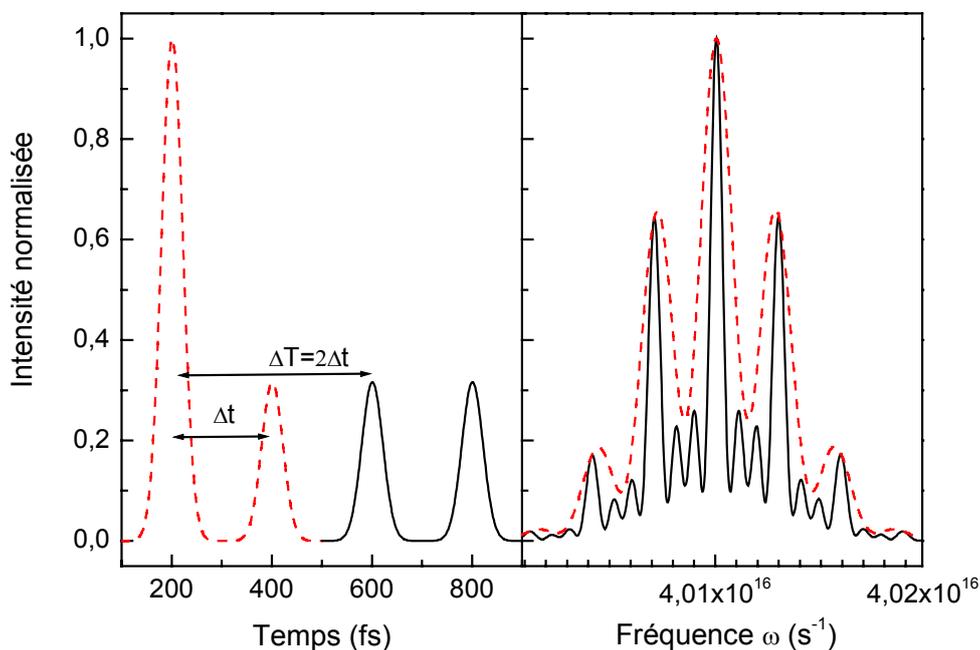


Figure VI-8 : Spectre de puissance de l'harmonique 17 générée dans l'argon pour deux harmoniques séparées temporellement de $\Delta t=200\text{fs}$ (trait pointillé) et pour 4 impulsions toutes décalées en temps du même délai (trait plein).

Le spectre de puissance peut donc être vu comme le produit d'une enveloppe $I_0(\omega)$ par la modulation en $\omega\Delta t/2$ et la modulation deux fois plus rapide en $\omega\Delta t$. L'effet de double modulation VI-18a est encore illustré sur la Figure VI-9.

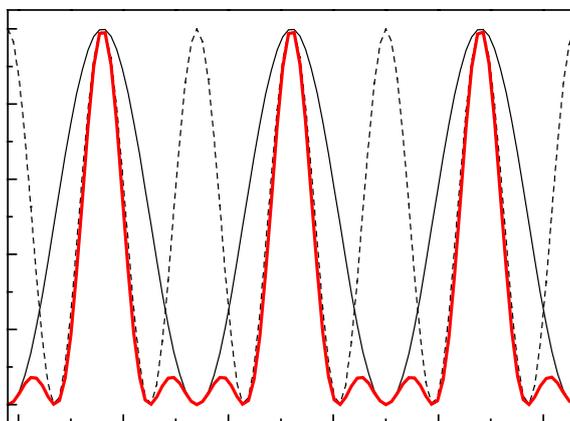


Figure VI-9 : Trait plein : modulation en $\omega\Delta t/2$. Trait pointillé : modulation en $\omega\Delta t$. Le produit des deux est représenté en trait plein épais.

Dans le cas plus général de 2 + 2 impulsions, séparées de Δt dans chaque couple, les deux couples étant séparés de ΔT , le spectre de puissance s'écrit :

$$\tilde{I}(\omega) = \tilde{I}_0(\omega) \times 16 \cos^2\left(\frac{\omega \Delta t}{2}\right) \cos^2\left(\frac{\omega \Delta T}{2}\right) \quad (\text{VI-18b})$$

La relation (VI-18b) est identique à (VI-18a) quand $\Delta T = 2\Delta t$. A partir de (VI-18b), on peut vérifier que la valeur particulière $\Delta T = 2\Delta t$ correspond à un « bon affinement » des franges principales : pas de dédoublement, pics satellites réduits.

1.2 Effet du délai ΔT entre les deux couples sur l'interférogramme.

Il est intéressant d'étudier la variation du spectre de puissance $I(\omega, \Delta T)$ avec le délai ΔT entre les deux couples de deux impulsions séparées de Δt . Notons, par exemple, qu'à partir d'un délai ΔT_0 fixé, l'allure du spectre $I(\omega, \Delta T)$ évolue de façon « quasi-périodique », avec une quasi-période égale à T_q période harmonique, quand ΔT reste voisin de ΔT_0 . En effet, le spectre de puissance d'une impulsion harmonique ω reste voisin de $\omega_q = \frac{2\pi}{T_q}$, de sorte que $(\omega - \omega_q)T_q \ll 2\pi$. On peut donc écrire, pour $\Delta T = \Delta T_0 + T_q$ (délai différent d'un petit nombre de périodes T_q) : $\cos^2\left(\frac{\omega}{2}(\Delta T_0 + T_q)\right) \approx \cos^2\left(\omega \frac{\Delta T_0}{2} + \omega_q \frac{T_q}{2}\right) = \cos^2\left(\omega \frac{\Delta T_0}{2}\right)$. Les profils $I(\omega, \Delta T_0)$ et $I(\omega, \Delta T)$ sont donc identiques pour la résolution spectrale finie de la mesure. Dans la suite, nous considérons l'allure des spectres $I(\omega, \Delta T)$ pour les délais ΔT successivement proches de la valeur particulière $2\Delta t$ et grands devant $2\Delta t$

1.2.1 ΔT proche de $2\Delta t$.

Nous avons déjà montré dans le cas de l'interférométrie à 2 sources (cf. Figure VI-1), qu'un déphasage de π entre les deux impulsions provoque un décalage d'une demi-frange dans le spectre puissance des deux impulsions harmoniques, correspond à un décalage en temps de $T_q/2 = 1,35/q$ fs. Dans le cas de 4 impulsions, quand $\Delta T = 2\Delta t + T_q/2$ la discussion ci-dessus conduit à écrire : $\cos^2\left(\omega \frac{\Delta T}{2}\right) \approx \sin^2\left(\omega \frac{2\Delta t}{2}\right)$. On s'attend donc à un profil $I(\omega, \Delta T)$ très

différent du profil $I(\omega, 2\Delta t)$. C'est ce qu'illustre la Figure VI-10, où on observe un dédoublement des franges. La largeur à mi hauteur des franges principales est de $0,72 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}$ dans les deux cas. Pour produire un affinement sans dédoublement des franges, en passant de 2 à 4 impulsions, il est nécessaire de contrôler le décalage entre les deux couples d'impulsions à l'échelle d'une demi période harmonique T_q .

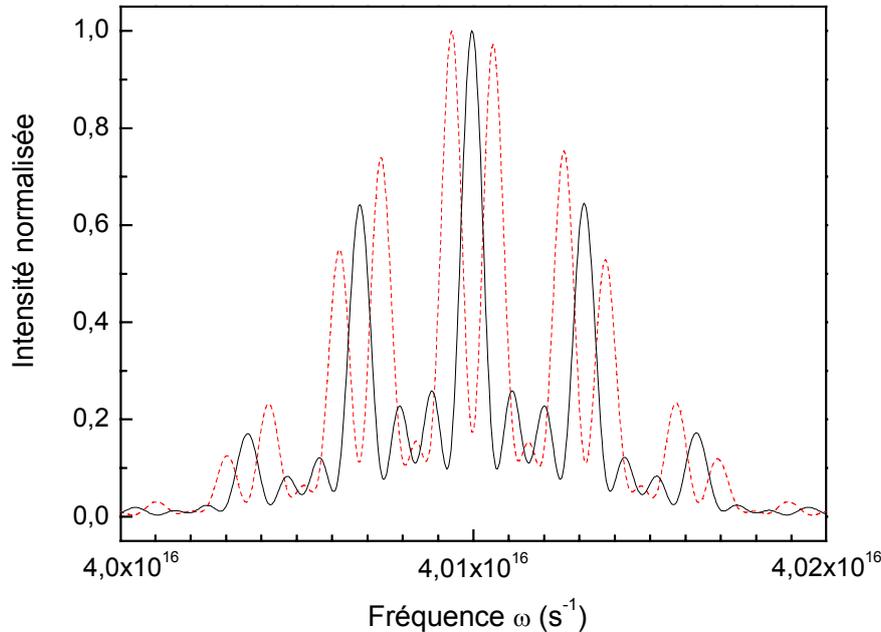


Figure VI-10 : Spectres de puissance de 2 couples de deux impulsions séparées du délai $\Delta T=2\Delta t$ (en trait plein) et $\Delta T=2\Delta t+T_q/2$ (en trait pointillé). Les deux impulsions dans chaque couple sont séparées de Δt .

1.2.2 ΔT grand devant $2\Delta t$.

Nous montrons pour cela en Figure VI-11, le spectre de puissance de deux couples d'impulsions ($\Delta t=200\text{fs}$, $A=1$) quand le délai $\Delta T=4\Delta t$. On observe un rétrécissement des franges principales encore plus important ($L'_{\delta\omega,4}=0,38 \cdot 10^{14} \text{ s}^{-1}=L_{\delta\omega,6}$) que pour $\Delta T=2\Delta t$, accompagné d'une augmentation de l'énergie contenue dans les pics satellites. Ce cas est en fait comparable à celui de 6 impulsions bloquées en phase, décalées régulièrement en temps par le même délai Δt (cf. Figure VI-11 en trait plein). La largeur des pics principaux est alors la même et l'intensité des pics satellites est très fortement diminuée.

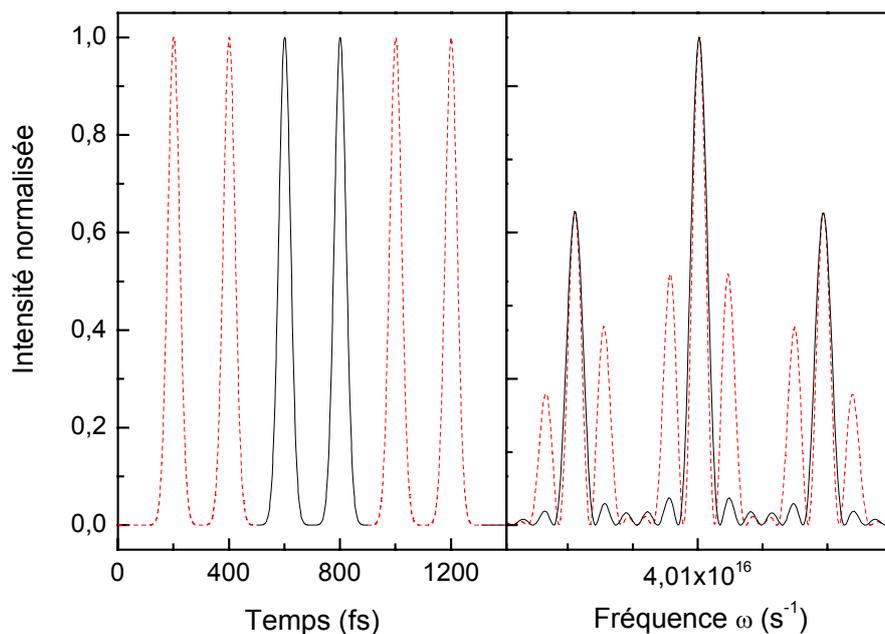


Figure VI-11 : *Spectre de puissance de deux couples d'impulsions formés de deux impulsions séparées temporellement de Δt , les couples étant séparés de $\Delta T=4\Delta t$ (trait pointillé), et spectre de puissance de 6 impulsions régulièrement séparées de Δt (trait plein).*

2. Démonstration expérimentale de l'interférométrie fréquentielle à 4 impulsions.

2.1 Dispositif expérimental.

2.1.1 Génération des 4 impulsions.

Le montage expérimental utilisé pour produire les 4 impulsions fondamentales qui génèrent 4 impulsions harmoniques bloquées en phase est schématisé en Figure VI-12. Dans une première étape, nous reprenons la technique schématisée en Figure VI-2 : l'impulsion laser principale est divisée en deux impulsions de mêmes amplitude et polarisation, séparées de Δt , en traversant une lame biréfringente et un polariseur. L'épaisseur de la lame fixe le délai $\Delta t=120\text{fs}$ (cf. §2.2). Dans une deuxième étape, le couple d'impulsions laser est injecté dans un interféromètre de type Michelson, déjà utilisé dans l'interférométrie spatiale (cf. Chapitre V). Au passage par une première lame séparatrice (50%), le couple d'impulsions est réfléchi (couple C_1) et transmis (couple C_2) respectivement vers deux jeux de miroirs formant

des coins de cube. Les couples C_1 et C_2 sont finalement transmis/réfléchis par une seconde lame séparatrice identique à la première. Les deux coins de cube étant montés sur des translations motorisées (résolution de $\sim 1\mu\text{m}$ sur le bras C_1 et de $\sim 1\text{nm}$ sur le bras C_2), on peut ajuster la longueur des bras pour obtenir en sortie de l'interféromètre deux couples d'impulsions C_1 et C_2 séparés d'un délai ΔT variable. On peut ainsi passer par toutes les configurations possibles pour ΔT , à Δt fixe. Il est possible, en réglant la longueur relative des bras grâce aux deux niveaux de précision, d'ajuster la valeur de ΔT à $2\Delta t$ ou plus, mais aussi contrôler ce délai à l'échelle d'une demi-période harmonique. Pour cela il est nécessaire de calibrer avec précision la correspondance pas/délai pour chaque bras. La superposition spatiale des deux couples d'impulsions dans le plan perpendiculaire à l'axe de propagation est obtenue en réalisant une interférence totalement destructive puis constructive (pour deux positions proches d'une translation motorisée, l'autre étant fixée), entre les deux couples d'impulsions en sortie du Michelson (teinte plate). Tout écart à la superposition des fronts d'onde se signale par des franges d'interférences ; on retrouve la teinte plate en réglant les miroirs du coin de cube. Cette superposition spatiale des impulsions est vérifiée, d'une part sur le fondamental, d'autre part sur les harmoniques, grâce au système d'imagerie (MCP) placé au plan focal du spectromètre UVX.

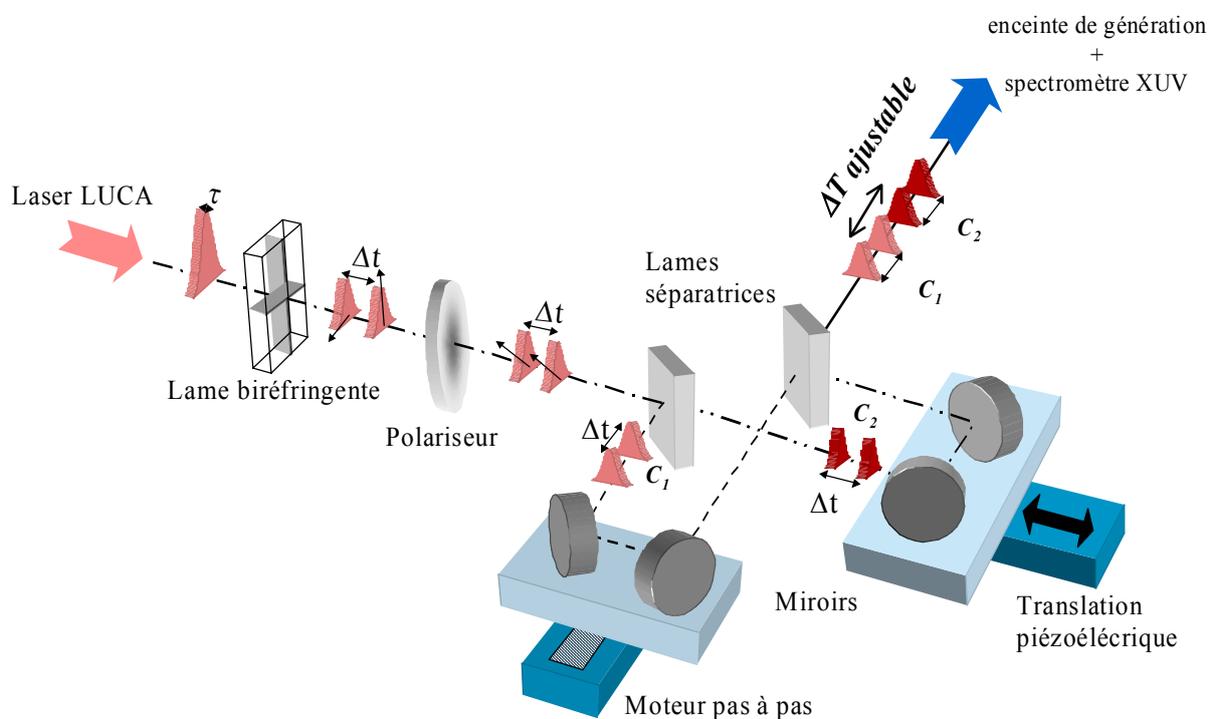


Figure VI-12 : Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la génération de quatre impulsions laser décalées en temps.

2.1.2 Calibration des platines de translation.

La calibration des pas en temps (translation) de chaque moteur est effectuée en enregistrant la trace d'autocorrélation du premier ordre des champs fondamentaux. Cette trace est obtenue en faisant varier le délai ΔT entre les deux couples d'impulsions IR, de façon à ce que les impulsions se recouvrent deux à deux. Le signal résultant (teinte plate brillante ou sombre) est enregistré à l'aide d'une photodiode sensible à l'IR : on obtient alors la trace interférométrique d'autocorrélation du premier ordre représentée en Figure VI-13. Cette figure ne montre que deux des trois enveloppes de recouvrement que l'on obtient. En effet, les deux couples d'impulsions sont initialement séparés, puis en variant la longueur d'un des bras, deux impulsions se recouvrent, puis 4 impulsions deux à deux, et pour finir à nouveau deux impulsions, donnant lieu à trois battements. A partir de la trace d'autocorrélation (fit par une fonction sinus) on détermine une période de 2,7fs qui correspond bien à la période optique pour l'IR.

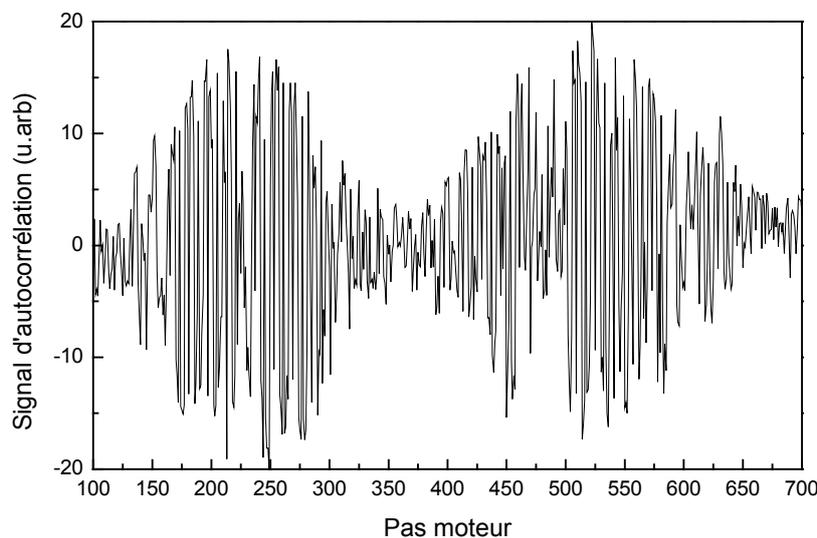


Figure VI-13 : Trace d'autocorrélation partielle du premier ordre des deux couples d'impulsions IR.

Sur le bras à faible résolution, les miroirs sont montés sur une translation motorisée Micro Contrôle dont le pas minimum est 78nm, correspondant à un retard de 0,52fs, pour un aller-retour du faisceau réfléchi par le coin de cube ($2 \times 78 \cdot 10^{-9} / c$). Le second bras à haute résolution de l'interféromètre est contrôlé par une platine munie d'un cristal piézoélectrique dont le déplacement minimal est de 1nm. On a donc un contrôle temporel à l'échelle de 6,7as ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ fs}$), qui devrait nous permettre d'observer des changements dans le spectre d'interférence à l'échelle d'une demi période harmonique $T_q/2$. Cette méthode permet, en plus

de la vérification de la calibration des platines de translation, d'obtenir une origine temporelle pour le délai ΔT entre les deux couples d'impulsions : elle est donnée par la position moteur correspondant au maximum de la trace d'autocorrélation, lorsque les deux couples d'impulsions sont exactement superposés.

2.2 Résultats expérimentaux.

2.2.1 Exemples d'images au foyer spectral du spectromètre UVX.

L'observation des franges spectrales dans le cas de l'interférométrie fréquentielle à 4 ondes est réalisée grâce au spectromètre UVX présenté au Chapitre I. La fente de sortie et le photomultiplicateur d'électrons, qui servait de détecteur dans le cas de l'interférométrie à deux sources, sont remplacés par un système de galettes de micro-canaux couplées à un écran phosphore, placé au foyer du spectromètre UVX. Nous obtenons ainsi, en un seul tir laser et pour une position donnée du réseau, le spectre total des 4 impulsions, ce qui n'était pas le cas des mesures présentées au §A-2.2. L'utilisation du système d'imagerie diminue le temps d'acquisition qui était très long dans la méthode précédente, et évite ainsi un brouillage des franges dû à de possibles instabilités mécaniques du Michelson. Les galettes de micro-canaux ayant une résolution spatiale de l'ordre de $80\mu\text{m}$, elles ont été utilisées sous une incidence rasante de 12° , ce qui autorise une résolution effective 5 fois plus grande.

En Figure VI-14a, nous montrons les spectres de l'harmonique 11 générée dans le xénon ($\sim 2 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$), enregistrés avec les galettes de micro-canaux dans le plan focal du spectromètre UVX. Les deux bras du Michelson sont très légèrement désalignés de façon à observer l'un au dessus de l'autre les spectres de puissance résultant de l'interférence des deux impulsions décalées en temps l'une par rapport à l'autre de chacun des deux couples ($\Delta t = 120 \text{fs}$, retard appliqué par la lame biréfringente et le polariseur). Les deux couples sont décalés temporellement l'un par rapport à l'autre de $\Delta T \sim 2,5 \Delta t$. Les deux figures d'interférence, distinctes, sont identiques mais décalées spatialement. Signalons que l'on passe du côté bleu au côté rouge du spectre d'interférence en allant de gauche à droite. Lorsque les 4 impulsions sont superposées spatialement, pour le même délai ΔT , on observe un net rétrécissement de la largeur à mi-hauteur des franges d'interférence, $L_{\delta_0,4} = 7 \pm 1$ pixels (Figure VI-14b), alors que dans le cas de deux impulsions $L_{\delta_0,2} = 18 \pm 1$ pixels (Figure VI-14a). Le rapport entre ces deux largeurs est 2,5 dans la limite d'incertitude de la mesure. L'affinement des franges est ici plus important que celui attendu pour 4 impulsions régulièrement espacées dans le temps. En effet, ce cas est équivalent à l'interférence qui serait obtenue avec 5 impulsions régulièrement décalées en temps du même délai Δt . Un effet similaire a été prévu théoriquement au §1.2.2 en considérant 2 couples d'impulsions séparés

par $4\Delta t$ (cas équivalent à 6 impulsions). Ceci explique pourquoi on distingue des pics satellites relativement intenses (cf Figure VI-11).

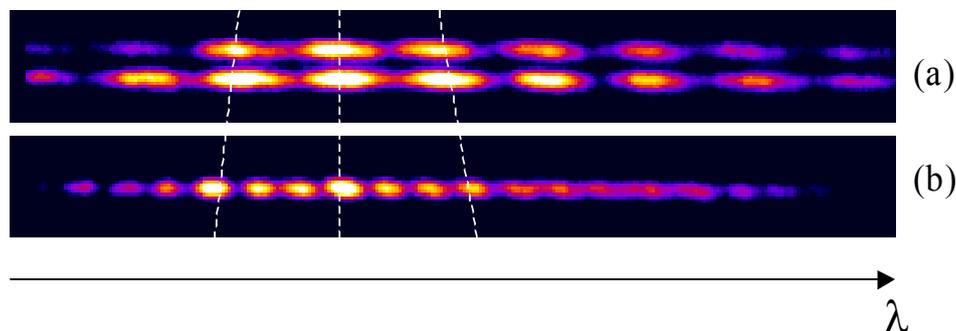


Figure VI-14 : (a) Spectres de puissance de 4 impulsions décalées ($\Delta t=120\text{fs}$) deux à deux, formant ainsi deux couples d'impulsions décalés de $\Delta T=300\text{fs}$, non superposés spatialement. (b) Spectre obtenu lorsque les deux couples sont superposés spatialement.

Grâce à la calibration de la longueur des bras du Michelson, nous pouvons régler le délai ΔT entre les deux couples d'impulsions à la valeur $\Delta T=2\Delta t$. La résolution $\sim 1\text{nm}$ de la translation piézoélectrique permet d'ajouter un nombre impair m de demi-périodes $T_q/2$ au délai ΔT ($\Delta T=2\Delta t+mT_q/2$, m tel que $mT_q\Delta\omega_q \ll 2\pi$ où $\Delta\omega_q$ est la largeur du spectre d'une impulsion) et d'observer la modification des spectres de puissance.

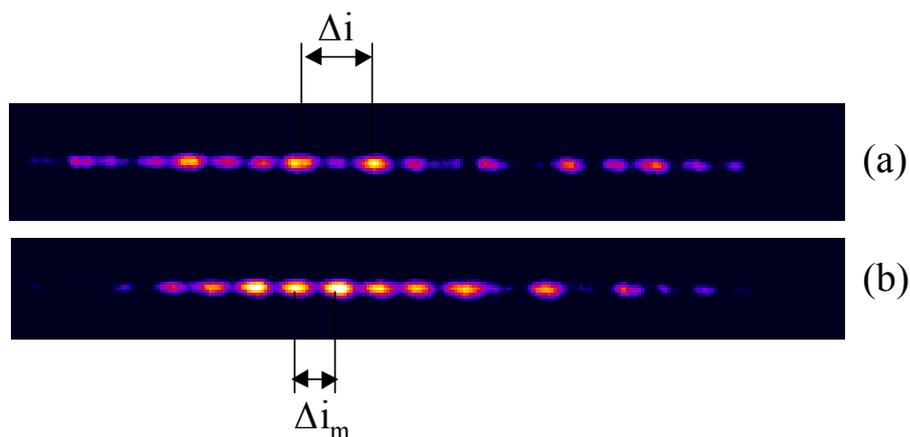


Figure VI-15 : (a) Spectre de puissance des deux couples d'impulsions décalés en temps de $\Delta T=240\text{fs}$ ($2\Delta t$). (b) Spectre d'interférence obtenu lorsque les deux couples sont décalés en temps de $2\Delta t+mT_q/2$ (m impair).

La Figure VI-15(a) illustre le cas où $\Delta T \sim 2\Delta t$ et la Figure VI-15(b) le cas où $\Delta T \sim 2\Delta t + mT_q/2$. Dans le premier cas on observe clairement un rétrécissement de la largeur des franges d'un facteur 2, par rapport au spectre de deux impulsions, $L_{\delta\omega,4} = 9 \pm 1$ pixels ($L_{\delta\omega,4} = \frac{1}{2}L_{\delta\omega,2}$), tout en conservant l'interfrange $\Delta i = 30 \pm 1$ pixels. Par contre lorsque $\Delta T = 2\Delta t + mT_q/2$, comme c'est le cas en Figure VI-15b, l'allure du spectre change notablement : le nombre de franges brillantes a doublé (côté bleu) de sorte que l'interfrange $\Delta i_m = 14 \pm 1$ pixels $\cong \frac{1}{2} \Delta i$. Comme dans le cas a), ces franges ont une largeur 2 fois plus étroite que dans les spectres à deux impulsions. Cependant elles sont maintenant décalées (de part et d'autre) par rapport à celles du spectre a). Les spectres mesurés sont comparables à ceux calculés (cf. Figures VI-10 au §1.2.1) : ils traduisent la modulation en $\sin^2(\omega\Delta t)$ du spectre à deux impulsions. Le spectre en Figure VII-15b n'est pas symétrique. En effet, à la différence du côté bleu modulé en $\sin^2(\omega\Delta t)$, le côté rouge du spectre est toujours modulé en $\cos^2(\omega\Delta t)$ (largeur diminuée, même nombre de franges brillantes). Une analyse plus précise de ces profils spectraux semble donc nécessaire. Pour cela nous allons étudier plus en détail les profils de coupe obtenus à partir de ces images.

2.2.2 Analyse des profils de coupe.

L'analyse considère les profils que l'on obtient à partir des images 2D des spectres en Figures VI-14 et VI-15, en prenant une coupe selon l'axe spectral. La première étape consiste en une calibration de l'axe spectral (pixels) en longueur d'onde. Pour cela, nous enregistrons une image du spectre de deux impulsions décalées en temps par la lame biréfringente et le polariseur, sans passer par le Michelson. Le délai Δt temporel entre les deux impulsions étant connu $\Delta t = 120$ fs. Nous connaissons également l'interfrange théorique en nm (VI-7), que nous pouvons relier à l'interfrange mesuré en pixels. Leur rapport, mesuré par exemple dans le cas de H13, est de 30 pixels/Å. En Figure VI-16 nous comparons les profils suivant λ du spectre de deux impulsions et du spectre de deux couples d'impulsions (Δt , $\Delta T \sim 2\Delta t$). Comme sur les images 2D, il apparaît de manière très claire que les franges sont affinées d'un facteur 2 dans le cas de 4 impulsions, l'interfrange (nombre de franges brillantes) restant le même. Nous avons également reconstruit mathématiquement le spectre de 4 impulsions à partir du spectre expérimental obtenu pour deux impulsions en utilisant l'expression VI-18 de $I(\omega, 2\Delta t)$. Après normalisation par $I_0(\omega)$:

$$16 \cos^2\left(\frac{\omega\Delta t}{2}\right) \cos^2(\omega\Delta t) = 4 \cos^6\left(\frac{\omega\Delta t}{2}\right) - 4 \cos^4\left(\frac{\omega\Delta t}{2}\right) + 4 \cos^2\left(\frac{\omega\Delta t}{2}\right) \quad (\text{VI-19})$$

$I(\omega, 2\Delta t)$ s'exprime donc simplement à partir de $I(\omega, 0) = 16 \cos^2\left(\frac{\omega\Delta t}{2}\right)$, à partir de cette formule, où $\cos^2\left(\frac{\omega\Delta t}{2}\right)$ est la modulation expérimentale, c'est à dire du spectre de deux impulsions. La courbe reconstruite correspond bien à la courbe mesurée pour les 4 impulsions, du moins du côté rouge du spectre. Nous verrons plus loin pourquoi le côté bleu n'est pas reproduit.

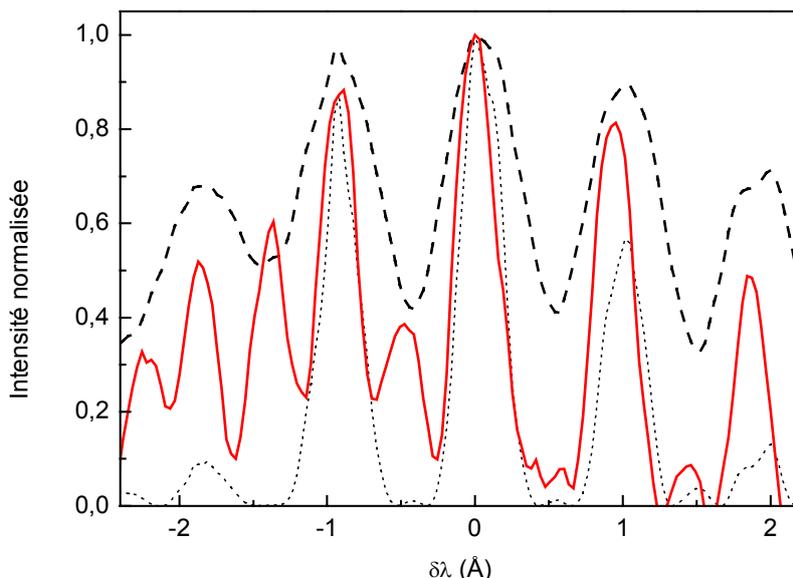


Figure VI-16 : Spectre de puissance de deux impulsions décalées en temps de Δt (trait pointillé). Spectre de puissance $I(\omega, 2\Delta t)$ de 4 impulsions (trait plein). Spectre de 4 impulsions calculé à partir du spectre expérimental de deux impulsions (trait point).

Toujours à partir de la formule VI-18, nous pouvons établir la forme d'un fit permettant de déterminer le délai ΔT entre les deux couples d'impulsions. Dans le profil spectral centré à la longueur d'onde harmonique, on écrira $\omega = \omega_q + \delta\omega \approx \omega_q - c \frac{\delta\lambda}{\lambda_q^2}$. Les spectres expérimentaux étant centré sur la longueur d'onde centrale de l'harmonique, il est nécessaire de linéariser la fréquence ω apparaissant dans l'expression VI-18 au voisinage de la fréquence centrale de l'harmonique et de transposer le tout dans le domaine des longueurs d'ondes. On utilise alors comme fonction de fit des profils spectraux :

$$I_{fit}(\omega, \Delta T) = A + B \exp\left[\frac{-(\delta\lambda - C)^2}{D}\right] \cos^2\left(\frac{\pi}{\Delta i} \cdot \delta\lambda \cdot \alpha\right) \cos^2\left(\frac{\pi}{\Delta i \cdot \Delta t} \cdot \Delta T \cdot \delta\lambda\right) \quad (\text{VI-20})$$

Les paramètres A, B, C et D définissent l'enveloppe approximativement Gaussienne du profil spectral. Pour initialiser le fit, on fixe le délai Δt à 150fs, ce qui détermine l'interfrange Δi résultant pour deux impulsions. Les paramètres variables sont alors le délai ΔT entre les deux couples d'impulsions et le coefficient α , facteur correctif du délai Δt (donc également l'interfrange). L'introduction du facteur correctif α du délai Δt , déterminé par l'épaisseur de la lame biréfringente se justifie par le fait que l'alignement de la lame doit être parfait ; un désalignement de quelques degrés peut entraîner un allongement du délai Δt de plusieurs femtosecondes par rapport à la valeur théorique.

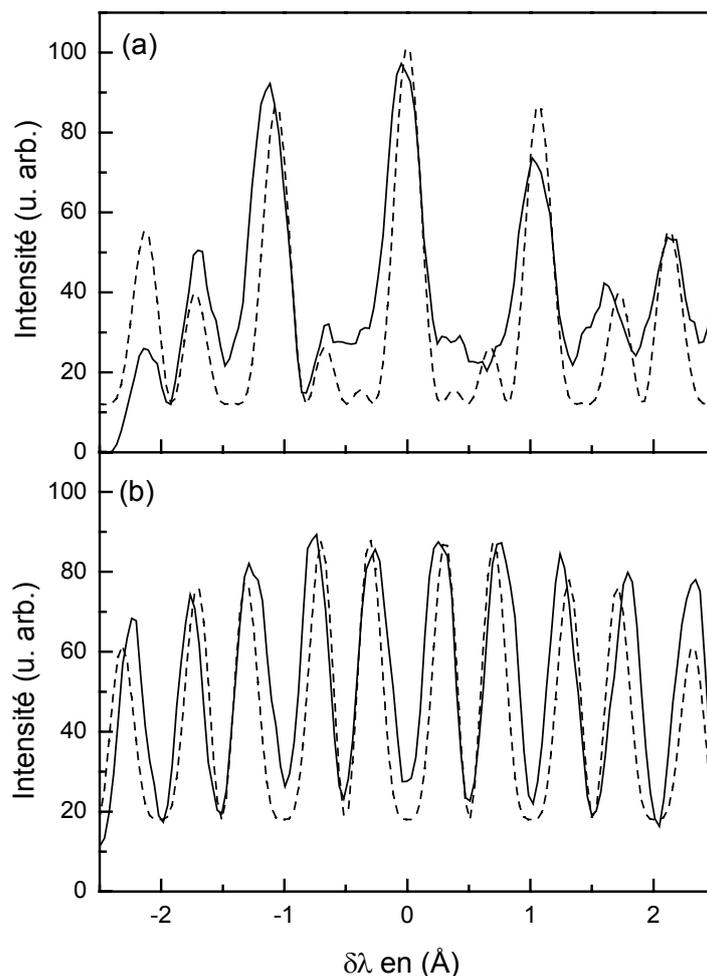


Figure VI-17 : Spectre de puissance expérimental de 4 impulsions (H11) décalées en temps de $2\Delta t + mT_q/2$ en trait plein avec m pair (a) et m impair (b). En trait pointillé sont représentés les fits effectués à partir de la formule théorique VI-20.

La Figure VI-17a présente un spectre expérimental de 4 impulsions (H11) ainsi que le fit utilisant l'expression VI-20 ; les paramètres de fit sont $\Delta T=231,9\text{fs}$ et $\alpha=0,8$ qui correspond à un délai $\Delta t=120\text{fs}$ (au lieu de 150fs). Le fit confirme que le délai ΔT diffère légèrement de $2\Delta t$, $\Delta T=2\Delta t-33T_q$. Pour ΔT différant de $2\Delta t$ par un petit nombre entier de périodes T_q (cf. discussion au §1.2.1), l'effet escompté est toujours présent : on observe tout de même un rétrécissement de la largeur des franges par rapport au spectre de deux impulsions, tout en conservant l'interfrange. Considérons maintenant le profil où l'on observe un doublement du nombre de franges. Les paramètres du meilleur fit sont désormais $\alpha=0,83$ et $\Delta T=250,35$, qui correspond à $\Delta T=2\Delta t+11T_q/2$. ΔT différant de $2\Delta t$ par un nombre impair (faible) de $T_q/2$; la modulation est en $\sin^2(\omega\Delta t)$ et prend l'allure que l'on a décrite au §2.2.1 (et théoriquement au §1.2.1).

Les effets de phase observés sur les spectres en Figure VI-17 sont bien dus à une variation contrôlée de délai ΔT , et non à une mauvaise superposition spatiale des deux couples d'impulsions. En effet, par exemple pour l'harmonique 11, il faut un angle de $0,011^\circ$ entre les axes de propagation des deux couples, pour que ceux-ci soient déphasés d'une demi-période harmonique. Ceci correspond à un décalage spatial de $200\mu\text{m}$ entre les images des deux couples d'impulsions dans le plan focal du spectromètre UVX. Cet écart serait détecté facilement étant donné la résolution spatiale du système d'imagerie ($16\mu\text{m}$). La variation de l'allure des spectres en Figure VI-17 est donc bien due à une variation contrôlée du retard entre les deux couples d'impulsions à l'échelle d'une demi-période harmonique (ou encore à l'échelle attoseconde).

Sur l'image montrée en Figure VI-15b nous avons noté l'asymétrie des franges entre côté bleu et côté rouge. Le profil correspondant est présenté en Figure VI-18a. On observe clairement le changement de l'interfrange Δi , qui est deux fois plus grand du côté rouge que du côté bleu. La largeur des franges est sensiblement plus importante du côté rouge. Le contraste est également dégradé du côté bleu. L'éclairement pic de génération est de l'ordre de 6.10^{13}W/cm^2 , proche de l'éclairement de saturation dans le xénon. En Figure VI-18b est présentée une simulation pour l'harmonique 11 où les 4 impulsions sont régulièrement espacées du délai $\Delta t=150\text{fs}$. Ce calcul numérique est effectué à l'aide du code de propagation 3D ; nous tenons compte des effets d'ionisation du milieu dans l'accord de phase mais aussi la défocalisation des impulsions IR. Ainsi, les trois autres impulsions sont respectivement atténuées d'un facteur 0,8, 0,5 et 0,4 par rapport à la première impulsion. Ces calculs montrent que la densité électronique n'évolue plus beaucoup après passage de la première impulsion. Le spectre de puissance calculé pour un éclairement pic de 7.10^{13}W/cm^2 et une pression dans le milieu de l'ordre de 120Torr , retrouve clairement l'asymétrie dans la périodicité des franges entre les côtés bleu et rouge, qui a été observée expérimentalement. De plus, les franges sont également plus larges dans le côté rouge du spectre. Bien que ce calcul ne reproduise pas parfaitement le spectre expérimental, il semble toutefois indiquer, comme

pour l'interférométrie fréquentielle à deux impulsions (cf. A §2.3.4), que l'ionisation qui introduit une défocalisation des impulsions laser peut modifier les phases relatives des 4 impulsions harmoniques (en particulier de la 1^{ère} impulsion par rapport aux 3 suivantes). Il est important d'insister sur l'effet couplé de l'ionisation et de la défocalisation, qui introduit des perturbations dans le profil temporel des 4 impulsions harmoniques. Ceci se traduit par une asymétrie entre côtés bleu et rouge du spectre de puissance, qui diffèrent à la fois par le contraste, la largeur de frange et l'interfrange.

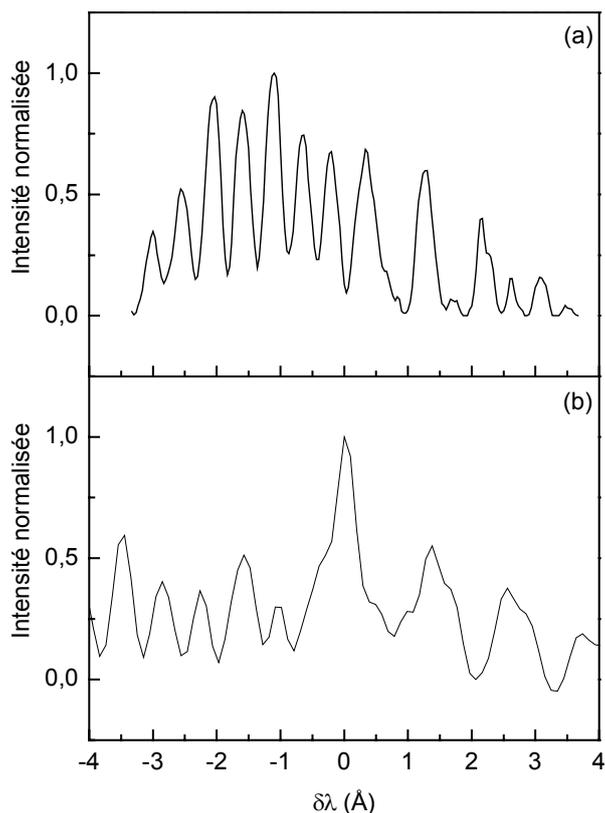


Figure VI-18 : (a) Spectre expérimental de 4 impulsions. (b) Simulation tenant compte d'une variation rapide de la densité électronique au cours de la génération du côté bleu de la première impulsion harmonique.

Finalement, nous avons pu démontrer qu'il est possible de générer quatre impulsions harmoniques séparées en temps et bloquées en phase, comme dans le cas de l'interférométrie fréquentielle à deux sources. L'interférométrie fréquentielle est une technique puissante de diagnostic résolu en temps. Dans le cas de 2 impulsions, nous l'avons notamment utilisée dans la mesure de la densité électronique d'un plasma créé par laser, résolu en temps à l'échelle femtoseconde. Nous allons maintenant détailler cette application de l'interférométrie fréquentielle.

C. Application de la technique d'interférométrie fréquentielle à deux sources au diagnostic d'un plasma.

Au Chapitre V nous avons rappelé l'intérêt que présente l'interférométrie UVX utilisant les harmoniques d'ordre élevé, pour la mesure résolue en temps de la densité électronique d'un plasma. La première expérience que nous avons réalisée a eu pour but de démontrer les potentialités de la technique d'interférométrie fréquentielle pour le diagnostic plasma. Pour cela, un plasma sous dense a été produit en focalisant un faisceau laser intense dans un jet de gaz à haute densité. La deuxième expérience a été une tentative de mesure de la densité électronique d'un plasma produit par cible solide ; elle n'a pas donné les résultats escomptés en raison de divers problèmes que nous détaillerons. Ces deux expériences ont été réalisées en collaboration avec l'équipe Ultra Haute Intensité du SPAM, composée de T. Auguste, P. Monot, P. D'Oliveira et S. Dobosz.

Comme pour l'interférométrie spatiale appliquée au diagnostic plasma (cf. Chapitre V), l'application de l'interférométrie fréquentielle à la mesure de la densité électronique d'un plasma utilise un schéma de type pompe-sonde. Dans ce schéma, l'impulsion laser de pompe produit un plasma sur cible gazeuse ou solide, soit une densité électronique $N_e(t)$ rapidement variable sur l'intervalle de temps Δt . Les deux impulsions harmoniques jumelles décalées en temps mais superposées spatialement constituent la voie sonde. Si la première impulsion voit un milieu où la densité est $N_e(t)$ (éventuellement nulle), la deuxième impulsion voit une densité $N_e(t+\Delta t)$, très supérieure à $N_e(t)$ dans le cas où l'impulsion pompe ionise le milieu entre les deux impulsions sonde. Le déphasage relatif des deux impulsions s'écrit alors :

$$\Delta\phi = \frac{2\pi L}{\lambda} \Delta n \quad \text{où } L \text{ est la longueur du milieu traversé et } \Delta n \text{ la variation de l'indice de}$$

réfraction entre les instant t et $t+\Delta t$. Ce déphasage relatif se traduit par un décalage des franges obtenus par interférométrie spectrale. On peut alors distinguer deux modes de mesure schématisés en Figure VI-19, selon le décalage temporel variable τ entre la première impulsion sonde S_1 et la pompe. Si S_1 se propage dans le milieu avant la pompe, seule la deuxième impulsion sonde S_2 voit un milieu perturbé et se trouve déphasée : c'est le mode absolu ($\tau < 0$). Si S_1 et S_2 se propagent dans le milieu après la pompe, elles seront toutes les deux déphasées, mais de manière différente, selon le temps d'évolution de la perturbation : c'est le mode relatif ($\tau > 0$). Pour finir, dans le mode relatif, lorsque la pompe ionise le milieu longtemps avant S_1 et S_2 , les deux sondes peuvent se propager dans un milieu qui n'évolue quasiment plus pendant le temps Δt ; le déphasage entre S_1 et S_2 est alors nul. Par contre si le milieu évolue encore, même faiblement pendant le temps Δt , il reste un déphasage non nul entre S_1 et S_2 ; on observe encore un décalage des franges spectrales.

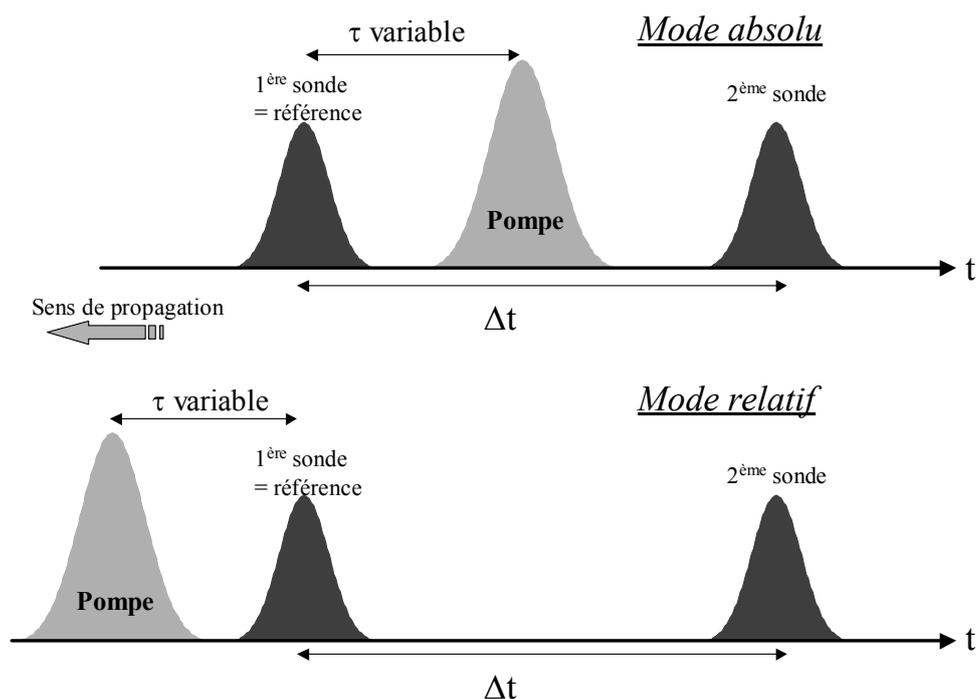


Figure VI-19 : Schéma des différents modes de mesure selon le délai τ entre l'impulsion pompe et l'impulsion sonde servant de référence. La propagation des impulsions pompe et sonde est colinéaire.

1. Plasma produit par un jet atomique dense.

1.1 Dispositif expérimental.

Cette première expérience de démonstration des potentialités de l'interférométrie fréquentielle avec les harmoniques, pour le diagnostic plasma, a été réalisée sur le laser multi terawatts UHI10 du CEA Saclay (800nm, 60fs, 800mJ, 10Hz). Le dispositif expérimental utilisé est schématisé en Figure VI-20. Une faible fraction, 1mJ, de l'énergie totale du faisceau laser UHI10 est prélevée pour générer dans un premier jet pulsé de xénon deux impulsions harmonique (H11, 72nm) décalées en temps de $\Delta t=300$ fs, bloquées en phase, selon le principe décrit à la section A de ce chapitre. Les deux impulsions harmoniques sont focalisées par un miroir torique (focale 1m sous incidence rasante, grandissement=1) au centre d'un jet dense d'hélium. Les franges spectrales résultant de l'interférence de ces deux impulsions sont enregistrées avec un système de galettes de micro-canaux couplées à un écran phosphore, placé dans le plan focal du spectromètre UVX (cf. Chapitre I). Le système d'imagerie est incliné sous un angle de rasance de 8° par rapport au faisceau incident afin d'augmenter la résolution spatiale effective de la détection. La taille du faisceau harmonique

au foyer du premier miroir torique, dans la zone d'interaction avec le jet d'hélium, est mesurée par Foucaultage ; elle est de l'ordre de $160\mu\text{m}$ à $1/e$.

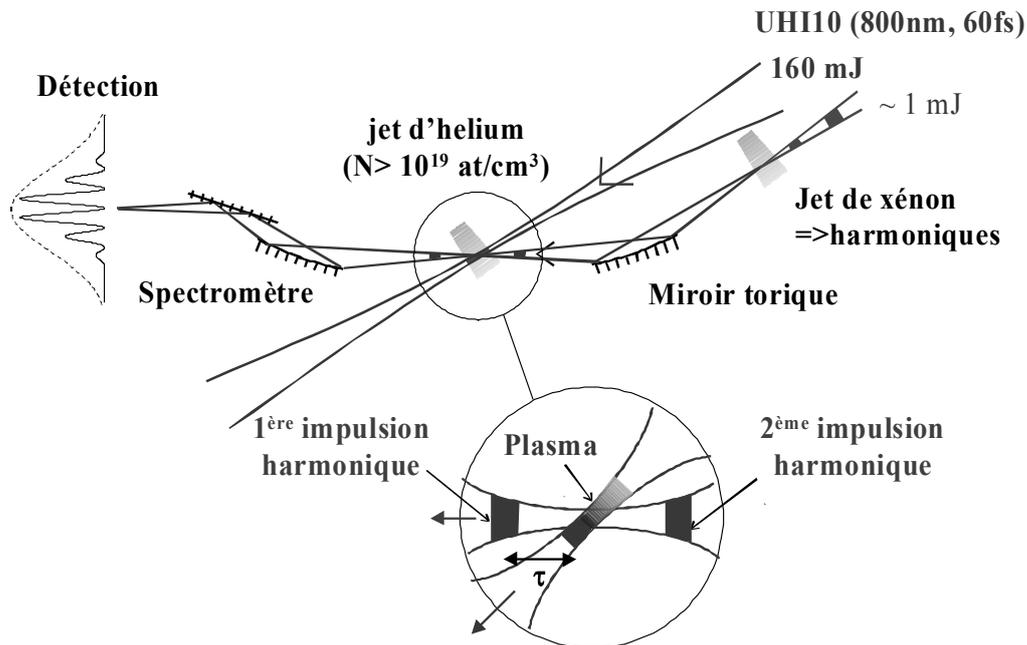


Figure VI-20 : Schéma du dispositif expérimental pour démontrer la possibilité de mesurer la densité électronique d'un plasma créé par laser en utilisant la technique d'interférométrie fréquentielle avec les harmoniques d'ordre élevé.

Le plasma est produit en focalisant le faisceau laser UHI10 (160mJ) à $f/3.5$, au centre du jet d'hélium au moyen d'un miroir parabolique. La taille maximale du plasma est mesurée par ombroscopie à 800nm ; elle est de $270\mu\text{m}$. La densité atomique du milieu ($2,5 \cdot 10^{19}$ atomes/cm³) a été mesurée par interférométrie à 800nm. L'hélium pour le gaz cible et l'harmonique 11 du xénon ont été choisis afin d'éviter l'absorption du rayonnement harmonique par le gaz neutre présent autour et avant création du plasma. Les faisceaux sonde font un angle de 45° par rapport à la pompe, en raison de problème d'implantation dans l'enceinte expérimentale. La non colinéarité des faisceaux complique l'analyse de l'évolution temporelle de la densité électronique du plasma, comme nous le verrons plus loin.

1.2 Mesure de la densité électronique du plasma.

La mesure de la densité électronique $N_e(t)$ est effectuée en enregistrant de façon systématique, en acquisition monocoup, les spectres des deux impulsions harmoniques sonde

S_1 et S_2 , en fonction du délai τ entre S_1 et la pompe. Etant donné que la taille du foyer harmonique est inférieure à la taille du plasma, nous ne sondons que localement la densité électronique de ce dernier. De plus, la résolution spatiale finie de l'optique et du détecteur ne permettent pas de faire l'image du plasma. Ceci implique que le réseau de franges est décalé globalement lorsque S_1 et S_2 présentent un déphasage relatif. La Figure VI-21 montre l'évolution du système de franges en fonction du délai τ sur un intervalle de temps allant de -800 fs à $+800$ fs.

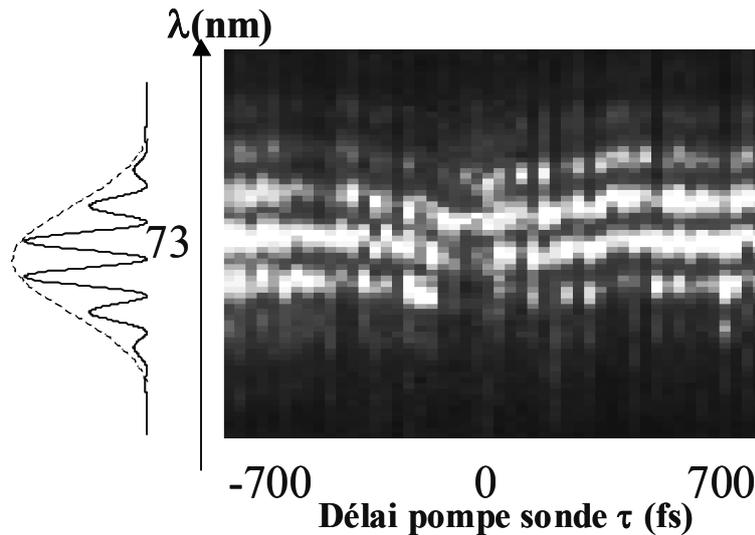


Figure VI-21 : Variation du réseau de frange intégré spatialement en fonction du délai entre la pompe et les sondes.

Lorsque le plasma est généré après le passage de S_1 et S_2 ($\tau < -\Delta t$) le décalage de franges reste nul. A mesure que τ augmente (pompe entre S_1 et S_2 correspondant à $-\Delta t < \tau < 0$) le décalage augmente puis rediminue de façon symétrique (pompe avant S_1 et S_2 correspondant à $\tau > 0$).

L'analyse que nous effectuons a pour but de déduire du décalage de frange mesuré en fonction du délai τ , la variation temporelle de la densité électronique correspondante. Nous savons que la densité électronique $N_e(t)$ induit un déphasage entre les deux faisceaux sondes qui s'écrit:

$$\Delta\phi(x, y, t) = \phi_2(x, y, t) - \phi_1(x, y, t) = \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^L \left[\sqrt{n_0^2 - \frac{\omega_p^2(x, y, z, t)}{\omega^2}} - \sqrt{n_0^2 - \frac{\omega_p^2(x, y, z, t - \Delta t)}{\omega^2}} \right] dz \quad (\text{VI-21})$$

où $n_0 \sim 1$ est l'indice du milieu neutre à la longueur d'onde harmonique et ω_p la fréquence d'oscillation plasma qui dépend de $N_e(t)$. La géométrie de l'interaction est illustrée en Figure VI-22 ; la voie sonde et la voie pompe se croisent sous un angle $\theta = 45^\circ$. A l'instant t_0 , la

pompe qui se propage selon Ψ produit une densité électronique $N_e(t-\tau-\Psi/c)$ qui est paramétrée afin de reproduire temporellement un front de montée rapide ainsi qu'une décroissance plus lente (temps caractéristique T), simulant la recombinaison des électrons avec les ions du milieu ionisé :

$$N_e(t) = N_0 \left(\frac{t}{T} \right)^\alpha e^{-\frac{t}{T}} \quad (\text{VI-22})$$

Le déphasage $\varphi_1(x, \tau)$ de la sonde S_1 traversant l'objet déphasant à l'abscisse x , pour un délai τ fixé, s'écrit :

$$\varphi_1(x, \tau) = \frac{1}{\lambda} \frac{e^2}{2\omega^2 \varepsilon_0 m} \int_{x \cos \theta}^{x \cos \theta + l \sin \theta} N_e \left(t - \tau - \frac{\Psi}{c} \right) dz \quad (\text{VI-23})$$

avec $\Psi = z \cos \theta + x \sin \theta$ et l la largeur de l'objet déphasant. La géométrie conduit donc à un mélange spatio-temporel, tout se passant comme si les deux voies pompe et sonde projetées sur un même axe ne se propageaient plus à la même vitesse. Le calcul numérique, effectué pour les paramètres de l'expérience estime successivement les déphasages $\varphi_1(x, \tau)$ (S_1) et $\varphi_2(x, \tau)$ (S_2), et le déphasage relatif $\Delta\phi = \varphi_2(x, \tau) - \varphi_1(x, \tau)$ en fonction du délai τ . Afin de pouvoir comparer directement la valeur mesurée et la valeur calculée, il est nécessaire de moyennner celle-ci sur l'étendue x des faisceaux sondes (ces derniers étant de plus petites dimensions que le plasma, la densité électronique sondée selon y est homogène).

Cette géométrie de l'interaction (sonde à 45°) dégrade la résolution temporelle à cause du mélange spatio-temporel des valeurs des densités sondées. La résolution temporelle optimale serait obtenue dans le cas d'une géométrie colinéaire des faisceaux sonde et pompe et prendrait pour valeur la durée de l'impulsion sonde (< 50 fs).

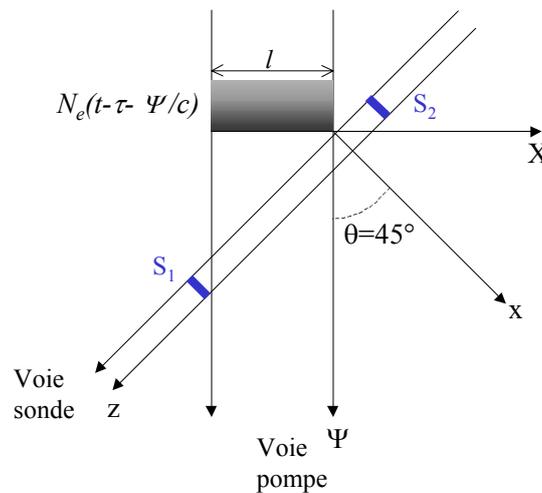


Figure VI-22 : Géométrie de l'interaction à t et τ fixés de la voie sonde et de l'objet déphasant $N_e(t)$ produit par la pompe.

Nous présentons en Figure VI-23 la comparaison des déphasages mesurés et calculés. Les déphasages VI-23 sont calculés en supposant une ionisation instantanée du milieu (α très grand dans VI-22) et un temps de recombinaison long devant le délai Δt entre S_1 et S_2 . La courbe calculée reproduit bien la variation expérimentale du décalage de frange pour une densité électronique \bar{N}_e de 6.10^{19} électrons/cm³. Cette valeur est comparable à celle attendue dans le cas d'un plasma d'hélium complètement ionisé ($4,8.10^{19}$ électrons/cm³). On remarque que lorsque les deux sondes traversent le plasma ($\tau \gg 0$), le décalage des franges est non nul, traduisant une évolution lente de la densité électronique moyenne. Ceci pourrait résulter d'une augmentation de la taille du plasma due à l'ionisation « secondaire » par les électrons rapides générés par l'impulsion pompe intense. Une étude plus approfondie est nécessaire pour mieux comprendre cet effet.

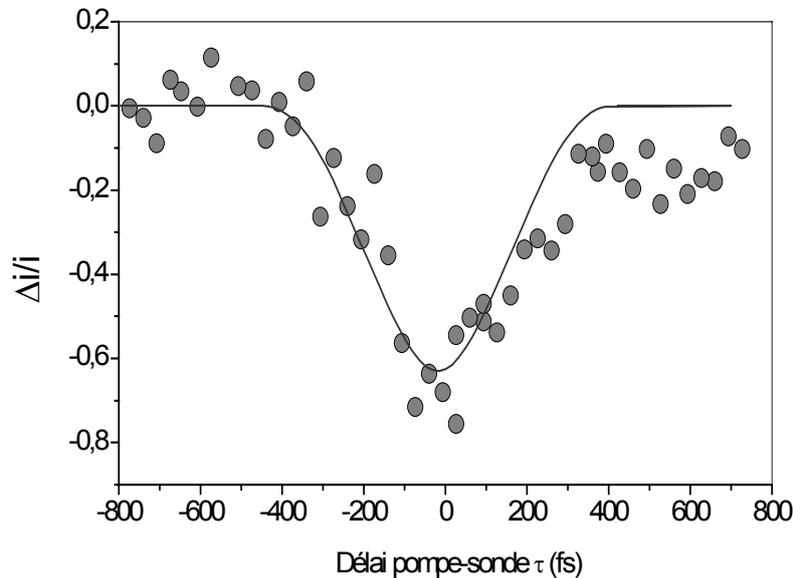


Figure VI-23 : Variation du décalage moyen des franges en fonction du délai τ entre la pompe et la sonde obtenu expérimentalement (cercle noir) et par le calcul pour $\bar{N}_e = 6.10^{19}$ électrons/cm³ (trait plein).

De la Figure VI-23, il est possible d'extraire la variation temporelle de la densité électronique moyenne. En effet, si la première impulsion harmonique subit un déphasage $\varphi_1(t)$ à l'instant t , le déphasage de la seconde impulsion $\varphi_2(t)$ à ce même instant t est le déphasage qu'a subit la première impulsion au temps $t-\tau$. On a donc la relation suivante :

$$\frac{\Delta i}{i} = \frac{\varphi_2(t) - \varphi_1(t)}{2\pi} = \frac{\varphi_1(t - \tau) - \varphi_1(t)}{2\pi} \quad (\text{VI-24})$$

Avec l'expression de l'indice de réfraction du plasma, on relie le décalage de franges à la densité électronique moyenne par :

$$\frac{\Delta i}{i} = \frac{L}{2\lambda N_c} [\bar{N}_e(t - \tau) - \bar{N}_e(t)] \quad (\text{VI-25})$$

On obtient ainsi la densité électronique moyenne au temps t par la relation (VI-26).

$$\bar{N}_e(t) = \bar{N}_e(t - \tau) - \frac{2\lambda N_c}{L} \frac{\Delta i}{i} \quad (\text{VI-26})$$

Longtemps avant la pompe ($t < -800\text{fs}$), $\bar{N}_e(t)$ est nul. Il est ainsi possible de reconstruire l'évolution temporelle de la densité électronique moyenne du plasma en utilisant la relation (VI-26), de proche en proche en additionnant les décalages de franges de la Figure VI-23 par tranches temporelles de 300fs. Cette évolution de la densité électronique au cours du temps est illustrée en Figure VI-24.

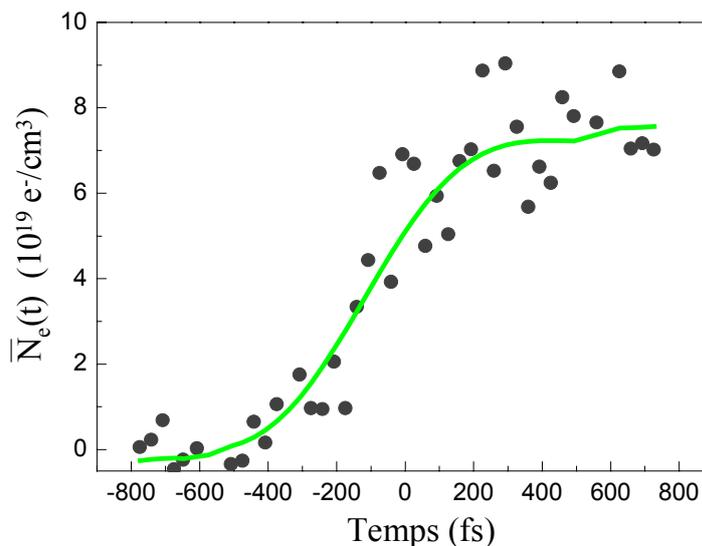


Figure VI-24 : Evolution de la densité électronique moyenne au cours du temps (cercle noir).
En trait plein est tracée une moyenne à 3 points de la courbe expérimentale.

On observe une densité électronique maximale de $7.10^{19} \text{ e}^-/\text{cm}^3$, ce qui est en accord avec la valeur utilisée dans le modèle ($6.10^{19} \text{ e}^-/\text{cm}^3$) pour reproduire l'évolution expérimentale. On peut également remarquer que l'évolution temporelle du front d'ionisation se produit sur plus de 200fs. Dans ce régime d'ionisation par champ on s'attend à observer une évolution plus rapide, de l'ordre de la durée de l'impulsion pompe (50fs). Il est important de préciser que cet allongement temporel n'est pas dû à la durée des harmoniques qui est inférieure à la durée de la pompe, mais à la géométrie non-colinéaire de l'expérience qui,

comme nous l'avons déjà expliqué, introduit un mélange spatio-temporel qui dégrade la résolution temporelle de la mesure.

2. Plasma produit par cible solide.

Cette expérience a été réalisée dans le but d'utiliser réellement tous les avantages du rayonnement harmonique, à savoir la courte durée de l'impulsion permettant une très bonne résolution temporelle, mais aussi la courte longueur d'onde qui permet de sonder des plasmas très denses. En effet la densité critique à 72nm est de 2.10^{23} électrons/cm³, alors qu'elle n'est que de 2.10^{21} électrons/cm³ à 800nm.

2.1 Dispositif expérimental.

Le dispositif expérimental utilisé est similaire à celui présenté précédemment, à la différence près que les faisceaux pompe et sonde sont désormais colinéaires. La cible sur laquelle est focalisé le faisceau pompe est maintenant une feuille d'aluminium de 1000Å d'épaisseur. L'utilisation d'une cible solide doit permettre d'atteindre des densités électroniques de l'ordre ou supérieures à la densité du solide (10^{23} e⁻/cm³), soit supérieures à la densité critique pour un rayonnement visible. Le dispositif expérimental utilisé est représenté en Figure VI-25.

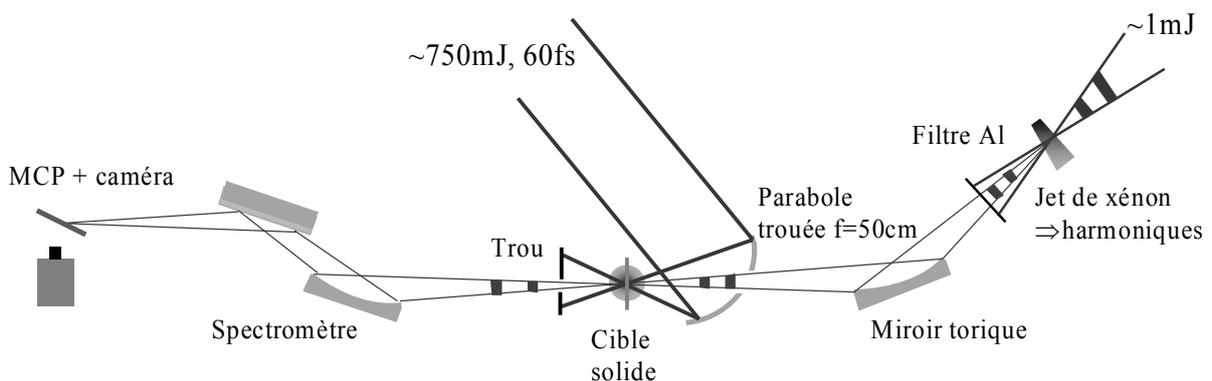


Figure VI-25 : Dispositif expérimental du diagnostic de plasma produit sur cible solide.

Les deux impulsions harmoniques bloquées en phase et décalées en temps de $\Delta t=300\text{fs}$ étant focalisées par un miroir torique au niveau de la cible, il est nécessaire d'éliminer le faisceau IR qui les génère, afin qu'il n'endommage pas la cible. Pour ce faire, le faisceau IR est annulaire en champ lointain. Après qu'il a divergé, la majeure partie de l'énergie contenue dans l'anneau est bloquée par un diaphragme. Un filtre d'aluminium coupe l'IR résiduel au centre du faisceau, transmettant de l'ordre de 10% du faisceau harmonique. L'impulsion sonde S_1 transmise sert de référence dans le mode absolu. Le laser UHI10 est focalisé sur la cible solide à l'aide d'une parabole hors axe, percée, de focale 50cm. L'éclairement atteint au niveau de la cible est de l'ordre de $10^{18}\text{W}/\text{cm}^2$. Les harmoniques passent par le trou de la parabole, définissant une géométrie colinéaire des voies pompe et sonde : nous n'avons plus le mélange spatio-temporel présent dans la géométrie précédente, ce qui simplifie l'analyse des mesures. Ce système a également l'avantage de conserver la résolution temporelle de la mesure, donnée par la durée d'une harmonique ($<50\text{fs}$). Les spectres des deux impulsions sondes sont analysés dans le spectromètre UVX et enregistrés sur des galettes de micro-canaux, comme dans l'expérience sur cible gazeuse. Finalement, le plasma et les harmoniques ont approximativement la même taille, à savoir $200\mu\text{m}$.

2.2 Résultats expérimentaux.

La technique d'interférométrie fréquentielle n'a pas permis de mesurer un décalage de frange significatif lorsque le plasma est produit par la pompe, pulvérisant la cible quelques dizaines de femtosecondes après le passage de S_1 . Un faible décalage de frange a pu être observé lorsque S_1 et S_2 traversent le plasma (mode relatif de mesure), pour un délai τ de près d'une picoseconde. Ce délai τ ne correspondant pas du tout à la dynamique temporelle ultrarapide que l'on attend dans un plasma généré par un laser femtoseconde, nous avons mesuré la transmission du plasma en fonction de τ sur une très grande échelle de temps.

La Figure VI-26a présente le rapport entre la transmission du plasma et la transmission de la cible (filtre en aluminium), $T_{\text{plasma}}/T_{\text{cible}}$, pour l'harmonique 11, en fonction du délai τ (une seule impulsion sonde S_1). Pour $\tau>0$, l'impulsion S_1 traverse la cible bien avant que l'impulsion laser pompe n'ait créé le plasma ; le rapport des transmissions devrait donc être égal à 1 alors que l'on mesure un rapport supérieur à 2, comme le montre la Figure VI-26.

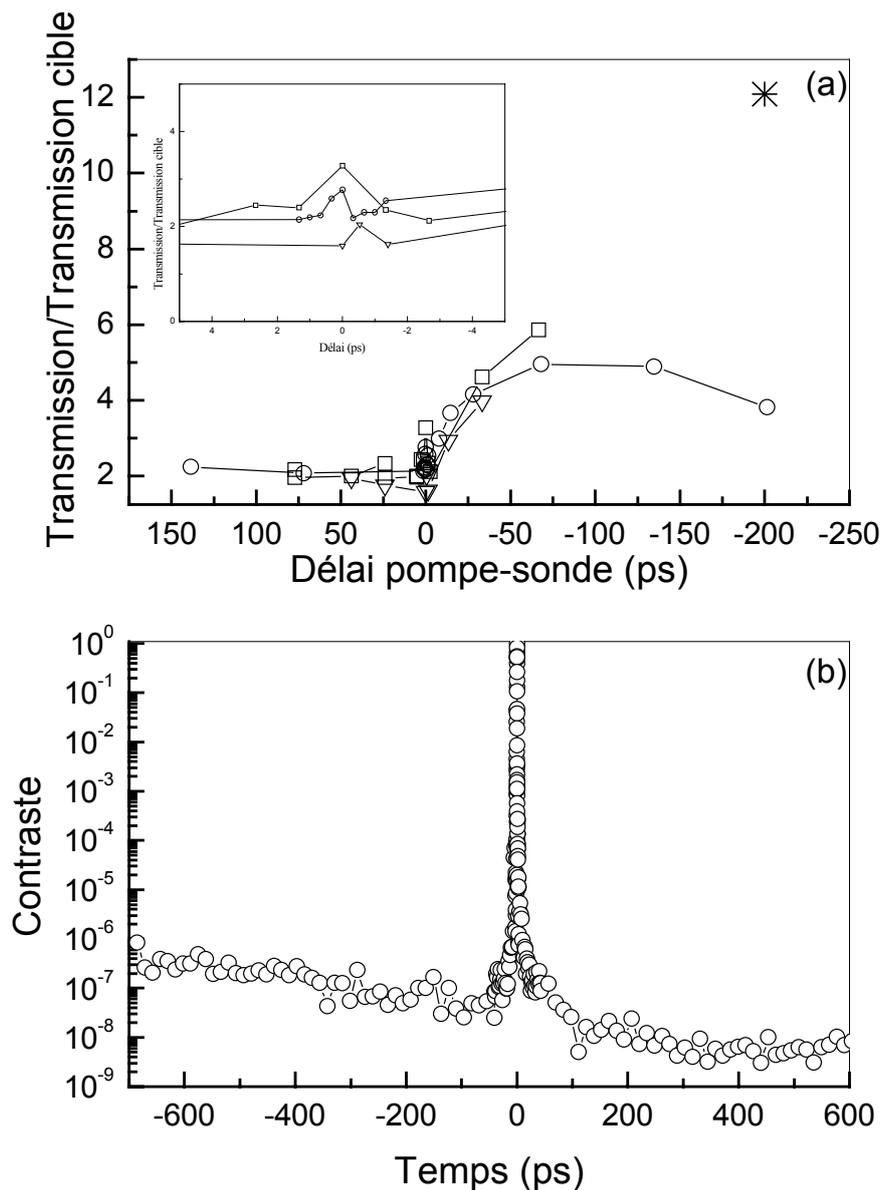


Figure VI-26 : (a) Rapport de la transmission du plasma par la transmission de la cible pour l'harmonique 11 en fonction du délai entre la pompe et la sonde (H11). L'encart est un agrandissement de la courbe pour une gamme de délais allant de $-4ps$ à $4ps$. (b) Mesure du contraste de l'impulsion pompe par cross corrélation du 3^{ème} ordre.

Il semble donc que la cible ait été détruite, et un plasma produit, bien avant l'arrivée de la pompe. Nous attribuons cet effet à l'existence d'un large piédestal dans l'impulsion laser pompe. La Figure VI-26b présente la mesure du contraste temporel de l'impulsion laser, par cross-corrélation du troisième ordre. La mesure est effectuée en faisant passer une fuite du laser à travers un cristal de BBO. On sépare la composante ω de la composante 2ω en sortie

de ce cristal à l'aide d'une lame dichroïque. La composante 2ω est alors retardée puis recombinaée avec la composante ω dans un cristal tripleur, dans lequel on génère un signal à 3ω par somme des fréquences. On peut alors déterminer le contraste de l'impulsion, qui est de 10^{-4} à 1ps et 10^{-6} à 700ps. Etant donné l'éclairement pic atteint pour la pompe on voit que le piédestal conduit à un éclairement sur cible de 10^{12}W/cm^2 sur plusieurs centaines de picosecondes, ce qui est largement suffisant à la création d'un plasma. De plus la durée longue de ce piédestal favorise le dépôt d'énergie dans la cible, et finit par la faire exploser. Comme il existe déjà un plasma plusieurs centaines de picosecondes avant l'arrivée de l'impulsion « principale », le rapport des transmissions en Figure VI-26 est supérieur à 1 lorsque la sonde arrive avant la pompe.

La Figure VI-26a présente (en insert) un agrandissement du domaine temporel où l'impulsion pompe arrive peu de temps avant la sonde ($-2\text{ps} < \tau < 2\text{ps}$). La transmission du plasma présente une rapide remontée traduisant une diminution de la densité électronique dans la région spatiale du plasma recouverte par l'harmonique. Cet effet peut être attribué à l'interaction de l'impulsion « principale » intense avec le plasma préformé par le piédestal. En effet, le gradient d'éclairement radial est très important dans la région focale du faisceau pompe ; il peut provoquer l'éjection des électrons hors de la zone axiale par la force pondéromotrice (Hulin 2000). Les ions vont également bientôt quitter la région axiale par diffusion antipolaire e^- -ions. A partir de là, commence l'expansion lente du plasma sur plusieurs dizaines de picosecondes, au cours de laquelle les électrons se recombinaent avec les ions. Les densités atomiques et ioniques diminuent ainsi l'absorption du rayonnement harmonique. On observe alors l'augmentation du rapport des transmissions pour les délais τ négatifs sur la Figure VI-26a. Le symbole ✱ dans la partie haute de la figure représente le signal harmonique mesuré sans cible, indiquant la valeur limite que $T_{\text{plasma}}/T_{\text{cible}}$ peut atteindre lorsque les électrons du plasma se sont tous recombinaés (cible détruite) ; la position temporelle de ce point n'a aucune signification.

Pour finir rappelons les divers processus d'absorption du rayonnement harmonique qui sont possibles dans le plasma. Le rayonnement harmonique peut être absorbé dans trois types de processus d'excitation lié - lié, lié - libre et enfin libre - libre. On peut raisonnablement penser que la contribution principale à l'absorption du rayonnement à 72nm dans notre cas est celles des transitions libre - libre telles que le Bremsstrahlung inverse. Quoiqu'il en soit, dans notre cas, il est impossible de remonter à une densité électronique. Pour cela il serait nécessaire de comparer la transmission à deux longueurs d'onde différentes ; nous ne détaillerons pas le principe de la mesure qui peut être trouvé dans (Théobald *et al.* 1999). Notons simplement que de nombreuses approximations sur la nature du plasma sont nécessaires. De plus, il est probable que le creusement d'un canal de densité dans le plasma complique considérablement l'analyse des données. Une des seules voies de mesure, vraiment directe, de la densité électronique d'un tel plasma reste donc l'interférométrie fréquentielle

avec les harmoniques. Bien que cette première expérience n'ait pas encore abouti, elle a permis de mettre en évidence le problème du piédestal de l'impulsion pompe. Des études supplémentaires restent donc nécessaires et seront bientôt réalisées.

D. Comparaison et perspectives des 2 techniques d'interférométrie spatiale et spectrale.

Les deux techniques d'interférométrie spatiale et spectrale utilisant les harmoniques d'ordre élevé présentées aux Chapitre V et VI ont un certain nombre de points communs. Tout d'abord, ces deux techniques sont mises en œuvre sans utilisation d'optiques UVX spécifiques souvent coûteuses et techniquement difficiles à réaliser. En effet, la séparation spatiale ou temporelle des impulsions est opérée sur le faisceau fondamental IR. Par le processus cohérent de génération d'harmoniques, cette séparation est naturellement transposée dans le domaine UVX, où l'on produit deux sources harmoniques bloquées en phase. Comme ces études l'ont illustré, ceci autorise une grande souplesse dans la conception de schémas interférométriques nouveaux, en réduisant au minimum les besoins en optiques UVX. En second lieu, la très courte durée de l'émission harmonique rend possible une résolution temporelle jamais atteinte, typiquement de quelques dizaines de femtosecondes. La première application de l'interférométrie spectrale UVX à la mesure d'une densité électronique présente une résolution temporelle plus faible en raison de la géométrie du dispositif expérimental. La géométrie colinéaire permet par contre de conserver la résolution sub – picoseconde. La forte brillance de l'émission harmonique permet l'acquisition en monocoup des interférogrammes, ce qui permet de s'affranchir des problèmes d'instabilité.

A côté des caractéristiques communes, il existe des différences entre les deux techniques. Dans le cas de l'interférométrie spatiale, l'interfrange varie linéairement avec la longueur d'onde ; on peut ainsi, pour une résolution de détecteur donnée, utiliser des harmoniques d'ordre plus élevé que dans le cas de l'interférométrie spectrale où l'interfrange varie quadratiquement avec la longueur d'onde. L'interférométrie spatiale permet d'établir une carte 2D de l'expansion du plasma. Par contre, il n'y a qu'une dimension spatiale qui puisse être imagée dans l'interférométrie spectrale (dimension perpendiculaire à la dimension spectrale dans le plan focal). La technique spatiale nécessite cependant une référence absolue (milieu non perturbé). Afin de mesurer la densité électronique du plasma avec une bonne précision, il faut être sûr que le plasma ne déphase qu'un bras sonde (tout ou partie), sans perturber le second. Si l'expansion du plasma au cours du temps atteint le second bras, on perd la référence absolue qu'il détermine. Par contre, dans le cas de l'interférométrie spectrale, on passe facilement d'une mesure relative à une mesure absolue. En effet, nous

avons vu, schématiquement, que l'on déduit des spectres la variation $\Delta N_e(t) = N_e(t+\Delta t) - N_e(t)$ de la densité électronique sur l'intervalle Δt . En suivant de proche en proche l'évolution de ΔN_e à partir d'une densité de référence ($N_e(t_0) = 0$), on reconstruit en principe l'évolution de la densité. Cet accès facile à une référence absolue est le principal argument pour utiliser la technique d'interférométrie fréquentielle à N sources ($N \geq 3$) au diagnostic plasma. Si on utilise par exemple trois impulsions sondes S_1 , S_2 et S_3 , décalées successivement dans le temps par deux délais différents (Δt_1 entre S_1 et S_2 et Δt_2 entre S_2 et S_3 avec $\Delta t_1 \neq \Delta t_2$), on accède simultanément à la mesure absolue ($N_e(t+\Delta t_1)$) et relative ($N_e(t+\Delta t_1+\Delta t_2) - N_e(t+\Delta t_1)$) de la densité électronique. Cette technique, déjà utilisée pour le diagnostic plasma dans le domaine IR n'a jamais été mise en œuvre dans le domaine UVX, où elle semble pouvoir fournir des résultats intéressants. De plus, les franges spectrales étant plus fines dans le cas de plusieurs impulsions on obtiendra une meilleure résolution de la mesure spectrale, permettant d'observer des variations temporelles plus fines de l'objet déphasant.

La technique d'interférométrie fréquentielle à 4 impulsions démontre une sensibilité extrême à un faible déphasage relatif, à l'échelle d'une demi-période harmonique, entre les deux couples d'impulsions. En effet, nous avons observé un changement global du spectre de puissance lorsque le décalage temporel entre les deux couples est affiné à l'échelle de 120as. Ceci montre que l'on a un contrôle de ce déphasage relatif à l'échelle attoseconde. Cet effet remarquable, plus clair que dans le cas de deux impulsions devrait pouvoir être utilisé pour mesurer, par exemple, des déformations de profil de surface à l'échelle nanométrique.

De plus, cette interférométrie spectrale à 4 impulsions permet de pallier partiellement la limitation à une seule dimension de l'imagerie spatiale (sans grandissement dans notre cas). Nous avons vu que notre dispositif permet de générer, par exemple, deux couples de deux impulsions décalées en temps de Δt , mais les deux couples étant également séparés spatialement (cf. Figure VI-14a). On peut ainsi disposer de deux voies de diagnostic temporel spatialement distinctes, dont l'une peut servir de référence aussi bien spatiale que temporelle. On élimine ainsi par une acquisition simultanée du spectre et de la référence, les problèmes d'instabilité entre deux tirs laser. Pour les objets déphasant de grande dimension, on pourrait aussi sonder deux régions spatiales différentes, avec les deux voies de diagnostic pour un même délai Δt entre les impulsions. On caractériserait ainsi l'évolution spatio-temporelle de l'objet étudié.

Dans le système que nous avons utilisé, le défaut principal reste cependant l'absence de grandissement. Il en est de même dans le cas de l'interférométrie spatiale où la zone d'interférence n'est pas imagée. Il sera nécessaire, dans un futur proche, de concevoir des systèmes imageurs avec grandissement, pour l'une ou l'autre de ces techniques, afin de pouvoir atteindre des résolutions spatiales de $\sim 1\mu\text{m}$ au niveau de l'objet.

Conclusion.

Dans ce chapitre, nous avons démontré la possibilité de générer deux ou plusieurs sources harmoniques séparées temporellement et bloquées en phase, en transposant la technique d'interférométrie fréquentielle dans le domaine UVX. Grâce à un spectromètre UVX suffisamment résolvant, nous avons mesuré des franges spectrales très contrastées, à condition de limiter l'ionisation du milieu générateur. La cohérence mutuelle des sources séparées temporellement reste élevée, même pour des ordres élevés de non linéarité ou pour des décalages temporels importants entre les impulsions.

L'interférométrie fréquentielle à 2 sources a également permis de confirmer l'existence d'une modulation de fréquence intrinsèque dans l'émission harmonique (« chirp »). Ce chirp symétrique bleu/rouge est produit par la variation rapide de la phase du dipôle, proportionnelle à l'éclairement laser. En présence d'une variation rapide de la dispersion électronique, due à l'ionisation dans le front montant de la première impulsion IR, le chirp conduit à une asymétrie des spectres d'interférence. Réciproquement, l'analyse de l'asymétrie des spectres renseigne sur le signe du chirp intrinsèque de l'émission harmonique, sur la possible différence de chirp entre les deux impulsions ainsi que sur la dynamique de l'ionisation dans le milieu.

Cet effet a également été observé lors de l'extension de la technique d'interférométrie fréquentielle à quatre impulsions. Cette technique permet de plus d'augmenter la résolution des interférogrammes puisque dans certaines conditions les franges sont affinées tout en conservant le même interfrange que dans le cas de deux impulsions. Enfin, cette technique présente une sensibilité extrême au déphasage relatif entre les deux couples d'impulsions à l'échelle d'une demi-période harmonique, donc à l'échelle attoseconde. Ainsi, nous démontrons d'une part qu'il est possible de générer 4 impulsions harmoniques mutuellement cohérentes et d'autre part qu'il est possible de contrôler la phase relative à l'échelle d'une demi-période harmonique.

Nous avons également démontré la possibilité d'appliquer l'interférométrie fréquentielle UVX aux mesures résolues en temps de la densité électronique dans un plasma produit par laser dans une cible gazeuse. Les expériences sur cible solide sont encore en cours. Finalement, les développements récents, notamment l'extension de la technique d'interférométrie fréquentielle à plusieurs impulsions et la maîtrise de l'interférométrie spatiale, permettront dans un futur proche l'élaboration de nouveaux interféromètres servant à des diagnostics, résolus spatialement au micron et temporellement à des échelles jamais atteintes, permettant de pousser ces études plus en détails. Les harmoniques d'ordre élevé, par la facilité de leur utilisation et leurs propriétés de courte durée et de cohérence mutuelle constituent ainsi une source particulièrement adaptée au diagnostic résolu en temps de plasmas transitoires sur-critiques.

Conclusion générale.

Les travaux expérimentaux et théoriques présentés dans ce manuscrit peuvent être regroupés en deux parties principales : tout d'abord une étude approfondie de l'accord de phase ayant pour but l'optimisation du flux harmonique, puis le développement de l'interférométrie UVX appliquée à la mesure résolue en temps de la densité électronique de plasmas denses. Une petite partie intermédiaire présente la possibilité de focaliser le rayonnement harmonique à l'aide d'une lentille de Bragg – Fresnel.

Nous avons, dans un premier temps, étudié en détail la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les fibres creuses remplies de gaz, en identifiant les similitudes et les différences avec la génération dans un jet pulsé. Il a alors été démontré expérimentalement l'existence d'une pression optimale de génération pour différents gaz et ordres de non linéarité. L'étude des profils d'émission en fonction de la pression appliquée dans le capillaire montre une évolution d'un accord de phase hors-axe, produisant un profil clairement annulaire, à un accord de phase efficace sur l'axe, pour lequel le profil est étroit et centré. Une étude théorique détaillant les différents termes de déphasage (dispersions atomique, électronique, géométrique et phase atomique) entre la polarisation non linéaire, terme source de l'émission, et le champ harmonique émis, nous a permis d'interpréter les résultats expérimentaux. L'accord de phase sur l'axe est ainsi obtenu lorsque la dispersion atomique compense la dispersion géométrique induite par la propagation du fondamental dans la fibre. Ceci correspond à la pression optimale de génération. Un accord de phase hors-axe est réalisable à des pressions plus faibles grâce à la dépendance radiale de la phase du dipôle atomique en fonction de l'éclairement laser. Les simulations numériques ont permis de confirmer cette interprétation, en reproduisant les effets observés expérimentalement. Elles révèlent de plus que l'évolution des profils spatiaux, d'annulaire à centré, doit être corrélée à un net rétrécissement des profils spectraux. En effet, l'émission hors-axe, rendue possible par la variation rapide (spatiale) de la phase atomique avec l'éclairement, doit être associée à une importante modulation temporelle de la phase de l'émission harmonique donc à un spectre large. C'est la trajectoire électronique dite « longue » qui contribue principalement à l'émission harmonique. Des expériences futures devraient ainsi permettre de valider cette nouvelle interprétation au détriment de la thèse d'un accord de phase de type Cerenkōv admise jusqu'ici. Pour finir, cette étude montre l'importance de l'absorption du rayonnement par le milieu émetteur, qui peut, dans certaines conditions, limiter l'émission harmonique. L'efficacité de génération est alors optimale.

Nous nous sommes intéressés, dans un deuxième temps, à étudier la possibilité d'atteindre cette émission limitée par l'absorption dans un jet de gaz. L'étude de l'efficacité harmonique en fonction de la pression et de la longueur du milieu a permis de déterminer les

conditions optimales de génération qui limitent l'émission par l'absorption dans un jet suffisamment long ($\sim 2,5\text{mm}$). Différents régimes d'accord de phase sont mis en évidence et discutés à l'aide d'un modèle 1D faisant intervenir les longueurs de cohérence, d'absorption et du milieu émetteur. Des simulations 3D *ab initio* reproduisent remarquablement les résultats expérimentaux et permettent de déterminer plus précisément les facteurs limitant l'émission ; l'efficacité de génération des harmoniques du plateau, dans nos conditions de génération, est bien limitée par l'absorption, alors que celle des harmoniques de la coupure (dans l'argon) est limitée par la défocalisation du laser générateur due aux électrons libres produits par l'ionisation du milieu. Nous avons alors mesuré le nombre absolu de photons générés dans le xénon, l'argon et le néon avec une photodiode UVX calibrée. Le spectromètre UVX a été lui-même calibré à l'aide de la source harmonique. Les nombres de photons atteints sont : près de 10^{10} photons/impulsion à 60nm, 5.10^9 photons/impulsion à 40 nm et 4.10^7 photons/impulsion à 17nm. Les efficacités de génération correspondantes sont équivalentes à celles trouvées dans la littérature pour les harmoniques générées avec des lasers ultra courts ($\sim 5\text{fs}$), pourtant considérés comme étant les plus efficaces. Du fait de nos plus grandes durées d'impulsions et du plus important volume focal, les nombres de photons générés sont plus d'un ordre de grandeur supérieurs ; ce facteur est important pour de nombreuses applications.

Après cette optimisation du flux harmonique, nous nous sommes intéressés à la focalisation efficace du rayonnement afin d'obtenir des éclaircissements UVX élevés. Nous avons pour cela testé une nouvelle optique dite lentille de Bragg – Fresnel qui permet de focaliser hors-axe le rayonnement incident sans introduire d'aberrations, contrairement à une optique sphérique classique. Cette optique associe, comme son nom l'indique, la diffraction de Bragg qui permet de sélectionner et de réfléchir une longueur d'onde UVX et la diffraction de Fresnel qui permet de focaliser ce rayonnement. Cette expérience a permis, d'une part, de mettre en évidence les propriétés d'une telle optique et, d'autre part, de focaliser le rayonnement harmonique (21,6nm) sur une tache de $w_0 \sim 2\mu\text{m}$. Cette taille est la plus petite obtenue à ce jour par focalisation des harmoniques par optique de Bragg – Fresnel. Les mesures absolues de photons permettent d'estimer que l'éclaircissement atteint à 21,6nm est de près de $10^{10}\text{W}/\text{cm}^2$. Nous effectuons différentes estimations d'éclaircissements atteignables à d'autres longueurs d'onde, et mettons en avant les limites d'une telle optique. La plus importante est certainement l'étirement temporel inhérent à cette optique diffractive, qui diminue l'éclaircissement UVX effectif.

Les deux dernières études présentées dans ce manuscrit ont utilisé la propriété de cohérence mutuelle des harmoniques d'ordre élevé, afin de démontrer la faisabilité de l'interférométrie UVX à l'aide du rayonnement harmonique.

La première de ces deux études a consisté à générer deux sources harmoniques séparées spatialement et à étudier l'interférogramme obtenu en champ lointain. Des contrastes de l'ordre de 90% sont obtenus, démontrant que les deux sources harmoniques sont

mutuellement cohérentes. Nous nous sommes alors intéressés à la possibilité d'utiliser cette technique pour la caractérisation d'objets déphasants. L'épaisseur d'un filtre d'aluminium a ainsi pu être déterminée à partir du décalage de franges. L'application au diagnostic d'un milieu non stationnaire tel qu'un plasma produit par laser a ensuite été démontrée. Une cartographie à deux dimensions de la densité électronique est ainsi obtenue, avec des valeurs atteignant $2 \cdot 10^{20} \text{ e}^-/\text{cm}^3$. La courte longueur d'onde des harmoniques permet en effet de mesurer des densités difficilement voire non accessibles aux longueurs d'onde visibles. Notons que cette mesure interférométrique de la densité est directe, contrairement aux mesures de transmission qui nécessitent de nombreuses hypothèses sur la nature du plasma.

La deuxième étude est l'analogie temporelle de l'interférométrie à deux sources séparées spatialement. Nous avons ainsi démontré la possibilité de produire deux impulsions harmoniques séparées en temps mais bloquées en phase. L'interférogramme obtenu dans le domaine des fréquences après dispersion par un réseau présente en effet un contraste très élevé. Cette propriété de cohérence mutuelle peut être étendue à 4 impulsions harmoniques séparées en temps, soit 2 couples de 2 impulsions. L'interférence spectrale qui en résulte présente une extrême sensibilité à la phase relative des deux couples d'impulsions à l'échelle d'une demi-période harmonique (échelle attoseconde). La technique à deux impulsions a ensuite été utilisée pour la mesure résolue en temps de la densité électronique d'un plasma créé par focalisation d'un laser intense dans un jet d'hélium haute densité. Une résolution temporelle de 200fs a ainsi été démontrée pour la première fois dans l'UVX, avec la possibilité de diminuer encore à quelques dizaines de femtosecondes.

Un des avantages principaux des techniques interférométriques que nous avons développées est le fait d'effectuer la division d'amplitude sur le faisceau fondamental. Il n'est donc pas nécessaire d'utiliser des optiques UVX compliquées, autres qu'un spectromètre UVX, pour observer les franges. De plus l'accordabilité partielle du rayonnement harmonique permet de sélectionner la longueur d'onde de sonde la plus appropriée au diagnostic du plasma considéré.

Les perspectives ouvertes par ces études sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz, qu'elles soient fondamentales ou appliquées, sont de plus en plus nombreuses.

Tout d'abord, du point de vue fondamental, l'optimisation de l'émission harmonique reste un sujet central. Si, comme nous l'avons vu, il est possible de saturer l'émission par l'absorption pour des harmoniques d'ordre intermédiaire (jusqu'à 15nm environ), il reste à étendre ce résultat à des ordres plus élevés pour lesquels la dispersion électronique diminue considérablement la longueur de cohérence. C'est le défi à relever pour rendre utilisable dans des applications le rayonnement harmonique généré dans la fenêtre de l'eau. Le contrôle de l'accord de phase par manipulation de la phase spatiale du champ fondamental peut être envisagée. Le contrôle de la phase temporelle de ce dernier pourrait quant à lui permettre d'optimiser l'émission au niveau microscopique.

Ensuite, le développement rapide de l'optique UVX (traitements multicouches, lentilles de Fresnel et de Bragg – Fresnel, Shack – Hartman) devrait permettre un contrôle et une manipulation de plus en plus élaborés des propriétés des faisceaux harmoniques, de façon à les adapter à différentes applications. Au premier rang de celles-ci, la focalisation sur de très petites taches sans allongement temporel devrait permettre d'induire des processus non linéaire pour des ordres harmoniques élevés, ouvrant le champ de l'optique non linéaire UVX et, d'un point de vue plus appliqué, permettant une mesure directe de la durée ultracourte des impulsions harmoniques par autocorrélation.

Enfin, le potentiel du rayonnement UVX par génération d'harmoniques pour des applications nombreuses et variées est désormais prouvé. En particulier, les propriétés uniques de cohérence mutuelle de la source harmonique en font un outil privilégié pour l'interférométrie UVX. Nous avons montré dans ce manuscrit le potentiel de ces schémas pour le diagnostic résolu en temps à l'échelle femtoseconde de plasmas denses. Il devrait être possible dans un proche avenir de sonder des densités électroniques aussi élevées que 10^{22} e⁻/cm³ voire 10^{23} e⁻/cm³ à l'aide des harmoniques élevées. On peut prévoir une évolution des techniques pour atteindre une meilleure résolution spatiale. Une optique de collection et de grandissement, imageant l'objet déphasant sur un détecteur de forte résolution spatiale, permettrait d'observer des variations spatiales de la densité électronique sur des petites dimensions micrométriques. Ce type d'interféromètre imageur, de nouvelle génération, où la source fait partie intégrante de l'interféromètre, est actuellement en cours de réalisation. Il ne fait aucun doute qu'il trouvera des applications non seulement en diagnostic de plasmas mais également en physique des surfaces ou en caractérisation d'optiques aux longueurs d'onde de la métrologie UVX.

Pour finir, mentionnons un des domaines les plus explorés actuellement, qui est l'étude de la possibilité de générer des impulsions UVX attosecondes (as), à partir des harmoniques d'ordre élevé. Il a récemment été démontré que l'émission de plusieurs harmoniques consécutives peut former dans le domaine temporel un train d'impulsions ultra courtes (~250 attosecondes). La perspective de générer une impulsion attoseconde (par exemple en isolant une de ce train) est largement étudiée, théoriquement et expérimentalement, et fait l'objet d'un réseau européen regroupant une dizaine de laboratoires. Un problème crucial est évidemment celui de la mesure de la durée d'une telle impulsion. Comme on le voit, il reste encore plusieurs difficultés techniques à surmonter, mais le temps n'est peut être plus très loin où l'on pourra sonder les mouvements électroniques ultrarapides dans les atomes et les molécules à l'échelle attoseconde.

Références bibliographiques.

Agostini P., Fabre F., Mainfray G., Petite G. et Rahman N.K., Physical Review Letters **42**, 1127 (1979)

Albert F., Zeitoun Ph., Jaeglé P., Joyeux D., Boussoukaya M., Carillon A., Hubert S., Jamelot G., Klisnick A., Phalippou D., Ros D., Zeitoun-Fakiris A., Physical Review B **60**, 11 089 (1999)

Albert F., *Thèse de Doctorat*, Université Paris 11 (1998)

Aleksakhin I.S., Zapesochnyi I.P. et Suran V.V, JETP Letters **26**, 11 (1977)

Altucci C., Starczewski T., Mevel E., Wahlström C.G., Carré B. et L'Huillier A., Journal of the Optical Society of America B **13**,148 (1996)

Altucci C., Delfin C., Roos L., Gaarde M.B., L'Huillier A., Mercer I., Starczewski T. et Wahlström C.G., Physical Review A **58**, 3934 (1998)

Altucci C., Bruzzese R., de Lisio C., Nisoli M., Stagira S., De Silvestri S., Svelto O., Boscolo A., Ceccherini P., Poletto L., Tondello G. et Villorosi P., Physical Review A **61**, 021801 (1999)

Altucci C., Bruzzese R., D'Antuoni D., Di Lisio C. et Solimeno S., Journal of the Optical Society of America B **17**, 34 (2000)

Ammosov M. V. Delone M. B. et Krařnov V. P. Sovietic Physic-JETP **64**, 1191 (1986).

Antoine Ph., Piraux B. et Maquet A. Physical Review A **51**, R1750 (1995).

Antoine Ph., L'Huillier A. et Lewenstein M., Physical Review Letters **77**, 1234 (1996a)

Antoine Ph., L'Huillier A., Lewenstein M., Salières P. et Carré B., Physical Review A **53**, 1725 (1996b)

Antoine Ph., Carré B., L'Huillier A. et Lewenstein M., Physical Review A **55**, 1314 (1997a)

Antoine Ph., Milosevic D.B., L'Huillier A., M.B. Gaarde, Salières P. et Lewenstein M., Physical Review A **56**, 4960 (1997b)

Auguste T., Monot P., Lompré L.A., Mainfray G. et Manus C., Journal of Physics B, **25**, 4181 (1992)

Balcou Ph., Cornaggia Ch., Gomes A.S., Lompré L.A. et L'Huillier A., Journal of Physics B **25**,4467 (1992)

- Balcou Ph., *Thèse de Doctorat*, Université Paris 6, (1993)
- Balcou Ph., Salières P., L'Huillier A. et Lewenstein M., *Physical Review A* **55**, 3204 (1997)
- Bartels R., Backus S., Zeek E., Misoguti L., Vdovin G., Christov I.P., Murnane M.M. et Kapteyn H.C., *Nature* **406**, 164 (2000)
- Becker W., Lohr A., Kleber M. et Lewenstein M., *Physical Review* **56**, 645 (1997)
- Bethe H.A. et Salpeter E.E., *Quantum Mechanics of One and Two Electron Atoms*, Academic, New-York, (1957)
- Bellini M., Lyngå C., Tozzi A., Gaarde, M. B., Delfin C., Hänsch T.W., L' Huillier A. et Wahlström C.-G., *Physical Review Letters* **81**, 297 (1998)
- Berreman D.X., Bjorkholm J.E., Eichner L., Freeman R.R., Jewell T.E., Mansfield W.M., MacDowell A.A., O'Malley M.L., Raab E.L., Silfvast W.T., Szeto L.H., Tennant D.M., Waskiewicz W.K., White D.L., Windt D.L., Wood O.R. et Bruning J.H., *Optics Letters* **15**, 529 (1990)
- Born M. et Wolf E., *Principles of Optics*, 6^{ème} édition, Pergamon, Oxford (1980)
- Bouhal A., Breger P., Constantinescu R.C., Muller H.G., DiMauro L.F., Hamoniaux G., Mysyrowicz A. et Antonetti A., *Proceedings of the applications of high field and short wavelength sources VII* topical meeting, Santa Fe, 19 – 22 mars (1997)
- Boyd R.W., *Nonlinear Optics*, Academic Press Boston (1992)
- Brabec T. et Krausz F., *Reviews of Modern Physics*, **72**, 545 (2000)
- Brown C.M., Feldman U., Seely J.F., Richardson M.C., Chen H., Underwood J.H. et Zigler A., *Optics Communications* **68**, 190 (1988)
- Burnett N.H., Kan C. et Corkum P.B., *Physical Review A* **51**, R3418 (1995)
- Celliers P., Weber F., DaSilva L.B., Barbee T.W.Jr, Cauble R., Wan A.S. et Moreno J.C., *Optics Letters* **20**, 1907 (1995)
- Chang Z., Rundquist A., Wang H., Murnane M.M. et Kapteyn H.C., *Physical Review Letters* **79**, 2967 (1997)
- Chang Z., Rundquist A., Wang H., Christov I., Kapteyn H.C. et Murnane M.M., *Physical Review A* **58**, R30 (1998)
- Chauvineau J.P., Marioge J.P., Bridou F. et al., *Proceedings SPIE*, **733**, 306 (1986)
- Chériaux G., Rousseau P., Salin F., Chambaret J.P., Walker B. et DiMauro L.F., *Optics Letters* **21**, 414 (1996)
- Chin S.L., Liang Y., Augst S., Golovinski P.A., Beaudoin Y. et Chaker M., *Journal of Nonlinear Optics, Physics and Matter* **4**, 667 (1995)

- Christov I.P., Zhou J., Peatross J., Rundquist A., Murnane M.M. et Kapteyn H.C., *Physical Review Letters* **77**, 1743 (1996)
- Christov I.P., Bartels R., Kapteyn H.C. et Murnane M.M., *Physical Review Letters* **86**, 5458 (2001)
- Colombeau B., Dohnalik T. et Froehly C., *Acta Physica Polonica A* **78**, 85 (1990)
- Constant E., Garzella D., Breger P., Mével E., Dorrer Ch., Le Blanc C., Salin F., et Agostini P., *Physical Review Letters* **82**, 1668 (1999)
- Corkum P. B., *Physical Review Letters* **71**, 1994 (1993).
- Corkum P.B., Burnett N.H. et Ivanov M.Y., *Optics Letters* **17**, 1256 (1994)
- Corkum P.B., *Nature* **384**, 118 (1996)
- Daguzan P., *Thèse de Doctorat*, Université Paris 6, (1996)
- Dalgarno A. et Kingston A. E., *Proceedings - Royal Society of London A* **259**, 424 (1966)
- DaSilva L.B., Barbee T.W.Jr, Cauble R., Celliers P., Ciarlo D., Libby S., London R.A., Matthews D., Mrowka S., Moreno J.C., Ress D., Trebes J.E., Wan A.S. et Weber S., *Physical Review Letters* **74**, 3991 (1995)
- Delfin C. Altucci C., De Filippo F., de Lisio C., Gaarde M.B., L'Huillier A., Roos L. et Wahlström C.-G., *Journal of Physics B* **32**, 5397 (1999)
- Descamps D., Lyngå C., Norin J., L'Huillier A., Wahlström C.-G., Hergott J.-F., Merdji H., Salières P., Bellini M., et Hänsch T. W., *Optics Letters* **25**, 135-137 (2000)
- Descamps D., Roos L., Delfin C., L'Huillier A., et Wahlström C.-G., soumis à *Physical Review Letters* (2001)
- DiMauro L.F. et Agostini P., *Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics*, Academic Press, Inc., **35**, 79 (1995)
- Ditmire T., Crane J.K., Nguyen H., DaSilva L.B. et Perry M.D., *Physical Review A* **51**, R902 (1995)
- Ditmire T., Grumbell E.T., Smith R.A., Tisch J.W.G., Meyerhofer D.D. et Hutchinson M.H.R., *Physical Review Letters* **77**, 4756 (1996)
- Donnelly T., Ditmire T., Neumann K., Perry M.D. et Falcone R.W., *Physical Review Letters* **76**, 2472 (1997)
- Drescher M., Hentschel M., Kienberger R., Tempea G., Spielmann C., Reider G.A., Corkum P.B. et Krausz F., *Science* **291**, 1923 (2001)
- Durfee III C.G., Rundquist A.R., Backus S., Herne C., Murnane M.M. et Kapteyn H.C., *Physical Review Letters* **83**, 2187 (1999)

- Eichmann H., Meyer S., Riepl K., Momma C., et Wellegehausen B., *Physical Review A* **50**, R2834 (1994)
- Erko A.I., Aristov A.A. et Vidal B., *Diffraction X-ray Optics*, Institute of Physics Publishing Bristol and Philadelphia (1996)
- Ferray M., L'Huillier A., Li X.F., Lompré L.A., Mainfray G. et Manus C., *Journal of Physics B* **21**, L31 (1988)
- Gaarde M. B., Antoine Ph., Persson A., Carré B., L'Huillier A. et Wahlström C.-G, *Journal of Physics B.* **29**, L163 (1996)
- Gaarde M.B., Salin F., Constant E., Balcou Ph., Schafer K.J., Kulander K.C. et L'Huillier A., *Physical Review A* **59**, 1367 (1999)
- Geindre J.P., Audebert P., Rousse A., Fallières F. Gauthier J.C., Mysyrowicz A., Dos Santos A., Hamoniaux G. et Antonetti A., *Optics letters* **19**,1997 (1994)
- Geissler M., Tempea G., Scrinzi A., Schnürer M., Krausz F., et Brabec T., *Physical Review Letters* **83**, 2930 (1999)
- Georges P., Estable F., Salin F. Poizat J.P., Grangier P. et Brun A., *Optics Letters*, **16**, 144 (1991)
- Gisselbrecht M., Descamps D., Lyngå C., L'Huillier A., Wahlström C.G. et Meyer M., *Physical Review Letters* **82**, 4607 (1999)
- Glover T.E., Schoenlein R.W., Chin A.H. et Shank C.V., *Physical Review Letters* **76**, 2468 (1996)
- Grochmalicki J., Kuklinski J.R. et Lewenstein M., *Journal of Physics B* **19**, 3649 (1986)
- Guizard S., Martin P., Petite G., D'Oliveira et Meynadier P., *Journal of Physics C* **8**, 1281 (1996)
- Gullikson E.M., Denham P., Mrowka S., Underwood J.H., *Physical Review. B* **49**, 16283 (1994)
- Haight R. et Peale D.R., *Physical Review Letters* **70**, 3979 (1993)
- Hecht E., *Optics*, 2ème édition Addison-Wesley World Student Series (1987).
- Hergott J.-F., Salières P., Merdji H., LeDéroff L., Carré B., Auguste T., Monot P., d'Oliveira P., Descamps D., Lyngå C., Norin J., L'Huillier A., Wahlström C.G., Bellini M. et Hänsch T.W., accepté pour publication dans *Laser and Particle Beams* **19**, (2000)
- Hergott J.-F., Salières P., Carré B., Merdji H., Agostini P., Breger P., Garzella D. et Constant E., en préparation (2001a)

- Hergott J.-F., Merdji H., Salières P., Hubert C., Mairesse Y., Troussel P., de Lachèze-Murel G. et Carré B., en préparation (2001b)
- Henke B. L., Gullikson E. M. et Davis J. C., *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **54**, 2 (1993)
- Hubert S., *Thèse de Doctorat*, Université Paris 11 (2001)
- Hueller S. Centre de Physique Théorique, Ecole Polytechnique, France, Communications privées (1999)
- Hulin S., *Thèse de Doctorat*, Université Paris 11 (2000)
- Idir M., *Thèse de Doctorat*, Université Paris 6 (1994)
- Ivanov M.Yu. et Rzazewski K., *Journal of Modern Physics*, 39, 2377 (1992)
- Joyeux D., Polack F., Phalippou D., *Review of Scientific Instruments* **70**, 2921 (1999)
- Keldysh L.V., *Sovietic Physic JETP* **20**, 1307 (1965)
- Klisnick A., Kuba J., Ros D., Smith R., Fourcade P., Jamelot G., Miquel J.-L., Wyart J.-F., Chenais-Popovics C., Keenan R., Topping S. J., Lewis C.L.S., Strati F., Tallents G. J., Neely D., Clarke R., Collier J., MacPhee A. G., Bortolotto F., Nickles P. et Janulewicz K. A., *Journal de Physique IV France* **11**, 2 (2001a)
- Klisnick A., Kuba J., Ros D., Smith R., Jamelot G., Chenais-Popovics C., Keenan R., Topping S., Lewis C.L.S., Strati F., Tallents G.J., Neely D., Clarke R., Collier J., MacPhee A.G., Bortolotto F., Janulewicz K.A. et Nickles P.V., soumis à *Physical Review A* (2001b)
- Kobayashi Y., Sekikawa T., Nabekawa Y. et Watanabe S., *Optics Letters* **23**, 64 (1998)
- Kondo K., Sarukura N., Sajiki K. et Watanabe S., *Physical Review A* **47**, R2480 (1993)
- Krause J.L., Schafer K.J. et Kulander K.C., *Physical Review Letters* **68**, 3535 (1992)
- Krausz F., Brabec T., Schnürer M. et Spielmann C., *Opt. Photon. News* **9**, 46 (1998)
- Kulander K.C., Schafer K.J. et Krause J.L., *Super-Intense Laser-atom Physics*, ed. B (1993).
- Larsson J., Mevel E., Zerne R., L'Huillier A., Wahlström C.-G. Svanberg S., *Journal of Physics B* **28**, L53 (1995)
- Le Blanc S.P., Sauerbrey R., Rae S.C. et Burnett K., *Journal of the Optical Society of America B* **10**, 1801 (1993)
- LeDéroff L., Salières P. et Carré B., *Optics Letters* **23**, 1544 (1998)
- LeDéroff L., Salières P., Carré B., Joyeux D. et Phalippou D., *Physical Review A* **61**, 043802 (2000a)
- LeDéroff L., *Thèse de Doctorat*, Université Paris 6 (1999)

- Le Déroff L., Salières P., Carré B., Joyeux D., Phalippou D., Monot P., D'Oliveira P., Auguste T., Merdji H. et Hergott J.-F., *Laser Physics* **10**, 294 (2000b)
- L'Huillier A., Li X.F. et Lompré L.A., *Journal of the Optical Society of America B* **7**, 527 (1990)
- L'Huillier A., Balcou Ph., Candel S., Schafer K.J. et Kulander K.C., *Physical Review A* **46**, 2778 (1992)
- L'Huillier A. et Balcou Ph., *Physical Review Letters* **70**, 774 (1993)
- Le Pape S. *et al.* Soumis à *Physical Review Letters* (2001a)
- Le Pape S., Hergott J.-F., Zeitoun Ph., Merdji H., Carré B., Cauchon G, Dhez P., Hambach D., Hubert C., Idir M., Niemann B., Salières P., en préparation (2001b)
- Lewenstein M., Balcou Ph., Ivanov M.Y., L'Huillier A. et Corkum P.B., *Physical Review A* **49**, 2117 (1994)
- Lewenstein M, Salières P. et L'Huillier A., *Physical Review A* **52**, 4747 (1995)
- von der Linde D., Engers T., Jenke G., Agostini P., Grillon G., Nibbering E., Mysyrowicz A. et Antonetti A., *Physical Review A* **52**, R25 (1995)
- Lu P., Fill E., Li Y., Marhun J. et Pretzier G., *Physical Review A* **58**, 628 (1998)
- Lyngå C., L' Huillier A. et Wahlström C.-G., *Journal of Physics B* **29**, 3293 (1996)
- Lyngå C., Gaarde, M. B., Delfin C., Bellini M., Hänsch T.W., L' Huillier A. et Wahlström C.-G., *Physical Review A* **60**, 4823 (1999)
- Macklin J.J., Kmetec J.D. et Gordon III C.L., *Physical Review Letters* **70**, 766 (1993)
- Marcatali E. A. J. et Schmelzter R. A., *Bell System Technical Journal*, 1783, (1964)
- Marconi M.C., Chilla J.L.A., Moreno C.H., Benware B.R. et Rocca J.J., *Physical Review Letters* **79**, 2799 (1997)
- McPherson A., Gibson G., Jara H., Johann U., Luk T.S., McIntyre I., Boyer K. et Rhodes C.K., *Journal of the Optical Society of America A* **4**,595 (1987)
- Merdji Hamed, *Thèse de doctorat*, Ecole Polytechnique (1998)
- Michette A.G. et Buckley C.J., *X-Ray Science and Technology*, Institute of Physics Publishing Bristol and Philadelphia (1993)
- Nisoli M., De Silvestri S. et Svelto O., *Applied Physics Letters*, **68**, 2793 (1996)
- Papadogiannis N.A., Witzel B., Kalpouzou C. et Charalambidis D., *Physical Review Letters* **83**, 4289 (1999)

- Paul P.M., Toma E.S., Breger P., Mullot G., Augé F., Balcou Ph., Muller H.G. et Agostini P, *Science* **292**, 1689 (2001)
- Paulus G.G., Becker W. et Walther H., *Physical Review A* **20**, 4043 (1995)
- Piasecki J., Colombe B., Vampouille M., Froehly C. et Arnaud J.A., *Applied Optics* **19**, 3749 (1980)
- Peatross J., Chaloupka J.L. et Meyerhofer D.D., *Optics Letters* **19**, 942 (1994)
- Perry M.D. et Mourou G., *Science* **264**, 917 (1994)
- Polack F., Joyeux D., Svatos J., Phalippou D., *Review of Scientific Instruments* **66**, 2180 (1995)
- Poletto L. Boscolo A. et Tondello G., *Applied Optics* **38**, 29 (1999)
- Preston S.G., Sanpera A., Zepf M., Blyth W.J., Smith C.G., Wark J.S., Key M.H., Burnett K., Nakai M., Neely D. et Offenberger A.A., *Physical Review A* **53**, R31 (1996)
- Priori E., Cerullo G., Nisoli M., Stagira S., De Silvestri S., Villoresi P., Poletto L., Ceccherini P., Altucci C., Bruzzese R. et de Lisio C., *Physical Review A* **61**, 063801 (2000)
- Pukhov A. et Meyer-ter-Vehn, *Physical Review Letters* **76**, 3975 (1996)
- Quéré F., *Thèse de Doctorat*, Université Paris 6 (2000)
- Quéré F., Guizard S., Petite G., Martin Ph., Merdji H., Carré B. et Hergott J.-F, *Physical Review B* **61**, 15 (2000)
- Raab E.L., Tennant D.M., Waskiewicz W.K., MacDowell A.A. et Freeman R.R., *Journal of the Optical Society of America A* **8**,1614 (1991)
- Rae S. C., Burnett K. et Cooper J., *Physical Review A* **50**, 3438 (1994)
- Ramis R., Schmalz R. et Meyer-Ter-Vehn J., *Computer Physics Communication* **49**, 475 (1988)
- Reverdin C., Troussel Ph., LeGuern F., Bourgade J.L., Schirmann D., Dalmasso J.L., Gontier D. et Lidove G., *Laser and Particle Beams* **12**, 573 (1994)
- Reynaud F., Salin F. et Barthelemy A., *Optics Letters* **14**, 275 (1989)
- Roos L., Constant E., Mével E., Balcou Ph., Descamps D., Gaarde M.B., Valette A., Haroutunian R., et L'Huillier A., *Physical Review A* **60**, 5010 (1999)
- Rocca J.J., Moreno C.H., Marcono M.C., Kanizay K., *Optics Letters* **24**, 420 (1999)
- Rundquist A., Durfee C.G., Chang Z., Herne C., Backus S., Murnane M.M. et Kapteyn H.C., *Science* **280**,1412 (1998)
- Rus B., *Thèse de Doctorat*, Université Paris 11 (1995)

- Rus B., Carillon A., Dhez P., Jaeglé P., Jamelot G., Klisnick A., Nantel M., et Zeitoun P. *Physical Review A* **55**, 3858 (1997)
- Salières P., Ditmire T., Budil K.S., Perry M.D. et L'Huillier A., *Journal of Physics B* **27**, L217 (1994)
- Salières P. *Thèse de Doctorat*, Université Paris 6 (1995a)
- Salières P., L'Huillier A. et Lewenstein M., *Physical Review Letters* **74**, 3776 (1995b)
- Salières P., Antoine Ph., DeBohan A. et Lewenstein M., *Physical Review Letters* **81**, 5544 (1998)
- Salières P., L'Huillier A., Antoine Ph. et Lewenstein M., *Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics*, Academic Press, Inc., **41**, 84 (1999a)
- Salières P., LeDéroff L., Auguste T., Monot P., d'Oliveira P., Campo D., Hergott J.-F., Merdji H. et Carré B., *Physical Review Letters* **83**, 5483-5486 (1999b)
- Salières P., Carré B., LeDéroff L., Grasbon F., Paulus G.G., Walther H., Kopold R., Becker W., Milosÿevic D.B., Sanpera A. et Lewenstein M., *Science* **292**,902 (2001)
- Schafer K.J. et Kulander K.C., *Physical Review Letters*, **78**, 638 (1997)
- Schins J.M., Breger P., Constantinescu R.C., Muller H.G., Bouhal A., Grillon G., Mysyrowicz A. et Antonetti A., *Journal of the Optical Society America B* **13**, 197 (1996)
- Schnürer M., Cheng Z., Hentschel M., Tempea G., Kálmán P., Brabec T. et Krausz F., *Physical Review Letters*, **83**, 722 (1999)
- Schnürer M., Cheng Z., Hentschel M., Krausz F., Wilhein T., Hambach D., Schmahl G., Drescher M., Lim Y. et Heinzmann U., *Applied Physics B*, **70**, 227 (2000)
- Siders C.W., LeBlanc S.P., Babine A., Stepanov A., Sergeev A., Tajima T. et Downer M.C., *IEEE Transactions on Plasma Science* **24**, 301 (1996)
- Siegman A.E., *SPIE* **2**, 1224 (1990)
- Smith D.Y., Shiles E. et Inokuti M., *Handbook of Optical Constants of Solids*, Academic, San Diego, 369 (1985)
- Sorensen S.L., Bjorneholm O., Hjelte I., Kihlgren T., Ohrwall G., Sundin S., Svensson S., Buil S., Descamps D. et L'Huillier A., *Journal of Chemical Physics* **112**, 8038 (2000)
- Spielmann Ch., Burnett N.H., Sartania S., Koppitsch R., Schnürer M., Kan C., Lenzner M., Wobrauschek P. et F. Krausz, *Science* **278**, 661 (1997)
- Stratton J. A. *Electromagnetic theory*, McGraw –Hill Book Co., New-York and London, (1941)
- Stickland D. et Mourou G., *Optics Communications* **62**, 419 (1985).

- Sutherland R.L., *Handbook of Nonlinear Optics*, Marcel Dekker, INC. (1996)
- Svatos J., Joyeux D., Phalippou D., Polack F., *Optics Letters* **18**, 1367 (1993)
- Takahashi K., Kodama R., Tanaka K.A., Hashimoto H., Kato Y., Mima K., Weber F.A., Barbee T.W. Jr. et Da Silva L.B., *Physical Review Letters* **84**, 2405 (2000)
- Tamaki Y., Itatani J., Obara M. et Midorikawa K., *Physical Review Letters* **82**, 1422 (1999)
- Tempea G. et Brabec T., *Applied Physics B*, **70** [Suppl.], 197 (2000)
- Theobald W., Häßner R., Wülker C. et Sauerbrey R., *Physical Review Letters* **77**, 298 (1996)
- Theobald W., Häßner R., Kingham R., Sauerbrey R., Fehr R., Gericke D.O., Schlanges M., Kraeft W.-D., Ishikawa K., *Physical Review E* **59**, 3544 (1999)
- Thompson A.C., Wu Y. et Underwood J.H., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **255**, 603 (1987)
- Tokunaga E., Terasaki A. et Kobayashi T., *Optics Letters* **17**, 1131 (1992)
- Toma E.S., Muller H.G., Paul P.M., Breger P., Cheret M., Agostini P., Le Blanc C., Mullet G. et Cheriaux G., *Physical Review A* **62**, 061801 (2000)
- Trail J.A. et Byer R.L., *Optics Letters* **14**, 539 (1989)
- Trebes J.E., Nugent K.A., Mrowka S., London R.A., Barbee T.W., Carter M.R., Koch J.A., MacGowan B.J., Matthews D.L., DaSilva L.B., Stone G.F. et Feit M.D., *Physical Review Letters* **68**, 588 (1992)
- Tropf W.J. et Thomas M.E., *Handbook of Optical Constants of Solids III*, Academic, San Diego, 761 (1998)
- Troussel Ph., *Annales de Physique* **19**, C1-147 (1994)
- Van Woerkom L.D., Evans S., Hansch P. et Walker M.A., *Proceedings of the applications of high field and short wavelength sources VII* topical meeting, Santa Fe, 19 – 22 mars (1997)
- Wahlström C.G., Larsson J., Persson A., Starczewski T., Svanberg S., Salières P., Balcou Ph. et L'Huillier A., *Physical Review A* **48**, 4709 (1993)
- Wan A.S., Barbee T.W., Cauble R., Celliers P., Da Silva L.B., Moreno J.C., Rambo P.W., Stone G.F., Trebes J.E., Weber F., *Physical Review A* **55**, 6293 (1997)
- Watanabe S., Kondo K., Nabekawa Y., Sagisaka A. et Kobayashi T., *Physical Review Letters*, **73**, 2692 (1994)
- Yablonovitch E., *Physical Review Letters* **60**, 795 (1988)
- Yamanaka C., Miyanaga N., Imasaki K., Kitagawa Y., Kato Y., Nakatsuka M., Mochizuki T. et Yamanaka T., *Proceedings SPIE* **348**, 783 (1982)

Zeitoun Ph., Albert F., Jaeglé P., Joyeux D., Boussoukaya M., Carillon A., Hubert S., Jamelot G., Klisnick A., Phalippou D., Lagron J.C., Ros D., Sebban S., Zeitoun-Fakiris A., Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **416**, 190 (1998)

Zerne R., Altucci C., Bellini M., Gaarde M.B., Hänsch T.W., L'Huillier A., Lyngå C. et Wahlström C.-G., Physical Review Letters, **79**, 1006 (1997)

Zeek E. et al. Optics Letters **25**, 587 (2000)

Zhou J., Peatross J., Murnane M.M. et Kapteyn H.C. Physical Review Letters **76**, 752 (1996)