



HAL
open science

Modélisation de la Physique Atomique et du Transfert Radiatif pour le laser X-UV

Bruno Robillart

► **To cite this version:**

Bruno Robillart. Modélisation de la Physique Atomique et du Transfert Radiatif pour le laser X-UV. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2010. Français. NNT : . tel-00576536

HAL Id: tel-00576536

<https://theses.hal.science/tel-00576536>

Submitted on 14 Mar 2011

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.

THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE PARIS-SUD XI

Spécialité : Science Physique
Ecole doctorale : Rayonnement & Environnement

Présentée par

Bruno Robillart

Pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université Paris-Sud

Modélisation de la physique atomique et du transfert radiatif pour le laser X-UV

Soutenue le 29 octobre 2010 devant le jury composé de :

M. Jacques Dubau	Président du jury
Mme Sylvie Jacquemot	Rapporteuse
M. Pascal Monot	Rapporteur
M. Stéphane Sebban	Examineur
M. Gilles Maynard	Directeur de thèse

Remerciements

Cette thèse effectuée au sein de l'équipe ITFIP du LPGP a été une aventure très enrichissante. J'ai pu rencontrer de nombreuses personnes qui m'ont toutes apporté aussi bien d'un point de vue scientifique qu'humain.

Je tiens à remercier en premier Gilles Maynard mon directeur de thèse, qui m'a encadré sur un sujet complexe impliquant de nombreux domaines de la physique (ce qui fait d'ailleurs son attrait). Il a su m'amener vers les objectifs fixés, avec le grand recul qu'il a sur les problèmes de physique traités. Il a également fait preuve de patience, me laissant beaucoup d'autonomie, et en se rendant toujours disponible malgré sa fonction de directeur du laboratoire.

Je tiens également à remercier l'ensemble des membres du jury pour leur contribution sur la finalisation de cette thèse. Merci tout d'abord à mes rapporteurs, pour avoir accepté la lourde tâche de lire ce manuscrit, mais aussi pour avoir apporté leur vision d'expert dans le domaine des lasers : Sylvie Jacquemot, qui m'a apporté un avis éclairé sur mon travail et des conseils judicieux pour la finalisation du mémoire ; et Pascal Monot, avec qui j'ai eu la chance de m'entretenir, qui a étudié mon mémoire dans les moindres détails, et dont les questions soulevées ont toutes été sources de réflexion.

Je pense ensuite à Jacques Dubau de l'IAS, que je remercie d'avoir accepté sans réserve d'être président de mon jury, et avec qui j'ai travaillé sur la partie Physique Atomique de ce sujet. Jacques ne s'est pas seulement impliqué dans un esprit de collaboration, mais aussi avec la volonté de transmettre des connaissances. Il a ainsi dispensé, de façon purement bénévole, de nombreux cours de physique atomique à moi, ainsi qu'à d'autres membres du LPGP. Ce fut toujours un plaisir de travailler et de discuter avec lui. Au cours de la thèse, j'ai aussi pu interagir avec une équipe expérimentale du LOA, FLEX, disposant des installations pour produire le laser X-UV. En particulier, j'ai eu la chance de travailler avec Stéphane Sebban, qui a accepté de faire partie intégrante de mon jury et je l'en remercie, et son doctorant Jean-Philippe Goddet. Nos entrevues ont toujours été des plus conviviales.

Je pense également à Brigitte Cros et Kévin Cassou, membres de l'équipe ITFIP dans laquelle je faisais partie, qui ont également contribué aux expériences de laser X-UV au LOA, et avec qui j'ai travaillé. Merci notamment à Brigitte pour tous les conseils utiles qu'elle a pu me donner au cours de cette thèse. Aussi, je souhaite bonne continuation à Amar Boudaa, qui a effectué à la même période une thèse également sur le laser X-UV, une grande partie du temps ici au LPGP.

Je n'oublie pas le service administratif et de gestion du laboratoire : Thierry Devillers, Nicolas Dessaint, Marie-Claude Richard et Sophie Granon qui ont toujours été disponibles et réactifs quelque soient les circonstances. Merci aussi à Michel Pascanu et Marc Bisson du service informatique pour leur aide efficace lorsque j'en avais urgemment besoin.

Au LPGP, j'ai côtoyé des gens tous aussi sympathiques les uns que les autres, et qui ont transformé mes années de thèse en souvenirs mémorables. Je pense tout d'abord à Franck Wojda, qui a été mon collègue de bureau la plus grande partie du temps, et avec qui je garde de très bons souvenirs . Mais je pense aussi à Sophie Granon, Lise Caillaud et Katell Gadonna ; Ismaël Guesmi et Nicolas Moreau qui je l'espère soutiendront très bientôt, mais encore Olivier Antonin, Franck Duré, Romain Popoff, Catalin Vitelaru, José Gregorio, Sabrina Bentaleb, Virginie Martin, Wilfrid Faider, et j'en oublie... tous ces gens avec qui j'ai partagé les pauses, les soirées jeux, mais aussi de mémorables parties de tennis et de foot, ça a été un plaisir de vous côtoyer !

Je n'oublie pas non plus les chercheurs et enseignants comme Anne-Marie Pointu, Caroline Boisse-Laporte, Jean Bretagne, ou encore Tiberiu Minea, présents lors des pauses café et déjeuner, qui ont contribué à la bonne ambiance du laboratoire, et qui m'ont souvent conseillé ou rendu service au cours de cette thèse.

Une pensée pour Andrian Lenglet, ancien collègue doctorant qui, malheureusement, n'est plus des nôtres. Nous te regrettons.

A mes amis, qui ont aussi contribué à cette thèse d'une autre manière. Je pense en particulier à Laurent et Meriem, qui m'ont beaucoup aidé à surmonter les difficultés que j'ai traversées à la fin de la thèse. Je n'oublierai pas ce que vous avez fait pour moi.

Enfin une dernière pensée, et non des moindres, à toute ma famille, qui a toujours été derrière moi et qui m'a permis de garder le moral, malgré la distance.

Résumé

Les sources X-UV sont l'objet d'un développement important depuis une dizaine d'années. Dans cette gamme spectrale, nous sommes maintenant capables de produire des sources cohérentes, collimatées et de forte brillance. De telles sources ont des applications dans l'imagerie médicale, la photolithographie, ou encore le diagnostic de plasmas denses...

Cette thèse a été consacrée à la modélisation du laser X-UV "OFI", source X-UV étudiée au LOA (ENSTA, Palaiseau). Ce type de laser X-UV est généré suite à l'ionisation d'un gaz (Kr, Xe) par un laser infrarouge de forte puissance. Le plasma créé par cette interaction constitue la source X-UV.

Le travail produit au cours de la thèse a porté sur l'amplification d'un signal X-UV injecté dans ce plasma. L'objectif était d'obtenir une analyse plus détaillée du profil spatio-temporel du signal. Un nouveau code numérique 3D a alors été élaboré. Il utilise un modèle de transfert radiatif décrit par les équations de Maxwell-Bloch.

Les résultats du code ont d'une part montré que le profil temporel du signal X-UV changeait considérablement au cours de l'amplification. Notamment il peut, à forte saturation, révéler des pics d'intensité de très courte durée ($<100\text{fs}$). La forte saturation ne pouvant être obtenue qu'avec un plasma de plusieurs centimètres de long, ceci nous amène à considérer avec intérêt les expériences utilisant le guidage du laser infrarouge, permettant la création de tels plasmas. D'autre part, l'analyse de la structure du profil transverse du signal X-UV en sortie calculé à partir de ce même code, nous a permis de mettre en évidence que le plasma amplificateur agissait comme un filtre spatial sur l'impulsion X-UV injectée.

Abstract

The X-UV laser sources have been experiencing important development for about ten years. In this spectral range, we are now able to produce highly coherent and intense collimated sources which could have applications in medical imaging, photolithography, or for the diagnostic of dense plasmas...

This thesis was dedicated to the modeling of the “OFI” X-UV laser, studied in the LOA (ENSTA, Palaiseau). This type of X-ray laser is generated following the ionization of a gas (Kr, Xe) by a high power infrared laser. The plasma generated by this interaction constitutes the X-UV source.

The work produced during the thesis was about the amplification of an X-UV radiation injected in the plasma. Its purpose was to provide a more detailed analysis of spatio-temporal profile of the signal. Hence a new 3D numeric code has been developed. It uses a radiative transfer model including the Maxwell-Bloch equations.

On the first hand, the results show that the temporal profile of the X-UV signal changes significantly during the amplification. For example, it can reveal very short intensity peaks ($<100\text{fs}$) at high saturation. As the latter can only be obtained with a plasma of several centimeters long, the experimental scheme using the guiding of the infrared laser has to be considered because it leads to the creation of such plasmas. On the other hand, the analysis of the transverse profile of the X-UV signal at the exit of the plasma demonstrated that the plasma amplifier acts as spatial filter of the injected X-UV laser pulse.

Table des matières

INTRODUCTION	13
I.1 PRÉSENTATION DES DIFFÉRENTS TYPES DE SOURCES X-UV COHÉRENTES	13
I.1.1 La génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG)	13
I.1.2 Le laser à électrons libres	16
I.1.3 Les lasers X-UV	17
I.2 APPLICATIONS DU LASER X-UV	24
I.3 OBJECTIFS DE THÈSE ET TRAVAIL RÉALISÉ	25
I.4 ORGANISATION DES CHAPITRES	26
Chapitre 1: INTERACTION DU LASER DE POMPE AVEC LE GAZ CIBLE	29
1.1 IONISATION PAR CHAMP	29
1.1.1 Ionisation multiphoton (MPI)	30
1.1.2 Ionisation par effet tunnel (TI)	34
1.1.3 Ionisation au-dessus de la barrière (ABI)	36
1.1.4 Paramètre de Keldysh	39
1.2 APPLICATION AU CAS DU LASER X-UV	40
1.2.1 Modèle d'ionisation utilisé	41
1.2.2 Résultats	42
1.3 CHAUFFAGE DU PLASMA PAR LE LASER DE POMPE	45
1.3.1 Chauffage des électrons	46
1.3.2 Résultat OFI-0D	49
1.3.3 Chauffage des ions	52
1.4 CONCLUSION	56
Chapitre 2: PHYSIQUE ATOMIQUE DE L'ION LASANT	57
2.1 ETUDE DE LA STRUCTURE ATOMIQUE (SUPERSTRUCTURE)	58
2.1.1 Introduction	58
2.1.2 Le potentiel central	60
2.1.3 Fonction d'onde électronique dans un potentiel central	61
2.1.4 Ajout d'un opérateur en perturbation	64
2.1.5 Diagonalisation de l'hamiltonien	66
2.1.6 Autres calculs de données faits par SUPERSTRUCTURE	68

2.2	COLLISION ÉLECTRON-ION	69
2.2.1	Interaction électron-ion	69
2.2.2	Fonction d'onde du système à $N + 1$ électrons	72
2.2.3	Matrices de Diffusion et de Transition	73
2.2.4	Transitions entre niveaux de structure-fine	74
2.3	RÉSULTATS DE MODÉLISATION	75
2.3.1	Principaux niveaux atomiques	75
2.3.2	Raie laser et conditions de lasage	76
2.3.3	Autres transitions radiatives	77
2.3.4	Schéma laser des ions KrIX et XeIX	77
2.4	CONCLUSION	78
2.5	ANNEXE	79
Chapitre 3: CINÉTIQUE DU PLASMA CRÉÉ PAR OFI		81
3.1	INTRODUCTION	81
3.1.1	Evolution du degré d'ionisation et de la température électronique après OFI	82
3.1.2	Evolution de la température ionique après OFI	84
3.2	MODÈLES DE CINÉTIQUE OD	87
3.2.1	Cinétique des populations atomiques	87
3.2.2	Cinétique des électrons	92
3.3	RÉSULTATS DU CODE OFI-OD	94
3.3.1	Description du code	94
3.3.2	Evolution du degré d'ionisation et de la température électronique	95
3.3.3	Evolution de la FDE des électrons	97
3.3.4	Evolution des populations atomiques de l'ion lasant	98
3.3.5	Validité du modèle 0D	110
3.4	CONCLUSION	114
Chapitre 4: TRANSFERT RADIATIF ET AMPLIFICATION DU LASER X-UV		115
4.1	PRINCIPE	116
4.1.1	Injection des harmoniques dans le milieu amplificateur	116
4.1.2	Etude de l'amplification du laser X-UV	116
4.2	PROPAGATION D'UN CHAMP ÉLECTROMAGNÉTIQUE DANS UN PLASMA CRÉÉ PAR OFI	117
4.2.1	Equations de Maxwell générales	117
4.2.2	Polarisation \vec{P} et magnétisation \vec{M} du milieu	118
4.2.3	Densité de charges ρ et de courant \vec{j}	118
4.2.4	Equation de propagation du champ électrique dans un plasma créé par OFI	119
4.2.5	Susceptibilité diélectrique et relation de dispersion	120

4.3	POLARISATION DU MILIEU D'IONS LASANTS INDUITE PAR UN CHAMP ÉLECTRIQUE RÉSONANT	121
4.3.1	Etude d'un dipôle électrique dans un champ électrique variable	121
4.3.2	Etude de la polarisation macroscopique	123
4.3.3	Approche quantique de la polarisation	126
4.3.4	Réponse en fréquence de la polarisation	131
4.4	CINÉTIQUE DES POPULATIONS ATOMIQUES EN PRÉSENCE D'UN CHAMP X-UV RÉSONANT	134
4.4.1	Modèle à 2 niveaux	134
4.4.2	Equations de l'inversion de population sans champ	136
4.4.3	Equation de l'inversion de population avec champ	137
4.5	EQUATIONS DE MAXWELL-BLOCH	140
4.5.1	Equations générales	140
4.5.2	Cas particulier de l'impulsion HHG	140
4.5.3	Equations de Maxwell-Bloch finales	142
4.5.4	Emission spontanée	144
4.6	CONCLUSION	145
4.7	ANNEXE : APPROXIMATION ADIABATIQUE	146
Chapitre 5: PROPAGATION DU LASER INFRAROUGE DANS LE GAZ CIBLE (OFI-PROP)		149
5.1	DESCRIPTION DU MODÈLE PHYSIQUE	149
5.1.1	Approximations	149
5.1.2	Equation de propagation	150
5.1.3	Conditions aux bords	151
5.2	RÉSULTATS DU CODE OFI-PROP	153
5.2.1	Propagation dans une cellule	155
5.2.2	Résultats OFI-Prop dans une cellule	156
5.3	PROPAGATION DANS UN TUBE CAPILLAIRE	166
5.3.1	Etude analytique	167
5.3.2	Résultats OFI-Prop dans un capillaire	170
5.4	CONCLUSION	173
5.5	ANNEXE : RÉOLUTION NUMÉRIQUE	173
Chapitre 6: RÉSULTATS DU CODE COFIXE_ MB		177
6.1	PRINCIPE DE LA MODÉLISATION	178
6.1.1	Cadre du modèle	178
6.1.2	Equations utilisées et grandeurs physiques calculées	179
6.1.3	Description du milieu amplificateur	179
6.1.4	Description de l'impulsion HHG	180

6.2	ANALYSE 1D	181
6.2.1	Valeur des paramètres de simulation	182
6.2.2	Etude de l'évolution des variables au cours de la propagation	183
6.2.3	Influence des temps de relaxation sur l'amplification	200
6.2.4	Influence des paramètres expérimentaux sur l'amplification	203
6.2.5	Analyses 2D et 3D	212
6.3	CONCLUSION	221
	CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES	223
	ANNEXE : MODES DE PROPAGATION DANS LE VIDE	227
A.1	MODE GAUSSIEN	227
A.2	MODES HERMITE-GAUSS	230
A.3	MODES LAGUERRE-GAUSS	231
A.3.1	Symétrie cylindrique	231
A.3.2	Cas général	232
	RÉFÉRENCES	233

Introduction

Cette thèse a été consacrée à la modélisation de la physique atomique et du transfert radiatif pour le laser X-UV. L'étude était portée sur un type de source X-UV en particulier, le laser X-UV généré en mode injecté dans un plasma créé par OFI.

Dans cette introduction, je vais tout d'abord définir le contexte de ce travail, en faisant un état de l'art des principales sources X-UV cohérentes étudiées jusqu'à l'heure actuelle. Puis, je ferai part dans un deuxième point des enjeux qui ont guidé le déroulement de la thèse et du travail qui a été réalisé au cours de celle-ci. Enfin, je présenterai le contenu de ce manuscrit qui est décliné en 6 chapitres.

I.1 Présentation des différents types de sources X-UV cohérentes

La gamme de rayonnement X-UV est une gamme spectrale se trouvant entre 3 et 60nm. Le laser X-UV OFI, qui fait l'objet d'une étude dans cette thèse, n'est qu'un parmi plusieurs procédés qui permettent, à l'heure actuelle, de créer une source de rayonnement X-UV cohérent.

I.1.1 La génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG)

Les sources HHG se sont beaucoup développées ces dernières années. Elles sont produites par l'interaction d'un faisceau IR intense sur une cible solide ou gazeuse. Elles génèrent des faisceaux X-UV possédant de bonnes qualités optiques : cohérent spatialement, avec un bon front d'onde, et un champ polarisé. Leur principal avantage est de ne nécessiter qu'une énergie relativement modérée du laser de pompe (quelques mJ), une intensité relativement basse ($< 10^{15}W/cm^2$) et de pouvoir fonctionner à haute fréquence. Certaines expériences ont même atteint la gamme spectrale de la fenêtre de l'eau (2,2nm-4,4nm) [95].

I.1.1.1 Sur cible gazeuse

La théorie sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé (ou HHG, *High Harmonic Génération*) sur cible gazeuse a été développée par L'Huillier [63]. Le principe de l'émission repose sur l'interaction d'un champ fort avec les atomes du gaz. Il est lié à des effets non linéaires. Il peut se comprendre dans un modèle semi-classique comportant 3 étapes : l'électron est tout d'abord ionisé par effet tunnel par un champ E.M. infrarouge fort (laser), puis dans une deuxième étape, va être accéléré dans ce champ infrarouge en tant que particule libre.

Introduction

La polarisation du champ laser est choisie linéaire. En conséquence, sur une oscillation du champ, l'électron va pouvoir faire demi-tour pour retourner vers son ion parent et interagir avec lui. La troisième étape du processus est la recombinaison de l'électron avec son ion parent.

Ceci est une représentation spatiale de la génération d'harmoniques, dans une représentation énergétique on peut considérer qu'au cours de ces 3 étapes, l'électron va absorber un certain nombre de photons Infrarouge (d'énergie $h\nu$). Lorsqu'il se recombine avec son ion parent, il va réémettre cette énergie absorbé sous la forme d'un seul photon d'énergie $N \times h\nu$ (figure I.1).

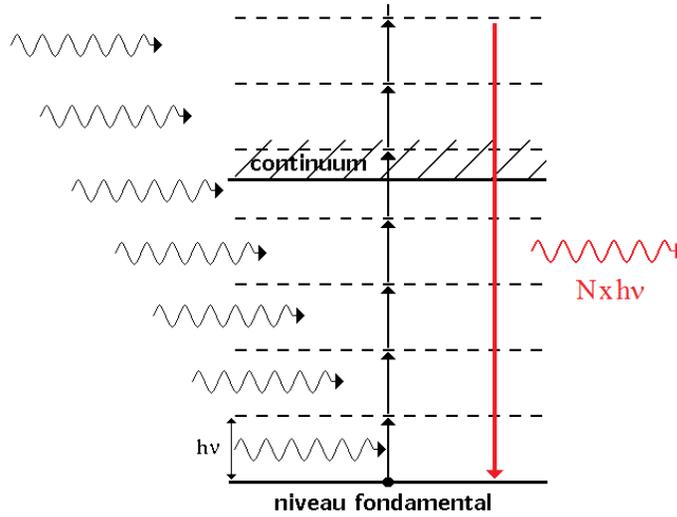


Figure I.1: Schéma décrivant les processus atomiques responsables de la génération d'harmoniques

Le rayonnement harmonique généré a deux caractéristiques importantes : d'une part, il est constitué d'un large peigne de pics d'intensité, conférant au spectre la forme de la figure I.2, et dont la fréquence centrale de chaque pic est un multiple impair de la fréquence du laser de pompe. Ce peigne peut contenir un très grand nombre d'harmoniques. L'énergie de coupure à haute fréquence est donnée par l'énergie maximale d'oscillation dans le champ IR additionnée de l'énergie d'ionisation de l'atome parent.

La deuxième caractéristique très importante est que le signal X-UV a une relation de phase avec le laser de pompe IR. En effet l'ionisation se fait préférentiellement lorsque le champ est maximal, c'est à dire pour une certaine valeur de la phase IR, et la durée du trajet avant que l'électron ne se recombine, est fixé par cette phase. On montre par exemple qu'il y a principalement deux types possibles de trajectoires : un chemin court et un chemin long [62]. La relation de phase entre les signaux X-UV et IR, permet d'optimiser la config-

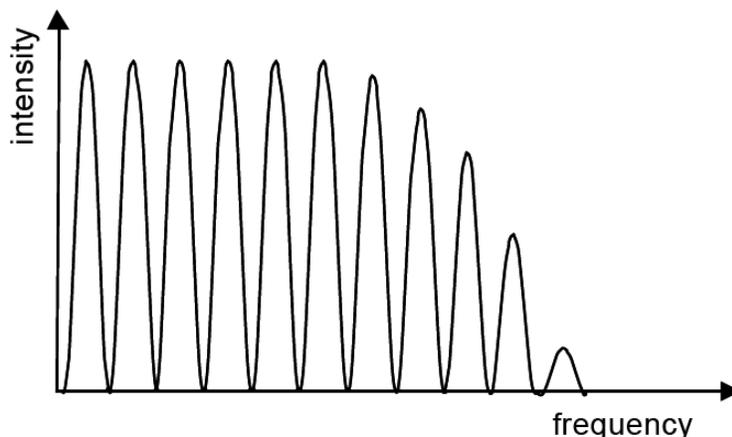


Figure I.2: Forme typique d'un spectre d'harmoniques

uration (focalisation, intensité et pression du gaz) pour qu'il y ait un accord de phase entre les différents points d'émission à l'intérieur de la cible [52]. On obtient alors une amplification cohérente d'un signal X-UV. Notons que le signal X-UV étant émis directement par l'interaction IR-atome, sa durée d'émission est de l'ordre de grandeur ou inférieure à celle du faisceau IR, c'est à dire quelques dizaines de fs ou moins.

Le principal désavantage des sources HHG vient de la très forte contrainte imposée par l'accord de phase avec l'IR. Ainsi par exemple, il est très difficile de maintenir cet accord de phase sur des longueurs supérieures à quelques mm et d'autre part on ne peut utiliser des intensités IR très élevées ou très longues car l'ionisation du gaz induit rapidement un désaccord de phase trop pénalisant. L'ionisation par effet tunnel étant un effet très non-linéaire, on comprend que l'optimisation d'une source HHG demande un savoir faire certain. A trop faible intensité, le taux d'ionisation par effet tunnel est trop faible, et au-delà d'un certain seuil, l'ionisation du plasma détruit l'accord de phase. Les meilleurs rendements sont obtenus avec des impulsions courtes, qui permettent de limiter l'effet de l'ionisation. Les énergies sont typiquement de l'ordre du nJ .

En jouant sur la forme temporelle de l'impulsion IR, il est possible de modifier la fréquence d'une harmonique d'une valeur égale à la moitié de la fréquence IR. Cela signifie que l'on peut atteindre pratiquement toutes les fréquences couvertes par les harmoniques, et en particulier une raie de KrIX ou de XeIX.

I.1.1.2 Sur cible solide

En focalisant un faisceau laser IR intense à la surface d'une cible solide, on peut également générer un rayonnement harmonique d'ordre élevé, consistant également en un peigne de pics d'intensité dans le profil spectral. Dans le cas d'une cible solide, la fréquence des pics peut être un multiple pair ou impair de celle du laser de pompe. Avec un laser femtoseconde, les premières expériences de HHG par laser femtoseconde (Ti-Sa) ont été faites dans le milieu des

Introduction

années 90 [102]. Le principe est le suivant. Le laser de puissance ($I\lambda^2 = 10^{17}W.cm^{-2}.\mu m^2$ ou plus) va ioniser une fine couche de la surface du solide, et créer ce qu'on appelle un *plasma sur-critique*, qui va être capable de réfléchir le laser incident. Comme ce dernier est focalisé avec un angle d'incidence, un gradient de densité transverse va se produire, induisant une oscillation de la surface critique [64]. Ces oscillations vont constituer un *miroir oscillant* pour le laser incident, et sera responsable des effets linéaires (modulation de phase du faisceau réfléchi) provoquant la génération d'harmoniques par les électrons. A noter que pour ce processus soit efficace, les oscillations doivent se produire dans un régime relativiste (vitesse des électrons oscillants proche de celle de la lumière). Pour des intensités plus faibles ($\sim 10^{16}W.cm^{-2}$), où le régime relativiste n'est pas atteint, un deuxième phénomène peut intervenir, qui se rapproche en fait de la génération HHG dans un gaz : sous le champ du laser, en incidence oblique et en polarisation S, les électrons sont arrachés de la cible solide, pour y retourner ensuite, suite à l'alternance du champ, avec une grande énergie. Ce paquet d'électrons énergétiques va interagir avec le plasma sur-critique généré pour créer une *émission cohérente de sillage* (F.Quéré et al [83]).

Des expériences récentes montrent que ce processus peut avoir une grande efficacité et peut donner lieu à la production d'un faisceau cohérent X-UV de 1 à $100\mu J$ dans la gamme de 30 à 40nm ([96],[73]). Un excellent contraste temporel pour l'impulsion IR est absolument nécessaire, ce qui impose l'utilisation de dispositifs tels que des miroirs plasma [73] pour obtenir un gradient temporel d'intensité autour du pic central le plus raide possible.

La génération d'harmoniques sur cible solide possède des propriétés remarquables, en particulier lorsqu'on dispose d'un faisceau IR de très forte intensité et avec un très bon contraste. Au niveau des applications, une limitation importante concerne la fréquence et la durée d'utilisation liée à la cible solide.

I.1.2 Le laser à électrons libres

Le Laser à électrons libres (*LEL*, en anglais FEL, Free Electron Laser) a été proposé pour la première fois par Madey en 1971 [66]. Il se distingue des lasers à milieux amplificateurs traditionnels basés sur les transitions atomiques, par le fait que le rayonnement X est issu d'un rayonnement synchrotron.

Dans le schéma LEL, un paquet d'électrons relativistes est émis par un accélérateur de particules. Ce paquet est ensuite introduit dans un *onduleur* consistant en une structure magnétique périodique, à travers lequel les électrons vont acquérir une vitesse transverse oscillatoire et émettre un rayonnement synchrotron. Ce rayonnement va être amené à interagir en retour avec les électrons. La condition d'une cohérence du signal est que le paquet d'onde soit en phase avec le rayonnement synchrotron émis. Pour cela, le paquet d'onde est modulé longitudinalement.

L'avantage de ce type de source est que le rayonnement X émis est de quelques ordres de grandeur plus brillant que pour les sources X plus classiques. Mais surtout, toute longueur d'onde peut a priori être amplifiée, de l'infrarouge aux rayons X, alors qu'un amplificateur

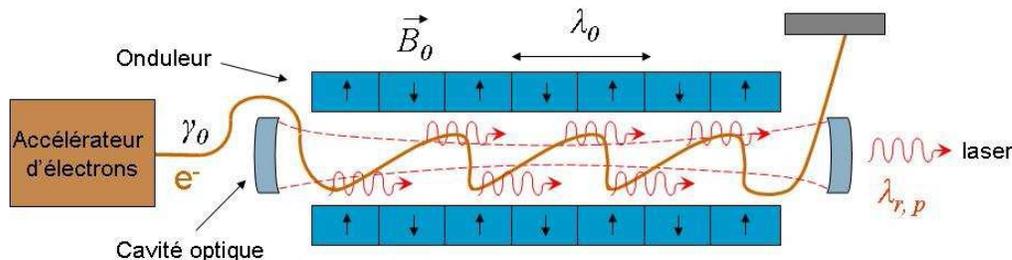


Figure I.3: Schéma d'un LEL en configuration *oscillateur* (coupe longitudinale). Tiré de la thèse de J.P.Goddet

classique est limité par les transitions atomiques. Plus récemment, il a été montré qu'on pouvait encore améliorer les qualités de faisceau en injectant une source d'HHG dans la structure magnétique [37]. Néanmoins, le coût des installations peut être très élevé car il nécessite un accélérateur (le plus long existant fait plusieurs km) pour pouvoir créer les électrons relativistes. D'autre part, vu le nombre limité de lignes de lumière, l'accès à ces grosses installations est restreint.

Différentes installations LEL existent déjà, comme l'installation FLASH en 2006, qui a pu fournir un rayonnement de 6,5nm [81] proche de la fenêtre de l'eau (2,2nm à 4,4nm). Récemment également, le LCLS (Linear Coherent Light Source) a été mis en fonctionnement sur l'accélérateur SLAC de Stanford aux Etats-Unis [44]. C'est actuellement la source laser X la plus puissante au monde. On notera également qu'en Europe, le XFEL européen à DESY [14], à Hambourg, est en cours de construction et devrait être opérationnel en 2014, pour produire du rayonnement X très intense.

I.1.3 Les lasers X-UV

Peu de temps après la démonstration de l'effet laser par Maiman en 1960 [67] utilisant un milieu amplificateur de rubis, furent développés des lasers dans une gamme de longueur d'onde allant de l'infrarouge (IR) à l'ultra-violet (UV). La gamme des rayons X n'a pu être atteinte avec les technologies de l'époque. Il existe deux raisons à cela. D'une part, l'énergie de transition entre les 2 niveaux lasants doit atteindre 100 à 1000eV, valeur à comparer avec les énergies de liaison des atomes et molécules de l'ordre de quelques eV. Une telle énergie de transition nécessite la création d'ions multichargés, où des transitions efficaces peuvent être trouvées, mais également un mécanisme de pompage très énergétique (par exemple des électrons libres de haute température). D'autre part, il est difficile de réfléchir les rayons X à l'aide d'instruments optiques en raison de leur courte longueur d'onde. Les meilleurs miroirs produits n'atteignent pour les rayons X qu'une réflectivité de 50% tout au plus en incidence normale. Le signal ne peut donc plus être réfléchi par des miroirs qui pourraient le maintenir dans la cavité résonante, ce qui limite la longueur d'amplification. Pour qu'un rayonnement X-UV puisse être généré par effet laser, l'amplification doit donc se faire sur

Introduction

un seul trajet, ce qui signifie que le milieu amplificateur doit avoir un gain très important sur la distance que parcourt le rayonnement X en son sein.

Une amplification X-UV a été observée pour la première fois en 1970 [45] ($\lambda=11,74\text{nm}$). Mais il faut attendre l'avènement des lasers de forte puissance dans les années 1980 et 1990 pour de puissantes sources laser X-UV cohérentes ne voient le jour. C'est tout d'abord à l'aide d'installations dédiées à la physique de la fusion inertielle permettant de créer des ions multichargés que les études de laser X-UV se sont développées. C'est en 1984 qu'on observe une forte amplification à $20,6\text{nm}$ [68] à l'aide du laser le plus puissant de l'époque au LLNL, le NOVA (10kJ).

Par la suite, les progrès réalisés sur les lasers de puissance et la physique des lasers X a permis de diminuer l'énergie nécessaire au pompage et en 1991 : le régime de saturation est atteint sur la transition 3s-3p du germanium néonoïde à $23,6\text{nm}$ [16]. Les nombreuses études réalisées dans les années 90 ont permis d'améliorer sensiblement les conditions de pompage, grâce notamment à l'utilisation d'impulsion de courte durée ([105],[75]). Ceci a été possible grâce à la technique de dérive des fréquences (CPA, *Chirped Pulse Amplification*) appliquée en 1985 dans les amplificateurs optiques [93]. Les lasers de pompe voient alors leur durée d'impulsion réduite à quelques femtosecondes et leur intensité atteindre 10^{21}W.cm^{-2} , sur une surface de quelques dizaines de μm^2 . Cela correspond à des puissances de l'ordre du terawatt (10^{12}W) au pétawatt (10^{15}W).

Les applications du laser X se sont développées en même temps que les progrès réalisés sur la source. A l'heure actuelle, de nombres installations de laser de puissance, comme par exemple au LULI à l'Ecole Polytechnique (LULI2000 et 100TW), permettent de les développer. C'est ainsi qu'on a pu démontrer des laser X dans l'investigation d'autres champs de recherche fondamentale, comme la physique du solide [46], la physique des plasmas denses [23] ou la physique des surfaces [47].

I.1.3.1 Mécanismes de pompage de l'inversion de population

Nous détaillons ci-dessous différents mécanismes de pompage qui ont été proposés depuis le début des recherches sur le laser X-UV :

Pompage par recombinaison

Ce schéma de pompage a été proposé par Gudzenko *et al* en 1965 [41] pour le lasage dans le domaine du visible, et c'est le premier à avoir été proposé, par Pert et Ramsden, dans le domaine des rayons X [77]. Le laser X de recombinaison consiste à focaliser un laser de puissance d'une durée de quelques ns à quelques centaines de ps (intensité de l'ordre de 10^{15}W/cm^2) sur une cible, et créer ainsi un plasma suffisamment froid pour que les électrons libérés se mettent à se recombiner avec les atomes, ce qui va permettre de peupler les niveaux d'énergie proches du continuum. Ensuite (voir figure I.4), les électrons vont se désexciter par cascades radiatives, période au cours de laquelle l'inversion de population se produit entre les niveaux lasants. L'effet laser est observé pour des transitions du type $\Delta n = 1$ et $\Delta n = 2$ dans les ions légers ($6 \leq Z \leq 17$) possédant un électron en sous-couche externe (lithiumoïde ou hydrogéoïde). Pour avoir le plus grand nombre d'électrons recombinés

possible, le processus de recombinaison à trois-corps doit être dominant. Son taux étant proportionnel à N_e^3/T_e , on a donc intérêt à maximiser la densité du plasma et minimiser sa température pour obtenir une inversion de population importante.

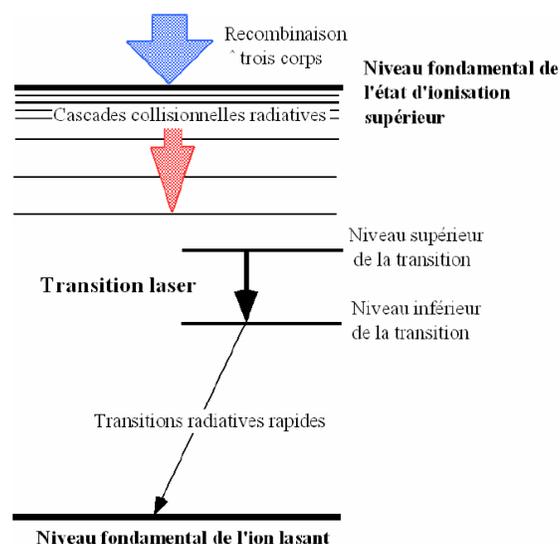


Figure I.4: Mécanisme de pompage par recombinaison

Il existe 2 manières de générer un laser par recombinaison : soit on focalise le laser de puissance sur une cible solide, et le plasma créé se refroidit par détente adiabatique, soit on le focalise sur cible gazeuse en créant de l'OFI (ionisation par champ).

Les meilleurs résultats ont été obtenus avec l'OFI, avec la raie Ly_α du lithium hydrogénoïde ($\lambda=13,5\text{nm}$). Un gain de 20cm^{-1} a été mesuré sur une longueur de 2mm [74]. Néanmoins, l'efficacité du schéma par recombinaison est limité par le fait qu'il est difficile d'obtenir un plasma froid, en raison des effets non linéaires indésirables [24]. Même si les résultats ont été obtenus avec une longueur d'onde relativement courte, les gains restent faibles (la plus courte obtenue est de $5,4\text{nm}$ avec le sodium hydrogénoïde [51], mais avec un gain de $2\text{-}4\text{cm}^{-1}$). C'est pourquoi ce type de pompage a été depuis quelques années abandonné au profit du pompage par excitation collisionnelle, qui a donné de meilleurs résultats en termes d'efficacité.

Pompage par excitation collisionnelle

Le schéma de pompage par excitation collisionnelle a été proposé en 1975 par Elton [33]. Une forte amplification a pu être observée pour la première fois avec ce schéma en 1985 [68]. Le principe, illustré dans la figure I.5, est le suivant. Le plasma est constitué initialement d'ions se trouvant dans leur niveau fondamental, et d'un ensemble d'électrons chauds. Les collisions entre les électrons et les ions vont provoquer de l'excitation collisionnelle, induisant le peuplement des niveaux excités dont font partie les niveaux supérieur et inférieur de la raie laser. On comprend ici que le niveau fondamental constitue un réservoir d'électrons

Introduction

et que c'est en provenance de ce niveau que les niveaux excités vont être peuplés. Une condition pour un pompage de la raie laser existe : l'énergie des électrons de collision doit être supérieure à la différence d'énergie entre le niveau supérieur et le niveau fondamental. L'inversion de population qui doit être réalisée entre ces 2 niveaux peut être induite de plusieurs manières différentes : par un taux d'excitation collisionnelle plus important vers le niveau supérieur, par la présence d'un taux de désexcitation radiative important du niveau inférieur vers le niveau fondamental, ou alors simplement lorsque le degré de dégénérescence du niveau inférieur est supérieur à celui du niveau supérieur.

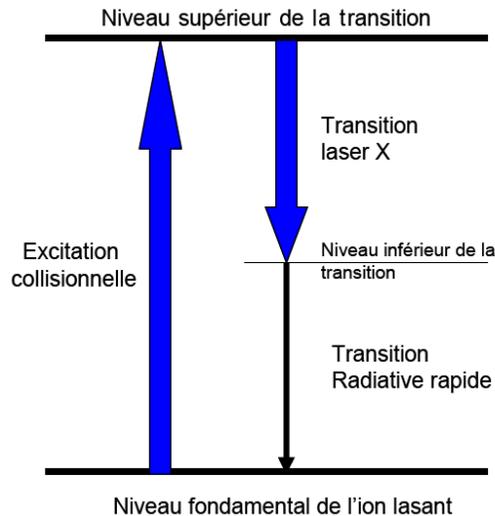


Figure I.5: Schéma de pompage par excitation collisionnelle

Les ions néonoïdes, nickeloïdes et palladiumoïdes sont utilisés pour ce schéma. La raison est que ces ions possèdent toutes leurs sous-couches complètes, et de ce fait sont très stables car difficiles à ioniser. Ceci permet d'obtenir des milieux amplificateurs de taille importante. Les transitions utilisées pour produire l'inversion de population donnant l'effet laser sont une transition $3p-3s$ pour les ions néonoïdes, $4p-4d$ pour les ions nickeloïdes et $5p-5d$ pour les ions palladiumoïdes. Le numéro atomique Z de l'ion va déterminer la longueur d'onde de la transition laser. Ceci nous offre une gamme de longueurs d'onde assez large, allant de 60 nm à 3 nm pour la plus courte.

Pompage par photo-ionisation en couche interne

Il s'agit du schéma de pompage le plus ancien proposé pour le laser X, par Duguay et Rentzepis en 1967 [29]. La proposition est qu'un "flash" de rayonnement X, intense et rapide, émis par un plasma d'ions lourds, provoque la photo-ionisation d'électrons se trouvant en couche K (qui est la couche la plus interne) dont un des niveaux va constituer le niveau inférieur de la raie laser. Le niveau supérieur se trouvant dans une couche peu dépeuplée

par l'ionisation, une inversion de population est créée. Les énergies de photon requises pour ioniser en couche interne sont très élevées. Elles atteignent 870eV pour le Néon, mais en contrepartie, la longueur d'onde de transition laser est de 1,5nm alors même que le néon n'est ionisé qu'une fois, ce qui est d'un avantage indéniable.

L'inversion de population ne dure que quelques dizaines de femtosecondes, ce qui constitue un atout car elle permettrait d'obtenir laser de durée très brève (10 à 50fs). Néanmoins, c'est un problème pour synchroniser le gain avec la propagation du rayonnement X à travers le milieu amplificateur. D'autre part, le gain est limité par des effets parasites tels que l'effet Auger. A ce jour, le schéma n'a pas encore été démontré expérimentalement et est toujours en cours d'étude.

I.1.3.2 Amplification du laser X-UV

Le processus d'amplification est une étape importante car la source qui sera amplifiée doit avoir des caractéristiques propres à celle des lasers : faible divergence, cohérences temporelle et spatiale, forte brillance. Pour amplifier par émission stimulée, nous avons besoin d'une source de rayonnement X-UV à la fréquence laser. Cette source de rayonnement peut être le milieu amplificateur lui-même : en effet, ce dernier va émettre des photons par désexcitation radiative (émission spontanée) des photons de la fréquence de la raie laser. On se trouve alors dans le cas d'*amplification de l'émission spontanée* ou ASE (*Amplification of Spontaneous Emission*). Cependant, les qualités de cohérence et de divergence du faisceau X-UV ne sont pas optimales : l'émission spontanée est un rayonnement incohérent émis dans toutes les directions. En revanche, si on y amplifie le rayonnement X-UV d'une source cohérente et collimatée avant que l'émission spontanée ne se produise, les qualités du faisceau en sortie du plasma s'en trouvent grandement améliorées. En ce sens, l'injection de rayonnement harmonique (HHG) a montré de très bons résultats au niveau de la qualité du faisceau X-UV. Ce type de source tend d'ailleurs à se généraliser sur différents types de lasers X-UV.

I.1.3.3 Etat de l'art des lasers X-UV à pompage par excitation collisionnelle

Laser X-UV quasi-stationnaire (QSS)

La première expérience de laser X-UV a été réalisée avec un laser Infrarouge de longue durée d'impulsion (nanoseconde) [55]. Avec cette durée, les lasers X-UV créés sont dits *quasi-stationnaires* (QSS - Quasi Stationary State). En effet, les temps de vie des niveaux atomiques de la raie laser sont beaucoup plus courts (de l'ordre de la picoseconde). La création du plasma amplificateur consiste en la focalisation sur une cible solide d'un laser IR de plusieurs centaines de Joules et quelques centaines de ps, sur une ligne de quelques cm de long sur la surface.

Le laser X-UV QSS est la source X-UV cohérente la plus énergétique. Il a permis d'atteindre la plus courte longueur d'onde en régime saturé [105]. Néanmoins, il requiert des installations laser de grande taille, dont la cadence de tir est très faible (1 tir toutes les 30 minutes). PALS (Prague Asterix Laser System) est actuellement le seul laser QSS en fonctionnement dans le monde, et est utilisé pour différentes applications. Il s'agit d'un laser à zinc néonoïde

Introduction

émettant à 21,2nm [17]. Les impulsions laser X-UV produites possèdent une énergie de l'ordre de quelques mJ, et une durée de l'ordre de 100ps.

Laser X-UV transitoire

Dans ce type de laser X-UV, deux impulsions d'intensité et de durée différentes sont utilisées, de façon à découpler l'ionisation du plasma de son chauffage. D'abord une impulsion longue (centaine de ps) est dirigée sur une cible solide et crée le plasma (ions néonoïdes ou nickeloïdes). Une seconde impulsion, de plus courte durée (quelques picosecondes), est ensuite introduite et chauffe les électrons libres par Bremsstrahlung Inverse, ce qui a pour effet de générer le pompage de la raie laser par excitation collisionnelle.

Le laser X-UV transitoire a été proposé pour la première fois en 1963 par Afanasev et Shlyaptsev [2]. La première expérience réussie de ce type de laser a été effectuée en 1995 par P.Nickles *et al* [75].

Cette technique a permis d'obtenir des impulsions X-UV de courte durée : une durée de 2ps a été mesurée à 13,9nm à partir de l'argent nickeloïde [54]. Elle a surtout permis de réduire l'énergie nécessaire au pompage, et donc la réalisation d'installations de plus petite dimension et fonctionnant à des cadences élevées (10Hz). Un projet de l'université Paris-Sud XI dédié à un laser X-UV de ce type a abouti récemment. Il s'agit de la station "LASERIX" [86], opérationnelle depuis 2008.

Laser X-UV par décharge électrique

En parallèle des lasers X-UV créés par laser, il existe aussi des investigations sur des lasers X-UV dont le pompage est réalisé à l'aide de *décharges capillaires*. Le plasma est obtenu à l'aide de décharges électriques de plusieurs kA générées sur quelques dizaines de ns. Le premier laser X-UV du genre a été démontré par J.Rocca en 1994 et fonctionne à 46,8nm dans l'argon néonoïde ([85],[101]). L'avantage de ce laser est qu'il peut produire des impulsions de quelques mJ à une cadence élevée (4Hz), ce qui le rend tout à fait remarquable. Néanmoins, il est pour l'instant limité par les grandes longueurs d'onde pour lesquelles il est généré, ainsi que par les longues durées d'impulsion (~ 1 ns).

Laser X-UV par ionisation par champ (OFI)

Ce schéma dit d'ionisation par champ (en anglais *OFI : Optical Field Ionization*) est celui qui a été étudié au cours de cette thèse. Il se base sur une ionisation par champ d'une cible gazeuse par un laser infrarouge, très intense ($10^{17}W/cm^2$) et de très courte durée d'impulsion (~ 30 fs), provoquant l'ionisation des atomes et la création d'ions lasants. Comme nous le montrerons dans le chapitre suivant, pour que l'OFI se produise, l'intensité du champ doit être telle que ce dernier abaisse la barrière de potentiel, laissant s'échapper des électrons dans le continuum par effet tunnel. Après leur libération, le laser IR va également provoquer le chauffage de ces mêmes électrons qui, par les collisions électron-ion (excitation collisionnelle) vont produire l'inversion de population.

C'est en 1988 que le schéma OFI a été proposé par Corkum et Burnett [20]. Les ions lasants argon néonoïde (3p-3s, 46,9nm), krypton nickeloïde (4p-4d, 32,8nm) et xénon palladiumoïde

(5p-5d, 41,8nm) (ionisés huit fois) ont été suggérés par Lemoff *et al* en 1994 [59], notamment parce qu'il s'agit d'une cible gazeuse (pour permettre à l'OFI de se produire sur un volume de gaz important). Un an plus tard, la même équipe observe pour la première fois une amplification avec le xénon palladiumoïde en prenant une polarisation circulaire pour le laser de pompe [60]. Malgré plusieurs tentatives à travers le monde (KAIST en Corée, Rutherford en Angleterre, Riken au Japon...), l'expérience n'a été reproduite que 5 ans plus tard au LOA, avec un laser IR à 800nm, d'une durée de 35fs et d'une énergie de 330mJ [89]. Le régime de saturation a pu être atteint pour la première fois. Par la suite, une saturation de l'amplification a également pu être observée avec le krypton nickeloïde [90]. Enfin, des études menées ont pu montrer que le laser X-UV OFI peut fonctionner avec une cadence de 10Hz [12].

Une fois ces premiers résultats obtenus, l'équipe du LOA s'est attelée à chercher quels paramètres modifiaient les qualités amplificatrices du plasma créé par OFI. Il a pu être mis en évidence qu'elles dépendaient de la pression du gaz, mais aussi des caractéristiques du laser de pompe, à savoir son intensité et sa polarisation. Il est notamment important de maintenir les intensités requises du laser de pompe sur la distance de propagation la plus grande possible dans le gaz cible, pour maximiser la longueur de milieu amplificateur. A ce titre, l'utilisation de guides d'onde (tubes capillaires) induisant un maintien de l'intensité du laser sur de longues distances, permet d'accroître notablement cette longueur et, par conséquent, les performances du laser [72].

Parallèlement, il a été démontré que les amplificateurs OFI sont bien adaptés aux expériences d'injection d'harmoniques. Ils permettraient de combiner la courte durée et les qualités optiques (polarisation linéaire, cohérences spatiale et temporelle, front d'onde de qualité) du faisceau harmonique utilisé en tant qu'injecteur avec les forts gains contenus dans les plasmas de laser X-UV. Le schéma de laser X-UV en mode injecté a été proposé et démontré pour la première fois par T.Ditmire en 1995 sur cible solide [28]. L'idée fut reprise au LOA et adaptée à un amplificateur OFI collisionnel en 2004 [104]. Les avantages de cette méthode et les améliorations de la source qui en découlent font que cette géométrie tend à se généraliser sur toutes les installations visant à réaliser des lasers X-UV par laser-plasma.

I.1.3.4 Expérience du LOA (équipe de S.Sebban) du laser X-UV OFI en mode injecté

Cette thèse a été l'objet d'une collaboration avec l'équipe de S.Sebban du LOA, qui a très largement contribué au développement du laser X-UV OFI produit par injection d'harmoniques. Le dispositif expérimental est le suivant (figure I.6 ci-dessous) : un laser Titane-Saphir d'énergie élevée (~ 1 Joule) et de durée ultra-courte (35fs) est produit en utilisant la méthode du *Chirped-Pulse Amplification*. La majorité de l'énergie est allouée au laser de pompe qui, introduite dans la cellule SXRL (ou tube capillaire) en polarisation circulaire, provoque l'OFI et le chauffage des électrons libres. En parallèle, une partie de l'énergie initiale (quelques %) est utilisée pour générer en polarisation linéaire les harmoniques X-UV (faisceau sonde) dans une cellule HHG. L'une des harmoniques doit être calée sur la fréquence de la raie laser pour pouvoir être amplifiée. Ce rayonnement X-UV est ensuite injecté dans

Introduction

la cellule SXRL à l'arrière de l'impulsion de pompe pour être amplifié. Le faisceau laser X-UV amplifié est collecté en sortie de la cellule SXRL. L'avantage de générer les faisceaux sonde (X-UV) et de pompe (IR) à partir d'une même source est que le temps de retard entre ces 2 impulsions est parfaitement contrôlé.

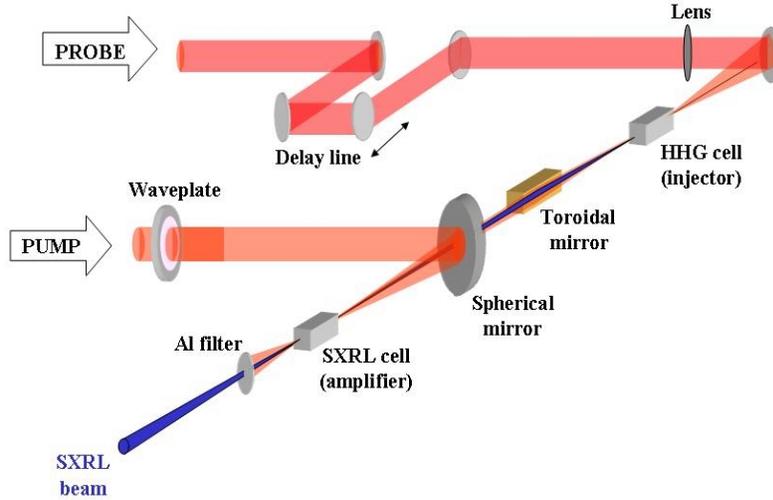


Figure I.6: Schéma expérimental du laser XUV OFI en mode injecté de la Salle Jaune du LOA (ENSTA)

I.2 Applications du laser X-UV

Les applications qu'on peut trouver au laser X-UV OFI sont liés aux caractéristiques de cette source : sa longueur d'onde, sa durée d'impulsion, son intensité et sa cohérence. Le rayonnement X-UV s'étend sur une gamme spectrale de 3 à 60nm. A ces longueurs d'onde, les rayons ont un haut pouvoir pénétrant dans les milieux à relativement grande densité (proche du solide). Dans le cas d'une propagation dans un plasmas par exemple, la densité critique, au-delà de laquelle un rayonnement de cette gamme spectrale est absorbé dans un plasma, est de l'ordre de 10^{22} à 10^{23}cm^{-3} (proche de la densité du solide). Le laser X-UV OFI est une source suffisamment intense ($\sim 10^8 - 10^{11}\text{W/cm}^2$) pour interagir fortement avec la matière, y produire des effets non linéaires, ou encore avoir un bon rapport signal/bruit dans le rayonnement détecté en sortie d'une cible. Sa courte durée d'impulsion, de l'ordre de la picoseconde (10^{-12}s), permet d'étudier des dynamiques dont les temps caractéristiques d'évolution sont du même ordre de grandeur, comme les réactions moléculaires, ou plus grands, comme les dynamiques macroscopiques (hydrodynamique, cinétique). Enfin, la cohérence temporelle du faisceau X-UV OFI permet d'effectuer des expériences d'interférométrie (holographie) alors que sa cohérence spatiale permet des expériences de diffractométrie, ce qui est intéressant pour le diagnostic de cibles.

Avec de telles caractéristiques, le laser X-UV OFI est donc capable de sonder des dynamiques réactionnelles dans les matériaux, plasmas et milieux biologiques. Dans le cas de milieux bi-

ologiques il peut s'agir d'imagerie de protéines, de structures d'ADN, de virus dans un milieu aqueux, ou autres spécimens vivants. L'intérêt du laser X-UV OFI notamment, est de pouvoir observer ces spécimens vivants sans avoir besoin de traitement spécifique comme cela est requis pour un microscope électronique.

I.3 Objectifs de thèse et travail réalisé

Le travail de modélisation qui a été effectué au cours de la thèse reprend des données fournies par 2 codes qui décrivent l'évolution du milieu amplificateur dans l'espace et dans le temps. Le premier code (OFI-Prop) traite sur 2 dimensions la propagation du laser infrarouge dit "*laser de pompe*" dans le gaz cible et l'ionisation (OFI) qu'il y produit : il permet de décrire la répartition des populations ioniques du milieu amplificateur. Il est une version modifiée du code PROPAGATE développé dans le groupe de G.J.Pert (voir par exemple thèse de L.M.Upcraft [97]). Les résultats obtenus à partir de ce code sont présentés dans le chapitre V. Le second code (OFI-0d) modélise l'évolution en un point donné des populations atomiques après passage du laser de pompe, en fonction notamment des caractéristiques de ce laser et de la pression du gaz cible. Il se base sur le code BREAKDOWN développé également par l'équipe de G.J. Pert [97]. Ses résultats sont pour la plupart décrits dans le chapitre III. Un premier travail a consisté à coupler ces deux codes et nous a permis d'obtenir la description spatio-temporelle des populations atomiques en tout point du plasma et à tout instant après OFI.

Un premier code nommé COFIXE, antérieur à cette thèse, avait été développé dans l'équipe ITFIP du LPGP pour traiter l'amplification du laser X-UV OFI généré par amplification de l'émission spontanée (régime ASE). Il est basé sur l'approximation adiabatique, c'est-à-dire qu'il n'est applicable que si le temps caractéristique de variation de l'amplitude du champ X-UV est long devant les temps caractéristiques de la cinétique du processus d'amplification. Cette approximation n'est plus applicable dans le cas de l'injection d'une impulsion HHG qui a une durée (~ 35 fs) beaucoup plus courte que le temps de réponse du milieu amplificateur (1 à 10ps selon la pression du gaz cible). L'objectif de cette thèse a donc été, tout d'abord, de s'affranchir de l'approximation adiabatique pour pouvoir traiter l'amplification d'un signal de très courte durée. Un autre point important était de pouvoir étudier la cohérence spatiale et temporelle qui ne pouvait être traité correctement avec l'approximation utilisée par COFIXE. Notre choix s'est donc porté sur les équations de bases de l'interaction laser-atome que sont les équations de Maxwell-Bloch. Une contrainte forte de notre modélisation est de devoir s'appliquer directement à une situation expérimentale qui possède de nombreux paramètres ajustables et dont les cibles peuvent avoir de grandes longueurs. Ceci nous a imposé de faire un certain nombre d'approximations qui seront décrites dans ce manuscrit. L'accent a été mis sur la confrontation avec les résultats expérimentaux. C'est pourquoi les caractéristiques des codes développés ont aussi été définies en fonction des diagnostics mis en place sur les expériences.

Dans ce travail de thèse, toutes les confrontations avec des données expérimentales se sont rapportées aux expériences réalisées sur l'installation laser "Salle Jaune" du "Laboratoire d'Optique Appliqué" de l'ENSTA à Palaiseau par l'équipe de S. Sebban. Les codes que nous

avons développé ont été utilisés par cette équipe pour interpréter leur résultats. Ces analyses sont reportées en détail dans les thèses de Jean-Philippe Goddet et de Fabien Tissandier, c'est pourquoi nous ne donnerons que les principaux enseignements des résultats expérimentaux.

I.4 Organisation des chapitres

Comme nous venons de le voir, la génération du laser X-UV OFI en mode injecté est modélisée en plusieurs étapes (ionisation et chauffage, cinétique, et amplification). Les chapitres de cette thèse sont organisés de manière à décrire successivement chacune de ces étapes (cette description comprenant physique, modèles et résultats), puis à présenter les résultats globaux qu'a fourni le code créé au cours de la thèse. Ils décrivent donc plus précisément : l'ionisation par champ (OFI) et le chauffage par le laser de pompe (1) ; la physique atomique de l'ion lasant (2) ; la cinétique du plasma après OFI (3) ; le transfert radiatif et l'amplification du laser X-UV utilisant les équations de Maxwell-Bloch (4) ; la propagation du laser de pompe dans le gaz cible (5) fournissant des données spatiales sur le milieu amplificateur pour la modélisation de l'amplification ; enfin, les résultats principaux de cette thèse sur la modélisation de l'amplification d'une harmonique X-UV (6).

- **Chapitre 1** : Dans ce chapitre est étudiée l'interaction du laser de pompe avec les atomes du gaz cible. Cette interaction génère premièrement de l'ionisation par champ (OFI), puis un chauffage des électrons et des ions du plasma une fois créé (ATI). Après avoir exposé les éléments théoriques sur lesquels se reposent la modélisation de ces phénomènes, j'illustre les résultats du code OFI-0D sur l'OFI et l'ATI dans les cas d'un gaz cible de Krypton et de Xénon.

- **Chapitre 2** : Il est consacré à la physique atomique de l'ion lasant. Les données de physique atomique qui ont été introduites dans le code OFI-0D pour calculer les populations atomiques après OFI ont été apportées par les codes SUPERSTRUCTURE et Distorted-Wave, grâce à la collaboration avec Jacques Dubau. Je retrace donc l'essentiel des modèles introduits dans ces codes et expose les résultats obtenus pour les ions lasants Kr^{8+} et du Xe^{8+} , qui ont formé la base de données atomiques pour traiter l'amplification.

- **Chapitre 3** : Après avoir étudié l'ionisation du plasma, son chauffage, et la physique atomique de l'ion lasant constituant le milieu amplificateur, l'étape suivante est d'étudier la cinétique du plasma après OFI. Par cinétique du plasma, on comprend à l'échelle microscopique, l'évolution de l'énergie des électrons (fonction de distribution) et des ions (température ionique), des populations ioniques, et des populations atomiques de l'ion lasant. A l'échelle macroscopique, il s'agit de l'évolution des variables telles que l'énergie interne du plasma, son volume ou sa pression. Tous ces éléments de cinétique ont une influence plus ou moins importante sur l'amplification. Nous déterminerons si certaines de ces grandeurs physiques peuvent être supposées constantes ou uniformes. Les données qui sont utiles pour la suite de la modélisation sont principalement celles sur les populations des niveaux lasants, qui permettent notamment de déterminer le gain du milieu amplificateur. Tout au long de

ce chapitre, je présente les résultats fournis par le code OFI-0D sur ces éléments de cinétique, appliqués aux cas du Krypton et du Xénon.

- **Chapitre 4 :** Il est consacré à la partie qui a fait l'objet de plus de développement au cours de la thèse : le transfert radiatif du laser X-UV au cours de sa propagation dans le milieu amplificateur. Le nouveau code COFIXE_MB élaboré pendant la thèse utilise les équations de Maxwell-Bloch à 2 niveaux atomiques effectifs. Elles permettent de décrire l'évolution du champ électrique et de l'inversion de population en tout point du plasma au cours de l'amplification X-UV, mais aussi celle de la polarisation, réponse du milieu au champ X-UV. En effet, cette polarisation (somme des moments dipolaires de tous les ions lasants), dans le modèle de Maxwell-Bloch, indique précisément le niveau d'émission instantané de chaque parcelle de plasma au cours du temps. L'accent est mis sur le développement des équations de Maxwell-Bloch à partir des éléments de cinétique et de physique atomique décrits dans les chapitres 2 et 3.

- **Chapitre 5 :** La propagation du laser de pompe à travers le gaz cible est étudiée. La répartition de l'intensité du laser de pompe dans le gaz, calculée par le code OFI-Prop, est une donnée importante car elle détermine la répartition des populations ioniques même et donc le volume de milieu amplificateur créé. Tout d'abord, j'expose le modèle de propagation 2D qui est utilisé par OFI-Prop. Ensuite, une étude sur l'optimisation de la taille du milieu amplificateur est réalisée dans les cas d'une cellule de gaz et d'un tube capillaire. Les résultats d'OFI-Prop permettent de déterminer les valeurs optimales des paramètres influant la propagation.

- **Chapitre 6 :** Dans ce dernier chapitre, nous montrons les résultats sur l'amplification X-UV obtenus en combinant les trois étapes d'ionisation de cinétique et d'amplification. Une première section concerne les aspects 1D de l'amplification, à savoir l'évolution du profil temporel et du profil spectral du signal X-UV en fonction de la distance d'amplification sur l'axe z . Les particularités de cette amplification sont dégagées et décryptées. Une seconde section décrit les simulations à 2 dimensions de l'amplification X-UV, pour lesquelles on a introduit les données du code OFI-Prop sur la propagation du laser de pompe. Des conclusions en sont tirées sur l'évolution de l'énergie d'impulsion au cours de la propagation, mais également sur le profil radial du signal. La troisième et dernière section est consacrée aux résultats de simulations à 3 dimensions, qui permettent de modéliser l'amplification à partir de données sur le profil spatial de l'harmonique X-UV issues du senseur de front d'onde.

Chapitre 1

Interaction du laser de pompe avec le gaz cible

Cette partie est consacrée à l'étude des phénomènes se produisant lorsque le *laser de pompe* est injecté dans le gaz cible, lequel deviendra le siège de l'amplification du laser X-UV. Le laser de pompe est une impulsion laser Infrarouge ($\lambda = 810nm$) de très haute intensité ($I \sim 10^{17}W.cm^{-2}$), de durée extrêmement courte ($\tau = 35fs$) et d'énergie totale de l'ordre du joule. Il va être responsable de l'ionisation par champ du gaz cible, et du chauffage des électrons libres et des ions engendrés par cette ionisation.

L'étude de ces 2 phénomènes est d'importance car ils déterminent l'état initial des particules du plasma après passage du laser de pompe, à savoir, le degré d'ionisation et l'énergie cinétique des ions et des électrons libres. Ces données nous serviront de base pour la description de l'amplification X-UV.

Dans ce chapitre, nous nous consacrerons donc successivement à l'étude de l'ionisation du gaz et de son chauffage par le laser, en dégagant des modèles permettant de déterminer l'état du plasma après le passage du laser. Nous appliquerons ces modèles aux gaz de xénon (Xe) et de krypton (Kr), qui sont utilisés dans les expériences de laser X-UV en tant que milieux amplificateurs.

1.1 Ionisation par champ

L'*ionisation par champ* ou *OFI* (*Optical Field Ionization*) se définit comme l'ionisation induite par la propagation d'un champ intense dans un milieu transparent (généralement un gaz), c'est-à-dire dont l'énergie d'ionisation ϵ_i des atomes est bien supérieure à la fréquence $\hbar\omega$ des photons incidents. Le phénomène d'ionisation par champ est observé à partir d'intensités laser $I \sim 10^{10}W/cm^2$.

Rapidement après la découverte des lasers au début des années 60, la communauté scientifique s'est intéressée à l'interaction d'un laser de puissance avec la matière. La théorie sur l'ionisation par un champ variable a été développée par Keldysh en 1965 [53]. Dans le cas de lasers Infrarouges intenses, les phénomènes menant à l'ionisation sont l'*ionisation multiphoton*, impliquant l'absorption de plusieurs photons par l'atome, l'*ionisation par effet tunnel*,

et l'ionisation au-dessus-de-la-barrière de potentiel. Pour plus de détails, on peut se référer au livre de Kulander [57] (processus multiphotoniques à champ faible et à champ fort), à l'article de Burnett [15] (multiphoton) ou celui de Delone et Krainov [26] (ionisation par effet tunnel, et par suppression de barrière).

Dans cette section, nous déterminerons les phénomènes qui entrent en jeu dans l'OFI qui précède la génération du laser X-UV. A partir d'un modèle développé pour quantifier l'ionisation, nous calculerons le degré d'ionisation atteint par le gaz cible et la distribution en énergie des électrons et des ions en fonction des caractéristiques du laser de pompe.

1.1.1 Ionisation multiphoton (MPI)

Le premier processus d'ionisation par photon connu est la *photoionisation*, depuis la découverte de l'effet photoélectrique (Hertz, 1887). Ce phénomène a été expliqué par Einstein par le fait que la lumière puisse être décomposée en quanta de photons. Il consiste en l'éjection dans le continuum par un photon incident d'un ou plusieurs électrons atomiques liés. La condition pour que la photoionisation puisse avoir lieu est que l'énergie du photon incident soit supérieure à l'énergie d'ionisation de l'atome considéré. Dans le cas qui nous intéresse, d'un faisceau laser à 800 nm, l'énergie d'un photon est de 1,5 eV, ce qui est nettement inférieur à l'énergie d'ionisation des atomes. La photoionisation à un photon n'est donc pas possible.

L'idée d'ionisation par plusieurs photons, dite *Ionisation Multiphoton (MPI)*, de l'anglais *Multiphoton Ionization*, fut émise bien plus tard par Maria Goeppert-Mayer en 1931 [39] avant le développement de sources suffisamment intenses pour produire des effets multiphotoniques. En effet, pour une même transition, ce processus est beaucoup moins probable que son équivalent à 1 photon, et n'est significatif qu'à flux de photons élevé. L'effet multiphoton fut pour la première fois observé en 1950 par Hughes et Grabner [43] dans les fréquences radio sur un système moléculaire de RbF (absorption à 2 photons). Dans les fréquences optiques, Kaiser et Garret [50] observent en 1961 l'absorption à 2 photons dans un cristal de $CaF_2 : Eu^{2+}$ à partir d'un laser à rubis ($\lambda = 694,3nm$). Ce même laser permettra finalement l'observation de l'ionisation à plusieurs photons en 1965 par Hall, Robinson et Branscomb [42] sur des ions I^- (MPI à 2 photons), puis, l'année suivante, par Voronov et Delone [103] sur les gaz rares de Krypton (8 photons) et d'Argon (9 photons).

1.1.1.1 Principe

Lorsque l'énergie d'un des photons incidents n'est pas suffisante pour ioniser l'atome, il est possible d'ioniser un atome par absorption simultanée de plusieurs photons. Le nombre requis de photons à absorber correspond alors à la partie entière du nombre $(\epsilon_i/\hbar\omega + 1)$.

L'ionisation *multiphoton* est produite à *champ "faible"* ($I \approx 10^{10}$ à $10^{14}W.cm^{-2}$). Ce dernier est considéré comme faible par rapport au champ atomique liant les électrons au noyau, ce qui entraîne que les niveaux atomiques sont faiblement perturbés par le champ. Elle est observée à partir de durées d'impulsions laser de quelques dizaines de picosecondes.

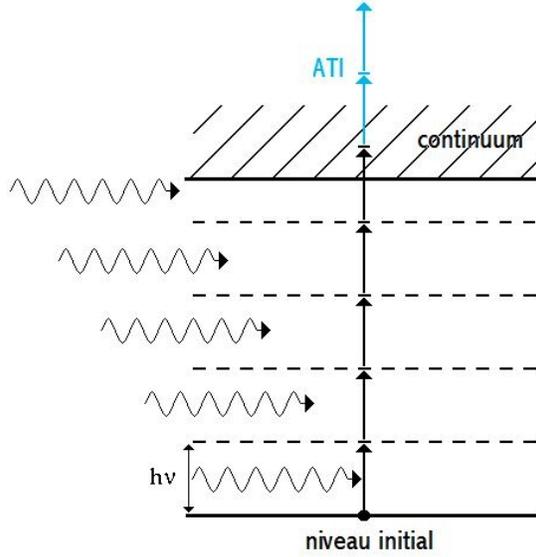


Figure 1.7: Un atome d'énergie d'ionisation ϵ_i est ionisé par un nombre $(\epsilon_i/\hbar\omega + 1)$ de photons d'énergie $h\nu$. Ensuite, l'électron libéré peut absorber un certain nombre de photons supplémentaires, augmentant alors son énergie cinétique. Il s'agit de l'ATI.

Une fois passé dans le continuum, l'électron peut encore absorber un certain nombre de photons supplémentaires par rapport au minimum requis par la MPI, si le flux de photons incident est suffisamment important. On parle alors dans ce cas d'*Ionisation-Au-Dessus-Du-Seuil* ou *ATI* (de l'anglais *Above-Threshold-Ionization*). Ce phénomène est observé à partir d'intensités $I > 10^{12} \text{W.cm}^{-2}$. Nous verrons ultérieurement que l'ATI est également observée dans l'*ionisation par effet tunnel* et l'*ionisation au-dessus-de-la-barrière*. Dans tous les cas, il signifie l'acquisition d'énergie cinétique par l'électron libéré.

1.1.1.2 Théorie

L'électron lié amené à se libérer se trouve initialement dans le niveau fondamental d'énergie E_g . En interagissant avec le laser, il passe ensuite dans les niveaux d'énergie $E_i = E_g + i(h\nu)$ avec $i = 1, \dots, N$. Ces niveaux d'énergie sont *virtuels* car ils ne correspondent pas forcément aux états propres de l'atome. Néanmoins, les niveaux d'énergie réels des atomes ont une largeur spectrale naturelle, liée à leur temps de vie. En effet, un électron lié a une probabilité de se trouver dans un niveau d'énergie E_i virtuel pendant un temps court, cette probabilité étant d'autant plus forte que E_i est proche de l'énergie E_j d'un niveau réel. L'absorption de N photons d'énergie $h\nu$ s'explique par la *théorie des perturbations dépendantes du temps* au N -ième ordre [57]. Dans ce processus, l'hamiltonien du système atomique est considéré comme faiblement perturbé par le champ externe. Par ailleurs, on considère que l'absorption de photons implique uniquement des transitions dipolaires électriques (de type E1), impliquant des règles de sélection (sur le moment angulaire et la parité). Par con-

séquent, seule une partie des états propres du système peut participer à la superposition pour former l'état intermédiaire virtuel.

Le calcul de la probabilité d'ionisation multiphoton par la théorie des perturbations montre d'une part qu'elle est proportionnelle l'intensité I du champ laser amenée à la puissance du nombre N de photons absorbés :

$$p \propto I^N \quad (1.1)$$

D'autre part, la probabilité totale du processus à N photons est le produit des probabilités d'absorption 1 photon entre les états virtuels successifs. La probabilité d'absorption 1 photon d'un état virtuel à un autre est proportionnelle au temps de vie du niveau de départ. Ce temps de vie est inversement proportionnel à l'écart d'énergie entre le niveau virtuel et le niveau stable le plus proche. Cette probabilité dépend donc hautement de la proximité des niveaux virtuels aux niveaux réels. Dans le cas où un niveau virtuel correspond à un niveau réel, elle est considérablement accrue et on observe une résonance.

1.1.1.3 Spectre en énergie des électrons libérés

A partir d'intensités $I \approx 10^{12} W.cm^{-2}$, le champ laser fournit aux électrons une énergie supplémentaire à l'énergie d'ionisation nécessaire à leur libération. En ayant absorbé un nombre n de photons nécessaires puis s photons supplémentaires au-dessus du seuil, ils auront acquis dans le continuum une énergie égale à :

$$E_c = (n + s) \hbar\omega - I_p \quad (1.2)$$

I_p est le potentiel d'ionisation de l'atome et $\hbar\omega$ l'énergie des photons absorbés. Dans le spectre d'énergie, on observe donc des pics d'électrons liés à l'ATI, et séparés de l'énergie $\hbar\omega$ (figure 1.8). Comme I_p varie en raison du fait que la force pondéromotrice du champ induit un décalage des niveaux d'énergie, l'énergie des électrons libérés dépend non seulement du nombre de photons absorbés, mais également de la valeur du champ à sa libération. Par conséquent, les pics d'ATI possèdent une certaine largeur.

La structure d'un pic ATI peut s'avérer lisse comme dans la figure 1.8 en l'absence de résonance avec un niveau d'énergie réel. En présence de résonances, la structure du pic ATI ressemble alors à celle de la figure 1.9. On observe alors des pics de résonance associés à un niveau réel par lequel l'électron transite.

Lorsque l'intensité du laser augmente, le spectre s'étale vers des énergies de plus en plus élevées. En régime multiphoton, son étendue peut aller de quelques eV à plusieurs dizaines d' eV . Il existe un autre effet croissant avec l'intensité du champ : la force pondéromotrice du champ qui provoque l'élargissement des niveaux atomiques (effet Stark) et des pics ATI. L'importance de son rôle dans le comportement des électrons au cours de l'ionisation détermine le régime d'ionisation dans lequel nous nous situons. Vers des intensités $I \approx 10^{14} W.cm^{-2}$, on observe un recouvrement mutuel des pics ATI (figure 1.10). A des intensités plus élevées encore, on observe la disparition de pic, laissant place à un spectre continu.

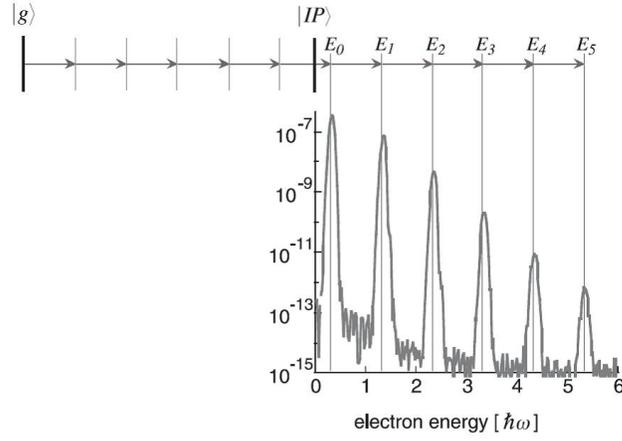


Figure 1.8: Spectre d'énergie des électrons après ionisation multiphoton. Au-delà de $I = 10^{12} W.cm^{-2}$, les électrons absorbent un nombre de photons supplémentaires après libération, d'où la présence de pics espacés de l'énergie $\hbar\omega$ des photons absorbés. [9]

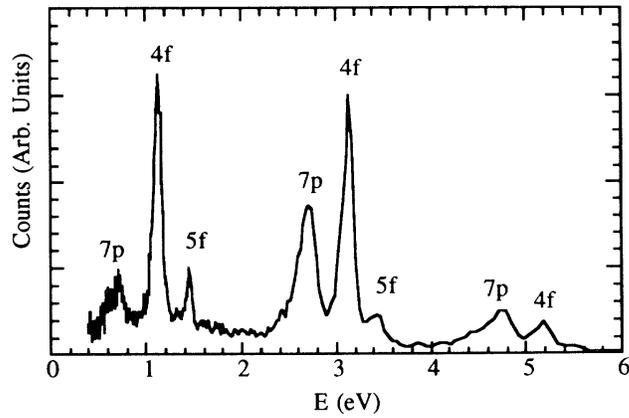


Figure 1.9: Structure du pic ATI à $I = 6, 2 \times 10^{13} W.cm^{-2}$ et $\lambda = 617 nm$ comportant des pics de résonances. Les pics liés au même niveau atomique résonant sont espacés par une énergie $h\nu$. cf. [71].

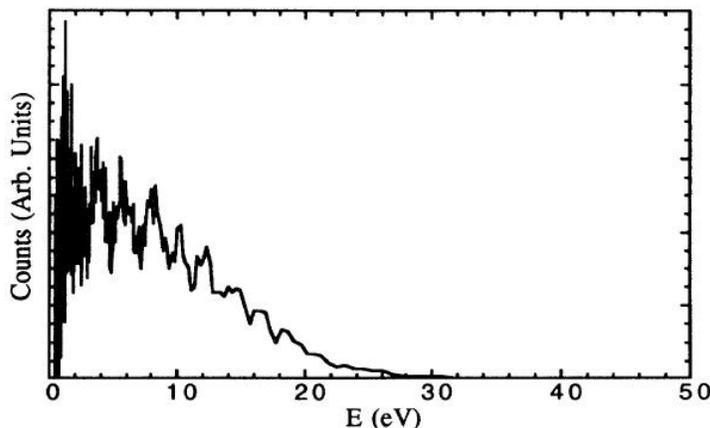


Figure 1.10: Spectre en énergie des électrons arrachés pour le néon à $I = 6 \times 10^{14} \text{W.cm}^{-2}$. On observe toujours l'ATI mais dans un background important. cf. [71]

1.1.2 Ionisation par effet tunnel (TI)

Depuis le développement par G.Gamow en 1928 d'un modèle de désintégration alpha des noyaux par effet tunnel, l'idée d'ionisation par effet tunnel fait son chemin dans le cas d'atomes. Oppenheimer, la même année, explique l'autoionisation d'atomes d'hydrogène par l'effet tunnel dans le cas de champs continus. Après l'avènement des lasers, Keldysh développe en 1965 une théorie sur l'ionisation par effet tunnel dans un champ variable, en considérant un puits de potentiel [53], dans le cas d'atomes hydrogénoïdes. L'ionisation par effet tunnel est observée pour la première fois avec un laser de CO_2 , de radiation infrarouge à $\lambda = 10,6 \mu\text{m}$ [18]. Par la suite, les progrès des lasers de puissance (Nd:Verre, Ti:saphir,...) permettront d'observer le phénomène dans la gamme du visible sur des gaz rares [7].

1.1.2.1 Principe

L'ionisation par effet tunnel (en anglais *Tunneling Ionization (TI)*) s'explique, non par l'absorption de photons comme pour la MPI, mais par l'action d'un champ intense sur les atomes. Lorsque ce champ entre en compétition avec les champs atomiques, il induit une déformation de la barrière de potentiel atomique (représentée dans la figure 1.11).

Le schéma 1.11 illustre la configuration dans laquelle la barrière de potentiel se trouve sous l'action d'un champ, et déclenchant le phénomène d'ionisation par effet tunnel. On note qu'il s'agit d'une projection à 1 dimension. La courbe en noir constitue la barrière de potentiel en l'absence de champ externe. L'électron à l'état d'énergie $-\epsilon_i$ n'a aucune chance de franchir cette barrière car elle possède une épaisseur infinie. En revanche, si l'on applique un champ suffisamment intense (courbe bleue), la barrière se retrouve déformée (rouge). Si l'électron passe de l'état (1) lié à un état (2) du continuum, il y a conservation de l'énergie du système. Ce passage nécessite le franchissement de la barrière de potentiel. En mécanique classique, ce franchissement est impossible car l'électron en (1) ne possède

pas l'énergie cinétique suffisante (E_c). En revanche, la mécanique quantique permet un tel franchissement, que l'on appelle l'effet tunnel.

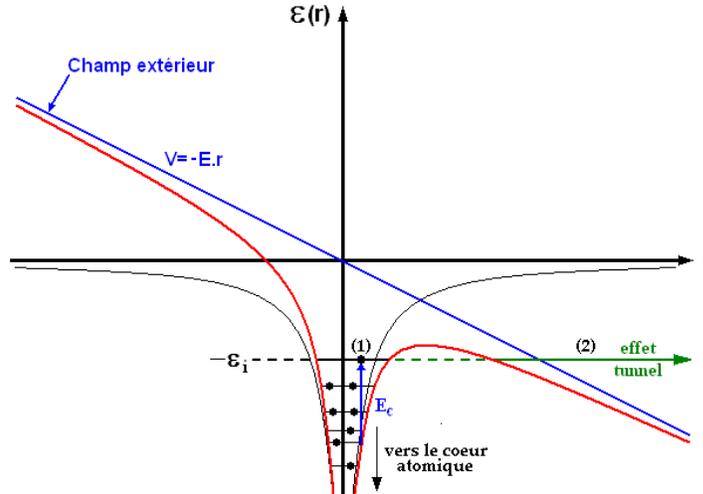


Figure 1.11: Forme de la forme de potentielle atomique, lorsque soumise ou non à un champ extérieur intense.

L'ionisation par effet tunnel est observée à *champ fort*. Les intensités de rayonnement requises sont de l'ordre de $I \sim 10^{14} - 10^{15} \text{ W/cm}^2$ pour un atome neutre, ordre de grandeur à partir duquel le champ laser commence à entrer en compétition avec les champs atomiques. Le processus d'ionisation s'effectue sur des échelles de temps de l'ordre de 10^{-15} s , ainsi pour qu'il puisse se produire le champ doit être de *basse fréquence* (infrarouge ou en deçà pour un atome neutre).

1.1.2.2 Probabilité d'ionisation : le modèle ADK

La théorie développée par Keldysh figure comme la base de la théorie de l'ionisation par effet tunnel. Elle fournit entre autres la probabilité d'ionisation par effet tunnel sous l'effet d'un champ d'atomes se trouvant dans leur état fondamental. Par la suite, Ammosov, Delone et Krainov poursuivent ses travaux pour affiner la formule dans des cas plus complexes que celui de l'hydrogène, et développent le modèle dit alors *ADK*. La théorie a été étendue à l'ionisation à partir d'état excités en 1966 par Peremelov *et al* [76], puis modifiée pour l'adapter au cas d'atomes et d'ions complexes par Ammosov *et al* [4] (1986). Dans la version d'Ammosov, la probabilité d'arracher par effet tunnel un électron se trouvant dans le sous-niveau aux nombres quantiques (n^*, l, m) , dans un champ électrique instantané $E(t)$ entre les instant t et $t + \delta t$, est définie par :

$$\delta P = \frac{\omega_{at}}{2} C_{n^*}^2 \frac{\epsilon_i}{\epsilon_h} \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{(|m|!(l-|m|)!)} \left[2 \left(\frac{\epsilon_i}{\epsilon_h} \right)^{3/2} \frac{E_{at}}{E(t)} \right]^{2n^*-|m|-1} \exp \left\{ -\frac{2}{3} \left(\frac{\epsilon_i}{\epsilon_h} \right)^{3/2} \frac{E_{at}}{E(t)} \right\} \delta t \quad (1.3)$$

ϵ_i est l'énergie d'ionisation de l'ion et ϵ_h celle de l'hydrogène. E_{at} et ω_{at} sont respectivement les unités de champ et de fréquence atomiques. Ammosov *et al* introduisent la constante $C_{n^*} = \left(\frac{2e}{n^*} \right)^{n^*} (2\pi n^*)^{-1/2}$, où $e = \exp(1)$, $n^* = \frac{Z}{\sqrt{\epsilon_i/\epsilon_h}}$ correspond au nombre quantique principal effectif (après écrantage) pour un atome de numéro atomique Z , l au nombre quantique orbital, et m au nombre quantique magnétique. Dans le régime tunnel, la probabilité d'ionisation varie donc exponentiellement avec l'inverse de la valeur du champ électrique :

$$w \propto \exp \left\{ -\frac{2}{3} \left(\frac{\epsilon_i}{\epsilon_h} \right)^{3/2} \frac{E_{at}}{E(t)} \right\} \quad (1.4)$$

Cette formule est valide dans le cas où la période d'oscillation du rayonnement laser est beaucoup plus longue que le temps moyen de franchissement de la barrière par l'électron. Lorsque ce n'est pas le cas, la probabilité d'ionisation va également dépendre de la fréquence laser ω .

On peut noter que la formule ADK ne prend pas en compte la possibilité de recombinaison de l'électron libéré vers son atome d'origine, ce qui arrive lorsque la polarisation du champ est linéaire. Par ailleurs, Pert fait remarquer que la probabilité pour l'atome ionisé de se retrouver dans un état excité est négligeable [79].

1.1.2.3 Spectre des électrons libérés

Le graphique 1.12 ci-dessous nous montre un spectre en énergie dans le régime OFI. On observe sur cette figure que ce spectre s'étend vers des énergies plus élevées qu'en régime multiphoton (figure 1.10). Les pics ATI et de résonance, caractéristiques de l'ionisation multiphoton, disparaissent, laissant place à un profil plus continu.

1.1.3 Ionisation au-dessus de la barrière (ABI)

1.1.3.1 Principe

L'*ionisation au-dessus de la barrière* ou *Above-Barrier-Ionization* en anglais (*ABI*) est un phénomène qui a été relativement peu étudié comparativement à la MPI et à l'effet tunnel. Il résulte de l'abaissement de la barrière de potentiel atomique par un champ externe, à un niveau tel que l'électron lié de la couche périphérique se retrouve au-dessus du sommet de cette barrière. Ce processus est différent de l'ionisation par effet tunnel, au cours de laquelle l'électron ne surmonte pas la barrière mais la franchit.

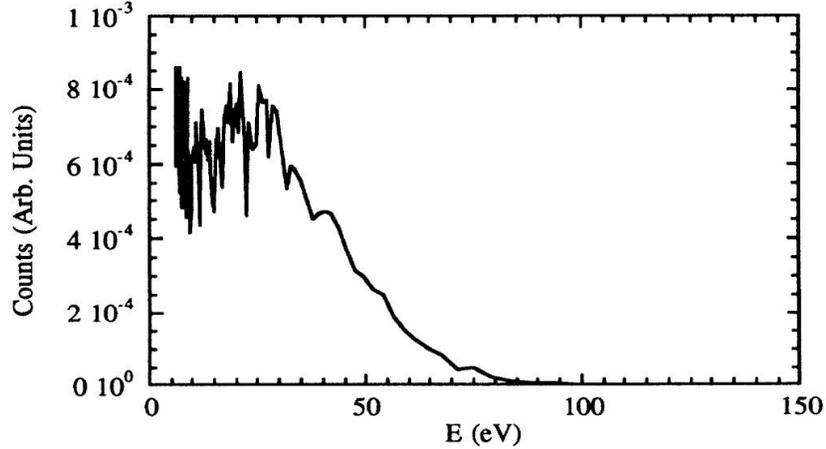


Figure 1.12: Spectre des électrons libérés après OFI en polarisation rectiligne sur un gaz cible d'Hélium à $I = 1,5.10^{15}W.cm^{-2}$ [71]

Au début des années 90, Augst pense observer pour la première fois le phénomène d'ABI [6] et s'appuie sur un modèle dit d'*Ionisation par Suppression de Barrière (BSI/Barrier-Suppression Ionization)*. Plus tard, Delone et Krainov développeront un modèle BSI avec une approche quantique [56] et stipuleront que dans les expériences de Augst, c'est l'ionisation par effet tunnel qui s'est produite [26], avant que la barrière de potentiel ne se soit abaissée.

Pour obtenir un tel processus, le champ externe doit être plus intense que pour l'ionisation par effet tunnel, à énergie d'ionisation ϵ_i équivalente. L'obstacle à la libération d'un électron lié d'un certain niveau d'énergie représenté par cette barrière de potentiel doit cette fois-ci être éliminé (figure 1.13).

1.1.3.2 Le modèle d'ionisation par Suppression de Barrière (BSI)

Le modèle BSI est un modèle hydrogénoïde où le champ laser, variable, est considéré comme classique. Si un électron lié se retrouve au-dessus de la barrière, il lui faut très peu de temps pour s'échapper en dehors de l'influence des champs atomiques : l'échelle de temps caractéristique d'ionisation est de l'ordre de la période de rotation de l'électron autour du noyau, $\tau \sim 10^{-17}s$. Cette échelle de temps est à comparer avec la période d'oscillation du champ laser de rayonnement infrarouge. A une longueur d'onde de $800nm$, la période d'oscillation vaut $T \simeq 2,66.10^{-15}s$. Par conséquent, le champ peut être considéré comme quasi-statique.

Le modèle classique BSI définit un seuil d'intensité au-dessus duquel on observe l'ionisation. On considère un champ électrique constant et de magnitude E . L'énergie potentielle effective (en unités atomiques) d'un électron lié en présence d'un champ externe s'exprime en fonction du rayon r de son orbite :

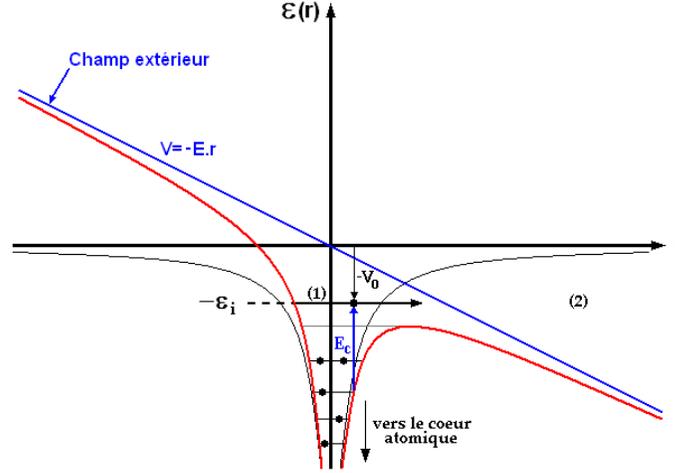


Figure 1.13: Pour obtenir de l'ionisation par suppression de barrière, l'électron lié en (1) doit se retrouver au-dessus de la barrière de potentiel (rouge) qui a été abaissée par l'influence du champ extérieur (bleu). L'électron en (1) possède une énergie cinétique E_c suffisante pour se libérer.

$$V_{eff} = \frac{L^2}{2r^2} - \frac{Z}{r} - rE \quad (1.5)$$

L est le moment angulaire, Z la charge atomique effective et $-rE$ l'énergie électrostatique de l'électron dans le champ appliqué. En fixant $L = 0$, on obtient le potentiel vu par l'électron et on calcule la position r_{max} sur l'axe radial du sommet de la barrière de potentiel :

$$r_{max} = \sqrt{Z/E} \quad (1.6)$$

Le potentiel V_{max} du sommet de la barrière vaut donc :

$$V_{max} = -2\sqrt{ZE} \quad (1.7)$$

Plus le champ E du laser est important, plus le sommet de la barrière de potentiel s'en retrouve abaissé. Pour provoquer l'ionisation au-dessus de la barrière, cette dernière doit s'abaisser jusqu'en-dessous du potentiel de l'électron dans l'atome $-\epsilon_i$. Pour cela, la valeur seuil E_{seuil} du champ électrique doit, d'après 1.7, atteindre :

$$E_{seuil} = \frac{\epsilon_i^2}{4Z} \quad (1.8)$$

L'énergie d'ionisation, dans un modèle hydrogénoïde, peut être ramenée à une fonction de Z et prend, en unités atomiques, l'expression suivante (état 1S):

$$\epsilon_i = \frac{Z^2}{2} \quad (1.9)$$

L'intensité seuil I_{seuil} correspondante vaut :

$$I_{seuil} = \frac{c}{8\pi} E_{seuil}^2 = \frac{Z^6}{256} I_{at} \quad (1.10)$$

I_{at} est l'unité atomique d'intensité et vaut $I_{at} \sim 3.10^{16} W.cm^{-2}$. Dans ce modèle classique, l'électron n'a une probabilité de s'ioniser que s'il se retrouve au-dessus de la barrière : cela signifie que si $I < I_{seuil}$, la probabilité d'ionisation est nulle, et que pour des valeurs de $I > I_{seuil}$, la probabilité passe directement à 1. Pour décrire de façon plus réaliste le phénomène de suppression de barrière, un traitement quantique des interactions doit être réalisé. Le mouvement de l'électron lié est décrit par une fonction d'onde dans le champ environnant (équation de Schrödinger dépendante du temps). Avec cette approche, la probabilité d'ionisation prend une évolution beaucoup plus progressive à l'approche du seuil. D'autre part, 2 autres phénomènes ne sont pas pris en compte dans un modèle classique, limitant la formule précédente de l'intensité seuil :

- Une partie des électrons est réfléchi au niveau du sommet de la barrière de potentiel vers l'intérieur de l'atome (Scattering).
- L'effet Stark dû au champ laser décale les niveaux atomiques ce qui a pour conséquence de modifier le potentiel d'ionisation des atomes donc la valeur de l'intensité seuil.

1.1.4 Paramètre de Keldysh

On souhaite déterminer la limite entre les régimes tunnel et multiphoton. L'intensité du champ électrique incident et sa fréquence ω figurent comme les 2 paramètres déterminants. Dans la théorie développée par Keldysh [53], le temps que met l'électron pour traverser la barrière de potentiel est évalué. Tout d'abord, l'épaisseur l de la barrière de potentiel vaut :

$$l = \epsilon_i / eE_0 \quad (1.11)$$

Il donne également la vitesse moyenne de l'électron dans son niveau d'énergie (fondamental) à $E = -\epsilon_i$:

$$v = \sqrt{2\epsilon_i / m_e} \quad (1.12)$$

où ϵ_i est l'énergie d'ionisation, e la charge élémentaire, m_e la masse de l'électron, et E_0 l'amplitude du champ électrique. A l'aide de ces 2 grandeurs physiques, on peut en déduire le temps moyen t de traversée de la barrière :

$$t = l/v = \frac{\sqrt{\epsilon_i m_e / 2}}{eE_0} \quad (1.13)$$

On souhaite comparer la fréquence d'ionisation à la fréquence d'oscillation ω du champ laser. On ramène alors le temps de traversée de la barrière de potentiel en un terme de fréquence ω_t :

$$\omega_t = \frac{eE_0}{\sqrt{2m_e\epsilon_i}} \quad (1.14)$$

La comparaison des grandeurs ω et ω_t est importante. Si le champ électrique alterne trop rapidement, l'électron est ramené vers le centre de l'atome avec le franchissement de

la barrière. Pour observer l'effet tunnel, la période d'oscillation du champ doit donc être beaucoup plus longue que le temps de franchissement de la barrière, soit $\omega \ll \omega_t$. Par conséquent, le phénomène d'effet tunnel est observé à *basse fréquence* (comme l'Infrarouge). Un paramètre dit *d'adiabaticité* ou *de Keldysh*, noté γ et défini par le rapport entre les 2 fréquences, détermine dans quel régime on se trouve :

$$\gamma = \frac{\omega}{\omega_t} = \omega \frac{\sqrt{2m_e \epsilon_i}}{eE_0} \quad (1.15)$$

Lorsque $\gamma^2 \ll 1$, c'est le régime *tunnel* qui est observé. Pour des valeurs $\gamma^2 \gg 1$, c'est le régime *multiphoton*. Dans le premier cas, l'amplitude du champ E_0 a son importance. Dans le second, c'est sa fréquence d'oscillation ω . γ peut aussi s'écrire :

$$\gamma = 0,023 \sqrt{\frac{\epsilon_i (eV)}{I (10^{16} W cm^{-2}) \lambda^2 (\mu m)}} \quad (1.16)$$

On retrouve dans cette équation le paramètre $\xi = I\lambda^2$, qui est le paramètre principal pour définir le domaine de l'interaction laser-plasma. Notons en particulier que ξ détermine le régime relativiste, qui dans les unités indiquées dans l'équation 1.16 correspond à $\xi > 100$, soit des intensités supérieures à $10^{18} W cm^{-2}$ pour des longueurs d'onde proches du micron. Nous ne considérons dans cette thèse que des intensités plus faibles, c'est-à-dire que nous restons dans le domaine non-relativiste.

On peut aussi donner au paramètre γ une interprétation purement énergétique. L'énergie cinétique moyenne d'un électron oscillant dans un champ harmonique est donnée par :

$$\epsilon_K = \frac{m_e \langle v_e^2 \rangle}{2} = \frac{e^2 E_0^2}{2m_e \omega^2}, \quad (1.17)$$

d'où :

$$\gamma = \sqrt{\frac{\epsilon_i}{\epsilon_K}}. \quad (1.18)$$

On remarquera que dans le cas où $\gamma^2 \ll 1$, $\epsilon_K \gg \epsilon_i$. On comprend ainsi que pour être dans le régime tunnel, l'énergie des électrons ionisés devra être nettement supérieure à l'énergie d'ionisation de l'atome.

1.2 Application au cas du laser X-UV

Le *laser de pompe* responsable de la création du plasma siège de l'amplification laser X-UV est une impulsion laser infrarouge $\lambda = 810 nm$ ($\hbar\omega = 1.54 eV$) d'intensité $I \sim 10^{16}$ à $10^{17} W.cm^{-2}$ et de durée $\tau = 35 fs$. Dans cette partie, nous allons déterminer dans quel régime nous nous situons, et verrons quelle intensité est nécessaire pour générer un milieu amplificateur d'ions lasants Xe^{8+} ou Kr^{8+} , selon le gaz cible considéré.

1.2.1 Modèle d'ionisation utilisé

D'après la formule du paramètre de Keldysh 1.15, comme la fréquence du laser ω et l'énergie d'ionisation des atomes du gaz ϵ_i sont connues et invariantes, γ dépend uniquement de l'intensité du champ électrique du laser de pompe. Nous verrons dans le chapitre traitant la physique atomique qu'aussi bien pour Xe que pour Kr, la raie laser concerne l'état d'ionisation 8+. Le gaz étant initialement neutre, les atomes doivent donc s'ioniser 8 fois au passage du laser IR. En tenant compte de la valeur de l'énergie d'ionisation dans les cas du xénon ($\epsilon_i = 106.6eV$ pour le Xe^{7+}) et du krypton ($\epsilon_i = 123eV$ pour le Kr^{7+}), l'intensité du champ pour la dernière ionisation correspondant à la limite $\gamma = 1$ entre les 2 régimes vaut environ :

$$I_0 \simeq 2.5 \times 10^{13} W.cm^{-2} \quad (2.19)$$

L'intensité maximale du laser IR atteignant $10^{17} W.cm^{-2}$, on se trouve dans le régime *tunnel*. L'ionisation se produit donc, soit par effet tunnel à travers la barrière de potentiel, soit après suppression de cette barrière. Nous allons voir qu'en fait, l'ionisation par effet tunnel est toujours le processus dominant, comme indiqué dans l'étude de Delone et Krainov [26]. Pour le comprendre, il faut suivre le processus d'interaction de l'impulsion IR avec les atomes sur toute sa durée. Nous avons trois temps caractéristiques : le temps atomique $\tau_a \approx 10^{-17} s$, la période du champ $\tau_L \approx 10^{-15} s$, et le temps caractéristique de variation de l'amplitude du champ $\tau_A \succ 10^{-14} s$. Il y a donc plus d'un ordre de grandeur entre chaque temps. Nous prenons l'exemple d'un champ polarisé linéairement.

$\tau_L > 10\tau_a$ indique que le nuage électronique va suivre de façon quasi-adiabatique les variations du champ.

$\tau_A > 10\tau_L$ indique que nous pouvons appliquer l'approximation de l'enveloppe lentement variable, l'amplitude du champ varie peu, sur une période.

Le premier point important à savoir est que l'ionisation va se produire de manière séquentielle. En effet, la probabilité d'ioniser simultanément plusieurs électrons est négligeable, en raison du potentiel répulsif entre les électrons mais aussi de la probabilité quasi nulle d'ioniser en couche interne. La TI et l'ABI se produisent à partir d'intensités seuils (pour la TI, nous allons le mettre en évidence par la suite). Par conséquent, les électrons sont ionisés les uns après les autres au fur et à mesure que l'amplitude du champ augmente.

En raison de l'enveloppe du champ lentement variable, ces intensités seuils vont être dépassées à l'approche du maximum d'amplitude des oscillations du champ (amplitude proche de celle de l'enveloppe). Sur un quart de période d'oscillation (environ $\tau_L/4$) entre le moment où l'amplitude est nulle et celui où elle est maximale, nous souhaitons savoir ce qui se produit, au fil des oscillations. Au départ aux premières oscillations, l'amplitude est faible et le processus dominant est la MPI. La probabilité de ce processus sur τ_A étant très faible, il ne se passe rien. Ensuite, l'amplitude des oscillations augmente et la probabilité d'ionisation aussi. On finit par atteindre la limite où la TI, dont la probabilité croît exponentiellement avec l'amplitude du champ, devient plus efficace que la MPI. A cette limite, la probabilité d'ionisation sur $\tau_L/4$ est encore faible, mais évolue donc très rapidement. Au cours d'une des oscillations suivantes, la probabilité de ionisation par TI sur $\tau_L/4$ finit par être proche de

1, et ce avant même qu'on n'entre dans le régime de suppression de barrière (ABI). L'atome s'ionise donc par TI avant même qu'il puisse s'ioniser par ABI. Une fois l'atome ou ion ionisé, la probabilité d'ionisation de l'ion créé chute car l'énergie d'ionisation est plus grande que pour l'état de charge inférieur. Néanmoins, on reste dans le domaine de la TI. L'ionisation suivante aura lieu au cours d'une des oscillations suivantes où l'amplitude maximale sera plus grande, et ainsi de suite, jusqu'à atteindre l'ionisation maximale obtenue pour la valeur maximale de l'amplitude. L'ionisation par effet tunnel (TI) est donc le seul processus à considérer pour décrire l'ionisation du gaz. Par conséquent, nous utiliserons le modèle ADK dans nos calculs dans le cas du laser X-UV.

1.2.2 Résultats

On utilise la formule de Perelomov 1.3 du modèle ADK. Pour rappel, la probabilité d'ionisation exprimée dans cette formule est proportionnelle à :

$$\delta P \propto \exp \left\{ -\beta \frac{\epsilon_i^{3/2}}{E(t)} \right\} \delta t \quad (2.20)$$

où ϵ_i est l'énergie d'ionisation, $E(t)$ le champ électrique, et β un coefficient. Pour obtenir l'ionisation, l'exponentielle de la formule 2.20 déterminant la probabilité pendant l'instant δt doit être grande. Cela revient à dire que le champ doit dépasser la valeur seuil $E = \beta \epsilon_i^{3/2}$. L'intensité du champ à atteindre dépend donc de l'énergie d'ionisation ϵ_i de l'atome ou ion.

1.2.2.1 Résultat sur la probabilité d'ionisation

Dans le modèle ADK, on suppose que les électrons sont éjectés de l'atome un par un, avant que le degré d'ionisation final ne soit atteint. Afin d'arriver à l'état de charge requis (8+), les atomes passent par tous les états de charge intermédiaires, de 1+ jusqu'à 8+. Voici ci-dessous un tableau listant les énergies d'ionisation ϵ_i jusqu'à l'état de charge 8+ pour du xénon et du krypton :

Xe	$\epsilon_i(eV)$	Kr	$\epsilon_i(eV)$
0 \longrightarrow 1+	12.13	0 \longrightarrow 1+	13.99
1+ \longrightarrow 2+	21.21	1+ \longrightarrow 2+	24.36
2+ \longrightarrow 3+	32.12	2+ \longrightarrow 3+	36.95
3+ \longrightarrow 4+	38.30	3+ \longrightarrow 4+	53.00
4+ \longrightarrow 5+	51.50	4+ \longrightarrow 5+	65.00
5+ \longrightarrow 6+	64.20	5+ \longrightarrow 6+	78.00
6+ \longrightarrow 7+	91.40	6+ \longrightarrow 7+	111.0
7+ \longrightarrow 8+	106.6	7+ \longrightarrow 8+	123.0
8+ \longrightarrow 9+	175.2	8+ \longrightarrow 9+	230.9

On note que l'énergie d'ionisation croît à mesure que l'état de charge de l'ion à ioniser augmente. Par conséquent, d'après l'équation 1.14, le degré d'ionisation maximal va dépendre hautement de l'intensité maximale du champ électrique. A partir de la formule de Perelomov 1.3, on peut représenter graphiquement la probabilité d'ionisation en fonction de l'intensité I de ce champ pour des espèces ioniques successives. Dans le cas du Xe^{7+} et du Xe^{8+} , cela donne :

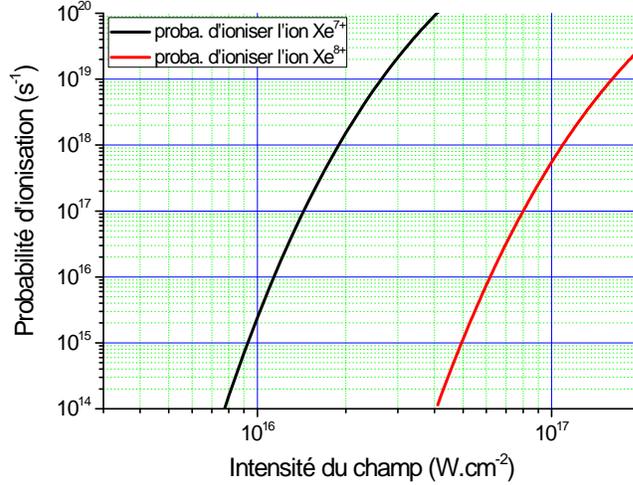


Figure 1.14: Probabilité d'ionisation des ions Xe^{7+} et Xe^{8+} en fonction de l'intensité du champ électrique.

On remarque que la probabilité d'ioniser d'un ion augmente de manière exponentielle avec l'intensité du champ électrique. A une intensité donnée, une espèce ionique de degré Q pourra donc être rapidement ionisée alors que l'espèce d'état de charge $Q+1$ aura une probabilité quasi nulle de l'être sur la durée d'impulsion laser IR. Par exemple, le graphique 1.14 nous montre qu'à $I = 2 \times 10^{16} W.cm^{-2}$, la probabilité d'ionisation atteint $10^{19} s^{-1}$ pour le Xe^{7+} , alors qu'elle est bien inférieure à $10^{14} s^{-1}$ pour le Xe^{8+} . Sur une période d'oscillation du laser IR ($T \simeq 2,66 fs$), voire sa durée d'impulsion ($\tau_{IR} = 35 fs$), le degré d'ionisation atteint par les ions sera de $8+$.

1.2.2.2 Degré d'ionisation final en fonction de l'intensité du champ

On retrouve dans la figure 1.15 la description de l'ionisation par le laser IR en polarisation linéaire faite précédemment : les espèces ioniques sont successivement ionisées au cours du passage d'une impulsion laser ayant une polarisation linéaire. La polarisation linéaire nous amène à prendre en compte les oscillations du champ électrique. Comme une oscillation du champ s'effectue sur $2,66 fs$, et étant donné les probabilités d'ionisation élevées ($10^{17} s^{-1}$) une fois dépassé l'intensité seuil, une ionisation a le temps de se produire en moins d'une

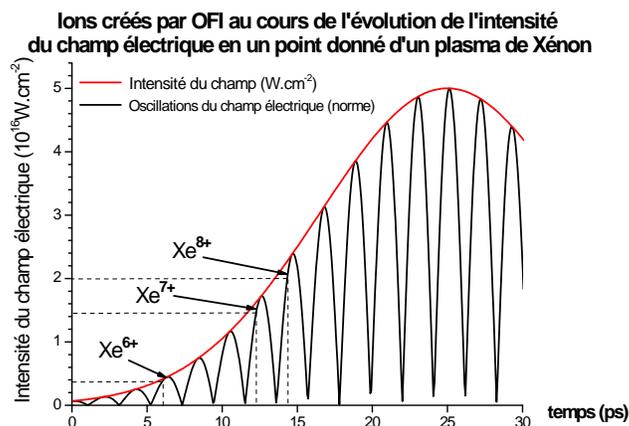
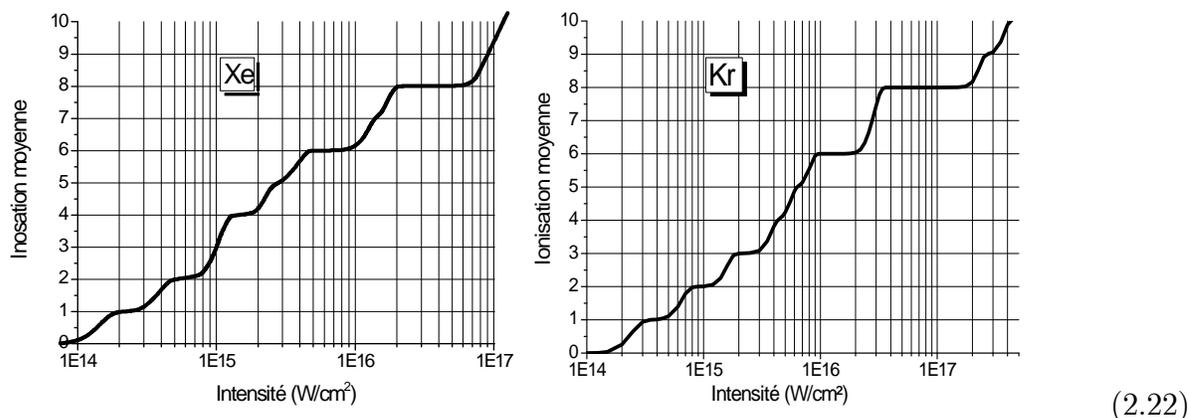


Figure 1.15: Description de l'ionisation sur le profil temporel de l'impulsion IR

période d'oscillation. Dans le cas d'une polarisation circulaire, l'amplitude instantanée du champ correspond à celle de son enveloppe.

Le degré d'ionisation obtenu après passage du laser de pompe dépend donc exclusivement de l'intensité maximale I_{max} de l'impulsion laser. On a représenté les courbes 2.22 du degré d'ionisation final moyen du gaz cible calculés avec le modèle ADK pour le Krypton et le Xénon, en fonction de l'intensité I_{max} du champ laser IR de 35fs de durée d'impulsion qui l'a traversé.



(2.22)

Dans les 2 courbes 2.22, on peut observer des plateaux plus ou moins grands. Leur présence traduit l'écart entre les énergies d'ionisation ϵ_i de chaque espèce ionique présente. Plus l'écart entre 2 espèces ioniques successives Q et $Q+1$ est important, plus le plateau correspondant à l'espèce ionique Q est grand. C'est le cas par exemple de l'état de charge

8+. Dans le cas du xénon, d'après le tableau des énergies d'ionisation 2.21, l'énergie ϵ_i double quasiment par rapport à celle du Xe^{7+} (175eV contre 107eV) ce qui le rend difficile à ioniser. Cette difficulté vient du fait que la dernière couche atomique occupée par les électrons de ces ions est une *couche complète* ($4d^{10}$). C'est également le cas du Kr^{8+} ($3d^{10}$). Le Xe^{8+} est donc une espèce stable sur un grand intervalle d'intensité, entre $I_{max} = 2 \times 10^{16} W.cm^{-2}$ et $I_{max} = 7 \times 10^{16} W.cm^{-2}$, ce qui est remarquable. Le Kr^{8+} l'est tout autant, entre $I_{max} = 3.5 \times 10^{16} W.cm^{-2}$ et $I_{max} = 2 \times 10^{17} W.cm^{-2}$. Dans l'optique de créer un maximum d'ions lasants à partir du gaz cible, cela constitue un avantage. Lorsque le laser IR se propage dans ce gaz cible, il perd peu à peu de son intensité en raison de l'ionisation par champ, mais également de la divergence du faisceau. En estimant que la valeur I_{max} décroît exponentiellement au cours de la propagation dans le gaz, on trouve que les ions générés se répartissent de la manière suivante :

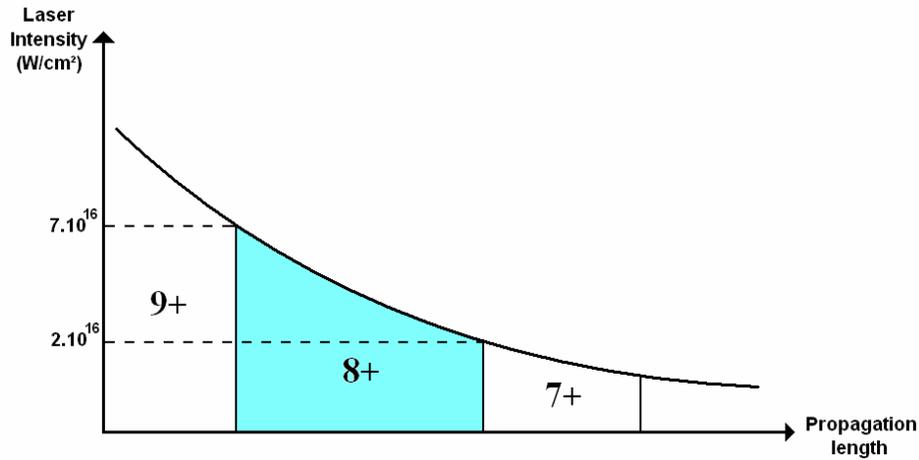


Figure 1.16: Evolution du degré d'ionisation atteint au cours de la propagation du laser de pompe dans le gaz cible.

La stabilité de l'ion lasant trouve ici tout son sens. Plus le plateau d'intensité où l'ion lasant est créé est large, plus la longueur de milieu amplificateur sera importante.

1.3 Chauffage du plasma par le laser de pompe

L'étude du chauffage des ions et des électrons induit par le laser de pompe après OFI est importante car elle va permettre de déterminer la vitesse initiale de ces particules. A partir de ces données sera déduite la physique du plasma pour les instants ultérieurs. Nous verrons dans le chapitre dédié à la cinétique du plasma, que les temps caractéristiques de collision électron-ion et électron-électron (qui dépendent de la densité du gaz) sont dans tous les cas envisagés supérieurs à la picoseconde. On peut donc raisonnablement supposer que durant

l'interaction laser IR- gaz cible, les collisions jouent un rôle négligeable. Le chauffage par le laser de pompe donne donc les conditions initiales à la cinétique du plasma.

1.3.1 Chauffage des électrons

Nous avons vu au cours de la section précédente que le laser de pompe, au-delà d'ioniser le gaz cible, induisait aussi un chauffage des électrons par ATI. Le chauffage peut se faire également par collisions entre les électrons mis en mouvement par le champ et les ions, phénomène que l'on nomme *Bremsstrahlung Inverse* (BI). Nous exposerons en fin de partie les résultats du code OFI-0D, qui permet de déterminer la fonction de distribution en énergie (FDE) des électrons dans des plasmas de Xe^{8+} et de Kr^{8+} créés par OFI.

1.3.1.1 Chauffage par ATI

Après ionisation, l'électron libéré est accéléré par la force du champ IR jusqu'à ce que ce dernier l'ait complètement traversé. A la fin, l'électron va acquérir de l'énergie dans toutes les directions possibles sur le plan de polarisation. Un tel phénomène, appliqué à l'ensemble des électrons du plasma, constitue un chauffage (anisotrope car sur ce plan de polarisation). Et comme il ne concerne que des électrons individuels en interaction avec le champ externe, il ne dépend pas de la pression du gaz.

Le mouvement induit aux électrons par le laser de pompe (ATI) après ionisation par effet tunnel a été premièrement étudié par [20]. Quelques approximations, énoncées dans l'article de Pert [79] simplifient le problème :

- Les électrons sont relâchés indépendamment les uns des autres.
- Chaque électron est relâché au repos à la phase du champ électrique correspondant à l'instant d'ionisation [20]. A partir de cet instant on considère que l'électron ne subit que l'influence du champ électrique et est accéléré (le champ ionique est négligeable devant le champ de l'onde E.M.. Cette approximation, basée sur des calculs utilisant l'équation de Schrödinger dépendante du temps, est en bon accord avec les résultats expérimentaux [48].
- Les collisions secondaires de l'électron avec son ion d'origine sont négligées. Ces collisions ne concernent que le cas d'une polarisation du laser de pompe linéaire. Leur effet est faible car l'électron a une grande énergie lorsqu'il revient sur l'ion. De plus, pour le peuplement par collision de l'inversion de population entre les deux niveaux lasants, nous verrons qu'il est préférable d'utiliser une polarisation proche de la polarisation circulaire.

Par ailleurs, on considèrera que le champ IR incident est une onde plane.

Mouvement dans un champ laser d'un électron initialement au repos

Pour calculer la vitesse de l'électron libéré après passage du laser de pompe, on étudie d'abord la vitesse d'un électron libre isolé sous l'effet d'un champ intense, depuis $t = -\infty$ jusqu'à $t = +\infty$, qui est définie comme la "quiver velocity" \vec{v}_q (vitesse de dérive).

Initialement, cet électron a une vitesse nulle : $\vec{v}_q(t = -\infty) = \vec{0}$. En présence du champ électrique, sa vitesse peut être décrite par l'équation :

$$\frac{d\vec{v}_q}{dt} = \frac{q}{m_e} \vec{E}(t) \quad (3.23)$$

Soit un champ électrique $\vec{E}(t)$ de polarisation linéaire (parallèle au vecteur-unité \vec{e}_x). Si le profil temporel de son enveloppe est une gaussienne parfaite, il peut s'exprimer de la forme suivante :

$$\vec{E}(t) = E_0 \cos(\omega t + \varphi) \exp(-t^2/\tau^2) \vec{e}_x \quad (3.24)$$

On souhaite calculer la vitesse de l'électron après passage de l'impulsion laser. En appliquant la formule 3.23, et en considérant l'enveloppe du champ lentement variable par rapport aux oscillations ($\tau \gg 1/\omega$), on en déduit le mouvement de l'électron au cours du temps, en déphasage de $\pi/2$ avec le champ électrique :

$$\vec{v}_q(t) = \int_{-\infty}^t q E_0 \cos(\omega t) \exp(-t^2/\tau^2) \vec{e}_x \simeq \frac{q}{m_e \omega} E_0 \sin(\omega t + \varphi) \exp(-t^2/\tau^2) \vec{e}_x \quad (3.25)$$

On en déduit que :

$$\vec{v}_q(t = +\infty) = \vec{0} \quad (3.26)$$

La vitesse finale de l'électron après passage de l'impulsion (à $t = +\infty$) est, tout comme la vitesse initiale, nulle. Le passage du champ ne modifie donc pas la vitesse d'un électron libre initialement au repos. Il n'y a pas de transfert d'énergie.

Mouvement d'un électron libéré à l'instant d'ionisation t_i

On considère maintenant un électron atomique libéré à l'instant t_i dans le continuum, prenant la vitesse \vec{v}_e . Selon la seconde approximation formulée, à cet instant t_i , sa vitesse est nulle :

$$\vec{v}_e(t_i) = \vec{0} \quad (3.27)$$

A partir de cet instant, cet électron va subir la même variation de mouvement dans le champ que celle d'un électron libre :

$$\frac{d\vec{v}_e}{dt} = -\frac{e}{m_e} \vec{E}(t) \quad (3.28)$$

La vitesse acquise par l'électron à $t > t_i$ peut être déduite en ajoutant la vitesse de dérive \vec{v}_q calculée précédemment :

$$\vec{v}_e(t > t_i) = \vec{v}_e(t_i) + (\vec{v}_q(t > t_i) - \vec{v}_q(t_i)) \quad (3.29)$$

Après passage du laser de pompe ($t = +\infty$), à partir de cette formule et de l'égalité 3.27, on trouve que la vitesse de l'électron libéré vaut :

$$\vec{v}_e(t = +\infty) = -\vec{v}_q(t_i) \quad (3.30)$$

Influence de la polarisation ϕ du laser de pompe sur $\vec{v}_e(t = +\infty)$

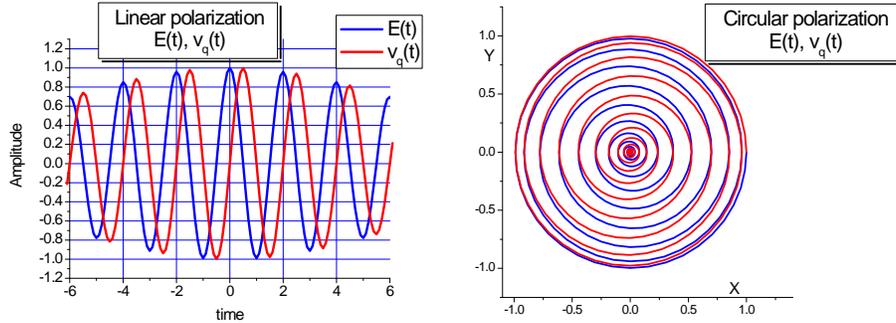
On rappelle, d'après la formule de Perelomov 1.3, que la probabilité d'ionisation dépend du champ électrique appliqué aux ions. Plus la norme $|\vec{E}(t)|$ a une valeur élevée, plus la probabilité d'ionisation est forte.

La norme du champ électrique $|\vec{E}(t)| = E(t)$ peut être mise sous la forme suivante en fonction de la polarisation ϕ :

$$E(t) = E_0 \sqrt{\frac{1}{2} + \left(\phi - \frac{1}{2}\right) \cos(2\omega t)} \quad (3.31)$$

Dans le cas d'une polarisation linéaire ($\phi = 1$), la norme oscille entre 0 et E_0 . Un électron a le plus de chance d'être libéré lorsque le champ électrique se trouve au maximum d'amplitude des oscillations. Dans le cas d'une polarisation circulaire ($\phi = 0.5$), la norme du champ est constante quelque soit sa phase.

Les 2 graphiques ci-dessous représentent l'amplitude de \vec{v}_q et le champ électrique $\vec{E}(t)$ dans le cas à gauche d'une polarisation linéaire du laser de pompe, et à droite d'une polarisation circulaire :



Pour la polarisation linéaire ($\phi = 0$), on a représenté l'évolution de v_q et $E(t)$ projections des vecteurs sur l'axe de polarisation (Ox) en fonction du temps. On remarque que $\vec{v}_q = 0$ lorsque le champ est maximal ($E = E_0$). Comme la probabilité d'ioniser est la plus grande à ce moment là, la vitesse acquise v_q par les électrons éjectés sera relativement faible par rapport à la vitesse de dérive maximale possible v_{qmax} : $v_q \ll v_{qmax} = \frac{qE_0}{m_e\omega}$ (dédit de l'expression 3.25).

Dans le cas d'une polarisation circulaire ($\phi = 0,5$), on doit représenter \vec{v}_q et $\vec{E}(t)$ sur les 2 dimensions qui constituent le plan de polarisation. Sur la figure dédiée à la polarisation circulaire, on a donc l'évolution des normes $v_q(t)$ et $E(t)$ en fonction de leurs projections sur les axes (Ox) et (Oy). Cela nous permet de constater que ces 2 normes n'oscillent pas autour de zéro comme c'était le cas en polarisation linéaire, mais restent à peu près constantes sur une oscillation (en supposant l'approximation de l'enveloppe lentement variable). Par conséquent, si $E(t)$ reste constant sur une oscillation, la probabilité d'ioniser au cours de cette oscillation reste constante, la vitesse de dérive vaut $v_q = \frac{qE_0}{\sqrt{2}\omega m_e}$.

Si on compare les vitesses de dérives pour les 2 cas à amplitude de l'enveloppe du champ identique, les électrons accélérés par un laser de pompe en *polarisation circulaire* sont en moyenne beaucoup plus rapides qu'en *polarisation linéaire*. Le chauffage sera aussi plus important. Nous verrons dans le chapitre III consacré à la cinétique que pour obtenir un gain optimal du milieu amplificateur, les électrons libres doivent dépasser un seuil d'énergie pour provoquer le pompage de la raie laser. Il s'avère que l'énergie de ces électrons est optimale dans le cas d'une polarisation circulaire, alors qu'en polarisation linéaire, peu d'électrons libres dépassent ce seuil d'énergie.

1.3.1.2 Chauffage par Bremsstrahlung Inverse (BI)

Il existe un autre type de chauffage des électrons induit par le passage du laser de pompe : le *Bremsstrahlung Inverse*. Dans notre cas, il se produit lorsque tout électron de dérive (*quiver electron*) oscillant dans le champ laser entre en collision avec un ion. En effet, sa vitesse qui, avant passage du laser de pompe, est de $\vec{v}_e = \vec{v}_q(t = -\infty) = \vec{0}$, va se modifier lors de la collision et finir non nulle lorsque l'impulsion laser a fini de se propager. L'énergie de rayonnement absorbée par l'électron se transforme alors en énergie thermique.

L'effet du Bremsstrahlung Inverse a été étudié entre autres par Pert [78] dans un plasma soumis au champ IR. Le changement de température induit par le Bremsstrahlung Inverse dépend de la densité ionique et de la durée de l'impulsion laser. La figure 1.17 montre que, pour une impulsion de 100 fs, ce chauffage (courbe "*Collision*") ne devient significatif comparé au chauffage par ATI (courbe "*ATI*") qu'à partir de densités supérieures à $10^{18} cm^{-3}$, ce qui n'est pas notre cas. On peut donc relativiser l'importance de ce processus dans le cas de faibles pressions comme celles qui dominant dans notre gaz cible ($N \sim 10^{17} cm^{-3}$).

1.3.2 Résultat OFI-0D

1.3.2.1 FDE en fonction de I_{max}

Les graphiques 1.18 (à gauche) et 1.19 (à droite) ci-dessous montrent des courbes de FDE (fonction de distribution en énergie) des électrons dans le cas du xénon et du krypton une fois les électrons éjectés, pour différentes intensités I_{max} du laser du pompe.

Pour les 2 gaz, la FDE est fortement non Maxwellienne : on peut observer dans la figure 1.18, selon la courbe, la présence ou non de 2 pics d'électrons situés à des énergies autour de $1000eV$ et se recouvrant mutuellement en raison de leur largeur, et celle d'1 pic d'électrons à $250eV$.

La courbe noire des 2 graphiques décrit la FDE engendrée par un laser de pompe d'une intensité $I_{max} = 6 \times 10^{15} W.cm^{-2}$ pour le Xe et $1,5 \times 10^{16} W.cm^{-2}$ pour le Kr. Ces intensités correspondent à la création des espèce ioniques Xe^{6+} et Kr^{6+} . Les courbes rouge et bleue

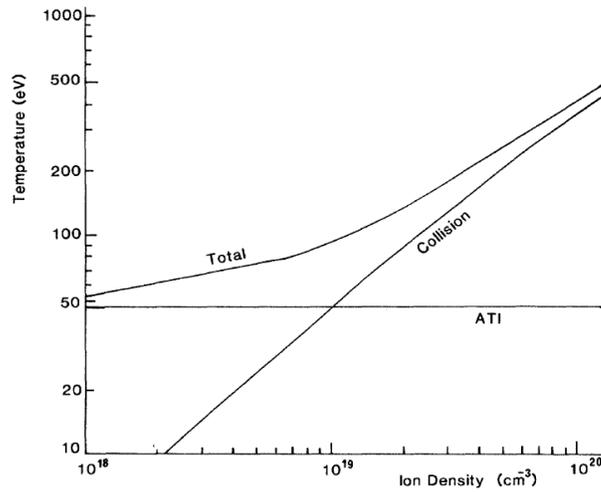


Figure 1.17: Dépendance de la température électronique après OFI en fonction de la densité d'ions, pour un gaz de néon traversé par une impulsion de 100fs, d'intensité $I = 2.5 \times 10^{17} W.cm^{-2}$ et de longueur d'onde $\lambda = 0.248\mu m$. La courbe *Collision* correspond à la hausse de température due au BI, comparée à celle due au chauffage par ATI (courbe *ATI*)

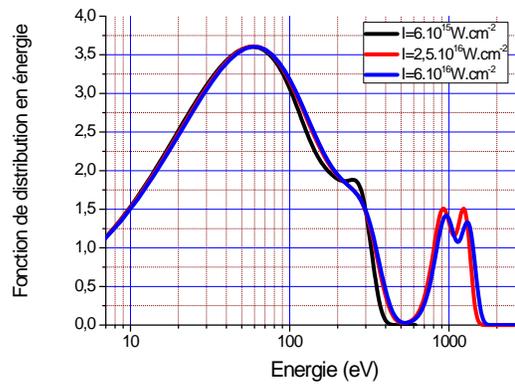


Figure 1.18: FDE des électrons induite par un laser de pompe de polarisation circulaire ($\phi = 0,5$), à différentes valeurs de I_{max} , dans un gaz cible de Xénon.

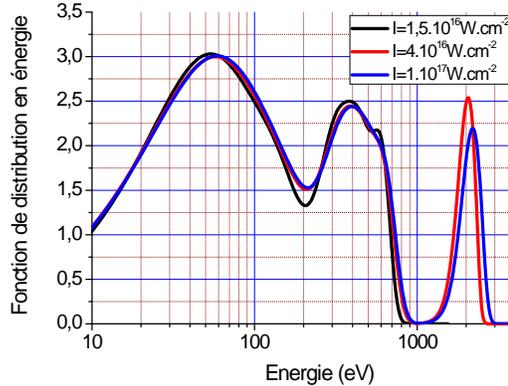


Figure 1.19: FDE des électrons induite par un laser de pompe de polarisation circulaire ($\phi = 0,5$), à différentes valeurs de I_{\max} , dans un gaz cible de Krypton.

correspondent à la création du Xe^{8+} dans le graphique de gauche et Kr^{8+} dans celui de droite.

On remarque que les courbes bleue et rouge sont quasiment identiques pour le Xe comme pour le Kr. En revanche, la courbe noire se différencie de ces dernières : elle ne comporte pas de pics autour de $1000eV$ pour le Xe et $2000eV$ pour le Kr. Ces pics d'électrons correspondent donc aux électrons arrachés lors de l'ionisation des états de charge $6+$ et $7+$. On en conclut que le spectre dépend du degré d'ionisation obtenu et que pour un même degré d'ionisation, il est pratiquement indépendant de l'intensité maximale.

L'explication peut être trouvée dans la manière dont sont ionisées les espèces ioniques : le degré d'ionisation final des ions dépend, comme le montrent les graphiques 1.18 et 1.19, de l'intensité I_{\max} atteinte par le laser de pompe. Cette dernière doit atteindre une intensité seuil à laquelle l'ionisation se produit immédiatement par rapport au temps de montée en intensité de l'impulsion laser (voir graphique 1.15). Or, les équations 3.25 et 3.30 montrent que la vitesse acquise par l'électron est proportionnelle à l'amplitude du champ électrique. L'énergie des électrons éjectés de la même espèce ionique est donc à mettre en relation avec l'intensité seuil d'ionisation de l'espèce ionique correspondante. Cela explique pourquoi les courbes rouge et bleue sont identiques alors que leur I_{\max} est différent, et également le fait que la FDE s'étend vers des énergies plus élevées pour le Kr, qui est un atome plus difficile à ioniser.

1.3.2.2 FDE en fonction de la polarisation ϕ

La courbe suivante montre la FDE des électrons dans le cas du Xénon pour différentes polarisations du laser de pompe : $\phi = 0,1$ (quasi-linéaire), $\phi = 0,25$ et $\phi = 0,5$ (circulaire). On observe que les électrons ont en moyenne une énergie plus élevée lorsque la polarisation est circulaire (courbe bleue). Le double pic autour de $1000eV$ est beaucoup plus important que pour une polarisation linéaire (courbe noire). Cette tendance est cohérente avec la

conclusion qui a été établie lors de l'étude de l'ATI en fonction de la polarisation, à savoir que la vitesse de dérive à l'instant d'ionisation t_i , $\vec{v}_q(t_i)$, est beaucoup plus importante en polarisation circulaire qu'en polarisation linéaire.

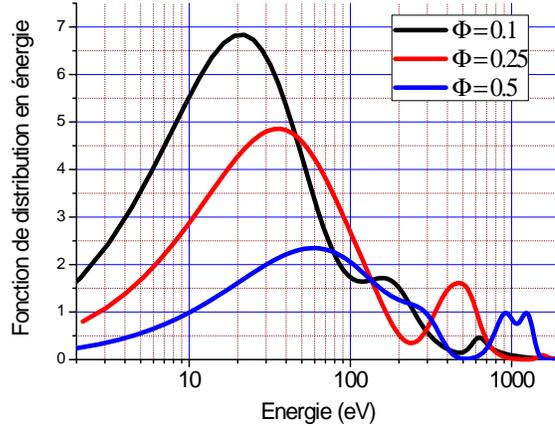


Figure 1.20: FDE des électrons d'un plasma de Xe^{8+} induite par le laser de pompe pour $I_{max} = 5.10^{16} W.cm^{-2}$, à différentes valeurs ϕ de la polarisation.

1.3.3 Chauffage des ions

Dans cette partie, nous évaluons, comme pour les électrons, le chauffage des ions induit par le laser de pompe. Les 2 différences par rapport aux électrons sont que l'énergie des atomes avant leur ionisation (donnée par la température du gaz) n'est plus nulle, et que l'atome, amené à devenir un ion multichargé, va subir plusieurs étapes dans son changement de vitesse (une par ionisation) avant d'atteindre son degré d'ionisation maximal.

1.3.3.1 Principe du chauffage par le laser de pompe

Le chauffage des ions se base sur le même principe que pour le chauffage des électrons par ATI : l'atome neutre va s'ioniser au passage du laser de pompe, puis va se mettre en mouvement sous l'action du champ de ce dernier. La différence avec les électrons dans l'acquisition de ce mouvement est que l'ion va subir plusieurs changements d'état de charge. Le mouvement d'un ion de masse M et de charge $+Qe$ (où Q est le degré d'ionisation et e la charge élémentaire) dans un champ électrique \vec{E} est décrit par l'équation suivante :

$$\frac{d\vec{v}_Q}{dt} = \frac{Qe}{M} \vec{E} \quad (3.32)$$

On peut comparer la vitesse de cet ion à la *vitesse de dérive* \vec{v}_q de l'électron décrite par l'équation 3.23 dans le même champ :

$$\vec{v}_Q = \frac{-Zm_e}{M} \vec{v}_q \quad (3.33)$$

Si l'atome subit plusieurs ionisations le faisant passer d'une charge nulle initiale à une charge finale N , son mouvement est plus complexe à décrire. Comme sa charge change, il en est de même pour son équation du mouvement 3.32. Pour calculer la vitesse finale de l'ion, il faut la calculer à tous les instants d'ionisation t_1, t_2, \dots, t_N où l'ion passe de la charge $Q = i - 1$ à la charge $Q = i$.

Calcul de la vitesse finale à $t = +\infty$

Dans les calculs, on suppose que la vitesse initiale de l'atome est de direction aléatoire et que son module est déterminé à partir de la distribution de Maxwell-Boltzmann à la température du gaz ($\simeq 300$ K). L'atome neutre n'est pas accéléré dans le champ. A l'instant d'ionisation t_1 , sa vitesse n'a pas changé et correspond à sa vitesse initiale \vec{v}_g :

$$\vec{v}_{Q=0}(t = t_1) = \vec{v}_g \quad (3.34)$$

A partir de $t = t_1$ l'atome neutre laisse place à un ion de charge $Z = 1$ qui sera accéléré dans le champ jusqu'à $t = t_2$. En utilisant la formule 3.29 et l'équation du mouvement 3.33 pour $Q = 1$, on calcule la vitesse acquise à l'instant d'ionisation suivant $t = t_2$:

$$\vec{v}_{Q=1}(t = t_2) = \vec{v}_{Q=0}(t = t_1) + \frac{-m_e}{M} [\vec{v}_q(t_2) - \vec{v}_q(t_1)] \quad (3.35)$$

Avec la formule 3.34, cela nous donne :

$$\vec{v}_{Q=1}(t = t_2) = \vec{v}_g + \frac{-m_e}{M} [\vec{v}_q(t_2) - \vec{v}_q(t_1)] \quad (3.36)$$

Si on utilise le même raisonnement pour l'ion de charge $Z = 2$, la vitesse acquise par l'ion à $t = t_3$ vaut :

$$\vec{v}_{Q=2}(t = t_3) = \vec{v}_{Q=1}(t = t_2) + \frac{-2m_e}{M} [\vec{v}_q(t_3) - \vec{v}_q(t_2)] \quad (3.37)$$

En remplaçant 3.36 dans cette formule, on a :

$$\vec{v}_{Q=2}(t = t_3) = \vec{v}_g + \frac{m_e}{M} [-2\vec{v}_q(t_3) + \vec{v}_q(t_2) + \vec{v}_q(t_1)] \quad (3.38)$$

Ainsi de suite, après la i ème ionisation ($t > t_i$), l'ion a acquis la vitesse suivante :

$$\vec{v}_{Q=i}(t) = \vec{v}_g + \frac{m_e}{M} [-i\vec{v}_q(t) + \vec{v}_q(t_1) + \vec{v}_q(t_2) + \dots + \vec{v}_q(t_i)] \quad (3.39)$$

La vitesse finale ($t = +\infty$) de l'ion alors de charge $Z = N$, en sachant $\vec{v}_q(t = +\infty) = 0$, vaut donc :

$$\vec{v}_N(t = +\infty) = \vec{v}_g + \frac{m_e}{M} (\vec{v}_q(t_1) + \vec{v}_q(t_2) + \dots + \vec{v}_q(t_N)) \quad (3.40)$$

On peut conclure de cette formule que l'énergie acquise par les ions sera bien plus faible que celle des électrons, pour 2 raisons :

- L'expression de la vitesse finale de l'ion est la somme vectorielle des vitesses de dérive \vec{v}_q à chaque instant d'ionisation t_i . Comme \vec{v}_q oscille alors que la probabilité d'ionisation reste constante, sa direction à $t = t_i$ est imprévisible. Par conséquent, la vitesse finale est la norme de la somme vectorielle des \vec{v}_q , $\left| \sum_i \vec{v}_q(t_i) \right|$, qui est bien inférieure à la somme des normes $\sum_i |\vec{v}_q(t_i)|$.

- Le facteur m_e/M fait que l'énergie des ions sera bien plus faible. En considérant le xénon ionisé 8 fois ($N = 8$), la masse du noyau vaut $M \approx 139 \times m_{\text{nucléon}} = 2,36.10^{-25} \text{kg}$. Même en considérant $v_N = \frac{Nm_e}{M} v_q$, le ratio énergie moyenne ion / énergie moyenne électron vaut :

$$\frac{E_i}{E_e} = \frac{M \left(\frac{Nm_e}{M} v_q \right)^2}{m_e v_q^2} = \frac{N^2 m_e}{M} \approx 2,43.10^{-2} \quad (3.41)$$

1.3.3.2 Résultat OFI-idist

Au cours de cette thèse, un code (OFI-idist) a été élaboré pour évaluer le chauffage des ions par OFI. Il utilise l'équation 3.40 et reprend une méthode de Monte-Carlo. Les probabilités d'ionisation $P(E(t))$ proviennent de la formule 1.3 de Perelomov.

Le gaz cible est initialement à l'équilibre (direction aléatoire des ions, distribution maxwellienne en énergie) et a une température $T_i = 300K$ ($\simeq 0.025eV$). L'objectif du code OFI-idist est de calculer l'élévation de température ionique associée à l'OFI.

Le graphique (1.20) suivant montre la FDE des ions avant et après passage du laser de pompe en polarisation circulaire dans le cas d'un gaz de cible de Xénon et pour une intensité du laser de pompe $I_{\text{max}} = 4.10^{16} \text{W.cm}^{-2}$. L'ion généré à ces intensités (plus précisément entre 2 et $7.10^{16} \text{W.cm}^{-2}$) est du Xe^{8+} (ion lasant). Une première constatation est que la courbe de la FDE reste plus ou moins Maxwellienne après le passage du laser et que son maximum se trouve à une énergie plus grande. Le calcul de l'énergie moyenne nous donne que l'élévation de température est de l'ordre de $\Delta T \sim 100K$.

La particularité de cette élévation de température est qu'elle dépend, comme pour la température électronique, du degré d'ionisation atteint. La figure 1.22 montre l'évolution du taux d'ionisation et de la température ionique en fonction de I_{max} pour le xénon. On remarque que la température ne s'élève pas tant que le degré d'ionisation reste à $Z = 8$ et vaut $T_i = 400K$.

L'élévation de température ionique induite par le passage du laser de pompe est de $\Delta T = 100K$, soit à peu près $8,6.10^{-3}eV$. Comme prévu par la formule 3.41, c'est une valeur très faible comparée aux quelques centaines d' eV acquis en moyenne par les électrons. Cette température va intervenir lors de l'évaluation de la largeur du gain laser. La température

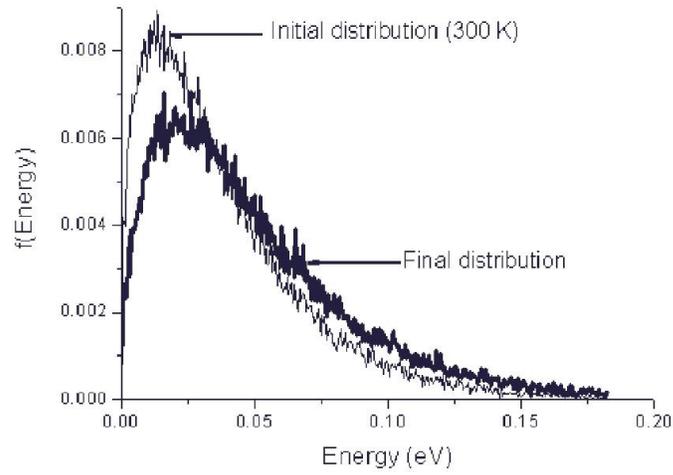


Figure 1.21: FDE des ions avant et après l'OFI pour un gaz cible initial de Xénon, ionisé à l'état de charge 8+

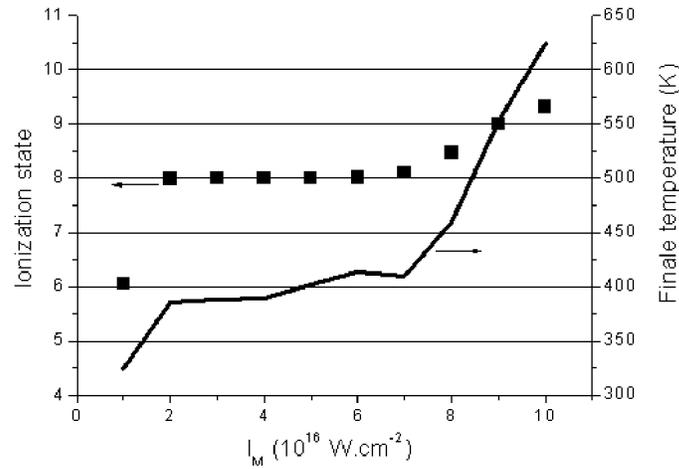


Figure 1.22: Degré d'ionisation (carrés) et température ionique (courbe) atteints par un gaz cible de Xénon après OFI en fonction de l'intensité du laser de pompe (I_M).

ionique induite par OFI va être utilisée pour le calcul de l'effet Doppler associée à une température ionique (d'autres phénomènes interviennent dans le processus de chauffage).

1.4 Conclusion

Dans cette partie, nous avons étudié l'ionisation d'un gaz en interaction avec un champ laser en mettant en évidence les différents processus possibles. Il a été déduit que dans notre cas, le processus largement dominant engendré par le passage du laser de pompe est l'*ionisation par effet tunnel*. A l'aide du modèle ADK, nous avons montré qu'en raison de ce processus et de l'existence d'intensités seuils pour chaque ionisation, le degré d'ionisation atteint en un point du gaz cible est exclusivement fonction de l'intensité maximale I_{\max} atteinte par le laser de pompe en ce point. Il dépend peu de la forme de l'enveloppe de l'impulsion. Nous pouvons donc négliger l'influence de la variation de cette enveloppe au cours de sa propagation pour ne retenir que le seul paramètre I_{\max} . Cette simplification nous permettra de décrire sous forme paramétrique l'évolution de chaque point du plasma. A partir de ce constat, avec une impulsion d'une certaine intensité, il est possible de créer des volumes de plasma contenant pratiquement uniquement des ions lasants comme le Xe^{8+} ou le Kr^{8+} . Ces derniers ont de surcroît la particularité de pouvoir être créés dans un intervalle d'intensités relativement large, c'est-à-dire sur une grande longueur de plasma.

D'autre part, nous avons mesuré le chauffage des particules du plasma engendré par le passage du laser de pompe, principalement par le phénomène d'ATI. Nous avons alors constaté qu'il est beaucoup plus important pour les électrons libres ($\sim 300eV$) que pour les ions ($10^{-2}eV$). Le chauffage des ions induit par le laser n'aura donc pas d'incidence notable sur la physique du laser. Nous verrons en particulier dans le chapitre III que d'autres phénomènes vont provoquer une élévation plus significative de la température ionique. En revanche, le chauffage des électrons libérés à haute température va induire dans le milieu des collisions électron-ion inélastique. Ces dernières, responsables du peuplement des niveaux atomiques de la raie laser dans les ions lasants, vont jouer un rôle essentiel dans le niveau du gain du milieu amplificateur.

Nous avons obtenu également que la FDE des électrons ne dépend que de l'état d'ionisation maximum. Ceci montre que le plasma, dans la région où l'ion lasant est majoritaire, sera très uniforme, les gradients seront donc faibles. L'absence d'inhomogénéité, permet ainsi de supposer qu'il n'y a pas de sources d'instabilités dans le milieu amplificateur.

Le chapitre suivant est consacré à la physique atomique de l'ion lasant qui, couplée à un modèle de cinétique, nous permettra de déterminer l'évolution des populations atomiques de l'ion lasant liée aux collisions électron-ion, à partir de la FDE initiale que nous avons déterminée dans ce chapitre.

Chapitre 2

Physique atomique de l'ion lasant

Les expériences d'OFI sur les gaz rares, notamment sur le Krypton et le Xénon, ont permis de découvrir que ces derniers pouvaient, une fois ionisés à l'état de charge $Q = 8$, produire des raies spectrales lasantes dans la gamme de rayonnement X-UV. Le chapitre I nous a montré que le laser de pompe, au-delà d'ioniser les atomes du gaz cible jusqu'à l'état de charge $Q = 8$, induisait un chauffage des électrons libérés de plusieurs centaines d'eV. Les ions sont également chauffés même si l'élévation de température est bien moins importante (4 ordres de grandeur). Après passage du laser de pompe, des collisions vont donc se produire entre toutes ces particules. Elles se produisent cependant à des échelles de temps différentes. Les collisions électron-ion vont se produire sur une échelle de temps de l'ordre de la picoseconde ($\tau_{ei} \sim 10^{-12}s$), tout comme les collisions électron-électron, alors que les collisions ion-ion se feront sur des temps bien plus longs ($\tau_{ii} \sim 10^{-8}s$), car moins énergétiques, beaucoup plus lourds, et donc beaucoup plus lents.

Dans les picosecondes qui suivent l'OFI, les collisions électron-ion vont jouer un rôle majeur dans l'apparition du milieu amplificateur : elles vont modifier l'état atomique des ions cibles. Initialement, les ions créés se trouvent en grande majorité dans leur état fondamental (voir chapitre I). La raie laser n'est donc pas peuplée et le milieu ne peut amplifier du rayonnement X-UV. L'apparition des collisions électron-ion, à condition que les électrons de collision soient suffisamment énergétiques, va induire un peuplement des niveaux lasants et permettre la création du milieu amplificateur.

L'étude de la physique atomique de l'ion lasant est primordiale si on veut déterminer à quelle mesure ces niveaux lasants seront peuplés au cours du temps. Elle consiste en établir un modèle atomique de l'ion incluant un certain nombre de niveaux atomiques : en déterminant l'ensemble des forces de collision et d'oscillateur entre tous ces niveaux, on peut recalculer tous les taux de transition atomiques possibles entre tous ces niveaux. Ensuite, on utilise ces données dans un modèle collisionnel-radiatif qui va, à partir d'une pression de gaz et d'une FDE électronique initiales, calculer l'évolution au cours du temps de l'ensemble des populations atomiques sous l'effet des transitions atomiques permises.

Les données atomiques de l'ion lasant ne peuvent être déterminées qu'à partir de codes de calcul. Les calculs présentés dans ce chapitre ont été effectués en collaboration avec Jacques Dubau (LIXAM), et réalisés à l'aide de 2 codes de physique atomique, développant chacun une partie de la physique atomique à traiter. Le premier est SUPERSTRUCTURE [32], développé dans les années 1970 en Angleterre. Il est consacré à l'étude de la structure atom-

ique de l'ion lasant et détermine les états d'énergie que ce dernier peut prendre lorsqu'isolé de toute perturbation extérieure, et les taux des transitions radiatives qui peuvent se produire en son sein. Le second code, UCL Distorted-Wave, calcule l'effet d'une collision entre l'ion et un électron incident en fonction notamment de l'énergie de ce dernier. Le calcul aboutit à l'obtention des taux de transition collisionnels.

Dans ce chapitre, nous présenterons dans un premier temps les modèles physiques qui sous-tendent ces 2 codes et traitent la structure atomique et les collisions électron-ion. Dans la seconde partie, les résultats de ces codes dans les cas du Krypton et du Xénon qui ont été utilisés pour le traitement de la cinétique et de l'amplification du laser X-UV seront présentés.

2.1 Etude de la structure atomique (SUPERSTRUCTURE)

2.1.1 Introduction

On entend par étude de la structure atomique, l'étude de l'ensemble des configurations que peuvent former les électrons liés autour de leur noyau, ainsi que des grandeurs physiques du système associées à ces configurations (énergie, moment angulaire...). Dans l'étude de la structure d'un atome, on suppose que ce dernier se trouve isolé de l'extérieur, et on prend le noyau comme référentiel du système.

Pour déterminer la structure d'un atome ou ion, on décrit les interactions entre les particules à l'aide d'un hamiltonien, et l'agencement des électrons liés autour du noyau avec des fonctions d'onde. L'énergie des différentes configurations peuvent être obtenues en utilisant l'équation de Schrödinger. L'objectif est donc de déterminer le plus précisément possible l'hamiltonien atomique et la fonction d'onde des configurations qu'il peut prendre. Nous décrirons dans cette partie les modèles qui sont utilisés par le code SUPERSTRUCTURE.

2.1.1.1 Fonction d'onde

La structure atomique est de nature quantique : les électrons liés ne peuvent se trouver que sur des niveaux d'énergie, formant un ensemble discret. L'évolution de leur position dans l'espace n'est pas définie par une trajectoire classique, mais par une *fonction d'onde orbitale*, notée $\Psi(\vec{x}, t)$, dont le carré donne la distribution spatiale $p(\vec{x}, t)$ de probabilité de présence. Cette propriété nous rappelle d'ailleurs que l'électron est simultanément une particule et une onde.

2.1.1.2 Hamiltonien de l'atome

Pour déterminer le plus précisément cette énergie, on doit prendre en compte de la manière la plus adéquate les interactions qui régissent le système. En regardant la formule 1.42,

on constate que H ne peut pas se développer en une somme $\sum_{i=1}^N$ d'opérateurs mono-électroniques $h_i(r_i)$, à cause des interactions en $1/r_{ij}$. Par conséquent, la fonction d'onde $\Psi(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_N)$ des N électrons ne peut être séparable en un produit de N fonctions d'onde d'électrons individuels. Pour que cela soit le cas, une des idées est de remplacer les potentiels coulombiens, attractif du noyau et répulsifs des électrons, par un potentiel central global moyen agissant sur chacun des électrons.

L'agencement des électrons autour du noyau est déterminé par les interactions coulombiennes qui existent entre les différentes particules du système. L'hamiltonien du système, noté H , permet de décrire l'énergie de ces interactions : en mécanique quantique, il s'agit d'un opérateur qui retourne d'un état quantique, l'énergie E correspondant à cet état. Si on considère N électrons gravitant autour d'un noyau, l'hamiltonien du système à N électrons peut s'écrire de la manière suivante :

$$H = \sum_{i=1}^N \frac{p_i^2}{2} - \sum_{i=1}^N \frac{Z}{r_i} + \sum_{i < j} \frac{1}{r_{ij}}, \quad (1.42)$$

La formule est écrite en unités atomiques : $e = \hbar = m_e = 1$. L'opérateur $p_i^2/2 = -\nabla_i^2/2$ est l'énergie cinétique de l'électron lié i parmi les N électrons du système. $-Z/r_i^2$ est l'énergie potentielle coulombienne attractive du noyau de charge Z sur l'électron i . Enfin, $\sum_{i < j} \frac{1}{r_{ij}}$, avec $r_{ij} = |\vec{r}_i - \vec{r}_j|$, est l'énergie potentielle coulombienne répulsive entre les N électrons.

L'équation de Schrödinger dépendante du temps permet, à partir de l'hamiltonien, de déterminer l'évolution de ce système au cours du temps :

$$H\Psi(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_N, t) = i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_N, t) \quad (1.43)$$

$\Psi(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_N, t)$ est la fonction d'onde qui définit l'état quantique dans lequel se trouve le système à N électrons, au temps t . Cette équation est utilisée pour déterminer les propriétés dynamiques de l'atome. Les propriétés structurelles sont quant à elles déterminées à partir de la recherche des états propres de l'hamiltonien qui vérifie l'équation :

$$H\Psi(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_N) = E\Psi(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_N) \quad (1.44)$$

où $\Psi(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_N)$, la fonction d'onde stationnaire est donc solution de cette équation. E , la valeur propre, correspond à l'énergie du système électronique se trouvant dans la configuration décrite par $\Psi(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_N)$.

2.1.1.3 Résolution de l'équation de Schrödinger

La résolution de l'équation de Schrödinger dans le cas d'ions ayant plus d'un électron n'est jamais un problème simple. On ne peut trouver de solutions, même numériques, dès que le nombre d'électrons dépasse la dizaine. Il est donc nécessaire d'introduire un certain niveau d'approximation. Le problème se complique encore lorsqu'on souhaite introduire des corrections relativistes (hamiltonien de Breit-Pauli, ou de Breit-Dirac).

Dès la découverte de la mécanique quantique, D.Hartree (1928) s'est attaqué au problème numérique de la résolution de l'équation de Schrödinger à plusieurs électrons. Jusqu'à l'apparition des premiers ordinateurs dans les années 1950, il a développé différentes méthodes et techniques qui seront utilisées par la suite pour construire tous les programmes. Parallèlement, il faut citer les travaux de Condon et Shortley [19], de Slater [92] et, pour la partie algébrique seulement, ceux de Racah [84]. Tous les codes qui ont été développés s'appuient sur une méthode variationnelle. Ce qui les différencie est le type de base utilisée et le nombre d'éléments de cette base pris en compte dans le calcul. Dans ces modèles, la fonction d'onde est décrite comme un ensemble de déterminants de fonction d'onde à un électrons. On peut distinguer principalement trois types de codes, en fonction de l'expression des fonctions d'onde à un électron utilisée. Une première approche est basée sur la Théorie de la Fonctionnelle Densité (DFT en anglais). Dans la DFT, le point de départ de la DFT est un résultat exact stipulant que l'énergie libre est une fonctionnelle de la densité. Cette dernière est calculée à partir de fonctions d'onde à un électron qui sont déterminées en introduisant une correction ad hoc appelée potentiel d'échange et corrélation. De nombreuses formes de ce dernier ont été publiées en s'appuyant sur les données expérimentales. La DFT donne d'excellents résultats pour le calcul de structure de molécules complexes. Elle est moins appropriée pour calculer des probabilités de transition. Une deuxième approche utilise des fonctions d'onde entièrement ab initio : "Hartree-Fock" (HF), "Multiconfigurationnel Hartree-Fock" [36], "Dirac-Fock" et "Multiconfigurationnel Dirac-Fock" (MCDF [27], GRASP [35]). Pour obtenir une bonne précision, il est nécessaire dans cette approche d'introduire un nombre important de configurations. Cette approche est donc très gourmande en terme de ressources de calcul. La troisième approche est un mixage des deux premières, la fonction d'onde du système est écrite comme un ensemble de déterminants utilisant des fonctions d'onde à un électron calculées à partir d'un potentiel central paramétrique. Les paramètres du potentiel sont obtenus en minimisant l'énergie totale de l'atome, ce qui permet d'obtenir une bonne précision avec un nombre de déterminants plus faible que dans l'approche de type HF: (CATS [21], SUPERSTRUCTURE [32]; HULLAC [8], FAC [40]. Il faut souligner que dans toutes les méthodes citées, les fonctions d'onde utilisées sont des fonctions de la position de l'électron par rapport au noyau. De ce fait, il est difficile sinon impossible de déterminer les interactions électron-électron avec une très bonne approximation. Sauf à introduire des corrections ad hoc, au cas par cas, la précision de ces codes reste limitée, surtout en ce qui concerne les probabilités de transition. Cependant, il n'existe pas à l'heure actuelle de base de données expérimentales sur l'ensemble des ions lourds du tableau périodique. C'est pourquoi nous avons été contraint de nous appuyer sur un code atomique. Le choix pour nous s'est porté sur le code SUPERSTRUCTURE, justifié principalement par le fait que cela nous a permis de bénéficier de l'aide efficace de Jacques Dubau, qui a beaucoup contribué à l'amélioration de ce code.

2.1.2 Le potentiel central

SUPERSTRUCTURE utilise des potentiels moyens "statistiques" qui sont utilisés pour le calcul des fonctions d'onde à un électron. Ce potentiel simule, pour un électron donné,

l'attraction du noyau et la moyenne des répulsions des autres électrons. L'hamiltonien approché, H_0 , a la forme suivante :

$$H_0 = - \sum_{i=1}^N \left(\frac{\nabla_i^2}{2} + V_i(r_i) \right) \quad (1.45)$$

$V_i(r_i)$ est le potentiel central vu par l'électron i . On définit $Z_i(r_i) = r_i V_i(r_i)$, où $Z_i(r_i)$ est la charge de l'atome vue par l'électron. On s'attend à ce que $Z_i(r_i)$ ait une forme ressemblant à la figure 2.23. En effet, pour $r_i \rightarrow 0$, l'électron ne voit plus que le noyau de charge Z : $Z_i(0) = Z$. Au contraire, pour $r_i \rightarrow \infty$, l'électron voit le noyau écranté par $(N-1)$ électrons : $\lim_{r \rightarrow \infty} Z_i(r) = Z - (N-1)$.

L'expression de l'hamiltonien 1.45 vérifie le fait que les électrons sont indépendants les uns des autres (somme de H_0 sur i). On peut donc séparer cet hamiltonien H_0 en une somme d'hamiltoniens h_i ne portant que sur un électron :

$$H_0 = \sum_{i=1}^N h_i(\vec{x}_i) \quad (1.46)$$

où :

$$h_i(\vec{x}_i) = -\frac{\nabla_i^2}{2} - V_i(r_i). \quad (1.47)$$

A h_i correspond une équation de Schrödinger monoélectronique qui a pour fonction d'onde propre $\varphi_i(\vec{x}_i)$:

$$h_i \varphi_i(\vec{x}_i) = \varepsilon_i \varphi_i(\vec{x}_i) \quad (1.48)$$

$\vec{x}_i = (\vec{r}_i, \sigma_i)$ représente les coordonnées spatiales $\vec{r}_i = (x_i, y_i, z_i)$ et la variable spin ($\sigma_i = \pm 1/2$). La variable spin est, comme x_i , y_i , et z_i , une quantité mesurable expérimentalement. On verra plus tard pourquoi on doit introduire le spin, bien que l'équation précédente ne contienne aucun opérateur agissant sur la variable spin.

Lorsqu'on utilise plusieurs potentiels effectifs, une contrainte est de maintenir l'orthogonalité des fonctions d'onde. Dans SUPERSTRUCTURE, un potentiel effectif est affecté à un nombre quantique azimutal ℓ . De ce fait deux fonctions d'onde radiale, de même ℓ sont bien orthogonales, puisque solution de la même équation de Schrödinger. deux fonctions d'onde radiale de ℓ différents ne sont a priori pas orthogonale, mais la fonction d'onde totale l'est.

2.1.3 Fonction d'onde électronique dans un potentiel central

Le principal avantage d'utiliser un potentiel central est simplement que c'est le seul cas où on peut résoudre "rapidement" l'équation de Schrödinger (ou de Dirac). Il existe pour cela de nombreux codes disponibles. Dans le cas d'un hamiltonien H_0 ne contenant que des potentiels centraux, les électrons n'ont pas d'interaction entre eux et par conséquent la

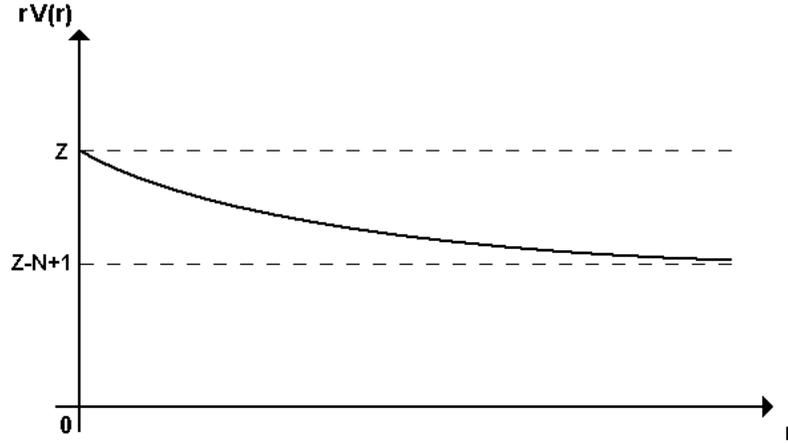


Figure 2.23: Courbe représentant $Z = rV$ la charge vue par un électron en fonction de sa distance r au noyau.

fonction d'onde correspondante, $\psi_0(\vec{x}_1, \vec{x}_2, \vec{x}_3, \dots, \vec{x}_N)$, peut être décomposée en une somme de déterminants de fonctions d'onde φ_i monoélectroniques.

Cette fonction doit être normalisée à un, car son carré est la densité de probabilité de trouver les N électrons en $(\vec{x}_1, \vec{x}_2, \vec{x}_3, \dots, \vec{x}_N)$. On a donc :

$$\int |\psi_0(\vec{x}_1, \dots, \vec{x}_N)|^2 d\vec{x}_1 \dots d\vec{x}_N = 1. \quad (1.49)$$

2.1.3.1 Fonction d'onde monoélectronique

Le problème d'un électron dans un potentiel central $V_i(r_i)$ est connu [70, Chap.IX]. On peut séparer $\varphi_i(\vec{x}_i)$ en parties radiale, angulaire et de spin :

$$\varphi_i(\vec{x}_i) = \frac{P_{n_i l_i}(r_i)}{r_i} Y_{l_i}^{m_{l_i}}(\theta, \varphi) \delta_{m_{s_i}}(\sigma_i) \quad (1.50)$$

r_i est la distance entre l'électron et le noyau, appelé rayon, et θ_i et φ_i sont les 2 angles des coordonnées sphériques (polaires). $\delta_{m_{s_i}}(\sigma_i) = \delta_{m_{s_i} \sigma_i}$ (symbole de Kronecker). $Y_{l_i}^{m_{l_i}}(\theta, \varphi)$ sont les harmoniques sphériques, fonctions bien connues analytiquement. Seule la fonction radiale, $P_{n_i l_i}(r_i)$, est inconnue et obtenue en résolvant numériquement l'équation, appelée *équation radiale*, suivante :

$$\left(\frac{d^2}{dr_i^2} - \frac{l_i(l_i+1)}{r_i^2} + 2V_i(r_i) + 2\varepsilon_{n_i l_i} \right) P_{n_i l_i}(r_i) = 0 \quad (1.51)$$

Cette fonction d'onde monoélectronique est caractérisée par un ensemble de nombres, appelés *nombres quantiques*, n, l, m_l et m_s ($s = 1/2$). Les nombres quantiques l et s sont les

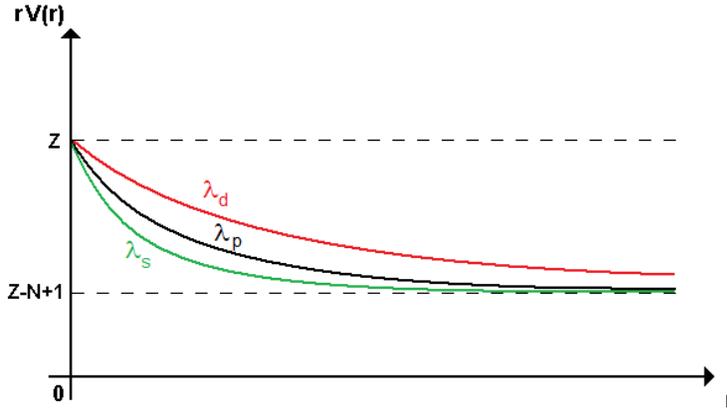


Figure 2.24: Charge vue par l'électron en fonction de sa distance r au noyau, selon sa sous-couche d'appartenance (s,p, ou d). Les λ sont des coefficients modifiant la pente des courbes, à ajuster de manière à minimiser l'énergie de la configuration.

moments angulaires orbital et de spin, et m_l, m_s , leur projections sur l'axe de quantification z . Le nombre n est traditionnellement appelé le *nombre quantique principal*. Pour chaque ensemble, nl correspond à ce qu'on appellera une *orbitale*. C'est une convention de choisir $n \geq l + 1$ et de désigner $l = 0, 1, 2, 3, \dots$ par s, p, d, f, \dots : 1s, 2s, 2p, 3s, 3p, 3d, 4f ... On peut noter que l'équation radiale est la seule équation contenant explicitement l'énergie de l'électron $\varepsilon_{n_i l_i}$. Les fonctions radiales solutions de 1.51 sont orthogonales, c'est-à-dire que leur intégrale de recouvrement est nulle (théorème du Wronskien, Messiah III (42)). On les normalise à 1 et, en général, on les choisit réelles :

$$\int P_{nl}(r)P_{n'l}(r)dr = \delta_{nn'} \quad (1.52)$$

Pour 2 orbitales φ_i de l différents, l'orthogonalité est obtenue grâce aux harmoniques sphériques et aux fonctions de spin, qui sont elles-mêmes orthogonales. Cette dernière propriété permet dans SUPERSTRUCTURE d'utiliser des potentiels différents pour chaque l . Ces potentiels sont dérivés du potentiel de Thomas-Fermi-Dirac-Amaldi (TFDA) de la manière suivante : $V_\lambda(r) = Z^{TFDA}(r/\lambda)/r$. λ , s'appelant le paramètre d'échelle (scaling parameter). Sur la figure suivante, on peut voir 3 courbes de $Z_\lambda(r) = rV_\lambda(r)$ pour 3 valeurs de λ : $\lambda^{(2)} = 1$, correspond au potentiel TFDA; $\lambda^{(1)} < 1$, correspond à un potentiel plus répulsif que TFDA et $\lambda^{(3)} > 1$ à un potentiel plus attractif. On recherche les λ_s ($l=0$), λ_p ($l=1$), et λ_d ($l=2$)... Ils sont obtenus d'une manière auto-cohérente (self-consistent) en minimisant l'énergie de certains termes de l'atome, incluant le fondamental. Ils sont souvent proches de 1 et le potentiel par rapport au potentiel TFDA est plutôt attractif que répulsif.

Lorsqu'on considère les N électrons de l'ion dans leur orbitales respectives, on obtient une *configuration* qui est définie par l'ensemble des $n_i l_i$ de tous les électrons, $C = (n_1 l_1 n_2 l_2 \dots n_N l_N)$.

On peut avoir plusieurs $n_i l_i$ identiques, par exemple $1s^2$: on dit alors qu'on a des *électrons équivalents*.

2.1.3.2 Antisymétrie de la fonction d'onde

Il faut maintenant prendre en compte le fait que les électrons sont des particules indiscernables, c'est-à-dire que si l'on permute les positions de 2 électrons, l'effet est *inobservable*. Pour 2 électrons, cela impose que :

$$|\psi_1(\vec{x}_1, \vec{x}_2)|^2 = |\psi_1(\vec{x}_2, \vec{x}_1)|^2 \quad (1.53)$$

On peut obtenir cela simplement, soit en symétrisant, soit en antisymétrisant les fonctions d'ondes calculées précédemment ?? :

$$\psi_1(\vec{x}_1, \vec{x}_2) = \frac{1}{\sqrt{2}} (\varphi_1(\vec{x}_1) \varphi_2(\vec{x}_2) \pm \varphi_1(\vec{x}_2) \varphi_2(\vec{x}_1)) \quad (1.54)$$

En fait, il faut choisir l'antisymétrisation car les électrons sont des *fermions* : 2 électrons ne peuvent pas être dans le même état quantique, c'est-à-dire avoir les mêmes nombres quantiques n, l, m_l, m_s . Ceci explique, par exemple, qu'il existe des configurations telles que $1s^2 2s^2 2p^6$: la couche $1s$ (ou $2s$) ne peut contenir que 2 électrons équivalents au maximum, et la couche $2p$, 6 électrons équivalents. Par conséquent, les fonctions $\varphi_i(\vec{x})$ doivent toutes être différentes les unes des autres dans la fonction d'onde à N électrons correspondant à un état de la configuration C : $\Psi^C(\vec{x}_1, \vec{x}_2, \vec{x}_3, \dots, \vec{x}_N)$, . L'équation 1.54 pour 2 électrons, se généralise à N électrons. On a alors un déterminant dit de "Slater" :

$$\Psi^C(\vec{x}_1, \dots, \vec{x}_N) = \frac{1}{\sqrt{N!}} \begin{vmatrix} \varphi_1(\vec{x}_1) & \varphi_2(\vec{x}_1) & \dots & \varphi_N(\vec{x}_1) \\ \varphi_1(\vec{x}_2) & \varphi_2(\vec{x}_2) & \dots & \varphi_N(\vec{x}_2) \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ \varphi_1(\vec{x}_N) & \varphi_2(\vec{x}_N) & \dots & \varphi_N(\vec{x}_N) \end{vmatrix} \quad (1.55)$$

Le $1/\sqrt{N!}$ vient de la renormalisation à 1 : $\int |\Psi^C(\vec{x}_1, \dots, \vec{x}_N)|^2 d\vec{x}_1 \dots d\vec{x}_N = 1$. L'énergie de la configuration C pour l'hamiltonien H_0 est :

$$E_0^C = \sum_{i=1}^N \varepsilon_{n_i l_i} \quad (1.56)$$

2.1.4 Ajout d'un opérateur en perturbation

On a supposé que $V_i(r_i)$ était un "bon" potentiel (c'est-à-dire proche de la réalité). On souhaite maintenant améliorer ce modèle en incluant un complément dans l'hamiltonien H , grâce à la théorie des perturbations indépendante du temps [70, Chap.XVI-2] : on considère alors H_0 comme un hamiltonien d'ordre zéro.

$$H = H_0 + W \quad (1.57)$$

L'opérateur W est la perturbation. Il s'exprime comme :

$$W = \sum_{i < j} \frac{1}{r_{ij}} - \sum_i \left(\frac{Z}{r_i} - V_i(r_i) \right) \quad (1.58)$$

L'ajout de l'opérateur W permet une meilleure prise en compte des forces répulsives en $1/r_{ij}$ qui ont réellement lieu entre les électrons de l'atome.

2.1.4.1 Correction de l'énergie de la fonction d'onde monoconfigurationnelle

Tout comme l'hamiltonien, la fonction d'onde doit être corrigée. Cette correction est effectuée à l'aide de la théorie des perturbations. Au premier ordre de perturbation, pour la configuration C_0 , on obtient une correction de l'énergie qui s'obtient directement à partir de la fonction d'onde d'ordre zéro (formule 1.55).

$$E_1^{C_0} = E_0^{C_0} + \langle \Psi^{C_0}(\vec{x}_1, \dots, \vec{x}_N) | W | \Psi^{C_0}(\vec{x}_1, \dots, \vec{x}_N) \rangle \quad (1.59)$$

2.1.4.2 Fonction d'onde multiconfigurationnelle

Dès le premier ordre de perturbation, la fonction d'onde devient multiconfigurationnelle, c'est-à-dire qu'elle contient un mélange de plusieurs configurations. Selon l'importance de ce mélange, deux approximations peuvent être utilisées, soit la méthode de diagonalisation, soit la théorie des perturbations indépendantes du temps. Elles ont des avantages l'une par rapport à l'autre : la première est utilisée dans le code SUPERSTRUCTURE et, la seconde, nous permet de mieux comprendre UCL Distorted Wave.

Correction de la fonction d'onde au 1^{er} ordre

En Structure Atomique, cette méthode est souvent utilisée pour améliorer les énergies des configurations ayant des couches complètes telles que $1s^2$ et $1s^2 2s^2 2p^6$, mais pas $1s^2 2s^2$ qui, comme on le verra, nécessite la méthode de diagonalisation, qui peut être complétée par une méthode perturbative (Many Body Perturbation Theory). Pour que cette méthode soit précise, on doit introduire la *base complète* des configurations de l'hamiltonien, H_0 . Malheureusement, cette base n'est complète (Messiah V-9) qu'en introduisant des orbitales du continu $G_{\varepsilon l}$ (aussi appelée orbitales libres par opposition à orbitales liées), correspondant à des énergies positives, $\varepsilon \geq 0$, dans l'équation 1.51. Comme les orbitales liées, ces orbitales libres sont orthogonales entre elles et avec les orbitales liées. Leur normalisation est fixée par:

$$\int G_{\varepsilon l}(r) G_{\varepsilon' l}(r) dr = \delta(\varepsilon - \varepsilon') \quad (1.60)$$

où $\delta(\varepsilon - \varepsilon')$ est la fonction de Dirac. Comme pour les orbitales liées, on a choisi des fonctions radiales réelles. Ces orbitales n'apparaissent pas dans une somme mais dans une intégrale. Au premier ordre de perturbation, à cause de la forme de W , seules les configurations ayant au maximum 2 orbitales différentes jouent un rôle. Donc, en particulier pour les intégrales libres, on n'aura au maximum que des intégrales doubles. Par exemple pour $C_0 = 1s^2$: $C_i = (1s2s, \dots, 2s^2, 2p^2, 2s3s, \dots, 3d^2, \dots)$, $C_\varepsilon = (1s\varepsilon s, \dots, 2p\varepsilon p, \dots)$, $C_{\varepsilon\varepsilon'} = (\varepsilon s\varepsilon' s, \varepsilon p\varepsilon' p, \dots)$. $\Psi_1^{C_0}$, comme $\Psi_0^{C_0}$, sont de carré sommable, c'est-à-dire que lorsqu'une coordonnée spatiale tend vers l'infini, la fonction d'onde tend vers zéro.

$$\Psi_1^{C_0} = \Psi_0^{C_0} + \sum_{i \neq 0} a_i \Psi_0^{C_i} + \int_0^\infty b(\varepsilon) \Psi_0^{C_\varepsilon} d\varepsilon + \int_0^\infty \int_0^\infty c(\varepsilon\varepsilon') \Psi_0^{C_{\varepsilon\varepsilon'}} d\varepsilon d\varepsilon' \quad (1.61)$$

Ceci sera différent dans le cas des collisions. Au premier ordre de perturbation, on a :

$$a_i = \frac{\langle \Psi_0^{C_i} | W | \Psi_0^{C_0} \rangle}{(E_0^i - E_0^0)}, \quad b(\varepsilon) = \frac{\langle \Psi_0^{C_\varepsilon} | W | \Psi_0^{C_0} \rangle}{(E_0^\varepsilon - E_0^0)}, \quad c(\varepsilon\varepsilon') = \frac{\langle \Psi_0^{C_{\varepsilon\varepsilon'}} | W | \Psi_0^{C_0} \rangle}{(E_0^{\varepsilon\varepsilon'} - E_0^0)}. \quad (1.62)$$

Après avoir déterminé la fonction d'onde au premier ordre, on peut calculer l'énergie jusqu'au deuxième ordre de perturbation :

$$E_2^{C_0} = E_1^{C_0} + \langle \Psi_0^{C_0}(\vec{x}_1, \dots, \vec{x}_N) | W | \Psi_1^{C_0}(\vec{x}_1, \dots, \vec{x}_N) \rangle \quad (1.63)$$

Pour que cette méthode ne soit qu'une perturbation, il faut que le numérateur soit petit ou que le dénominateur soit grand. C'est le cas des couches complètes telles que $1s^2$, car la première configuration, $1s2s$ est déjà très éloignée en énergie de $1s^2$. En fait, dans le cas de $1s^2$, des calculs montrent que les interactions de configuration, même avec un nombre infini de configurations liées, sans continu, n'apportent pratiquement rien (7%). La contribution dominante, à la correction d'énergie du second ordre, vient des doubles-continues (69%), puis des simples-continues (24%).

2.1.5 Diagonalisation de l'hamiltonien

2.1.5.1 Couplage LS

Dans l'équation 1.44, l'énergie E du système est une valeur propre. Si on prend une base restreinte de configurations, le problème de la recherche de valeur et de vecteur propre se réduit au problème de diagonalisation d'une matrice de dimension finie. Après diagonalisation de la matrice H , on obtient les fonctions d'ondes propres multiconfigurationnelles. Pour réduire encore plus la taille des matrices à diagonaliser on utilise la propriété de la conservation des moments angulaires du système total : l'opérateur $1/r_{ij}$ ne donne d'éléments de matrice non-nuls qu'entre des états de même nombres quantiques $LSM_L M_S$, et de même parité totale

$\Pi = (-1)^{\sum l_i}$. On a donc intérêt à coupler les moments angulaires individuels des N électrons pour faire apparaître les moments angulaires totaux. Pour chaque configuration, et à partir des m_{l_i} et des m_{s_i} , on construit des fonctions d'onde LSM_LM_S correspondant aux moments cinétiques (angulaires) totaux et à leur projection respective sur l'axe de quantification. Par exemple, pour 4 électrons on peut prendre les 4 configurations suivantes : $C_1 = 1s^22s^2$, $C_2 = 1s^22p^2$, $C_3 = 1s^22s3s$ et $C_4 = 1s^22p3p$. Ces configurations ont été choisies en raison de leur parité identique, parité paire, et parce qu'elles donnent toutes 1S , c'est-à-dire $S = 0$ et $L = 0$. Dans le cas où l'énergie des configurations pour l'hamiltonien H_0 est proche, comme entre C_1 et C_2 , ainsi qu'entre C_3 et C_4 , un couplage est utile car la méthode des perturbations 1.62 ne peut être utilisée.

2.1.5.2 Diagonalisation de l'hamiltonien non-relativiste

La méthode utilisée par SUPERSTRUCTURE pour la diagonalisation de l'hamiltonien est, en exploitant le couplage LS, de regrouper les états $LSM_LM_S\Pi$ identiques. Le "terme" $LS\Pi$ contient l'ensemble des états M_LM_S , appelés aussi sous-termes. On démontre que tous ces états ont la même énergie non-relativiste : on dit qu'ils sont dégénérés. Pour obtenir les énergies des termes, il suffit donc de diagonaliser l'hamiltonien pour un seul M_LM_S : pour l'exemple précédent (1S), $L = 0$, $S = 0$, $M_L = 0$, $M_S = 0$.

$$H = \begin{pmatrix} H_{11} & H_{12} & \dots & H_{14} \\ H_{21} & H_{22} & \dots & H_{24} \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ H_{41} & H_{42} & \dots & H_{44} \end{pmatrix} \quad (1.64)$$

où :

$$H_{ij} = \langle C_i(\beta_i) L_i S_i M_{L_i} M_{S_i} | H | C_j(\beta_j) L_j S_j M_{L_j} M_{S_j} \rangle \times \delta_{L_i L_j} \delta_{S_i S_j} \delta_{M_{L_i} M_{L_j}} \delta_{M_{S_i} M_{S_j}} \quad (1.65)$$

H_{ij} est une matrice réelle symétrique, donc toujours diagonalisable :

$$H = XhX^t \quad \text{avec} \quad XX^t = X^tX = I$$

où h est la matrice diagonale des énergies propres. On obtient 4 termes propres ayant pour énergies $E(\Gamma SL\Pi)$ $\Gamma = 1..4$. La fonction d'onde multiconfigurationnelle (non-relativiste) s'écrit de la manière suivante :

$$\Psi_{NR}^{MC}(\Gamma SL\Pi M_L M_S | \vec{x}_1 \dots \vec{x}_N) = \sum_{n=1}^4 X_{\Gamma n} \Psi^C(C_n S L M_L M_S) \quad (1.66)$$

X_{kn} s'appelant le coefficient de mélange de configuration-terme. En général, on dénote le terme $\Gamma SL\Pi$ par la forme $C^{2S+1}L$, où C est la configuration dominante du mélange de configurations.

2.1.5.3 Corrections relativistes

Après avoir diagonalisé la matrice non-relativiste de l'énergie entre les configurations, SUPERSTRUCTURE introduit des corrections relativistes dans le formalisme de Breit-Pauli.

Bethe et Salpeter [11] ont séparé ces corrections en deux types : à 1 corps, et à 2 corps. Les corrections à 1 corps ont été obtenues pour la première fois par Pauli (et Darwin) en partant de l'équation de Dirac et en supposant que la vitesse de la lumière tend vers l'infini. La correction de Pauli (à 1 corps) correspond au 1^{er} ordre de perturbation en $1/c^2$ (masse, Darwin, spin-orbite). L'équation de Dirac ne concerne qu'un seul électron dans un potentiel central électrostatique (en général, le potentiel du noyau). Breit a essayé d'obtenir une équation relativiste pour 2 électrons ressemblant à l'équation de Dirac mais a trouvé que c'était impossible. Il a néanmoins essayé de représenter ces effets au 1^{er} ordre de perturbation en $1/c^2$, ajoutés à $1/r_{ij}$ dans l'hamiltonien de Dirac, effets qui correspondent en partie aux potentiels retardés bien connus dans la théorie (non quantique) relativiste. L'hamiltonien obtenu pour 2 électrons est appelée Breit-Dirac. En appliquant la méthode de Pauli à ces corrections relativistes à 2 corps (c'est-à-dire en faisant tendre la vitesse de la lumière vers l'infini), Bethe et Salpeter ont obtenu les corrections suivantes : Darwin 2-corps, orbite-orbite, contact spin-spin, spin-orbite 2-corps, spin-autre orbite, spin-spin. L'hamiltonien complet, non-relativiste plus corrections relativistes, s'appelle Breit-Pauli :

$$H_{BP} = H_{NR} + W_R \quad (1.67)$$

H_{BP} mélange les termes LS . C'est maintenant l'opérateur $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$ qui est conservé, ainsi que $M_J = M_L + M_S$, projection de J sur l'axe de quantification. Il n'y a pas d'interaction entre des états de J et M_J différents. Un "niveau" J regroupe l'ensemble d'états M_J (aussi appelés sous-niveaux). Dans le cas précédent des 4 configurations (C_1, C_2, C_3 et C_4), on obtient 6 niveaux propres pour $J = 0, M_J = 0$ ayant pour énergie $E(\Delta J\Pi)$ ($\Delta = 1..6$). La fonction d'onde (Breit-Pauli) multiconfigurationnelle s'écrit de la manière suivante :

$$\Psi_{BP}^{MC}(\Delta J\Pi M_J | \vec{x}_1 \dots \vec{x}_N) = \sum_{n'=1}^6 Y_{\Delta n'} \Psi^C(C_{n'} L_{n'} S_{n'} J M_J) \quad (1.68)$$

$Y_{\Delta n'}$ s'appelant le coefficient de mélange de configuration-niveau. En général, on écrit le terme $\Delta J\Pi$ sous la forme $C^{2S+1}L_J$, où C est la configuration dominante du mélange. Les 6 niveaux correspondent à $C_1 (^1S_0), C_2 (^1S_0, ^3P_0), C_3 (^1S_0), C_4 (^1S_0, ^3P_0)$.

2.1.6 Autres calculs de données faits par SUPERSTRUCTURE

Utilisant les fonctions d'onde calculées précédemment, SUPERSTRUCTURE calcule ensuite toutes les probabilités radiatives (dipôle-électrique, dipôle-magnétique, quadrupôle-électrique) entre termes (partie non-relativiste), et entre niveaux (partie relativiste). D'autre part, pour des calculs de collision électron-ion, il calcule pour chaque niveau propre les coefficients de mélange de termes (Term Coupling Coefficients, TCC). Ceci permet, dans le code

JAJOM [88], de transformer les éléments de matrice de transition entre termes, obtenues par UCL Distorted-Wave, en éléments de matrice de transition entre niveaux.

2.2 Collision électron-ion

Nous avons évoqué en introduction les différents processus qui pouvaient avoir lieu initialement dans le plasma créé par OFI. Nous en avons conclu que les collisions électron-ion jouaient un rôle essentiel dans l'évolution des populations atomiques après passage du laser infrarouge.

Les collisions électron-ion sont générées par l'interaction entre l'électron-projectile et les électrons de l'ion. En général, les noyaux, beaucoup plus lourds que les électrons, restent pratiquement immobiles pendant la collision. Aussi, quand l'électron s'approche de l'ion, il devient indiscernable des électrons de la cible. Et après collision, l'électron sortant n'est pas obligatoirement celui qui était entré.

Pour bien représenter un tel processus, on peut utiliser un formalisme quantique semblable à celui utilisé en structure atomique. La seule différence est que l'électron projectile a une énergie positive, contrairement aux électrons de la cible.

2.2.1 Interaction électron-ion

2.2.1.1 Hamiltonien

Pour décrire l'interaction entre un électron et un ion, on reprend l'hamiltonien non-relativiste, mais pour $(N + 1)$ électrons :

$$H_{N+1} = H_N + h_{N+1} + W \quad (2.69)$$

A l'hamiltonien de la cible H_N , on ajoute donc celui de l'électron-projectile h_{N+1} "presque isolé". Ce caractère "presque isolé" s'explique dans notre cas par le fait que la cible est ionique : l'électron-projectile voit asymptotiquement (à $r_{N+1} \rightarrow \infty$) un potentiel coulombien ionique de charge $z = Z - N$. Ce potentiel d'interaction (qui représente une énergie) doit donc être inclus dans l'hamiltonien h_{N+1} pour éviter des divergences dites coulombiennes. A ces 2 hamiltoniens, on a également ajouté l'hamiltonien W décrivant l'interaction projectile-cible et dont l'expression est la suivante :

$$W = \sum_{i=1}^N \frac{1}{r_{iN+1}} - \frac{N}{r_{N+1}} \quad (2.70)$$

Comme dans le cas des états liés, les fonctions d'onde du système à $N + 1$ électrons doivent être antisymétriques. Elles ne peuvent plus être normalisées à 1, car l'électron projectile entre et sort de la région d'interaction, puis continue jusqu'à l'infini. Dans le cas des collisions, il

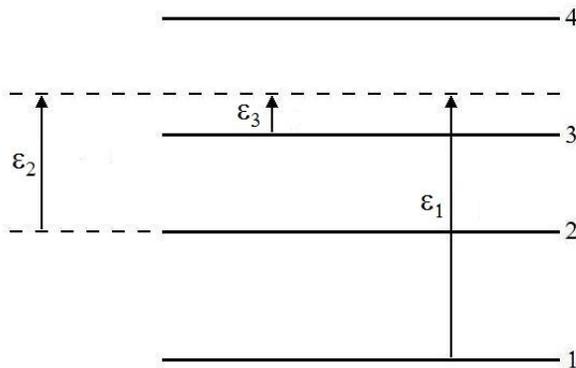


Figure 2.25: Diagramme montrant 4 niveaux d'énergie successifs d'un atome subissant une collision, se trouvant dans le niveau d'énergie 2. Avec un électron incident possédant une énergie ε_2 , l'électron sortant peut, selon la transition produite se retrouver avec une énergie ε_1 , ε_2 , ou ε_3 .

est utile de normaliser les fonctions d'onde en flux incident d'électrons projectiles par unité de surface.

L'état non-relativiste de la cible est défini par $\alpha_i \equiv (\Gamma_i(E_i)L_iS_iM_{L_i}M_{S_i})$ 1.66, avec E_i l'énergie de la cible, et L_i, S_i ses moments angulaires. Pour illustrer les processus considérés sur la figure 2.25, on considère un électron incident d'énergie $\varepsilon_i = \varepsilon_2$, et de projection de spin $m_{s_i} = \pm 1/2$, arrivant sur le premier état excité ($i = 2$) de la cible, le niveau 1 correspondant à l'état fondamental.

L'énergie ε_2 est suffisante pour exciter le niveau 3 mais pas suffisante pour exciter les niveaux suivants. Après collision, l'électron-projectile ressort avec l'énergie ε_j ($j = 1, 2$ ou 3), et la projection de spin $m_{s_j} = \pm 1/2$. Il laisse la cible avec une énergie E_j . Au cours de la collision, soit il y a excitation $A_2 \rightarrow A_3$ ($j = 3$), soit désexcitation $A_2 \rightarrow A_1$ ($j = 1$), soit l'atome reste dans le même état $A_2 \rightarrow A_2$ ($j = 2$). En utilisant la conservation de l'énergie du système total, on a :

$$E = E_i + \varepsilon_i = E_j + \varepsilon_j \quad (2.71)$$

2.2.1.2 Fonction d'onde du projectile et amplitude de diffusion

On choisit comme axe de quantification la direction \vec{k}_i de l'électron incident. La fonction d'onde monoélectronique du projectile se comporte asymptotiquement comme :

$$\varphi_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}(\vec{x}_q) \underset{r_q \rightarrow \infty}{\sim} e^{i(k_i \cdot z_q + \dots)} \cdot \delta_{ji} \cdot \delta_{m_{s_j}}(\sigma_q) + f_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}(\hat{r}_q \sigma_q) \frac{e^{i(k_j r_q + \dots)}}{r_q} \quad (2.72)$$

Le terme de *gauche* de cette expression représente le flux d'électrons incidents, qui correspond à une onde plane. Le terme de *droite* correspond quant à lui au flux d'électrons

diffusés par l'ion, qui forme asymptotiquement une onde sphérique.

Dans le terme de gauche, δ_{ij} est un symbole de Kronecker qui signifie que l'onde plane incidente n'arrive que sur l'état i . Dans le terme de droite, les $f_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}(\hat{r}_q \sigma_q)$ s'appellent les amplitudes de diffusion. Dans les exponentielles, on note les nombres d'onde k_i et k_j , qui sont définis, en unités atomiques, par les relations suivantes : $\varepsilon_i = k_i^2/2$, $\varepsilon_j = k_j^2/2$. Les petits points représentent la déformation de l'onde plane et de l'onde sphérique par le potentiel coulombien (voir 2.81) : en effet, en mécanique classique, dans un potentiel coulombien les trajectoires sont des hyperboles qui tendent asymptotiquement vers des droites.

Si on reprend l'exemple de la figure 2.25, les ondes sphériques diffusées existent pour $j = 1, 2, 3$, et il y a 36 possibilités de $f_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}(\hat{r}_q \sigma_q)$ correspondant à $i = 1, 2, 3$, $j = 1, 2, 3$, $m_{s_i} = \pm 1/2$, $m_{s_j} = \pm 1/2$.

2.2.1.3 Section efficace

La *section efficace différentielle* s'obtient à partir de la définition des courants de probabilité (v_i et v_j vitesse du projectile avant et après collision) :

$$\frac{d\sigma_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}}{d\hat{r}_q d\sigma_q} = |f_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}(\hat{r}_q \sigma_q)|^2 \frac{v_j}{v_i} \quad (\text{quelque soit } q) \quad (2.73)$$

Dans le cas présent, la particule diffusée (électron) a la même masse que la particule incidente (électron), donc :

$$\left\{ \vec{p} = \hbar \vec{k} \right\} \implies \left\{ \vec{v} = \frac{\hbar \vec{k}}{\mu} \right\} \quad (2.74)$$

2.73 devient

$$\frac{d\sigma_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}}{d\hat{r}_q d\sigma_q} = |f_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}(\hat{r}_q \sigma_q)|^2 \frac{k_j}{k_i} \quad (\text{quelque soit } q). \quad (2.75)$$

Si on intègre sur l'angle de diffusion \hat{r}_q , on obtient la *section efficace totale* de la transition $\alpha_i \rightarrow \alpha_j$ due à l'électron de projection de spin m_{s_i}

$$\sigma_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}} = \int d\hat{r}_q d\sigma_q \frac{d\sigma_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}}{d\hat{r}_q d\sigma_q} \quad (2.76)$$

$\int d\sigma$ est en fait $\sum_{\sigma=-1/2}^{1/2}$. Si on ne connaît pas m_{s_i} , il faut moyenner sur m_{s_i}

$$\sigma_{ji}^{\varepsilon_i} = \frac{1}{2} \sum_{m_{s_i}} \sigma_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}. \quad (2.77)$$

2.2.1.4 Développement en ondes partielles

On développe l'onde plane (coulombienne) et l'amplitude de diffusion sur la base complète des harmoniques sphériques et des fonctions de spin. On appelle cela le développement en *ondes partielles* :

$$e^{i(k_i z + \dots)} = \sqrt{4\pi} \sum_{l_i=0}^{\infty} i^{l_i} \sqrt{2l_i + 1} Y_{l_i}^0(\hat{r}) \frac{1}{\sqrt{k_i}} \frac{u_{k_i l_i}(r)}{r}, \quad (2.78)$$

$$f_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}(\hat{r}_q \sigma_q) = \sum_{l_i=0}^{\infty} \sum_{l_j=0}^{\infty} \sum_{m_{l_j}} \sum_{m_{s_j}} Y_{l_j}^{m_{l_j}}(\hat{r}_q) \delta_{m_{s_j}}(\sigma_q) f_{\gamma_j \gamma_i}. \quad (2.79)$$

Toutes les informations concernant la collision se trouvent dans $f_{\gamma_j \gamma_i}$ où :

$$\gamma_i \equiv (\alpha_i \varepsilon_i l_i m_{l_i} (=0) m_{s_i}) \quad \text{et} \quad \gamma_j \equiv (\alpha_j \varepsilon_j l_j m_{l_j} m_{s_j}). \quad (2.80)$$

Le développement asymptotique de $u_{k_j l_j}(r_q)$, appelée fonction coulombienne, dans 2.78, est :

$$u_{k_j l_j}(r) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} \frac{1}{\sqrt{k_j}} \sin \left(k_j r - l_j \pi / 2 + \frac{z}{k_j} \ln 2k_j r + \sigma_{k_j l_j} \right) \quad (2.81)$$

où σ_{kl} s'appelle le déphasage coulombien. Dans l'équation 2.81, on voit apparaître l'expression des petits points introduits dans 2.72 : $(\dots) = z/k \ln 2kr + \sigma_{kl}$.

2.2.2 Fonction d'onde du système à $N + 1$ électrons

Il est souvent supposé, comme par exemple dans UCL Distorted Wave, que la fonction de l'électron projectile est orthogonale à celle des électrons de la cible. Mais pour passer outre cette restriction, des fonctions à $N + 1$ électrons $\Xi_p(\dots)$, dites de *corrélation*, sont incluses, construites à partir des orbitales liées de la cible utilisées dans l'orthogonalisation. Par exemple, pour la collision de $1s^2 2s$ par un projectile εs , on ajoute en corrélation $1s^2 2s^2$. De plus, pour alléger la formulation, on diagonalise préalablement la matrice H_{N+1} entre les $\Xi_p(\dots)$ de telle sorte qu'on a :

$$\langle \Xi_p(\dots) | H_{N+1} | \Xi_{p'}(\dots) \rangle = \delta_{pp'} E_p \quad (2.82)$$

La fonction d'onde antisymétrisée des $N+1$ électrons peut alors s'écrire comme un mélange de configurations à $N + 1$ électrons, elles-mêmes antisymétrisées, certaines contenant une orbitale libre :

$$\begin{aligned} \Psi_i^E(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1}) = & \frac{1}{\sqrt{N+1}} \sum_j \sum_{q=1}^{N+1} (-1)^q \Phi_j(\vec{x}_1, \dots, \vec{x}_{q-1}, \vec{x}_{q+1}, \dots, \vec{x}_{N+1}) \varphi_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}(\vec{x}_q) \\ & + \sum_p a_{pi}(E) \Xi_p(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1}) \end{aligned} \quad (2.83)$$

Φ_j est la fonction d'onde de l'état α_j de la cible. On prend les coordonnées sphériques :

$$\varphi_{ji}^{\varepsilon_i m_{s_i}}(\vec{x}_q) = Y_{l_j}^{m_{l_j}}(\hat{r}_q) \delta_{m_{s_j}}(\sigma_q) \frac{F_{\gamma_j \gamma_i}(r_q)}{r_q} \quad (2.84)$$

Comme en Structure Atomique, on souhaite calculer les fonctions radiales $F_{\gamma_j \gamma_i}(r_q)$. Les approximations utilisées sont directement inspirées, soit des méthodes Hartree-Fock : "Close-Coupling" approximations (R-Matrix [10], Convergent Close-Coupling [13]), soit des méthodes à potentiel central (Coulomb-Born, Distorted-Wave, etc). Les premières approximations donnent de meilleurs résultats que les secondes mais sont limitées à des cas relativement simples. Dans tous les cas, on choisira une solution réelle avec un développement asymptotique, tel que :

$$F_{\gamma_j \gamma_i}(r) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} \frac{1}{\sqrt{k_j}} \left(\sin \left(k_j r - l_j \pi / 2 + \frac{z}{k_j} \ln 2k_j r + \sigma_{k_j l_j} + \tau_{k_j l_j} \right) \delta_{\gamma_i \gamma_j} + \cos \left(k_j r - l_j \pi / 2 + \frac{z}{k_j} \ln 2k_j r + \sigma_{k_j l_j} + \tau_{k_j l_j} \right) R_{\gamma_j \gamma_i}^{(\tau)} \right), \quad (2.85)$$

Le facteur $\tau_{k_j l_j}$ est souvent pris égal à zéro sauf dans le cas de Distorted Wave (voir 5.101). Dans tous les cas, on démontre que la matrice $\mathbf{R}^{(\tau)}$ réelle, appelée *matrice de réactance*, est symétrique quelque soit la valeur de $\tau_{k_j l_j}$ choisie. Son expression est déterminée en Annexe.

2.2.3 Matrices de Diffusion et de Transition

Nous ne considérons que le code University-College-London (UCL) Distorted-Wave ([31]). Il existe de nombreux autres codes appelés Distorted Wave, certains relativistes, d'autres non-relativistes. Parmi les codes non-relativistes, le code réalisé à UCL contient plus d'effets physiques : unitarisation (voir 2.76), correction d'orthogonalité des fonctions radiales par inclusion de fonctions de corrélations à $N+1$ électrons (voir 2.82). De plus, il a été conçu pour utiliser directement les fonctions d'onde non-relativistes calculées par SUPERSTRUCTURE. Et les éléments de matrice de transition peuvent être converties en structure-fine grâce au code JAJOM, en utilisant les coefficients TCC (voir plus haut).

En insérant les équations 2.78 et 2.79 dans 2.72, on obtient le développement asymptotique de la fonction radiale du projectile :

$$F_{\gamma_j \gamma_i}^{\varepsilon_i(S)}(r) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} \frac{1}{\sqrt{k_j}} \left(e^{-i(k_j r - l_j \pi / 2 + \dots)} \delta_{\gamma_j \gamma_i} - e^{+i(k_j r - l_j \pi / 2 + \dots)} S_{\gamma_j \gamma_i} \right) \quad (2.86)$$

Cette fonction radiale est complexe. La matrice S s'appelle la *matrice de diffusion*. La relation matricielle entre \mathbf{S} et $\mathbf{R}^{(\tau)}$ est :

$$\mathbf{S} = e^{i\tau} (1 + i\mathbf{R}^{(\tau)}) (1 + i\mathbf{R}^{(\tau)})^{-1} e^{i\tau}. \quad (2.87)$$

A partir de cette dernière, on peut facilement trouver que \mathbf{S} est symétrique et unitaire ($S_{\gamma_j \gamma_i} S_{\gamma_i \gamma_j}^* = \delta_{\gamma_i \gamma_j}$), car $\mathbf{R}^{(\tau)}$ est réelle et symétrique. Cela représente le fait que le flux incident se distribue entre différents "canaux" sans perte ni gain d'électron.

Chapitre 2: Physique atomique de l'ion lasant

Le but des codes numériques est de calculer d'abord les éléments de matrices $R_{\gamma_j\gamma_i}^{(\tau)}$, puis $S_{\gamma_j\gamma_i}$, puis $f_{\gamma_j\gamma_i}$, directement reliés à $T_{\gamma_j\gamma_i}$, appelée *matrice de transition* :

$$T_{\gamma_j\gamma_i} = S_{\gamma_j\gamma_i} - \delta_{\gamma_j\gamma_i}, \quad f_{\gamma_j\gamma_i} = \frac{\sqrt{\pi(2l_i+1)}}{\sqrt{k_i k_j}} i^{l_i-l_j+1} T_{\gamma_j\gamma_i} \quad (2.88)$$

Comme pour la structure, dans l'approximation non-relativiste, on a conservation des nombres quantiques du système total, L^T , S^T , M_{L^T} et M_{S^T} ainsi que la parité totale Π^T . En utilisant cette propriété, on peut réduire énormément le nombre de $R_{\gamma_j\gamma_i}^{(\tau)}$ à calculer qui sont reliés par des relations bien connues impliquant 4 coefficients *algébriques* (Clebsch-Gordan). De plus, les matrices à multiplier et à inverser 2.76 sont beaucoup plus petites car elles ne contiennent que des éléments de matrice de même L^T , S^T , Π^T et que ces matrices sont identiques pour les différents M_{L^T} et M_{S^T} associés. En définissant :

$$\tilde{\Gamma}_i \equiv (\Gamma_i L_i S_i \varepsilon_i l_i; L^T S^T M_{L^T} M_{S^T}) \quad \text{et} \quad \tilde{\Gamma}_j \equiv (\Gamma_j L_j S_j \varepsilon_j l_j; L^T S^T M_{L^T} M_{S^T})$$

on obtient :

$$R_{\tilde{\Gamma}_j\tilde{\Gamma}_i}^{(\tau)} = C_{M_{L_i} m_i M_{L^T}}^{L_i l_i L^T} C_{M_{S_i} m_{s_i} M_{S^T}}^{S_i 1/2 S^T} R_{\gamma_j\gamma_i}^{(\tau)} C_{M_{L_j} m_j M_{L^T}}^{L_j l_j L^T} C_{M_{S_j} m_{s_j} M_{S^T}}^{S_j 1/2 S^T} \quad (2.89)$$

La même relation est valable pour $S_{\tilde{\Gamma}_j\tilde{\Gamma}_i}^{\varepsilon_i}$, $T_{\tilde{\Gamma}_j\tilde{\Gamma}_i}^{\varepsilon_i}$ et pour $f_{\tilde{\Gamma}_j\tilde{\Gamma}_i}^{\varepsilon_i}$. Enfin, en utilisant les relations de fermeture des Clebsch-Gordan, on obtient pour la section efficace totale de la transition $\alpha_i \rightarrow \alpha_j$ par un électron projectile d'énergie ε_i :

$$\sigma_{j_i}^{\varepsilon_i} = \frac{1}{(2L_i+1)(2S_i+1)} \sum_{L^T S^T} \frac{1}{2} \left| T_{\tilde{\Gamma}_j\tilde{\Gamma}_i} \right|^2 \quad (2.90)$$

2.2.4 Transitions entre niveaux de structure-fine

L'idée de base de la méthode utilisée dans le code JAJOM [88] est de supposer que l'électron projectile n'est pas relativiste. L'autre idée est que les éléments de matrice non-relativistes calculés par le programme UCL Distorted Wave entre termes de la cible peuvent être utilisés pour calculer des éléments de matrice entre niveaux, grâce à des *transformations algébriques*, c'est-à-dire des coefficients 6j de Wigner, et grâce aux TCC (Term Coupling Coefficient) calculées par SUPERSTRUCTURE. Par définition, les TCC $\langle \Gamma L S J \Pi | \Delta J \Pi \rangle$ sont les coefficients (réels) exprimant les *niveaux propres* sur les *termes propres*, coefficients indépendants de M_J :

$$\Psi_{BP}^{MC}(\Delta J \Pi M_J) = \sum_{\Gamma L S} \Psi_{NR}^{MC}(\Gamma L S J \Pi M_J) \langle \Gamma L S J \Pi | \Delta J \Pi \rangle \quad (2.91)$$

On définit de nouveaux couplages, appelés *pair-coupling*:

$$\hat{\Gamma}_i \equiv (\Delta_i J_i \varepsilon_i l_i; K_i J^T M_{J^T}) \quad \text{et} \quad \hat{\Gamma}_j \equiv (\Delta_j J_j \varepsilon_j l_j; K_j J^T M_{J^T}) \quad (2.92)$$

qui correspondent au couplage “deux à deux” des moments angulaires, par exemple pour i :

$$\vec{K}_i = \vec{J}_i + \vec{l}_i; \quad \vec{J}^T = \vec{K}_i + \vec{s}_i \quad (2.93)$$

Le code JAJOM exprime donc les $R_{\hat{\Gamma}_j \hat{\Gamma}_i}^{(\tau)}$ sur les $R_{\hat{\Gamma}_j \hat{\Gamma}_i}^{(\tau)}$:

$$\begin{aligned} R_{\hat{\Gamma}_j \hat{\Gamma}_i}^{(\tau)} = & \sum_{L^T S^T} \sum_{\Gamma L_j S_j} \sum_{\Gamma L_i S_i} \langle \Delta_j J_j \Pi_j | \Gamma_j L_j S_j J_j \Pi_j \rangle \\ & \times X(L_j S_j J_j l_j K_j; L^T S^T J^T) R_{\hat{\Gamma}_j \hat{\Gamma}_i}^{(\tau)} X(L_i S_i J_i l_i K_i; L^T S^T J^T) \\ & \times \langle \Gamma_i L_i S_i J_i \Pi_i | \Delta_i J_i \Pi_i \rangle \end{aligned} \quad (2.94)$$

Nous ne donnerons pas l'expression des $X(\dots)$ qui se trouve dans l'article de H. Saraph [87]. Il s'exprime en fonction de deux 6-j de Wigner. Comme pour la partie non-relativiste, on construit le matrice de transition $T_{\hat{\Gamma}_j \hat{\Gamma}_i}$ puis la section efficace totale :

$$\sigma_{\Delta_j \Delta_i}^{\epsilon_i} = \frac{1}{(2J_i + 1)} \sum_{J^T K_i K_j} \frac{1}{2} \left| T_{\hat{\Gamma}_j \hat{\Gamma}_i} \right|^2 \quad (2.95)$$

2.3 Résultats de modélisation

Dans le cadre de la modélisation du laser X-UV, des calculs ont réalisés à l'aide des codes SUPERSTRUCTURE et Distorted-Wave dans le cas du XeIX et du KrIX. Un certain nombre de niveaux atomiques a été pris en compte : 129 pour le Xe IX, et 93 pour le Kr IX. Le résultat de ces codes fournit l'énergie E_i des niveaux atomiques et les forces d'oscillateur f_{ij} pour toutes les transitions radiatives permises entre ces niveaux (SUPERSTRUCTURE), ainsi que les forces de collision Ω_{ij} entre ces niveaux à différentes énergies ϵ de l'électron incident (Distorted-Wave).

Dans cette partie, nous allons exposer les schémas laser des ions XeIX et KrIX, en décrivant les niveaux atomiques les plus importants (en plus des niveaux lasants) ainsi que les principales transitions atomiques entre ces niveaux.

2.3.1 Principaux niveaux atomiques

Initialement, les ions lasants se trouvent en grande majorité dans le niveau fondamental ($4d^{10}$ pour le *XeIX*, $3d^{10}$ pour le *KrIX*). Les niveaux excités vont se peupler par excitation collisionnelle à partir de ce dernier. Leur dépeuplement (y compris celui du niveau fondamental) s'effectue surtout par ionisation collisionnelle.

On cherche à trouver les niveaux les plus peuplés. Il existe une multitude de processus collisionnels entre les niveaux excités. Mais comme le niveau fondamental est au départ le plus peuplé, une bonne estimation du niveau de peuplement des niveaux peut être faite en prenant uniquement les forces de collision entre le niveau fondamental et les niveaux excités.

Comme la force de collision Ω_{ij} dépend de l'énergie de l'électron incident, on sélectionne, parmi les énergies utilisées par les codes, une énergie ε proche de l'énergie moyenne $\overline{\varepsilon_{e^-}}$ initiale (voir FDE des électrons dans le chapitre I). Le tableau 3.96 ci-dessous fournit les valeurs de Ω_{ij} les plus élevées à partir du niveau fondamental g pour les niveaux atomiques excités des 2 ions :

Niveau i ($XeIX$)	E_i (eV)	$\Omega_{g \rightarrow i}(370eV)$	$KrIX$	E_i (eV)	$\Omega_{g \rightarrow i}(680eV)$
4d ⁹ 6d (¹ S ₀)	133,60	0,4697	3d ⁹ 5d (¹ S ₀)	183,79	0,3116
4d ⁹ 5f (¹ P ₁)	128,42	1,7044	3d ⁹ 4f (¹ P ₁)	163,52	0,9037
4d ⁹ 5d (¹ S ₀) (u)	104,27	0,6636	3d ⁹ 4d (¹ S ₀) (u)	147,42	0,3890
4d ⁹ 4f (¹ P ₁)	102,84	5,9074	3d ⁹ 4p (³ D ₁)	106,40	0,1359
4d ⁹ 5p (¹ P ₁) (l)	74,72	0,6867	3d ⁹ 4p (¹ P ₁) (l)	105,73	0,3983

(3.96)

2.3.2 Raie laser et conditions de lasage

La raie laser est décrite à travers les propriétés de ses 2 niveaux dits "lasants". Les niveaux *inférieur* (noté " l ") et *supérieur* (noté " u ") de cette raie, correspondent respectivement aux niveaux 3d⁹4p et 3d⁹4d pour le $KrIX$, et 4d⁹5p et 4d⁹5d pour le $XeIX$. On note que pour les 2 ions, d'après le tableau 3.96, les niveaux lasants figurent parmi les niveaux excités les plus peuplés.

Les 2 niveaux de la raie laser ont la même caractéristique atomique pour le $XeIX$ et le $KrIX$:

- Niveau supérieur u : $5d, {}^1S_0, J = 0$ (dégénérescence : $g_u = 1, 1$ sous-niveau)
- Niveau inférieur l : $5p, {}^1D_1, J = 1$ (dégénérescence : $g_l = 3, 3$ sous-niveaux)

Une transition dipolaire entre ces 2 niveaux est possible car elle est accompagnée d'un changement de parité $\Pi = (-1)^{\Sigma l_i}$, et d'un $\Delta J = 1$. Pour que la raie laser associée à cette transition puisse émettre, une inversion de population doit se produire entre les 2 niveaux lasants :

$$W = \frac{N_u}{g_u} - \frac{N_l}{g_l} > 0 \quad (3.97)$$

La condition est en fait que la différence de population entre le sous-niveau du niveau supérieur (N_u/g_u) et un sous-niveau du niveau inférieur doit être positive. Lorsque $w < 0$, le milieu d'ion lasants absorbe le rayonnement X-UV résonant.

D'après le tableau 3.96, les forces de collisions des niveaux u et l sont proches. Ce n'est donc pas tant une différence entre les forces de collision qui produit une inversion de population mais la différence de dégénérescence même entre ces niveaux qui la permet. En remplaçant les dégénérescences g_u et g_l par leurs valeurs respectives et supposant $N_u \simeq N_l$, on obtient :

$$W \simeq \frac{2}{3}N_u > 0 \quad (3.98)$$

Cette formule n'est bien évidemment qu'indicatrice d'une tendance. Pour obtenir une description plus précise de l'inversion de population, il faut ajouter la contribution des niveaux excités dans l'évolution de la population des niveaux lasants, prendre en compte la distribution en énergie (FDE) des électrons incidents, ainsi que les transitions radiatives.

2.3.3 Autres transitions radiatives

Les désexcitations radiatives en provenance d'autres niveaux excités d'énergie supérieure, ou vers d'autres niveaux d'énergie inférieure, peuvent affecter le peuplement des niveaux lasants de manière significative. L'importance d'une transition radiative dépend de sa probabilité radiative A_{ij} qui se calcule à l'aide de la relation suivante :

$$A_{ij} = 4,403.10^7 (\Delta E_{ij})^2 \frac{1}{g_i} f_{ij} \quad (3.99)$$

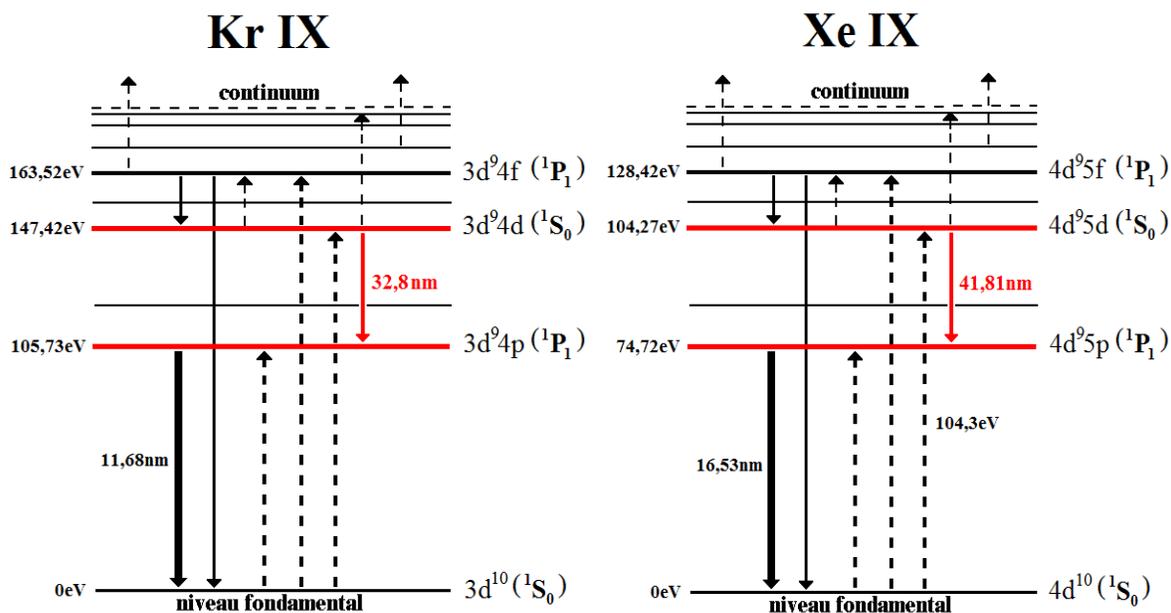
f_{ij} est la force d'oscillateur entre les niveaux initial i et final j de la transition radiative, et ΔE_{ij} la différence d'énergie entre ces 2 niveaux. Le tableau ci-dessous énumère les transitions radiatives entre les principaux pour les 2 ions, avec leur probabilités respectives. Pour rappel, les sous-couches $4d$ pour le KrX , et $5d$ pour le $XeIX$ correspondent au niveau fondamental.

Transition ($XeIX$)	$A_{ij}(s^{-1})$	Transition ($KrIX$)	$A_{ij}(s^{-1})$
$5d(u) \rightarrow 5p(l)$	$3,544.10^{10}$	$4d(u) \rightarrow 4p(l)$	$4,288.10^{10}$
$5f \rightarrow 5d(u)$	$7,768.10^9$	$4f \rightarrow 4d(u)$	$2,303.10^9$
$5p(l) \rightarrow 4d(g)$	$7,670.10^{10}$	$4p(l) \rightarrow 3d(g)$	$8,244.10^{10}$
$5f \rightarrow 4d(g)$	$6,022.10^{11}$	$4d(u) \rightarrow 4p(l)$	$1,007.10^{10}$

La raie laser entre les niveaux u et l figure parmi les transitions radiatives les plus fortes, avec une probabilité radiative $A_{ij} \simeq 4.10^{10} s^{-1}$ (associé à un temps de vie $\tau = 1/A_{ij} \simeq 25ps$). On peut remarquer que le niveau bas de la transition laser a un temps de vie inférieur à celui du niveau haut (d'environ un facteur 2), ce qui est souvent invoqué comme une condition nécessaire pour obtenir l'inversion de population. Dans notre cas cela ne joue qu'un rôle assez faible, sauf à basse pression. En effet, aux pressions où l'amplification X-UV est la plus efficace (autour de 25 mbar) la durée du gain est inférieur au temps de vie des niveaux. Le paramètre essentiel pour expliquer l'inversion de population vient du facteur de dégénérescence mentionné plus haut

2.3.4 Schéma laser des ions KrIX et XeIX

Les codes de physique atomique ont donc permis de déterminer le schéma atomique des ions XeIX et KrIX. Ci-dessous (3.100) figurent pour les 2 ions, les principaux niveaux atomiques interagissant avec les niveaux lasants et les principales transitions pouvant se produire entre ces niveaux.



(3.100)

2.4 Conclusion

L'objectif des codes de physique atomique SUPERSTRUCTURE et Distorted-Wave était de fournir des données précises sur la raie laser des ions KrIX et XeIX. Il était donc important d'avoir des informations sur la transition laser même, sur les transitions collisionnelles impliquant les 2 niveaux lasants, et plus généralement tous les niveaux atomiques et toutes les transitions collisionnelles ou radiatives susceptibles d'affecter leur peuplement, directement ou indirectement.

Les données atomiques calculées vont permettre de traiter la cinétique des populations atomiques après OFI, et de calculer le gain du milieu amplificateur. Elles sont incluses pour cela dans le code OFI-0D qui effectue ce traitement et qui calcule aussi, comme nous l'avons vu dans le chapitre I, la distribution en énergie des électrons incidents. Les résultats de ce code sont exposés dans le chapitre suivant.

2.5 Annexe

La conception de UCL Distorted-Wave ressemble à celle de SUPERSTRUCTURE. Les fonctions radiales libres, $G_{\varepsilon l}(r)$, sont calculées dans un potentiel central statistique qui est différent de celui de la structure car il y a un électron de plus. Elles sont solutions d'une équation radiale de la forme 1.51 mais pour des $\varepsilon \geq 0$. Ces fonctions radiales ne sont pas orthogonales à celle de la cible. Elles sont orthogonalisées ultérieurement aux orbitales liées (orthogonalisation de Schmidt). Entre fonctions libres $G_{\varepsilon l}(r)$, il y a déjà orthogonalité. On démontre que pour avoir la normalisation à la fonction de Dirac 1.60, il faut qu'elles aient la forme asymptotique suivante [70, A-ChapXV.a] :

$$G_{\varepsilon l}(r) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} \frac{1}{\sqrt{2\pi}k} \sin \left(kr - \frac{l\pi}{2} + \frac{z}{k} \ln 2kr + \sigma_{kl} + \tau_{kl} \right) \quad (5.101)$$

où τ_{kl} est un déphasage dû au potentiel de Distorted-Wave, s'ajoutant au déphasage coulombien de charge z . On projette $F_{\gamma_j \gamma_i}(r)$ 2.85 sur les fonctions libres orthogonales $G_{\varepsilon l}(r)$, énergies ε centrées autour de ε_j :

$$F_{\gamma_j \gamma_i}(r) = \int b_{\gamma_j \gamma_i}(\varepsilon) G_{\varepsilon l_j}(r) d\varepsilon \quad (5.102)$$

On remplace dans 2.83

$$\begin{aligned} \Psi_{\gamma_i}^E(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1}) &= \sum_{\gamma_{j'}} \int b_{\gamma_j \gamma_i}(\varepsilon') \Theta_{\gamma_{j'}}^{\varepsilon'}(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1}) d\varepsilon' + \sum_{p'} a_{p' i}(E) \Xi_{p'}(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1}) \\ \text{avec } \Theta_{\gamma_j}^{\varepsilon}(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1}) &= \frac{1}{\sqrt{N+1}} \sum_{q=1}^{N+1} (-1)^q \Phi_{\alpha_j}(\vec{x}_1, \dots, \vec{x}_{q-1}, \vec{x}_{q+1}, \dots, \vec{x}_{N+1}) \\ &\quad \times Y_{l_j}^{m_{l_j}}(\hat{r}_q) \delta_{m_{s_j}}(\sigma_q) \frac{G_{\varepsilon l_j}(r_q)}{r_q} \end{aligned} \quad (5.103)$$

On obtient les nombres $a_{p i}(E)$ et les fonctions $b_{\gamma_j \gamma_i}(\varepsilon)$, en projetant l'équation de Schrödinger à $N + 1$ électrons sur les $\Xi_p(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1})$ et les $\Theta_j^{\varepsilon}(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1})$:

$$\begin{aligned} \langle \Xi_p(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1}) | H_{N+1} - E | \Psi_i^E(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1}) \rangle &= 0 \\ \langle \Theta_{\gamma_j}^{\varepsilon}(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1}) | H_{N+1} - E | \Psi_i^E(\vec{x}_1 \dots \vec{x}_{N+1}) \rangle &= 0 \end{aligned} \quad (5.104)$$

Les éléments de matrice $\langle \dots | W | \dots \rangle$ variant lentement en fonction de ε , on peut les sortir de l'intégrale en leur donnant leur valeur pour $\varepsilon = \varepsilon_j$ (centre) :

$$\begin{aligned} a_{p i}(E) (E - E_p) &= \sum_{\gamma_{j'}} \langle \Xi_p | W | \Theta_{\gamma_{j'}}^{\varepsilon_j} \rangle \int b_{\gamma_j \gamma_i}(\varepsilon') d\varepsilon' \\ b_{\gamma_j \gamma_i}(\varepsilon) (\varepsilon_j - \varepsilon) &= \sum_{p'} a_{i p'}(E) \langle \Theta_{\gamma_j}^{\varepsilon_j} | W | \Xi_{p'} \rangle + \sum_{\gamma_{j'}} \langle \Theta_{\gamma_j}^{\varepsilon_j} | W | \Theta_{\gamma_{j'}}^{\varepsilon_j} \rangle \int b_{\gamma_j \gamma_i}(\varepsilon') d\varepsilon' \end{aligned} \quad (5.105)$$

Chapitre 2: Physique atomique de l'ion lasant

En définissant $B_{\gamma_j \gamma_i} = \int b_{\gamma_j \gamma_i}(\varepsilon') d\varepsilon'$ et en insérant la valeur de $a_{pi}(E)$ obtenue par la première équation 5.105 dans la seconde équation, on voit que $B_{\gamma_j \gamma_i}$ se factorise dans le membre de droite. On obtient [70, A - ChapVIII] :

$$b_{\gamma_j \gamma_i}(\varepsilon) = K_{\gamma_j \gamma_i} \delta(\varepsilon - \varepsilon_j) + P.P. \left(\frac{(\dots)}{\varepsilon - \varepsilon_j} \right) \quad (5.106)$$

Le (...) représente le membre de droite de la deuxième équation 5.105. Le symbole P.P. s'appelle, en mathématique, *partie principale*. Au premier ordre d'approximation, on a $B_{\gamma_j \gamma_i} = K_{\gamma_j \gamma_i}$. On obtient le coefficient de normalisation $K_{\gamma_j \gamma_i}$ en comparant la valeur asymptotique de $F_{\gamma_j \gamma_i}(r)$ de 5.102 avec 5.106 : $K_{\gamma_j \gamma_i} = \sqrt{2\pi} \delta_{\gamma_j \gamma_i}$. Donc :

$$b_{\gamma_j \gamma_i}(\varepsilon) = \sqrt{2\pi} \left(\delta(\varepsilon - \varepsilon_j) \delta_{\gamma_j \gamma_i} + P.P. \left(\frac{M_{\gamma_j \gamma_i}}{\varepsilon - \varepsilon_j} \right) \right) \quad (5.107)$$

où

$$M_{\gamma_j \gamma_i} = \sum_p \frac{\langle \Theta_{\gamma_j}^{\varepsilon_j} | W | \Xi_p \rangle \langle \Xi_p | W | \Theta_{\gamma_i}^{\varepsilon_i} \rangle}{(E - E_p)} + \langle \Theta_{\gamma_j}^{\varepsilon_j} | W | \Theta_{\gamma_i}^{\varepsilon_i} \rangle \quad (5.108)$$

L'expression de $R_{\gamma_j \gamma_i}^{(\tau)}$ s'obtient à partir de la partie principale :

$$R_{\gamma_j \gamma_i}^{(\tau)} = \pi M_{\gamma_j \gamma_i} \quad (5.109)$$

On voit que la matrice réelle $\mathbf{R}^{(\tau)}$ est bien symétrique.

Chapitre 3

Cinétique du plasma créé par OFI

Ce chapitre est consacré à l'étude de l'évolution du plasma après sa création par OFI. L'étude est portée sur la cinétique des électrons, des ions et de leurs populations atomiques. Les populations atomiques, et notamment celles des niveaux lasants, figurent comme les données les plus importantes requérant le plus de précision, car elles sont utilisées par les modèles qui décrivent le transfert radiatif du laser X-UV et qui seront présentés dans le chapitre suivant.

Dans le chapitre I, l'étude de l'interaction du laser de pompe avec le gaz cible nous a permis de déterminer l'état initial des particules du plasma après OFI. Cet état consiste en un ensemble d'ions lasants se trouvant dans leur état fondamental (cf. article de Pert [79]) et dont la température ionique ne dépasse pas les 400K, et d'électrons libres chauds (plusieurs centaines d'eV) de distribution en énergie non-Maxwellienne.

Aux instants ultérieurs, les collisions électron-ion vont jouer un rôle exclusif dans le peuplement des niveaux lasants. Nous présenterons les modèles de cinétique permettant de calculer ce peuplement au cours du temps. En plus de ces collisions électron-ion, d'autres phénomènes peuvent intervenir, et provoquer un effet perturbateur sur l'évolution des populations atomiques. Nous évaluerons donc leur importance sur l'échelle de temps qui nous intéresse, à savoir la durée du gain du milieu (quelques dizaines de picosecondes). Nous présenterons les résultats du code OFI-0D qui, à partir de quelques paramètres (pression, intensité du laser de pompe, polarisation...), calcule l'évolution des populations atomiques au cours du temps à l'aide des modèles de cinétique que nous aurons présentés.

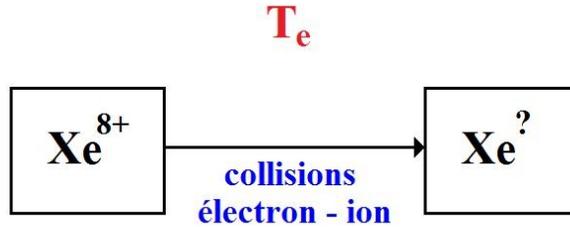
3.1 Introduction

Avant de passer au calcul des populations atomiques réalisé par le code OFI-0D, nous souhaitons déterminer l'évolution des principales variables caractérisant le plasma après OFI : à l'échelle microscopique, la température ionique T_i (énergie cinétique des ions), la température électronique T_e (énergie cinétique des électrons), et le degré d'ionisation Q des ions (énergie interne des ions) ; à l'échelle macroscopique, l'évolution du volume du plasma, et les pertes d'énergie vers l'extérieur.

3.1.1 Evolution du degré d'ionisation et de la température électronique après OFI

Un plasma créé par OFI est à son stade initial dans un état thermodynamique fortement hors équilibre. Les électrons libérés, chauffés par ATI, ont une énergie moyenne supérieure à l'énergie d'ionisation des ions. Les résultats OFI-0D sur la FDE des électrons présentés dans le chapitre 1 montrent par exemple que pour le Xe^{8+} , dont l'énergie d'ionisation est de 175, 2eV, les électrons libres ont une énergie moyenne d'environ 370eV.

Les collisions vont se produire entre les ions et les électrons, induisant entre autres de l'excitation collisionnelle et de l'ionisation collisionnelle. Un transfert d'énergie des électrons vers les ions va alors s'opérer, jusqu'on atteigne un certain équilibre, de type coronal ou thermodynamique suivant les volumes du plasma mis en jeu (plasma optiquement épais ou mince) et la densité d'électrons, qui détermine le ratio entre recombinaison 3-corps et recombinaison radiative.



Equation de Saha

Pour avoir une indication sur l'état limite du plasma, nous nous intéressons tout d'abord au degré d'ionisation que les ions peuvent avoir à l'équilibre thermodynamique à partir d'une température électronique T_e . Pour cela, nous utilisons l'équation de Saha, qui décrit l'équilibre thermodynamique entre les espèces ioniques et les électrons, sans tenir compte des états excités (approximation valable à basse densité). Cette équation permet de calculer le degré d'ionisation atteint à l'équilibre car il donne le rapport entre les populations de 2 espèces d'ions de charge Q et $Q + 1$, en fonction de l'énergie d'ionisation ϵ_Q de l'espèce de charge Q , et de la température du milieu (que l'on considèrera équivalente à la température électronique T_e) :

$$\frac{N_{Q+1}N_e}{N_Q} = \frac{2g_{Q+1}}{g_Q} \frac{(2m_e k_B T_e)^{3/2}}{h^3} \exp\left(-\frac{\epsilon_Q}{k_B T_e}\right) \quad (1.110)$$

g_Q et g_{Q+1} sont la dégénérescence du niveau d'énergie des espèces ioniques respectives Q et $Q + 1$. Dans notre cas, on considèrera $g_Q = g_{Q+1} = 1$. La formule, exprimée en fonction de l'énergie moyenne des électrons $\bar{\epsilon}_e$ et pour une densité électronique $N_e \simeq Q N_{at} = Z \times 5.10^{23} m^{-3}$ (N_{at} densité atomique, valeur correspondant à $P = 20mb$), devient alors :

$$\frac{N_{Q+1}}{N_Q} \simeq 1,19.10^3 \frac{[\bar{\varepsilon}_e(eV)]^{3/2}}{Q} \exp\left(-\frac{3 \epsilon_Q(eV)}{2 \bar{\varepsilon}_e(eV)}\right) \quad (1.111)$$

A partir de l'équation de Saha, on peut retrouver le degré d'ionisation d'équilibre $Q_{\acute{e}q}$ pouvant être atteint à partir de conditions initiales décrites par $\bar{\varepsilon}_e$ et Z . On considèrera dans nos calculs que $Q = Q_{\acute{e}q}$ lorsque le rapport $N_{Q+1}/N_Q = 1$.

Dans le cas d'un plasma initialement composé d'ions Xe^{8+} , créé par un laser de pompe de polarisation circulaire ($\phi = 0,5$), les conditions initiales sont $\bar{\varepsilon}_e = 368,3eV$ et $Q = 8$. Ces 2 grandeurs sont amenées à évoluer au cours du temps, ce qui nous empêche d'obtenir une solution directe à partir de l'équation 1.111. En effet, lorsque l'état de charge Q augmentera, l'énergie moyenne des électrons variera également sensiblement, pour 2 raisons : la première est que les électrons de collision vont transmettre une partie de leur énergie aux ions par ionisation, diminuant de ce fait la valeur de $\bar{\varepsilon}_e$; la seconde est que, par ces processus d'ionisation, les électrons éjectés des ions vont s'ajouter aux électrons libres préexistants sans apporter d'énergie cinétique, ce qui aura pour effet de diminuer mécaniquement $\bar{\varepsilon}_e$: cette ionisation va donc augmenter la densité électronique. On supposera que les électrons éjectés par ionisation sont très rapidement thermalisés (ce qui est le cas à l'équilibre thermodynamique).

Il nous faut donc prendre en compte ces 2 effets en recalculant la valeur de $\bar{\varepsilon}_e$ au fil des ionisations. On considère que le plasma conserve son énergie et son volume initial tout au long de son évolution vers l'équilibre thermodynamique. Dans ce cas, on évalue la perte d'énergie moyenne électronique lorsqu'on passe de l'état de charge Q à l'état de charge $Q + 1$ à :

$$\bar{\varepsilon}_e(Q + 1) = \frac{(\bar{\varepsilon}_e(Q) \times Q) - \epsilon_Q}{Q + 1} \quad (1.112)$$

On peut alors dresser le tableau suivant contenant les énergies d'ionisation ϵ_Q du xénon à l'état de charge Q , l'énergie moyenne électronique évaluée à cette état de charge Q , ainsi que le rapport N_{Q+1}/N_Q correspondant qui serait observé à l'équilibre :

Ion	ϵ_Q (eV)	$\bar{\varepsilon}_e$ (eV)	N_{Q+1}/N_Q
Xe^{8+}	175,2	368,3	$5,15.10^5$
Xe^{9+}	196,2	307,9	$2,75.10^5$
Xe^{10+}	218,6	257,5	$1,38.10^5$
Xe^{11+}	242,3	214,2	$6,22.10^4$
Xe^{12+}	267,4	176,2	$2,38.10^4$
Xe^{13+}	293,6	142,1	$6,98.10^3$
Xe^{14+}	323,6	110,9	$1,25.10^3$
Xe^{15+}	352,6	82,01	92,8
Xe^{16+}	382,7	54,82	0,853
Xe^{17+}	414,0	30,84	$5,79.10^{-6}$
Xe^{18+}	443,6	6,131	$8,62.10^{-63}$
Xe^{19+}	563,8	0	0

D'après les valeurs du tableau, l'équilibre $N_{Q+1}/N_Q = 1$ est atteint à un degré d'ionisation proche de 16. Un plasma d'ions Xe^{8+} créé par OFI à l'aide d'un laser de pompe en polarisation circulaire évoluera vers un plasma d'ions Xe^{16+} à l'équilibre thermodynamique. Ce résultat est bien sûr valable si le plasma ne subit pas de pertes importantes d'énergie vers l'extérieur lors de l'atteinte de l'équilibre, ni d'expansion hydrodynamique, auxquels cas le degré d'ionisation atteint sera inférieur à celui calculé. On retrouve donc par l'écart entre les charges 8 et 16, que le plasma est très fortement hors équilibre au niveau de son ionisation moyenne. L'évolution de cet état d'ionisation va être le facteur limitant de la durée du gain, qui sera déterminée par la durée de vie de l'ion $8+$ avant son ionisation.

3.1.2 Evolution de la température ionique après OFI

Nous souhaitons déterminer l'évolution de température ionique au cours de la durée du gain. Elle est étudiée dans l'article [69] dont nous tirerons les calculs.

3.1.2.1 Collisions binaires

Il s'agit des collisions binaires entre ions et électrons. Outre le fait qu'elles peuvent provoquer de l'excitation et de l'ionisation collisionnelle, elle peuvent également transmettre de l'énergie cinétique aux ions. Selon la fréquence de ces collisions, la transmission d'énergie est plus ou moins rapide. Le plasma étant relativement peu dense et la température électronique étant élevée, nous sommes en ce qui concerne les électrons dans le cas d'un plasma cinétique peu corrélé. On peut alors utiliser les formules classiques [69], dans le cas du Xe^{8+} , la variation de T_i est fonction de la pression vaut :

$$\frac{dT_i}{dt} (eV/ps) = 2.10^{-4} (eV) . P (mbar) \quad (1.114)$$

Pour une pression du gaz $P = 20mbar$, l'élévation de température associée aux collisions binaires est ainsi de $4.10^{-2}eV$ ($480K$) sur la durée de vie du gain (à cette pression, la durée du gain vaut $d_{SXRL} \approx 10ps$), grandeur qui reste très faible par rapport à l'énergie des électrons.

3.1.2.2 Force pondéromotrice

Sous l'effet du champ du laser de pompe, les électrons libérés vont être accélérés dans la direction radiale et effectuer un mouvement oscillatoire. Comme l'impulsion laser possède un profil transverse en intensité, les électrons, en s'écartant de leur position d'origine, vont traverser tout ou partie de ce gradient d'intensité. Lorsqu'un électron initialement au centre de l'impulsion $r = 0$ (maximum d'intensité) s'écarte vers les bords du plasma jusqu'à son maximum d'oscillation, les intensités moindres à ces bords qui y règnent ne lui permettront pas d'être aussi bien accélérés en sens inverse vers la position initiale. On assiste alors à une dérive générale vers les bords des électrons initialement au centre du profil. La force qui, par ce phénomène de dérive, amène les électrons vers les bords est appelée *force pondéromotrice*. Une telle dérive va modifier la distribution spatiale des électrons. La densité électronique sera plus importante aux bords qu'au centre. Par conséquent, une force de rappel électrostatique

va s'exercer sur les électrons excentrés par les ions, restés à leur place car beaucoup plus lourds. Alors, réciproquement, les ions vont subir la même force de la part des électrons excentrés, ce qui va provoquer leur chauffage. Dans le cas du xénon [69], l'énergie acquise par les ions en raison de cette force est d'environ $2.10^{-3}eV$, ce qui correspond à une élévation de température de $\Delta T = 24K$.

3.1.2.3 Effets de couplage fort

Il a été montré dans [69] que dans un plasma créé par OFI comme le nôtre, le chauffage le plus important vient du couplage initial entre les ions du plasma. Avec l'ionisation, les atomes deviennent des particules chargées et interagissent entre eux avec les forces électrostatiques qui les lient. Les électrons, quant à eux, sont très rapides et forment un fond neutralisant pour les ions (leur longueur de Debye est bien plus élevée que la distance moyenne entre les ions).

L'importance du couplage entre les ions se mesure avec le paramètre de couplage de Coulomb Γ , qui se définit comme le rapport entre l'énergie potentielle moyenne d'interaction coulombienne U des ions sur leur énergie cinétique moyenne E_K :

$$\Gamma = \frac{U}{E_K} = Q^2 / \langle r \rangle T_i \quad (1.115)$$

Q est la charge de l'ion, $\langle r \rangle$ la distance moyenne entre les ions, et T_i la température ionique. Lorsque $\Gamma \gg 1$, l'énergie potentielle domine et le plasma est dit *corrélé*, et pour $\Gamma \ll 1$, il est dit *cinétique*.

Dans notre cas, comme le montre la figure 3.26, Γ est initialement bien supérieur à 1. A une pression de $20mbar$, il atteint une valeur $\Gamma \simeq 300$.

Au moment de l'ionisation par OFI, les ions du plasma (en fait les atomes) sont distribués uniformément dans l'espace, ce qui ne correspond pas au minimum d'énergie pour les ions, il y a donc un excès d'énergie potentielle. Cette énergie potentielle va se dissiper par interaction ion-ion en énergie cinétique et chauffer les ions.

A la fin de la relaxation, l'énergie cinétique et l'énergie potentielle deviennent à peu près équivalentes ($\Gamma \sim 2$). Le graphique 3.27 montre le chauffage provoqué par l'effet de couplage fort en fonction de la pression du gaz. Pour $P = 20mbar$, la température s'élève de $5eV$, soit $60000K$. Alors qu'initialement la température était de $300K$. L'effet de couplage des ions provoque donc un chauffage des ions très important comparativement aux autres effets.

Temps caractéristique de chauffage

Lors de la relaxation, l'énergie cinétique oscille jusqu'à atteindre sa valeur d'équilibre. Le temps caractéristique d'échange d'énergie pour les ions est donné par l'inverse de la fréquence plasma ionique. Pour le Xe^{8+} elle vaut:

$$P_{pi} = 1.89 / \sqrt{P(mbar)} (ps) \quad (1.116)$$

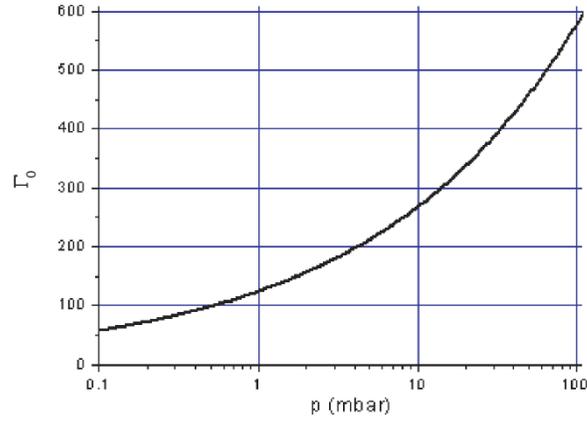


Figure 3.26: Valeur initiale du paramètre de couplage Γ_0 en fonction de la pression initiale du gaz cible, pour des ions de charge $Q = 8$ et de température $T_i = 400K$.

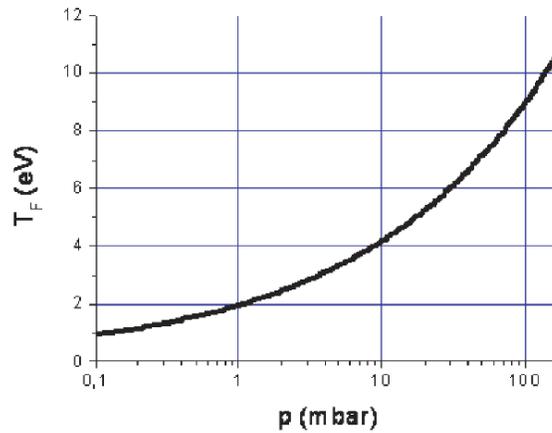


Figure 3.27: Température d'équilibre des ions Xe en fonction de la pression initiale du gaz cible.

Pour un gaz cible d'une pression $P = 20\text{mbar}$, on trouve une période d'oscillation d'environ $P_{pi} \simeq 0,42\text{ps}$. Le temps total de relaxation d'énergie dure quelques périodes plasma, soit dans notre cas un temps P_K de l'ordre de 2 ps.

Si on compare les temps caractéristiques P_K et τ par rapport à la durée du gain ($d_{SXRL} \simeq 10\text{ps}$), on constate que le temps mis par les ions pour chauffer est relativement court. Le phénomène de couplage fort peut donc jouer un rôle sur l'amplification du laser X-UV.

3.1.2.4 Conséquences

D'après les résultats qui viennent d'être présentés, le chauffage des ions après OFI, est principalement dû aux interactions électrostatiques entre les ions (effet de couplage fort). L'évolution de la température ionique induite est de $\Delta T = 3 \text{ à } 5\text{eV}$ (soit 36000K à 60000K) pour une pression initiale de gaz comprise entre 5 et 20mbar .

La conséquence principale d'une telle élévation de température est un élargissement de la raie laser par effet Doppler. Le profil de raie associé est une gaussienne. Pour une augmentation de la température de 5eV , cet élargissement induit vaut :

$$\Delta\nu = \nu_0 \sqrt{\frac{2k_B T_i}{Mc^2}} \quad (1.117)$$

ν_0 est la fréquence centrale de la raie laser, T_i la température ionique, et M la masse de l'ion. Dans notre cas, $\nu_0 = 7,5 \cdot 10^{15}$ et $M = 2,0 \cdot 10^{-24}\text{kg}$. L'élargissement provoqué est de $\Delta\nu \simeq 5 \cdot 10^{10}\text{s}^{-1}$, soit $\Delta\nu/\nu_0 = \Delta\lambda/\lambda \simeq 10^{-5}$ ce qui est une valeur faible. Cette valeur sera à comparer à l'élargissement naturel ajoutée à l'élargissement par collision de la raie laser ($\gamma + 1/T_2$). Nous verrons que l'élargissement collisionnel devient dominant dès que la pression du gaz dépasse les 15 mbar.

3.2 Modèles de cinétique 0D

3.2.1 Cinétique des populations atomiques

L'évolution des populations atomiques de l'ion lasant est déterminée par les processus atomiques qui ont lieu dans le plasma. Pour calculer ces populations, il est nécessaire de connaître les taux de transition associés à ces processus, qui sont ensuite inclus dans un modèle collisionnel-radiatif. Les forces d'oscillateur f_{ij} et de collision Ω_{ij} , calculées par les codes de physique atomique présentés dans le chapitre II, permettent de retrouver la valeur des taux dominants.

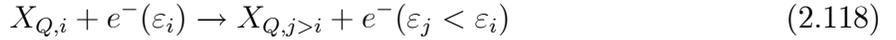
Nous énumérons ci-après l'ensemble des processus atomiques pouvant se produire au sein du plasma créés par OFI, soit spontanément, soit par l'intervention d'un électron ou d'un photon incident. Dans le bilan de ces processus, on note i l'état initial et j l'état final (après collision) du système. Un ion de charge Q et d'état i sera écrit $X_{Q,i}$.

3.2.1.1

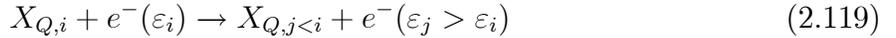
Processus collisionnels

Excitation collisionnelle et désexcitation collisionnelle

Dans le cas de l'excitation, l'électron incident transmet une partie de son énergie à l'ion, et l'amène dans un état d'énergie supérieur :



C'est l'inverse pour la désexcitation, après laquelle l'ion se trouve dans un état d'énergie inférieure :



Variation de population

La variation de population du niveau i induite par des transitions collisionnelles entre ce niveau et un niveau j est proportionnelle à la densité électronique N_e et au taux de collision C_{ij} . Ce dernier est calculé à partir des données de physique atomique (dans notre cas, les résultats de Distorted-Wave, cf. Chapitre II). On a donc :

$$\left(\frac{dN_i}{dt} \right)_{ij} = C_{ji}N_eN_j - C_{ij}N_eN_i \quad (2.120)$$

Calcul du taux de collision C_{ij}

Si on considère une transition collisionnelle d'un état lié i vers un autre état lié j , le taux de transition est défini par C_{ij} . Ce dernier équivaut au produit de la section efficace $\sigma_{ij}(v)$ avec la vitesse v de l'électron incident. C_{ij} s'obtient en intégrant la fonction de distribution des électrons en vitesse $f(v)$, ou en énergie $f(\varepsilon)$ (qui est la FDE calculée dans le chapitre I) :

$$C_{ij} = \langle \sigma_{ij}v \rangle = \frac{\int v \sigma_{ij}(v) f(v) d^3v}{\int f(v) dv} = \frac{\int \sigma_{ij}(\varepsilon) f(\varepsilon) \sqrt{\frac{2\varepsilon}{m_e}} d\varepsilon}{\int f(\varepsilon) d\varepsilon} \quad (2.121)$$

La section efficace $\sigma_{ij}(\varepsilon)$ s'exprime en fonction de la force de collision Ω_{ij} fournie par le code de physique atomique :

$$\sigma_{ij}(\varepsilon) = \frac{h^2}{8\pi m_e \varepsilon g_i} \Omega_{ij}(\varepsilon) \quad (2.122)$$

Dans cette formule, g_i est la dégénérescence du niveau i initial, h la constante de Planck, et m_e la masse de l'électron. Les formules sont les mêmes pour l'excitation comme pour la désexcitation. D'autre part, s'applique le principe de microréversibilité qui stipule que la force de collision d'une transition de i vers j est égale à celle de la transition inverse de j vers i :

$$\Omega_{ij} = \Omega_{ji} \quad (2.123)$$

Ionisation collisionnelle

Elle se produit lorsque l'électron projectile arrache un électron à l'ion cible :



Le taux d'ionisation peut être calculé rapidement avec des formules empiriques de type Lotz [65] avec une précision de l'ordre de 10%.

Recombinaison à 3 corps

2 électrons entrent dans la sphère d'influence d'un ion. L'un des 2 électrons se recombine avec l'ion, et l'autre ressort avec une énergie plus importante :



Recombinaison diélectronique

Un électron libre se recombine avec un ion en excitant un de ses électrons liés :



La configuration de l'ion est alors instable. Elle mène soit à l'autoionisation (retour à la configuration avant collision), soit à l'émission d'un photon, amenant l'ion dans un état plus stable, c'est-à-dire :



3.2.1.2 Processus radiatifs

Désexcitation radiative (Emission spontanée)

Elle se produit dans le cas où l'ion se trouve dans un état excité, radiatif (non métastable). Ce dernier émet alors un photon et passe dans un état d'énergie inférieure. Les photons sont émis dans une direction aléatoire avec un taux qui est lié au temps de vie du niveau :



La variation de la population du niveau initial (i) induite par l'émission spontanée vaut :

$$\left(\frac{dN_i}{dt} \right)_{A_{ij}} = -A_{ij} N_i \quad (2.129)$$

avec :

$$A_{ij} = \frac{1}{g_i} \frac{e^2 \omega^2}{m_e \varepsilon_0 \pi c^3} f_{ij} \quad (2.130)$$

Chapitre 3: Cinétique du plasma créé par OFI

A_{ij} est le coefficient d'Einstein. g_i et g_j sont respectivement la dégénérescence des niveaux i et j et f_{ij} la force d'oscillateur entre ces 2 niveaux.

Emission stimulée et absorption induite

Ces processus se produisent dans le cas où un photon résonant incident interagit avec un ion. Si ce dernier se trouve dans le niveau supérieur de la transition résonante alors il se désexcite en émettant un photon identique (même phase, même énergie et même direction) :

$$X_{Q,i} + h\nu \rightarrow X_{Q,j<i} + h\nu + h\nu \quad (2.131)$$

Dans le cas contraire où l'ion se trouve dans le niveau inférieur, on peut observer une absorption du photon (absorption induite) :

$$X_{Q,i} + h\nu \rightarrow X_{Q,j>i} \quad (2.132)$$

Variation de population induite

La variation de population de ces niveaux associée aux processus d'émission stimulée et d'absorption induite est donnée par la relation suivante :

$$\left(\frac{dN_i}{dt}\right)_{ind.} = -\left(\frac{dN_j}{dt}\right)_{ind.} = -B_{ij}I(\omega_{ij})N_i + B_{ji}I(\omega_{ij})N_j \quad (2.133)$$

$I(\omega_{ij})$ est l'intensité spectrale du rayonnement incident (en $W.cm^{-2}.Hz^{-1}$) à la fréquence de résonance ω_{ij} , et B_{ij} est le coefficient d'Einstein, dont l'expression est :

$$B_{ij} = \frac{\pi e^2}{m_e \epsilon_0 h \nu c} f_{ij} \quad (2.134)$$

B_{ij} et A_{ij} sont liés par:

$$\frac{A_{ij}}{B_{ij}} = \frac{2h\nu^3}{c^2} \quad (2.135)$$

A noter que B_{ij} diffère de B_{ji} en raison de la dégénérescence des niveaux i et j :

$$B_{ij} = \frac{g_l}{g_u} B_{ji} \quad (2.136)$$

Photoionisation

Un ion absorbe un photon incident tout en relâchant un électron. L'énergie du photon doit pour cela être supérieure à l'énergie d'ionisation de l'ion.

$$X_{Q,i} + h\nu \rightarrow X_{Q+1,j} + e^- \quad (2.137)$$

Recombinaison radiative

Ce processus est l'inverse de la photoionisation. L'ion absorbe un électron puis se désexcite en émettant un photon dans le même temps :



3.2.1.3 Processus dominants dans notre plasma

Tous les processus atomiques ne vont pas avoir la même influence sur la population des niveaux atomiques de l'ion lasant. Les électrons libres étant chauds (leur énergie moyenne est supérieure à l'énergie d'ionisation), le plasma est fortement hors-équilibre et les ions vont avoir tendance à gagner de l'énergie interne par collisions. Ainsi, lors de la durée du gain, l'*excitation/désexcitation collisionnelle* et l'*ionisation collisionnelle* vont être les processus collisionnels dominants, alors que les processus de *recombinaison* seront marginaux. En effet, c'est seulement lorsque le plasma sera à l'équilibre qu'il existera autant de processus d'excitation que de processus de désexcitation pour un niveau donné. Comme nous l'avons vu cet équilibre n'est atteint que pour des états de charge très supérieurs à celle de l'ion lasant, c'est-à-dire bien après que le gain ait disparu.

En ce qui concerne les processus radiatifs, l'*émission spontanée* apporte une contribution non négligeable dans la désexcitation des ions, alors que ce n'est pas le cas pour la *recombinaison radiative*. La *photoionisation* est inexistante en l'absence dans le plasma de photons suffisamment énergétiques pour ioniser les ions. Enfin, l'*émission stimulée* et l'*absorption induite* jouent un rôle dans la réabsorption ou l'échappement des photons émis spontanément. Le taux d'échappement de ces photons résonants est étudié en fin de chapitre (cf. section *Pertes radiatives*).

3.2.1.4 Modèle collisionnel-radiatif

Un modèle collisionnel-radiatif permet la description de l'évolution des populations atomiques au sein d'une population d'atomes en interaction avec leur environnement. Il s'agit tout simplement de définir une équation de population pour chaque niveau atomique considéré. Dans notre cas, pour décrire l'évolution de la population des 2 niveaux de la raie laser, il est indispensable de décrire tous les niveaux atomiques impliqués dans les transitions modifiant la population de ces 2 niveaux.

L'évolution des populations atomiques est déterminée par les taux de transition associés aux processus atomiques. En prenant en compte tous les processus atomiques énumérés dans la section précédente, l'équation de population de chaque niveau atomique i de l'ion lasant s'écrit :

$$\frac{dN_i}{dt} = \sum_{j \neq i} (C_{ji} N_e N_j - C_{ij} N_e N_i) + \left(\sum_{j < i} A_{ij} N_i - \sum_{j > i} A_{ji} N_j \right) \quad (2.139)$$

$$+ \sum_{j \neq i} (-B_{ij} I(\omega_{ij}) N_i + B_{ji} I(\omega_{ij}) N_j) + \gamma_i \quad (2.140)$$

Le 1er terme du membre de droite représente les transitions collisionnelles entre le niveau i et les autres niveaux j de l'ion lasant. Le taux de ces transitions est proportionnel à la densité électronique N_e , et au taux de transition collisionnelle T_{ij} que l'on retrouve dans la formule 2.121. Le second terme est lié à la désexcitation radiative vers les niveaux d'énergie inférieure ($j < i$), et la désexcitation radiative en provenance de niveaux d'énergie supérieurs ($j > i$) vers le niveau i . Le 3ème terme représente quant à lui l'émission spontanée et l'absorption induite existant entre les différents niveaux j et le niveau i . A noter qu'une grande partie des transitions radiatives sont interdites (voir chapitre *Physique Atomique*), et lorsque c'est le cas entre un niveau j et le niveau i , alors les coefficients A_{ij} et B_{ij} sont quasiment nuls. Enfin, le quatrième terme représente la contribution des autres processus atomiques, qui ont une influence moindre et dont les taux sont calculés à l'aide de différentes formules.

L'évolution des populations atomiques d'un plasma d'ions donnés dépend donc principalement de la densité électronique N_e , des coefficients d'Einstein, et des taux de collision C_{ij} , eux-mêmes fonctions de la FDE des électrons $f(\varepsilon)$. L'étude de l'évolution de la FDE des électrons est donc primordiale pour le calcul des populations atomiques.

3.2.2 Cinétique des électrons

3.2.2.1 Introduction

La formule 2.121 nous rappelle que les taux de collision C_{ij} dépendent de l'énergie de la FDE de ces électrons. Pour déterminer l'évolution des populations atomiques au cours du temps, il importe donc de connaître l'évolution de cette FDE initiale au cours du temps. La fonction de distribution des électrons est affectée par les collisions *électron-ion*, inélastiques, qui vont modifier l'énergie moyenne et la densité d'électrons (dans le cas de l'ionisation) et leur distribution en énergie, et les collisions *électron-électron*, élastiques, qui ne modifient ni l'énergie moyenne, ni le nombre d'électrons mais seulement leur distribution en énergie. Ainsi les collisions inélastiques provoquent une chute de la température électronique (T_e) "effective", alors que les 2 types de collisions, affectent la distribution en énergie des électrons.

Plusieurs méthodes existent pour déterminer l'évolution temporelle de la FDE des électrons : soit des méthodes particulières (dynamique moléculaire ou traitement Monte-Carlo, à partir de collisions binaires entre des particules d'un échantillon statistique [79]), soit des méthodes statistiques liées à l'équation de Boltzmann. La méthode que nous avons utilisé

est la résolution de l'équation de Boltzmann dans l'approximation de Fokker-Planck. Elle a l'avantage de fournir une bonne estimation de la FDE avec un temps de calcul raisonnable. Dans notre cas où l'énergie moyenne des électrons est grande par rapport aux énergies d'excitation, l'approximation de Fokker-Planck donne de bons résultats. D'autre part, dans notre gamme d'énergie où une partie importante des électrons ont une énergie loin des seuils de réaction, les taux de collision ne vont être que faiblement affectés par la modification de la FDE. Il n'y a donc pas lieu d'utiliser des méthodes très complexes qui n'apporteront que des corrections de l'ordre du %.

3.2.2.2 Equation de Fokker-Planck

L'équation de Fokker-Planck permet de calculer l'évolution de la fonction de distribution d'un ensemble de particules f [34]. C'est une équation différentielle de la FDE dont l'expression ([25]) générale est la suivante :

$$\frac{\partial f_s}{\partial t} + \vec{v} \cdot \frac{\partial f_s}{\partial \vec{r}} - \frac{q_s}{m_e} \vec{E} \cdot \frac{\partial f_s}{\partial \vec{v}} = \sum_{s'} C(f_s, f_{s'}) \quad (2.141)$$

f_e représente la FDE des électrons. \vec{E} est le champ électrique auto-cohérent (dans notre cas il est nul), q_s la charge des particules et m_e leur masse. L'opérateur de collision traduit l'interaction entre 2 ensembles de particules s et s' en mouvement dans le plasma. Il s'exprime de la manière suivante :

$$C(f_s, f_{s'}) = -\frac{\partial}{\partial \vec{v}} \left(\vec{F}_{ss'} f_s - \overline{\overline{D_{ss'}}} \frac{\partial f_s}{\partial \vec{v}} \right) \quad (2.142)$$

f_s est la fonction de distribution de l'ensemble de particules s et $f_{s'}$ celle de l'ensemble de particules s' . Dans le membre de droite de l'équation 2.142, le terme de gauche $-\frac{\partial}{\partial \vec{v}} \vec{F} f_s$ représente l'effet lié à la variation du mouvement global des particules incidentes ($\langle \Delta \vec{v} \rangle / \Delta t$). Cette variation est fonction des forces de frottement $\vec{F}_{ss'}$ imprimées par les particules cibles s' sur les particules incidentes s . Le terme de droite $\frac{\partial}{\partial \vec{v}} \left(\overline{\overline{D_{ss'}}} \frac{\partial f_s}{\partial \vec{v}} \right)$ est lié au phénomène de diffusion des particules. $\overline{\overline{D_{ss'}}}$ est un coefficient tensoriel de diffusion qui est fonction de la dispersion moyenne des vitesses $\langle \Delta \vec{v} \cdot \Delta \vec{v} \rangle / \Delta t$.

Dans un plasma comme le nôtre, on peut définir 2 opérateurs, $C_{ee}(f_e, f_e)$ l'opérateur de collision électron-électron fonction de f_e la fonction de distribution des électrons, et $C_{ei}(f_e, f_i)$ l'opérateur de collision électron-ion, dépendant à la fois de f_e et de f_i , la fonction de distribution des ions.

A cela, il faut ajouter un terme source $S(f_e)$ représentant les collisions inélastiques. Si on considère que la distribution des vitesses est isotrope dans le plasma, qu'il n'y a pas de champ appliqué et que le plasma est uniforme, en considérant l'intégrale de Landau et les potentiels de Rosenbluth [80], l'équation 2.141 devient :

$$\frac{\partial f_e}{\partial t} = \frac{1}{v^2} \frac{\partial}{\partial v} \left[\alpha f_e + \beta \frac{\partial f_e}{\partial v} \right] + S(f_e) \quad (2.143)$$

où α et β sont des coefficients définis par les expressions suivantes. Λ est la longueur thermique de De Broglie $\Lambda = \sqrt{\frac{h^2}{2\pi m_e k_B T}}$.

$$\alpha = \frac{(4\pi)^2 e^4 \ln(\Lambda)}{m^2} \int_0^v f_e(v') v'^2 dv' \quad (2.144)$$

$$\beta = \frac{(4\pi)^2 e^4 \ln(\Lambda)}{m^2} \frac{1}{3} \left[\int_0^v f_e(v') v'^4 dv' + \int_v^\infty f_e(v') v' dv' \right] \quad (2.145)$$

On retrouve ici les expressions classiques d'un plasma cinétique, ce qui est justifié dans notre plasma de relativement basse densité et de haute température (pour les électrons).

3.3 Résultats du code OFI-0D

Dans cette partie, nous présentons les résultats du code OFI-0D qui reprend les modèles 0D décrits dans la section précédente. Le code OFI-0D décrit les caractéristiques du milieu amplificateur en un point donné du plasma. A partir de ce que nous avons pu étudier, l'évolution du plasma, régie par les équations de population du modèle radiatif, est fonction de la fréquence des collisions et de la FDE initiale des électrons. Ces grandeurs physiques sont elles-mêmes fonctions, comme nous l'avons vu dans le chapitre I, des caractéristiques du laser de pompe (Intensité I_{\max} et polarisation ϕ). Nous prendrons le plus souvent les résultats du code dans le cas du xénon pour l'étude du comportement des populations, et ajouterons ceux avec le krypton pour l'étude quantitative.

3.3.1 Description du code

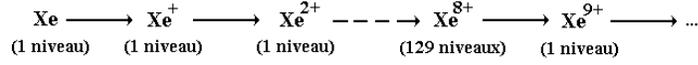
Le code OFI-0D a été développé dans le but de produire des données sur les caractéristiques du milieu amplificateur en un point donné : le gain g , de l'émissivité J , de l'intensité de saturation I_s , et de l'élargissement de la raie laser $\Delta\nu$ en fonction des paramètres P , I_{\max} et ϕ . Ces grandeurs physiques sont, nous le verrons plus tard, les données de base pour décrire le transfert radiatif du laser X-UV et seront explicitées dans le chapitre suivant.

3.3.1.1 Le modèle collisionnel-radiatif

Pour établir un modèle collisionnel-radiatif, OFI-0D reprend des données atomiques calculées par les codes de physique atomique SUPERSTRUCTURE et UCL Distorted-Wave et étudiées dans le chapitre II. Ces données sont, pour rappel, les forces de collisions, sur une grille en énergie notées $\Omega_{ij}(\epsilon)$, et les forces d'oscillateur f_{ij} ainsi que les énergies E_i , et la dégénérescence des niveaux. A partir de ces données, le code calcule les taux de collision C_{ij} et les taux radiatifs A_{ij} et B_{ij} évoqués dans la section précédente.

Pour l'ion lasant ($Z = 8$), 129 niveaux atomiques ont été considérés. En ce qui concerne les

autres états de charge ($Z \neq 8$), seul le niveau fondamental est pris en compte, c'est-à-dire que nous négligeons l'ionisation en plusieurs étapes (excitation puis ionisation de l'état excité). :



(3.146)

Les processus de recombinaison étant négligeables, en pratique, seuls les états de charge inférieurs à 8 pourraient jouer un rôle si le temps d'ionisation était plus court que la durée du gain. Le résultats du code donnent en fait une contribution négligeable des ions Xe^{7+} et Xe^{6+} . Il est possible qu'en prenant en compte l'excitation, leur contribution devienne significative.

3.3.1.2 Approximations

Dans le modèle du code OFI-0D, on suppose qu'il n'existe aucun transfert d'énergie ou de matière entre les différentes régions du plasma (entre petits volumes de la taille de la maille de calcul). En ce qui concerne l'émission, et l'absorption de rayonnement dans le plasma a priori dépendante de l'endroit du plasma et de l'épaisseur optique de ce dernier, elles sont prises en compte uniquement par un facteur d'échappement dans les équations. Il apparaît alors que la principale simplification est de négliger la photoionisation des zones limitrophes (Xe^{7+} et Xe^{6+}) par le plasma central plus chaud, en particulier venant de certaines zones près de l'axe qui sont sur ionisées (Xe^{9+} et Xe^{10+}).

3.3.2 Evolution du degré d'ionisation et de la température électronique

Le code OFI-0D, nous fournit des informations sur l'évolution du degré d'ionisation moyen Z du plasma et de l'énergie moyenne $\bar{\epsilon}_e$ des électrons au cours du temps. Les graphiques ci-dessous en sont l'illustration, avec le cas d'un plasma initial d'ions Xe^{8+} créé par un laser de pompe de polarisation circulaire $\phi = 0.5$ et d'intensité maximale $I_{max} = 5.10^{16} \text{W.cm}^{-2}$, et ce à plusieurs valeurs de pression P .

Le graphique 3.28 montre l'évolution de l'état de charge Z au cours du temps. On remarque que plus la pression du gaz est élevée, plus Z croît rapidement. La raison est que l'évolution du degré d'ionisation va dépendre de la fréquence des collisions électron-ion. Plus cette fréquence est élevée, plus l'ionisation collisionnelle sera fréquente. Comme le taux d'ionisation est fixé à 8 et la FDE initiale est indépendante de la pression, on peut voir sur la figure que le taux d'ionisation croît linéairement avec la pression. Une estimation de la durée du gain peut être faite en prenant le temps pour lequel l'ionisation moyenne atteint la valeur 9. On obtient ainsi des durées allant de 4,5 ps à 45 ps lorsque la pression passe de 50

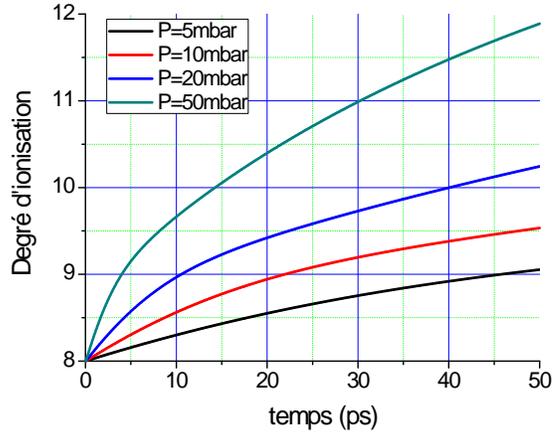


Figure 3.28: Evolution du degré d'ionisation moyen du Xe au cours du temps après OFI pour $I_{\max} = 5.10^{16} W.cm^{-2}$, $\phi = 0,5$, à différentes pressions P .

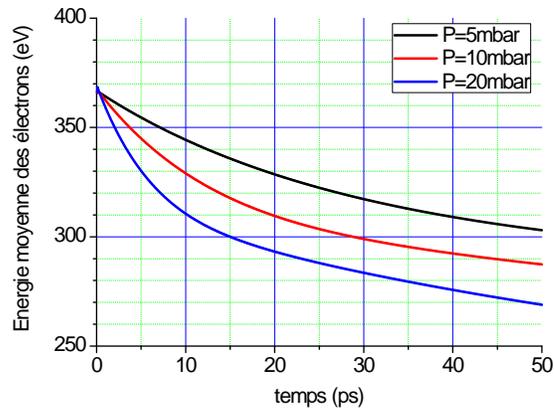


Figure 3.29: Evolution de l'énergie moyenne des électrons $\overline{\varepsilon_{e^-}}$ dans un plasma de Xe après OFI pour $I_{\max}=5.10^{16} W.cm^{-2}$ et $\phi = 0.5$

à 5 mbar. Il apparaît également qu'au fil du temps, l'ionisation ralentit : comme l'énergie des électrons va diminuer au fil des ionisations, et comme l'énergie d'ionisation ϵ_Z croît en fonction de Z (voir le tableau 1.113), les ions seront également de plus en plus difficiles à ioniser. Le plasma tend alors vers son degré d'ionisation d'équilibre.

Il semble donc que le plasma atteigne à terme un degré d'ionisation proche du degré d'équilibre calculé par la théorie ($Z \simeq 16$). Le temps mis pour atteindre cet équilibre dépend principalement de la pression initiale P du gaz (l'énergie moyenne initiale des électrons ne dépend principalement que de l'état d'ionisation).

Parallèlement à cette augmentation du degré d'ionisation du plasma, on observe dans le graphique 3.29 une diminution de l'énergie moyenne $\bar{\epsilon}_e$ des électrons, due au transfert d'énergie par collision inélastique. Cette diminution est plus rapide à pression élevée, pour la même raison que le degré d'ionisation. Nous vérifions également sur la figure 3.29 que l'énergie initiale, 370 eV, est indépendante de la pression. La diminution de l'énergie moyenne des électrons libres est due à deux effets : l'ionisation et l'excitation. Dans le cas de l'ionisation, il y a d'une part le fait que l'apparition d'un nouvel électron va induire un partage supplémentaire de l'énergie disponible et d'autre part qu'il faut fournir l'énergie d'ionisation. Dans le cas de l'excitation, l'énergie est perdue par transition radiative. En prenant le cas d'une pression de 20 mbar, on peut observer sur les deux figures, que lorsque le degré d'ionisation atteint 10 (à 40 ps), la température est passée de 370 eV à 275 eV. Un rapide calcul montre que l'essentiel de cette baisse d'énergie est due aux processus d'ionisation. On retrouve ici le fait que le plasma est très fortement collisionnel.

3.3.3 Evolution de la FDE des électrons

La résolution de l'équation de Fokker-Planck nous donne l'évolution de la distribution en énergie des électrons au cours du temps. Le graphique 3.30 suivant montre un exemple de résultat de FDE électronique à différents instants, dans un plasma de Xe^{8+} créé par un laser de pompe à polarisation circulaire $\phi = 0,5$ (maximisant leur énergie). La pression du gaz est de 20mbar. A $t=0$, on retrouve la FDE créée par ionisation par effet tunnel (voir chapitre I). On peut observer qu'elle s'écarte fortement d'une Maxwellienne, avec en particulier deux pics d'énergie autour du keV. Ces pics correspondent à l'ionisation des deux électrons 5s. Ensuite, les collisions électron-électron vont au fur et à mesure faire tendre la FDE vers une Maxwellienne, synonyme de *thermalisation* des électrons. Dans cet exemple, le temps caractéristique de thermalisation est de 30 ps, ce qui est supérieur à la durée du gain.

Pendant la durée du gain, de l'ordre de 10ps à une pression de 20mbar, l'écart de la FDE à une Maxwellienne est donc significatif, ce qui justifie le choix de considérer une FDE hors équilibre pour le calcul des taux de collisions électron-ion. L'écart par rapport à un calcul utilisant une Maxwellienne n'est cependant pas très grand.

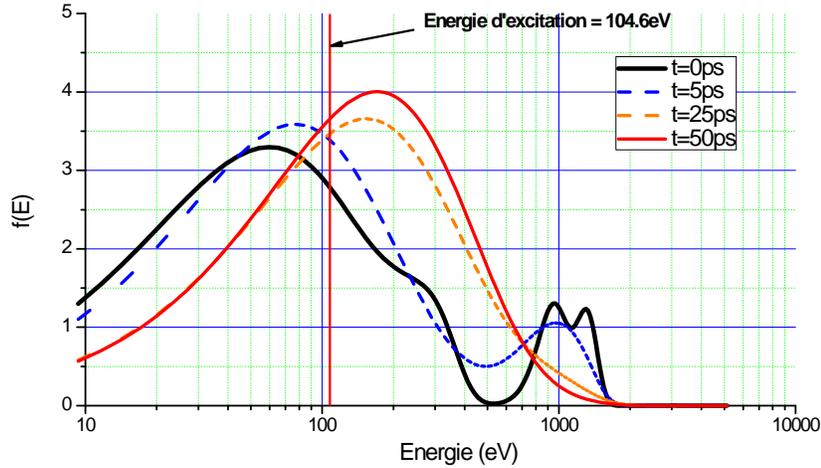


Figure 3.30: FDE des électrons à différents instants dans un plasma de Xe^{8+} à $P=20mbar$

3.3.4 Evolution des populations atomiques de l'ion lasant

Les données présentées sur les populations atomiques de l'ion lasant sont issues des mêmes simulations que pour les données sur le degré d'ionisation, à savoir un plasma de Xe^{8+} créé à une intensité maximale $I_{max} = 5.10^{16}W.cm^{-2}$, et une polarisation $\phi = 0,5$ du laser de pompe. La pression a été fixée à $P = 20mbar$. Les niveaux atomiques sont numérotés de 1 à 129 par ordre croissant d'énergie. L'étude sera logiquement centrée sur 3 de ces 129 niveaux, à

savoir :

- le niveau fondamental $4d^{10} (^1S_0)$ que l'on note g (ground level).
- le niveau inférieur de la raie laser $4d^95p (^1P_1)$, noté l (lower)
- le niveau supérieur de la raie laser $4d^95d (^1S_0)$, noté u (upper)

3.3.4.1 Population de l'ion lasant et du niveau fondamental

Les études préalables ont montré que l'ionisation de l'ion lasant se faisait sur quelques ps à quelques dizaines de ps selon la pression. Avant l'ionisation totale de cet ion, nous souhaitons avoir plus d'informations sur la proportion d'ions lasants dans le niveau fondamental au cours du temps, ce qui nous permet d'en déduire la proportion de ces ions se trouvant dans un état excité.

Equation de population du niveau fondamental g

La population du niveau fondamental (notée N_g) est affectée principalement par l'ionisation collisionnelle ainsi que par l'excitation collisionnelle. Dans une première analyse, on peut négliger les processus de désexcitation, étant donnée la température élevée des électrons. Quant

à la désexcitation radiative, on a vu dans la section *Pertes radiatives* qu'elle n'affectait pas la population du niveau fondamental, en raison de la réabsorption locale des photons émis.

On définit alors un taux d'ionisation P_g^{ion} , et un taux d'excitation total vers l'ensemble des niveaux excités i , $P_g^{exc} = \sum_{i>g} C_{gi}$. Ceci nous donne un taux total lié aux collisions que l'on notera $P_g^C = P_g^{ion} + P_g^{exc}$. Ainsi, on peut donner une expression de l'équation de population du niveau fondamental :

$$\frac{dN_g}{dt} = - (P_g^{ion} + P_g^{exc}) N_e N_g = -P_g^C N_e N_g \quad (3.147)$$

En sachant qu'initialement, la population du niveau fondamental N_g correspond à la densité atomique N_0 , on retrouve alors à partir de cette équation, l'expression de N_g en fonction du temps. Il s'agit d'une exponentielle décroissante à un temps caractéristique $\tau = 1/P_g^C N_e$ (en négligeant la variation de τ liée à la modification de la FDE) :

$$N_g = N_0 \exp(-P_g^C N_e t) \quad (3.148)$$

Ion lasant (Z=8)

La population de l'ion lasant peut, quant à elle, être uniquement affectée par l'ionisation collisionnelle, à un taux $P_{8+}^{ion} = P_{8+}^C$. On néglige les processus de recombinaison, comme cela a été évoqué dans la section sur les *Processus atomiques*. L'équation de population peut alors s'écrire :

$$\frac{dN_{8+}}{dt} = -P_{8+}^C N_e N_{8+} \quad (3.149)$$

En sachant que $N_{8+}(t=0) = N_0$, l'expression de N_{8+} au cours du temps devient :

$$N_{8+} = N_0 \exp(-P_{8+}^C N_e t) \quad (3.150)$$

La population de l'ion lasant, comme pour celle du niveau fondamental, décroît de manière exponentielle. Néanmoins, il faut préciser que son taux de décroissance ne peut être supérieur à celui de N_g ($P_g^C > P_{8+}^C$). À $t > 0$, une partie des ions lasants se trouve dans un état excité en raison des processus d'excitation collisionnelle ($N_g < N_{8+}$).

Données OFI-0D

Le tableau ci-dessous fournit des données du code OFI-0D sur l'évolution de la population des ions lasants Xe^{8+} (notée N_{8+}), du niveau fondamental N_g au cours du temps (colonnes 2), de l'ensemble des niveaux excités N_{exc} (colonne 4) en proportion de la densité atomique, ainsi que la proportion de N_g et N_{exc} sur celle de l'ion lasant N_{8+} :

Temps (<i>ps</i>)	N_{8+}	N_g	N_g/N_{8+}	N_{exc}	N_{exc}/N_{8+}
0	1	1	100 %	0	0%
0,5	0,9397	0,8920	94,92 %	0,0477	5,08%
1	0,8771	0,7888	89,93 %	0,0833	10,07%
2	0,7599	0,6180	81,33 %	0,1419	18,67%
5	0,4748	0,2951	62,15 %	0,1797	37,85%
10	0,1940	0,0800	41,25 %	0,1140	58,75%
15	0,0722	0,0198	27,40 %	0,0524	72,60%
20	0,0258	0,0047	18,06 %	0,0211	81,94%

(3.151)

Les données sont en cohérence avec les équations de population décrites auparavant. On observe une chute à peu près exponentielle de la population d'ions lasants Xe^{8+} (colonne 2), et du niveau fondamental (colonne 3). La valeur rapport N_g/N_{8+} suit également une décroissance exponentielle au cours du temps mais avec un taux plus faible, qui correspond à $(P_g^C - P_{8+}^C)$ d'après les équations.

La population totale de niveaux excités va quant à elle croître jusqu'à un maximum vers 5ps, dynamique liée à l'excitation collisionnelle, pour ensuite décroître sous l'effet de l'ionisation collisionnelle. La proportion de niveaux excités sur la population d'ions lasants augmente car le plasma étant collisionnel, les populations auront tendance à se rééquilibrer à l'équilibre de Boltzmann (jusqu'à ce que N_g atteigne l'ordre de grandeur de la population d'un niveau excité).

3.3.4.2 Population des niveaux excités

Evolution des populations au cours du temps

Les graphiques 3.31, 3.32, 3.33 ci-dessous montrent l'évolution de la population des 128 niveaux excités de l'ion lasant introduits dans le modèle collisionnel-radiatif respectivement aux instants $t = 0, 5ps, 1ps, 10ps$ après passage du laser de pompe.

A $t = 0, 5ps$ (figure 3.31), l'évolution des populations atomiques des niveaux excités diffère selon le niveau considéré. Cette différence de peuplement trouve son origine dans la valeur des forces de collision à partir du niveau fondamental, Ω_{gi} . Les niveaux lasants (14, inférieur, et 55, supérieur) figurent parmi les niveaux excités les plus peuplés ($\sim 3.10^{-3}$). A ce stade, le peuplement entre le niveau fondamental est plus élevé de 2 à 5 ordres de grandeur par rapport aux niveaux excités. A $t = 1ps$ (figure 3.32), la répartition des populations des niveaux excités change peu, mais leur population augmente globalement. Pour la plupart de ces niveaux, il y a un doublement de la population entre $t = 0, 5ps$ et $t = 1ps$. Certains d'entre eux (comme le n°109) se dépeuplent par rapport aux autres, par désexcitation radiative ou excitation collisionnelle.

D'autre part, la proportion en population est sensiblement la même pour quasiment tous les niveaux d'une même sous-couche. C'est le cas des sous-couches 6f, 6d, 5f ou 4f, comme le montre le graphique de droite 3.32.

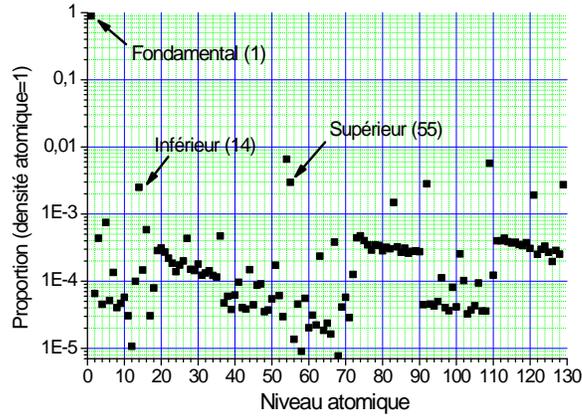


Figure 3.31: Population des niveaux atomiques du Xe^{8+} à $t=0,5ps$ pour $P = 20mbar$.

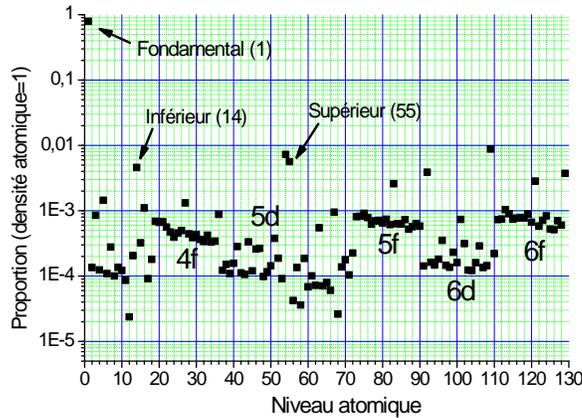


Figure 3.32: Population des niveaux atomiques du Xe^{8+} à $t=1ps$ pour $P = 20mbar$.

En divisant toutes ces populations par le degré de dégénérescence du niveau, on trouve le résultat reporté figure 3.33 à $t = 10ps$. l'écart de population entre les niveaux est devenu beaucoup plus faible. Ces populations sont regroupées autour de 10^{-4} . Les transitions collisionnelles entre états excités ont joué un rôle important dans l'homogénéisation des populations, signe qu'on est dans une situation de quasi-équilibre.

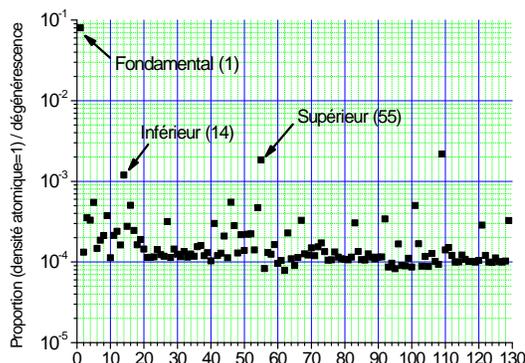


Figure 3.33: Population des niveaux atomiques du Xe^{8+} à $t=10ps$ pour $P = 20mbar$.

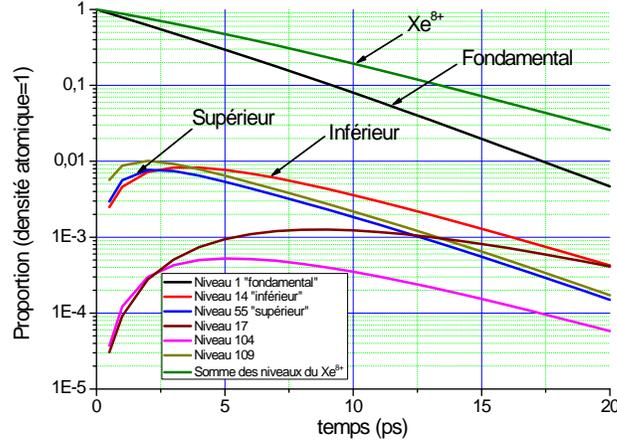
Etude de la population de quelques niveaux

Le graphique suivant 3.34 montre l'évolution de quelques populations au cours du temps entre $t = 0ps$ et $t = 20ps$.

On retrouve ici la décroissance exponentielle de la population d'ions lasants (Xe^{8+}) et de celle du niveau fondamental (1). En revanche, on observe une croissance initiale de la population des niveaux excités (14,55,17,104 et 109) due à l'excitation collisionnelle à partir du niveau fondamental. Puis, une décroissance a lieu lorsque la population du niveau fondamental devient insuffisante pour compenser l'ionisation collisionnelle des niveaux excités.

A terme, comme un équilibre est observé entre toutes les populations, les populations vont se rapprocher les unes des autres (à leur dégénérescence respective près), y compris celle du niveau fondamental. Dans le graphique ci-dessus, on observe bien un resserrement des courbes de population vers 20ps : une chute marquée pour le niveau fondamental, et plus lente pour les niveaux les moins peuplés.

Les niveaux lasants figurent parmi les niveaux excités les plus peuplés. Un maximum de leur population est observé entre $t = 2ps$ et $t = 5ps$. Le premier instant va correspondre au maximum du gain d'amplification de la raie laser. L'augmentation ultérieure de la population du niveau inférieur va conduire à une réduction du gain. La valeur des maxima de population correspond à 1,24% de la population du fondamental pour le niveau *supérieur* et 2,18% pour le niveau *inférieur*. Pour les temps assez longs, le rapport des populations entre le niveau haut et le niveau bas de la raie laser est pratiquement égal au rapport des dégénérescence. L'inversion de population sera donc fortement réduite. La durée du gain sera donc plus faible que la durée que l'on peut calculer à partir de l'évolution temporelle de la population du niveau haut.


 Figure 3.34: Evolution de la population de quelques niveaux atomiques du Xe^{8+} à $P=20\text{mbar}$

Equation de population

On considère un niveau excité i de population N_i . L'excitation collisionnelle à partir du niveau fondamental va peupler ce niveau excité (on note C_{gi} son taux correspondant). Leur dépeuplement de ce niveau excité se fait par excitation collisionnelle vers des niveaux d'énergie plus élevée, et par ionisation collisionnelle. Les processus radiatifs peuvent également jouer un rôle dans son dépeuplement, comme la désexcitation radiative, liée au temps de vie du niveau.

Si on néglige les processus d'absorption et d'émission induites de photon, ainsi que l'excitation collisionnelle amenant des électrons en provenance de niveau excités d'énergie inférieure, on obtient l'équation de population suivante :

$$\frac{dN_i}{dt} = C_{gi}N_eN_g - P_i^C N_eN_i - P_i^R N_i \quad (3.152)$$

P_i^C constitue le taux de perte par collision associé à l'excitation et l'ionisation collisionnelles, et P_i^R le taux de perte radiatif lié à la désexcitation radiative. Bien évidemment, l'excitation collisionnelle en provenance de niveaux excités d'énergie inférieure peut jouer un rôle important, notamment pour des niveaux à la fois d'énergie élevée et de faible peuplement (nombre important de niveaux d'énergie inférieure pouvant le peupler, dont la contribution au peuplement est importante par rapport au niveau fondamental). Mais c'est beaucoup moins le cas de niveaux très peuplés et d'énergie plus proche de celle du niveau fondamental, comme par exemple les niveaux lasants, qui sont l'objet de notre étude.

Dynamique générale

On distingue 2 phases dans l'évolution de $N_i(t)$:

- une première phase, lorsque N_i atteint encore des valeurs faibles ($N_i < \frac{C_{gi}N_eN_g}{P_i^C N_e + P_i^R}$) : le premier terme du membre de droite de l'équation 3.152 est dominant. $N_i(t)$ suit alors une

penne croissante grâce au pompage provenant du niveau fondamental g . Dans cette phase, les populations atomiques sont fortement hors-équilibre.

- la seconde phase, après passage du maximum de population : la population atteint un équilibre $N_{i_{eq}}$, déterminé par l'égalité $\frac{dN_i}{dt} = 0$:

$$N_{i_{eq}} = \frac{C_{gi}N_eN_g}{P_i^R + N_eP_i^C} \quad (3.153)$$

$N_{i_{eq}}$ est fonction de N_g la population du fondamental, les autres coefficients de l'équation étant à peu près constants. Comme N_g est amené à décroître au cours du temps (3.150), $N_{i_{eq}}$ va suivre une évolution similaire.

3.3.4.3 Inversion de population entre les niveaux lasants

L'inversion de population entre les 2 niveaux lasants est une grandeur physique permettant la mesure du gain g du milieu amplificateur. On la note W . Elle se calcule par la différence entre les populations du niveau supérieur u et du niveau inférieur l de la raie laser, divisées par la dégénérescence respective de ces niveaux, g_u et g_l :

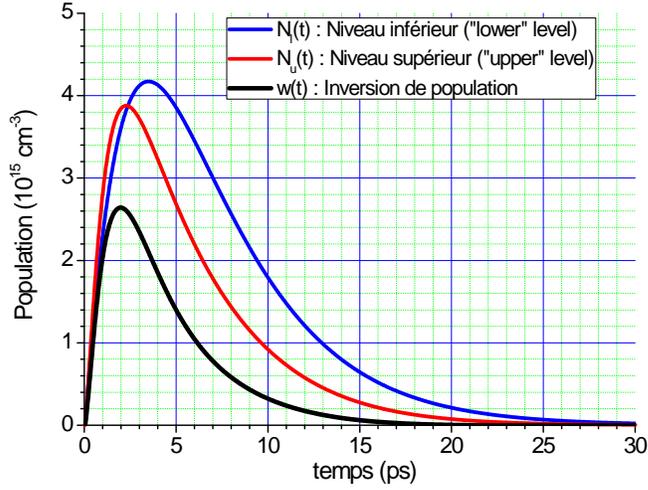
$$W = \frac{N_u}{g_u} - \frac{N_l}{g_l} \quad (3.154)$$

Evolution temporelle

Le graphique 3.35 ci-dessous montre l'évolution de la population des niveaux *supérieur* N_u , de dégénérescence g_u , et *inférieur* N_l , de dégénérescence g_l , de la transition laser, ainsi que celle l'inversion de population W entre ces 2 niveaux, qui est définie par la relation suivante :

$W(t)$ possède donc une dynamique similaire à celle de la population des niveaux excités étudiée précédemment, à savoir une croissance liée à l'excitation collisionnelle, et une décroissance liée à l'ionisation collisionnelle. On remarquera que W est positif car le niveau inférieur, bien que plus peuplé que le niveau supérieur, est dégénéré en 3 sous-niveaux ($g_l = 3$) contre un seul pour le niveau supérieur ($g_l = 1$). L'inversion de population est donc la différence de population des sous-niveaux atomiques : le sous-niveau du niveau u est plus peuplé que chacun des sous-niveaux du niveau l . L'émission stimulée étant une transition s'effectuant entre sous-niveaux, on peut supposer que lorsque $W > 0$, le milieu est amplificateur.

L'inversion de population est générée par les collisions électron-ion. La fréquence et l'incidence de ces collisions est déterminée respectivement par la densité électronique N_e du plasma (donc de la pression P du gaz cible), et par la FDE des électrons libres. La FDE des électrons libres étant elle-même dépendante des caractéristiques du laser de pompe, à savoir, son intensité I_{MAX} et sa polarisation ϕ , l'inversion de population $W(t)$ peut donc être affectée par 3 paramètres : P , I_{MAX} et ϕ . On peut vérifier sur la figure que la durée de l'inversion de population est plus courte que celle de chaque population. L'augmentation de la population du niveau bas, limite de façon assez significative la durée du gain.


 Figure 3.35: Evolution de la population des niveaux lasants du Xe^{8+} à $P=20\text{mbar}$

Influence de la polarisation ϕ

Le graphique 3.36 montre la FDE des électrons induite par le laser de pompe en fonction de la polarisation de ce dernier. On remarque que c'est avec une polarisation circulaire ($\phi = 0.5$) que la FDE s'étend vers les énergies les plus élevées ($> 1000\text{eV}$). La "température" électronique atteinte est dans ce cas de $T_e = 350,96\text{eV}$. En revanche, pour une polarisation proche de la polarisation linéaire ($\phi = 0.1$) la proportion d'électrons dépassant le seuil d'excitation $\varepsilon_{exc} = 104,6\text{eV}$ est beaucoup plus faible : la "température" électronique atteint seulement $T_e = 107,43\text{eV}$.

D'après le graphique 3.37, pour une polarisation elliptique (ici $\phi = 0,25$) à circulaire ($\phi = 0,5$) du laser de pompe, pour lesquelles les électrons ont les énergies les plus élevées, W_{MAX} atteint une valeur plus élevée que pour une polarisation linéaire $\phi = 0,1$, pour lequel le pompage des niveaux lasants est donc moins efficace. A faible énergie d'une part le taux d'excitation va être réduit, mais surtout le rapport entre le taux de pompage du niveau bas par rapport à celui du niveau haut va être augmenter. Nous avons vu que même à haute température, une population importante du niveau bas limite le gain. Plus la température des électrons va diminuer, plus cette limitation va être importante. On peut cependant remarquer qu'avec une polarisation elliptique, l'inversion de population n'est fortement réduite que lorsqu'on s'approche de la polarisation linéaire. L'amplification est efficace sur une relativement large plage de polarisation autour de la polarisation circulaire. C'est bien ce qui observé expérimentalement. Dans nos calculs, nous avons généralement considéré une polarisation circulaire.

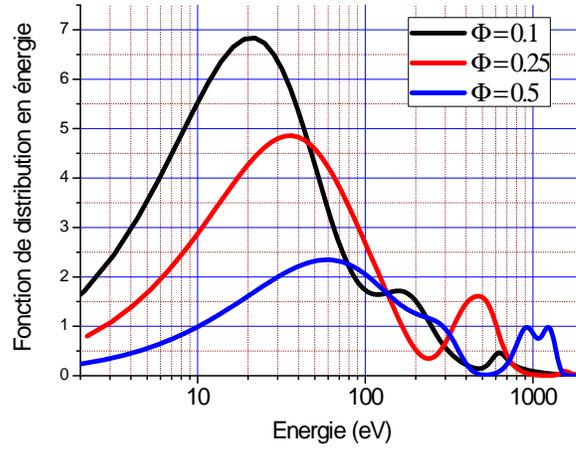


Figure 3.36: FDE initiale des électrons à différentes polarisations ϕ , dans un gaz cible de Xénon, à $I_{MAX} = 5.10^{16}W.cm^{-2}$

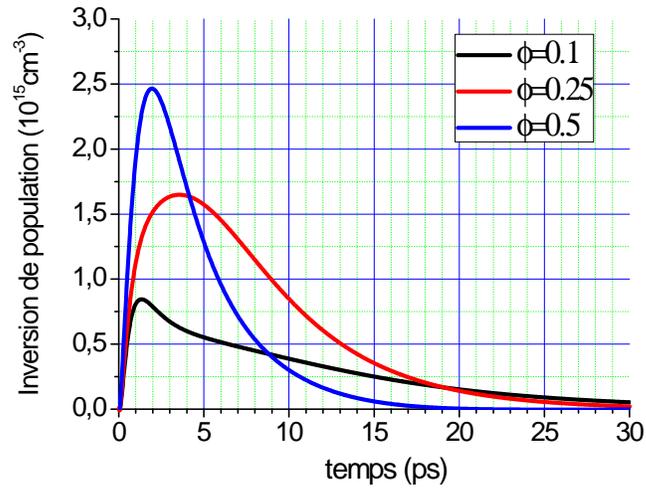


Figure 3.37: Evolution de l'inversion de population W pour un gaz cible de Xénon, à $I_{MAX} = 5.10^{16}W.cm^{-2}$ et pour différentes polarisations ϕ

Influence de l'intensité maximale du laser de pompe I_{MAX}

Le graphique (figure 3.38) montre, dans le cas du Krypton, le maximum W_{MAX} atteint par l'inversion de population $W(t)$ en fonction de l'intensité maximale I_{MAX} du laser de pompe traversant le gaz cible, à une pression initiale $P = 20\text{mbar}$. Le graphique montre également les intervalles d' I_{MAX} correspondant aux espèces ioniques majoritaires (voir chapitre 2 sur l'ionisation par effet tunnel). Pour rappel, dans le cas d'un gaz cible de Krypton, pour obtenir un plasma d'ions lasants Kr^{8+} , I_{MAX} doit être compris entre $3,5 \cdot 10^{16}$ et $2 \cdot 10^{17} \text{W.cm}^{-2}$.

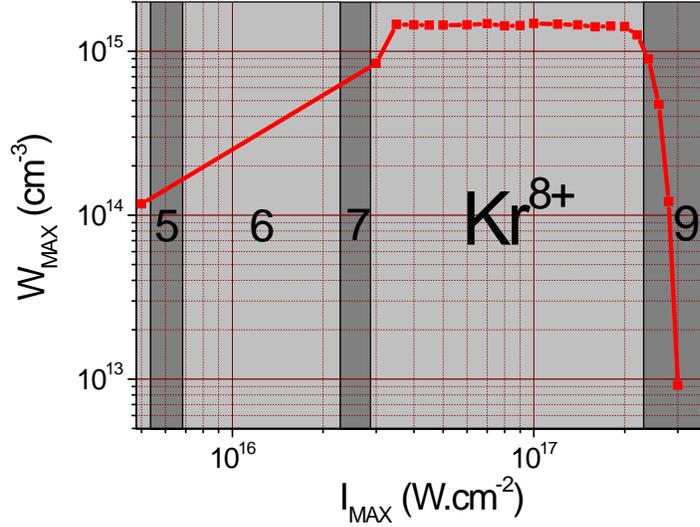


Figure 3.38: Maximum W_{MAX} atteint par l'inversion de population, en fonction de l'intensité maximale I_{MAX} du laser de pompe.

W_{MAX} atteint une valeur optimale d'environ $1,5 \cdot 10^{15} \text{cm}^{-3}$ dans l'intervalle d'intensité énoncé ci-dessus aboutissant à la création d'ions Kr^{8+} . On remarque que dans cet intervalle, W_{MAX} est pratiquement constant. Ceci est en accord avec les résultats du chapitre I, où nous avons vu que la FDE des électrons est directement reliée au degré d'ionisation de l'atome..

En revanche, en dehors de cet intervalle, l'inversion de population maximale atteinte est beaucoup plus faible. La chute de W_{MAX} est très rapide du côté des hautes intensités, en raison d'une trop forte ionisation du plasma. Du côté des faibles intensités, nous voyons que la variation est plus faible, car l'ion Kr^{8+} peut être créé par ionisation collisionnelle à partir d'ions plus faiblement chargés (Kr^{5+} à Kr^{7+}), conduisant à des valeurs de W_{MAX} supérieures à 10^{14}cm^{-3} . Notons que dans ce cas, l'évolution temporelle du gain est plus lente, puisqu'il faut d'abord ioniser l'ion puis ensuite l'exciter pour créer l'inversion de population. La différence de cinétique entre l'ion Kr^{8+} et les ions Kr^{5+} à Kr^{7+} fait que ces derniers ne participent pas au gain d'un signal injecté, lorsqu'on utilise un délai proche de sa valeur optimale (pour obtenir le maximum d'amplification).

Influence de la pression P du gaz

Solution de l'équation

La formule 3.153 permet de mieux comprendre la dynamique des populations atomiques, mais elle n'est exacte que si la vitesse de retour à l'équilibre du niveau excité, représenté par le terme $P_i^R + N_e P_i^C$, est beaucoup plus élevée que la variation du niveau fondamental. Nous souhaitons trouver la solution exacte de l'équation 3.152 afin de déterminer la valeur du maximum de population N_{MAX} atteint par $N_i(t)$ et l'instant t_{MAX} correspondant. En reprenant la formule 3.152 et en remplaçant N_g par son expression 3.148, on trouve l'équation différentielle suivante appliquée à un niveau i :

$$\frac{dN_i}{dt} = C_{gi} N_e N_0 \exp(-P_g^C N_e t) - P_i^C N_e N_i - P_i^R N_i \quad (3.155)$$

On prend $N_i(t=0) = 0$. Cette égalité donne la solution suivante :

$$N_i(t) = \frac{C_{gi} N_e N_0}{(P_i^C - P_g^C) N_e + P_i^R} \left\{ 1 - \exp \left[- \left((P_i^C - P_g^C) N_e + P_i^R \right) t \right] \right\} \exp(-P_g^C N_e t) \quad (3.156)$$

Si on néglige les processus radiatifs impliquant le niveau i par rapport aux processus collisionnels, l'équation devient :

$$N_i(t) = \frac{C_{gi} N_0}{P_i^C - P_g^C} \left\{ 1 - \exp \left[- (P_i^C - P_g^C) N_e t \right] \right\} \exp(-P_g^C N_e t) \quad (3.157)$$

Cette fonction est initialement croissante en raison du terme $(1 - \exp(-P_i^C N_e t))$ lié à l'excitation collisionnelle, puis décroissante du fait de l'ionisation collisionnelle, représentée par le terme $\exp(-P_g^C N_e t)$. Entre ces 2 dynamiques, N_i atteint son maximum N_{MAX} lorsque $\frac{dN_i(t)}{dt} = 0$:

$$N_i(t_{MAX}) = N_{MAX} = \left[\frac{C_{gi}}{P_g^C} \left(\frac{P_g^C}{P_i^C} \right)^{\frac{P_g^C}{P_i^C - P_g^C}} \right] \times N_0 \propto P \quad (3.158)$$

Le temps t_{MAX} :

$$t_{MAX} = \left(\frac{1}{Z N_0} \right) \left[\frac{\ln(P_i^C / P_g^C)}{P_i^C - P_g^C} \right] \propto 1/P \quad (3.159)$$

Selon les calculs, N_{MAX} est proportionnel à la densité atomique N_0 , donc à la pression P du gaz cible. Le temps t_{MAX} semble inversement proportionnel à cette pression P . En effet, plus la pression du gaz est élevée, plus le nombre d'ions lasants par unité de volume est élevé et plus l'inversion de population est grande (N_{MAX}). Dans le même temps, les collisions électron-ion sont plus fréquentes à pression plus élevée, et par conséquent, la cinétique du plasma est d'autant plus rapide. L'atteinte du maximum d'inversion de population se fait donc en un temps t_{MAX} d'autant plus court.

Résultat OFI-0D

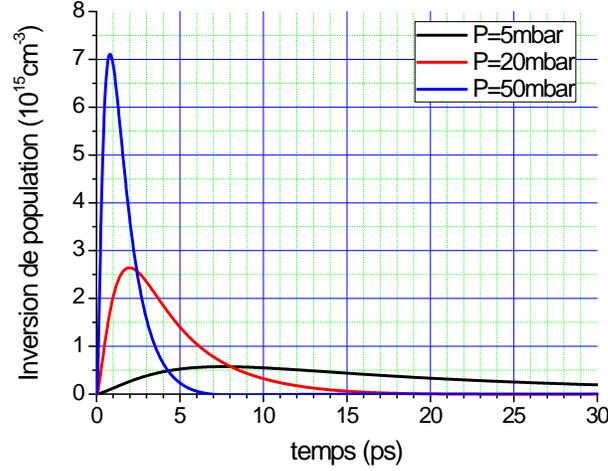


Figure 3.39: Evolution de l'inversion de population à différentes pressions dans le cas du Xénon.

Pour illustrer les formules 3.158 et 3.159, le code OFI-0D a été utilisé dans le cas du Xénon (figure 3.39) et du Krypton (3.40) à différentes pressions, et en prenant $\phi = 0,5$ et un I_{MAX} donnant un W_{MAX} maximal.

On retrouve dans les courbes de ces 2 graphiques la relation de proportionnalité avec la pression pour W_{MAX} et son inverse pour t_{MAX} . Par exemple, pour le krypton, on recueille des courbes $W(t)$ les données suivantes :

$P(\text{mbar})$	$t_{MAX}(\text{ps})$	$W_{MAX}(\text{cm}^{-3})$	$\Delta t_{1/2}(\text{ps})$
5	14	$0,3 \cdot 10^{15}$	35
20	3,5	$1,5 \cdot 10^{15}$	8,7
50	1,4	$4 \cdot 10^{15}$	3,4

Par ailleurs, la position t_{MAX} semble être directement proportionnelle à la durée de l'inversion de population $\Delta t_{1/2}$, le rapport $\Delta t_{1/2}/t_{MAX}$ est d'environ 2,5.

A pression identique, c'est avec le Xénon qu'on observe l'inversion de population la plus élevée : à $P = 50\text{mbar}$, elle atteint $7,1 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ contre $4 \cdot 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ pour le Krypton. A l'inverse, la durée de cette inversion de population $\Delta t_{1/2}$ est plus élevée pour le Krypton : à la même pression, on mesure une durée de $\Delta t_{1/2} = 1,75\text{ps}$ pour le Xénon, soit 2 fois inférieure à celle du Krypton. On retrouve ici le fait que, pour un même état de charge, le Xénon est plus facile à ioniser que le Krypton.

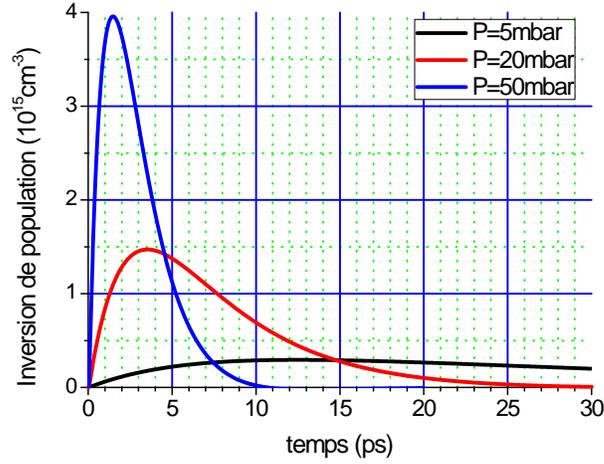


Figure 3.40: Evolution de l'inversion de population à différentes pressions dans le cas du Krypton.

3.3.5 Validité du modèle 0D

Jusqu'ici nous avons étudié l'évolution du plasma en un point donné de celui-ci, sans tenir compte des phénomènes pouvant modifier les variables macroscopiques du plasma : son volume V , dont la variation aurait des répercussions sur la densité atomique (espacement entre les particules) en chaque point du plasma, ou alors son énergie totale E qui induirait une modification des populations atomiques et ioniques. Le plasma peut par exemple connaître une expansion du plasma ou subir des pertes d'énergie par échappement de rayonnement, effets que nous devrions prendre en compte s'ils sont significatifs à l'échelle de temps de l'ordre de la durée du gain (pendant laquelle est amplifié le rayonnement X-UV). Nous prendrons comme référence une durée du gain $d_{SXRL} = 10ps$, qui est celle calculée par OFI-0D pour le Kr^{8+} ou le Xe^{8+} à une pression $P = 20mbar$.

3.3.5.1 Expansion hydrodynamique

Ce phénomène a été étudié par Dunne *et al* [30]. Une zone de plasma connaît une expansion hydrodynamique lorsque sa pression est élevée par rapport au gaz ou au plasma environnant. C'est ce qui se produit dans notre cas. L'OFI engendre dans le plasma une température électronique T_e beaucoup plus élevée qu'initialement. Par conséquent, la pression du plasma va augmenter de manière significative. Cette pression qui était initialement aux alentours de $10mbar$, vaut alors :

$$P_e = 8 \times \frac{T_e}{T_{ini}} P_{ini} = 8 \times \frac{200eV}{0,025eV} \times 10^{-2} \simeq 1kbar \quad (3.160)$$

En raison d'un gradient de pression important entre la zone ionisée et le reste du volume de gaz, un phénomène de *diffusion ambipolaire* va être observé. Lors de processus de diffusion, ce sont les électrons, beaucoup plus chauds, qui sortiront les premiers de la zone de plasma.

Leur expansion va alors engendrer un excédent de charges négatives au-delà des bords du plasma et un excédent de charges positives (ions) à l'intérieur de la zone, ce qui aura pour conséquence l'apparition d'un champ électrique entre le plasma et sa périphérie. Ce champ aura tendance à accélérer les ions vers l'extérieur, et freiner les électrons dans leur diffusion. Finalement, il s'avère que la vitesse d'expansion des ions (de masse M_i) et des électrons est la même et on démontre qu'elle est équivalente à la vitesse du son, mesurée à partir de la température électronique. La vitesse ambipolaire est évaluée dans notre cas à :

$$c_{ap} = \sqrt{\frac{k_B T_e}{M_i}} \simeq 10^4 m.s^{-1} = 10 \mu m.ns^{-1} \quad (3.161)$$

Une expansion significative du plasma lors de la durée de vie du milieu amplificateur provoquerait une atténuation de son gain, car la densité d'ions lasants s'en trouverait diminuée. En reprenant le résultat 3.161, sur une durée du gain de $10ps$, l'expansion est estimée à $0,1\mu m$. Or notre plasma, de forme cylindrique, possède une diamètre de 10 à plus de $100\mu m$. La variation de densité atomique lié à cette expansion est donc estimée à moins de 1% et on peut négliger ce phénomène dans nos calculs.

La vitesse calculée apparaît comme une vitesse moyenne pour les ions mais surtout pour les électrons. En effet, ces électrons très chauds vont sortir rapidement de la zone de plasma vers les zones moins chaudes pour y revenir en raison des forces électrostatiques induites par les ions. Un débordement de ces électrons se produit donc transitoirement sur une durée plus courte que le phénomène de diffusion ambipolaire global se produisant sur des échelles de quelques ns. Il pourrait donc avoir un impact sur le gain aux bords à des échelles de l'ordre de la picoseconde. En effet, la diffusion ambipolaire est observée entre des zones voisines de degré d'ionisation différent en raison de la différence de température régnant entre ces 2 milieux : c'est le cas pour le milieu amplificateur (8+) dans les régions limitrophes des zones surionisées (9+) ou sous-ionisées (7+). A titre d'exemple, dans le chapitre I on a vu que la différence d'une FDE électronique associée à la création du Xe^{8+} par rapport à une FDE associée à la création du Xe^{7+} consistait en la présence d'un pic d'électrons supplémentaire à $2000eV$. En limite de zones de Xe^{8+} et de Xe^{7+} , ce sont ces électrons à $2000eV$ qui, selon où ils se déplacent, vont induire un changement dans la répartition des électrons et de leur énergie. On calcule qu'un électron isolé de $2000eV$ met $0,37ps$ seulement pour parcourir $10\mu m$ dans le vide. Il serait donc intéressant d'étudier l'impact d'un débordement provisoire des électrons chauds vers d'autres zones du gaz ou plasma sur le gain du milieu amplificateur.

3.3.5.2 Pertes radiatives

Le plasma n'est pas isolé et va émettre du rayonnement vers l'extérieur. Les ions, excités par collision avec les électrons, vont avoir tendance à se désexciter et émettre spontanément un photon. Ce dernier étant résonant, il peut être réabsorbé par d'autres ions. Si ces photons ne sont pas réabsorbés dans le plasma, ils sortent de ce dernier et provoquent la perte définitive de l'énergie qu'ils contiennent.

Il est donc question de savoir s'il y a réabsorption ou non, en fonction de la transition radiative considérée. Les équations de population, lorsqu'elles prennent en compte l'évolution

d'un système microscopique sans interaction avec l'extérieur, ne prennent pas en compte l'effet de pertes radiatives. Pour le prendre en compte, on peut ajouter un facteur correcteur (qu'on note C_E) au taux d'émission spontanée :

$$\left(\frac{dN_i}{dt}\right)_{ém.spont.} = -C_E A_{ij} N_i \quad (3.162)$$

C_E vaudrait 1 lorsque l'échappement des photons issus de la désexcitation radiative de i vers j est total. Il vaudrait 0 si l'ensemble (ou la grande majorité) des photons émis sont absorbés dans le plasma.

Evaluation de la réabsorption des photons émis

Pour déterminer s'il y a échappement ou pas des photons pour une transition radiative donnée, on étudie le parcours d'un flux de ces photons, partant du centre du plasma (cylindre de rayon R) et se dirigeant en ligne droite vers le bord de ce dernier. On effectue donc un calcul à 1 seule dimension.

On considère que les photons sont issus de la désexcitation radiative d'ions d'un niveau u (supérieur) vers un niveau l (inférieur). Ils sont donc en moyenne émis au bout d'un temps τ_u correspondant au temps de vie du niveau u . Au cours de leur propagation, ces photons peuvent être absorbés par un ion se trouvant dans le niveau l , provoquant son excitation vers le niveau u . Ils peuvent également induire l'émission stimulée de photons identiques par des ions se trouvant dans le niveau u , ce qui a pour conséquence d'amplifier le rayonnement émis. Si, parmi les ions du plasma, le niveau u est plus peuplé que le niveau l alors le processus dominant sera l'émission stimulée et le rayonnement sortira rapidement du plasma. En revanche, si le niveau l est plus peuplé, alors le rayonnement sera absorbé.

Dans le cas où le milieu est absorbant, les photons ont un libre parcours moyen $\langle L \rangle$ au bout duquel ils seront en moyenne absorbés. Les ions les ayant absorbés vont ensuite pouvoir réémettre spontanément un photon de même énergie en un temps moyen τ_u . On considère que les photons émis se dirigent vers les bords. Et ainsi de suite, on répète l'opération, jusqu'à ce que le photon soit sorti ($z > R$). Comme on a ici minimisé le parcours d'un photon partant du centre, on aura calculé le temps minimum moyen que met un photon pour sortir. A cela il faut rajouter le temps de propagation du photon à la vitesse c : $3,2fs$ sur $1\mu m$.

Evolution du flux de photons émis en fonction de z

Pour retrouver le libre parcours moyen $\langle L \rangle$, on a besoin de calculer, en fonction de z , l'évolution d'un flux de photons issus de la désexcitation radiative du niveau u vers le niveau l . On suppose que ces photons possèdent tous l'énergie de transition $E_{ul} = \hbar\omega_{ul}$ (pas d'élargissement pris en compte). La réponse du plasma face à ce rayonnement va être l'absorption des photons ou l'émission stimulée de nouveaux photons. Dans l'équation de propagation du rayonnement, cela se traduit par un gain en intensité noté G :

$$\frac{dI(z)}{dz} = G_0 I(z) \quad (3.163)$$

$I(z)$ est l'intensité du rayonnement. Son allure en fonction de z est une exponentielle, croissante ou décroissante selon que G_0 est positif ou négatif. A noter que, du fait que la fréquence des photons correspond exactement à la fréquence de transition, G_0 est le gain au centre de la raie. Il s'agit aussi du gain à faible signal (pas de phénomène de saturation de la raie). Il peut s'exprimer en fonction du coefficient d'Einstein A_{ul} (voir chapitre IV) :

$$G_0 = A_{ul} T_2 \frac{3\pi c^2}{\omega_{ul}^2} W \quad (3.164)$$

T_2 est le temps de relaxation de phase des dipôles (voir chapitre IV), il est relié à la fréquence des collisions électron-ion. On supposera que $T_2 \approx 4ps$ (valeur calculée par OFI-0D pour le Krypton à $P = 20mbar$). W est la différence de population entre le niveau supérieur u et le niveau inférieur l :

$$W = \frac{N_u}{g_u} - \frac{N_l}{g_l} \quad (3.165)$$

g_u et g_l sont les dégénérescences respectives des niveaux u et l . Si $W > 0$, on observe une amplification du rayonnement résonant. Si $W < 0$, on observe son absorption. On s'intéresse au cas où il y a absorption. On montre que le libre parcours moyen $\langle L \rangle$ vaut :

$$\langle L \rangle = \frac{\int_0^\infty z I(z) dz}{\int_0^\infty I(z) dz} = \frac{1}{G_0} = \frac{\omega_{ul}^2}{3\pi c^2 A_{ul} T_2 |W|} \quad (3.166)$$

On note $\langle t_R \rangle$ le temps moyen mis par l'énergie des photons pour parvenir à $z = R$, synonyme de sortie du plasma. La longueur $\langle L \rangle$ étant parcourue en un temps $\tau_u = 1/A_{ul}$, on trouve que :

$$\langle t_R \rangle = \frac{R}{\langle L \rangle} \tau_u = \frac{3\pi c^2 T_2}{\omega_{ul}^2} |W| R \quad (3.167)$$

On remarque que ce temps ne dépend pas du coefficient d'Einstein A_{ul} . Il est surtout dépendant de la population des niveaux u et l considérés.

Cas de désexcitation radiative vers un niveau excité

Pendant la durée du gain, les populations des niveaux excités sont comprises entre $10^{-5}\%$ et $8.10^{-3}\%$ de la densité atomique (selon le graphique 3.32), c'est-à-dire que N_u et N_l sont compris entre 5.10^{12} et $4.10^{15}cm^{-3}$. L'énergie de transition $\Delta E_{ul} = \hbar\omega_{ul}$ varie en fonction de l'énergie des niveaux u et l . On prend une énergie de transition moyenne $\Delta E_{ul} = 40eV$. En prenant les valeurs extrêmes de W , on aboutit à un temps moyen $\langle t_R \rangle$ compris entre $0,58ps$ ($W = -5.10^{12}cm^{-3}$) et $320ps$ ($W = -4.10^{15}cm^{-3}$). Selon la transition considérée, on varie entre absorption (pour les niveaux les plus peuplés) et échappement total des photons (pour les niveaux les moins peuplés). Le coefficient d'échappement est donc partiel pour l'ensemble des désexcitations vers les niveaux excités. Une formule empirique, déduite de

résultats expérimentaux, a été introduite dans le code OFI-0D pour estimer ce coefficient d'échappement pour toutes les transitions radiatives.

Cas de désexcitation radiative vers le niveau fondamental

D'après le tableau 3.151, la population du niveau fondamental passe de 100% à 8% de la densité atomique entre $t = 0ps$ et $t = 10ps$. Selon les données atomiques présentées dans le chapitre II, seuls 8 des 128 niveaux excités peuvent se désexciter spontanément vers le niveau fondamental, dont le niveau inférieur de la raie laser (14). L'énergie de ces niveaux est comprise entre $79,28eV$ et $129,7eV$. En prenant $W = -2.10^{17}cm^{-3}$, le temps $\langle t_R \rangle$ calculé est compris entre 160 et $420ps$, qui correspondent à des temps bien supérieurs à la durée du gain $d_{SXRL} = 10ps$.

D'après ces informations, tout photon issu de la désexcitation radiative d'un ion vers le niveau fondamental va donc rester piégé dans le plasma, pendant la durée du gain. Ceci est dû au fait que le niveau fondamental est très peuplé et que les photons émis auront beaucoup plus de chances d'être absorbés. Ainsi, un dépeuplement du niveau inférieur de la transition laser par désexcitation radiative n'est pas observé pendant la durée du gain. Nous avons d'ailleurs observé plus haut que la durée du gain était réduite par l'augmentation de la population du niveau bas.

3.4 Conclusion

Nous avons vu dans cette partie que l'on pouvait déterminer l'évolution des particules en un point donné d'un plasma créé par OFI en fonction de 3 paramètres uniquement : l'intensité du laser de pompe I_{max} , sa polarisation ϕ , ainsi que la pression initiale P du gaz. En effet, l'étude de la température ionique, de l'expansion hydrodynamique ou encore des pertes radiatives nous permet de conclure qu'il n'existe pas de transfert significatif d'énergie ou de matière pendant la durée du gain.

Des résultats sur l'évolution des populations atomiques au cours du temps ont pu être obtenus par le code OFI-0D en chaque point du plasma défini par ces 3 paramètres. Les données sur ces populations, en particulier celle des niveaux lasants, sont importantes car elle permettent de déduire le gain du milieu amplificateur pour l'étude de l'amplification du laser X-UV. D'autre part, ce dernier va interagir avec les niveaux lasants et est susceptible de modifier leur population donc le gain. En se servant d'un modèle à 2 niveaux atomiques décrivant l'interaction laser X-UV/ion lasant, on pourra retrouver l'évolution de la population des niveaux lasants en présence d'un champ X-UV résonant, à partir des données d'OFI-0D sans champ.

Chapitre 4

Transfert radiatif et amplification du laser X-UV

Ce chapitre est consacré à l'étude de la génération du laser X-UV dans un plasma créé par OFI. Dans un tel plasma, la génération du laser X-UV peut s'effectuer de 2 manières : soit en amplifiant l'émission spontanée générée dans le plasma (régime ASE), soit en injectant dans le plasma un rayonnement X-UV cohérent créé dans une première source par des harmoniques d'ordre élevé (régime HHG pour High Harmonic Generation). De nombreux résultats théoriques et expérimentaux ont été publiés sur l'amplification ASE dans un plasma OFI. L'amplification d'un signal HHG injecté est plus récente, c'est pourquoi nous nous y sommes plus particulièrement intéressé. L'injection d'un signal ayant déjà une bonne cohérence temporelle, permet d'une part d'augmenter le signal de sortie et également, comme nous le verrons, d'améliorer les propriétés du faisceau, particulièrement en termes de cohérence transverse, qui dans le cas de l'ASE est très limitée. La modélisation de l'amplification HHG pose des problèmes spécifiques au niveau de la dynamique. En effet la durée de l'impulsion HHG (quelques dizaines de fs) est nettement inférieure aux temps caractéristiques de la cinétique atomique (de l'ordre de la ps). Les modèles habituels d'amplification ne peuvent s'appliquer. C'est pourquoi nous avons élaboré pendant cette thèse un nouveau code pour décrire l'amplification d'une harmonique HHG dans un plasma créé par OFI. L'objectif principal est de pouvoir décrire l'amplification pour une situation expérimentale donnée, c'est à dire en prenant en compte les caractéristiques de la cible (pression), du faisceau de pompe IR et du faisceau injecté. La contrainte était de devoir traiter des amplifications sur de grandes distances (plusieurs cm) avec un temps de calcul raisonnable (inférieur à 24 h sur une station de travail standard). Il y avait donc un compromis à faire entre précision et complexité du modèle. Nous avons opté pour le modèle de Maxwell-Bloch à deux niveaux effectifs que nous décrivons dans ce chapitre. Nous verrons dans le chapitre suivant comment nous avons pu coupler ce modèle aux résultats du code cinétique et de propagation IR.

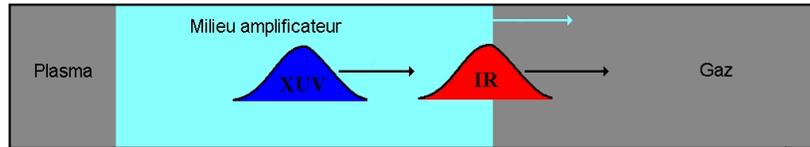
Précisons tout d'abord le cadre de notre modèle: Nous supposons que le plasma est créé par le faisceau IR et nous négligeons les phénomènes de transport (autre que l'amplification X-UV) dans ce plasma. Localement, les propriétés du plasma vont donc évoluer indépendamment les unes des autres. Elles pourront s'écrire comme une fonction de la position et du temps relatif $t - z/c$ par rapport à l'impulsion laser IR. La durée de cette impulsion étant

très courte, nous supposons que le rayonnement X-UV n'interagit avec le plasma qu'après le passage de l'impulsion IR. Expérimentalement, le délai optimum entre l'impulsion IR et l'injection du signal HHG est de l'ordre de la picoseconde.

4.1 Principe

4.1.1 Injection des harmoniques dans le milieu amplificateur

Les harmoniques, dont une d'entre elles a une fréquence proche de la transition laser X-UV, sont injectées dans le milieu amplificateur. En un point de ce dernier, le gain (ou inversion de population entre les 2 niveaux lasants) a une durée limitée dans le temps après passage du laser de pompe, de l'ordre de $d_{SXRL} \sim 1 - 20ps$ en fonction de la pression. Comme le laser de pompe (une impulsion Infrarouge ultra-courte) se déplace à une vitesse proche de c , la zone amplificatrice va également se déplacer à l'arrière de l'impulsion IR et aura une longueur limitée. On peut estimer que la longueur de la zone amplificatrice est de l'ordre de $\Delta L = c \times d_{SXRL} \simeq 3mm$, à comparer à la longueur de gaz cible, de 1 (cellule) à plusieurs cm (capillaire). L'harmonique X-UV doit donc être injectée entre 0 et 3mm à l'arrière de l'impulsion IR pour être amplifiée, soit, avec un délai compris entre 0 et 20 ps



4.1.2 Etude de l'amplification du laser X-UV

On souhaite décrire dans un plasma créé par OFI l'amplification d'un rayonnement X-UV incident et résonant avec la transition laser. Cette description comprend l'évolution du profil temporel (et spectral) et du profil spatial. Lorsque le champ électrique X-UV "résonant", noté \vec{E} , se propage dans le milieu peuplé d'ions lasants, il crée un déplacement des électrons liés de ces ions, provoquant l'apparition de dipôles. Ces dipôles se traduisent, au niveau atomique, par un moment dipolaire entre les 2 niveaux de la transition laser. Suivant la phase de ce moment par rapport au champ résonant, le transfert d'énergie entre le laser et l'atome est soit positif soit négatif, ce qui correspond soit à l'émission, soit à l'absorption de rayonnement à la fréquence d'excitation du champ. Il s'agit donc tout simplement des processus d'émission stimulée et d'absorption induite de la raie laser qui provoquent une modification de la répartition de la population des 2 niveaux lasants, mesurée par l'inversion de population W . La polarisation du milieu, constituée par ces dipôles et notée \vec{P} , est donc à relier au gain du milieu amplificateur.

\vec{E} , \vec{P} , et W sont donc des grandeurs physiques intimement liées qui vont définir l'amplification de la raie laser. L'étude de l'amplification X-UV dans ce chapitre sera divisée en 4 points :

- La propagation du champ électrique \vec{E} dans un plasma créé par OFI
- Le comportement de la polarisation \vec{P} sous l'effet d'un champ électrique \vec{E} résonant
- L'évolution de l'inversion de population W entre les 2 niveaux lasants en présence d'un champ X-UV résonant
- Les équations décrivant l'amplification de l'impulsion laser X-UV et reliant les grandeurs physiques \vec{E} , \vec{P} et W .

Le problème a été abordé dans le livre de Siegman [91] et un cours du MIT [49], références sur lesquelles nous nous sommes appuyés. Sa résolution mène aux équations de Maxwell-Bloch. A noter que les équations de Maxwell-Bloch ont déjà de nombreuses fois été étudiées et utilisées par le passé dans le traitement de l'amplification X-UV. Je cite notamment les travaux de A.Sureau [94] précurseur des études Maxwell-Bloch à l'université d'Orsay, dont je me suis inspiré pour le formalisme des équations, mais également ceux de O.Larroche [58], et, plus récemment, de I.R.Al'Miev [3].

4.2 Propagation d'un champ électromagnétique dans un plasma créé par OFI

Dans cette section, nous allons retrouver, à partir des équations de Maxwell générales, l'équation de propagation d'un champ électromagnétique X-UV dans un plasma créé par OFI.

4.2.1 Equations de Maxwell générales

La propagation d'un rayonnement électromagnétique dans un milieu est décrite par les équations de Maxwell :

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \vec{j}^{(f)} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (2.168)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (2.169)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho \quad (2.170)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (2.171)$$

avec :

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (2.172)$$

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} + \vec{M}$$

Ces équations sont applicables en tout point de ce milieu. \vec{E} et \vec{B} représentent les champs électrique et magnétique externes du rayonnement se propageant dans le plasma. Ce dernier est caractérisé par sa polarisation \vec{P} et sa magnétisation \vec{M} , liées au déplacement de charges (électrons et ions) induit par ce champ externe. \vec{D} et \vec{H} se nomment respectivement flux diélectrique et excitation magnétique, ρ correspond à la densité de charges du plasma et $\vec{j}^{(f)}$ la densité de courant des charges libres s'y déplaçant.

Une équation de propagation du champ électrique appliquée au cas d'un plasma par OFI peut être déduite de ces équations, à condition d'évaluer les grandeurs suivantes : ρ , $\vec{j}^{(f)}$, \vec{P} et \vec{M} .

4.2.2 Polarisation \vec{P} et magnétisation \vec{M} du milieu

La polarisation \vec{P} et la magnétisation \vec{M} sont les réponses respectives du milieu face aux champs électrique et magnétique externes. Dans notre cas, la magnétisation est négligeable ($\vec{M} = 0$), le plasma n'ayant pas de sources magnétiques.

4.2.3 Densité de charges ρ et de courant \vec{j}

Comme nous l'avons évoqué dans les chapitres précédents, les ions, en raison de leur masse, sont considérés comme lents par rapport aux électrons, lorsqu'ils sont soumis à un champ électrique. D'autre part le plasma est très faiblement collisionnel. Nous allons donc supposer que les ions n'ont pas d'influence sur la dynamique et qu'ils sont présents simplement pour assurer un fond continu neutralisant. En revanche, les électrons libres peuvent se déplacer beaucoup plus rapidement et un gradient de densité pourrait potentiellement être observé. Néanmoins, le modèle ADK étudié dans le chapitre I nous montre que les électrons partent avec une direction aléatoire sur le plan de polarisation et que le chauffage des électrons induit par le laser de pompe dépendait uniquement du degré d'ionisation Z atteint, et non de l'intensité I_{\max} du laser de pompe. En somme, il est le même dans une région de plasma composée uniquement d'ions lasants ($Z = 8$), c'est-à-dire qu'à l'intérieur du milieu amplificateur, les termes de gradient sont faibles. De plus, l'expansion hydrodynamique du plasma causée par la différence de température et de densité entre les régions de plasma de Z différent ($Z = 0$ étant la zone périphérique de gaz cible non ionisé) peut, d'après les calculs du chapitre précédent, être négligée. Nous allons également supposer que pour les intensités étudiées (inférieures à 10^{17} W/cm^2), l'onde de plasma créée par l'impulsion IR a une amplitude suffisamment faible pour produire un effet négligeable. On peut alors considérer que sans champ externe supplémentaire, l'impulsion IR laisse derrière elle un plasma neutre, à l'équilibre, sans terme de gradient et avec une densité et un courant nuls. Les fluctuations de charge et de densité sont donc uniquement provoquées par le champ X-UV.

La densité de courant est définie par la relation suivante :

$$\vec{j} = Nq\vec{v} \quad (2.173)$$

N est la densité de particules, q leur charge électrique, et \vec{v} leur vitesse à un endroit donné de l'espace.

Cette densité de courant a deux contributions :

Densité de courant des électrons libres

Les électrons libres du plasma, lorsque soumis à un champ électrique (pas de gradient transverse), se mettent à osciller autour de leur position d'origine. On peut trouver une relation entre la densité de courant générée, notée $\vec{j}^{(f)}$, et \vec{E} , en appliquant la Relation Fondamentale de la Dynamique :

$$\mu_0 \left(\frac{\partial \vec{j}^{(f)}}{\partial t} + \Gamma_j \vec{j}^{(f)} \right) = \frac{\omega_p^2}{c^2} \vec{E} \quad (2.174)$$

ω_p représente la fréquence plasma, qui est fonction de N_e la densité d'électrons libres :

$$\text{avec } \omega_p = \sqrt{\frac{N_e e^2}{m_e \epsilon_0}} \quad (2.175)$$

$\Gamma_j \vec{j}^{(f)}$ peut être assimilé à une force de frottement provoquant la réduction de la densité de courant. En effet, les électrons libres mis en mouvement sont freinés par collisions électron-ion (effet Joule), dont Γ_j représente la fréquence effective. Dans notre cas, la fréquence de collision étant beaucoup plus faible que la fréquence plasma, nous pouvons négliger les collisions.

Densité de courant des électrons liés

La densité de courant inclut également la contribution de la polarisation \vec{P} des électrons liés. Il existe une densité de courant au sein du nuage électronique des ions, que l'on notera $\vec{j}^{(b)} = \partial \vec{P} / \partial t$. En effet, la polarisation est un déplacement de charge entre les électrons liés et les noyaux des ions du plasma, chaque noyau accompagné de son nuage électronique est donc assimilable à un *dipôle*. Lorsqu'un milieu contient une densité de dipôles N_D oscillant en phase et à la même fréquence, cette polarisation s'exprime comme :

$$\vec{P} = -N_D e \vec{x} \quad (2.176)$$

Ainsi, la dérivée temporelle de \vec{P} est une densité de courant :

$$\frac{\partial \vec{P}}{\partial t} = -N_D e \vec{v} = \vec{j}^{(b)} \quad (2.177)$$

La densité de courant \vec{j} totale s'écrit donc :

$$\vec{j} = \vec{j}^{(f)} + \frac{\partial \vec{P}}{\partial t} \quad (2.178)$$

4.2.4 Equation de propagation du champ électrique dans un plasma créé par OFI

L'équation de propagation de \vec{E} s'obtient en introduisant la deuxième des équations de Maxwell 2.168 dans la première :

$$\left(\Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) \vec{E} = \mu_0 \left(\frac{\partial \vec{j}^{(f)}}{\partial t} + \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2}\right) + \vec{\nabla} \left(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}\right) \quad (2.179)$$

En raison d'une densité de charges statiques nulle, $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0$ (le champ est transverse). En remplaçant la dérivée temporelle de la densité de courant $\frac{\partial \vec{j}^{(f)}}{\partial t}$ par son expression 2.174, on trouve :

$$\left(\Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} - \frac{\omega_p^2}{c^2}\right) \vec{E} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (2.180)$$

L'importance du terme en ω_p^2 dépend du rapport entre la densité et la densité critique N_{crit} . Dans le cas d'un rayonnement X-UV se propageant dans un plasma de Kr^{8+} à la fréquence d'oscillation de la transition laser ($\lambda = 32,8nm$), la densité critique vaut $N_{crit} = 1,28 \cdot 10^{23} cm^{-3}$. A la pression $P = 20mbar$ du gaz cible (optimale pour l'amplification X-UV, voir chapitre III), la densité atomique est de l'ordre de $N \sim 10^{17} cm^{-3}$: on est très loin de la densité critique. La variation d'indice liée au plasma est dans notre cas négligeable. On peut remarquer que la situation est ici différente du laser X-UV collisionnel créé sur cible solide. Dans ce dernier cas la réfraction sur le gradient d'indice est souvent le principal facteur limitant pour la longueur d'amplification. Dans le cas du plasma OFI, la situation est différente car le gradient transverse dans la zone amplificatrice est beaucoup plus faible, de plus les dimensions transverses sont un peu plus grandes que dans une cible solide. Enfin, la densité du plasma OFI à une pression de l'ordre de 10-50 mbar, ce qui est plus faible que pour les cibles solides. En négligeant la variation d'indice due aux électrons libres, l'équation de propagation se réduit à :

$$\left(\Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) \vec{E} = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (2.181)$$

La polarisation des électrons liés peut être séparée en deux contributions très différentes : celle liée à la transition entre les deux niveaux atomiques de la raie laser considérée et celle liée à toutes les autres transitions. Ce dernier terme est bien sûr faible, puisque non résonant. Il a également une faible variation le long du profil spectral de la raie considérée. On peut l'introduire simplement comme un indice qui va légèrement modifier la vitesse de propagation dans le milieu. Cet effet a été négligé dans nos calculs.

4.2.5 Susceptibilité diélectrique et relation de dispersion

La propagation du rayonnement X-UV n'est donc affectée que par la polarisation \vec{P} du milieu due à la transition résonante. Le champ X-UV étant de relativement faible amplitude, nous allons suivre une approche linéaire. Les valeurs des amplitudes $\hat{\vec{E}}$ et $\hat{\vec{P}}$ du champ électrique et de la polarisation sont reliées par la susceptibilité diélectrique χ :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \chi \vec{E} \quad (2.182)$$

Considérons le champ X-UV dans l'approximation de l'amplitude lentement variable:

$$\begin{aligned}\vec{E} &= \widehat{\vec{E}}.e^{i(\omega t - kz)} \\ \vec{P} &= \widehat{\vec{P}}.e^{i(\omega t - kz)}\end{aligned}\quad (2.183)$$

En remplaçant ces 2 expressions \vec{P} et \vec{E} dans l'équation de propagation 2.181, on en déduit la relation de dispersion suivante, qu'on peut simplifier avec l'approximation $|\chi(\omega)| \ll 1$:

$$k = \frac{\omega}{c} \sqrt{1 + \chi} \approx k_0 \left(1 + \frac{1}{2}\chi \right), \text{ avec } k_0 = \frac{\omega}{c} \quad (2.184)$$

Nous verrons plus loin que χ , et donc k , sont fonctions de la fréquence. Ce sont aussi des nombres complexes et peuvent être séparés en une partie réelle et une partie imaginaire :

$$k(\omega) = k'(\omega) + ik''(\omega) \quad (2.185)$$

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) + i\chi''(\omega) \quad (2.186)$$

En remplaçant k dans l'expression du champ électrique 2.183, on obtient :

$$\vec{E} = \widehat{\vec{E}} e^{i(\omega t - k'z)} e^{k''z} \quad (2.187)$$

On constate que $k' = \frac{\omega}{c} \left(1 + \frac{1}{2}\chi' \right)$ définit la vitesse de phase du rayonnement incident en fonction de sa fréquence, alors que $k'' = \frac{1}{2}\chi''$ correspond à un coefficient d'amortissement ou d'amplification exponentiels du champ au cours de sa propagation. Dans le cadre de l'étude de l'amplification du champ laser X-UV, ce qui nous intéresse le plus est d'étudier la contribution de $\widehat{\vec{P}}(\omega)$ à l'amplification, à savoir $\chi''(\omega)$ (soit $k''(\omega)$). L'approximation $|\chi(\omega)| \ll 1$ nous permet de supposer que la vitesse de propagation des ondes électromagnétiques est proche de celle de la lumière ($v_\varphi \simeq c$).

4.3 Polarisation du milieu d'ions lasants induite par un champ électrique résonant

L'objectif de ce chapitre est de déterminer la susceptibilité des ions du plasma. Ceci est fait dans un premier temps en utilisant un modèle classique d'oscillateur, puis en considérant une approche quantique.

4.3.1 Etude d'un dipôle électrique dans un champ électrique variable

Les ions lasants sont décrit comme un ensemble coeur gelé + électron actif. Soit \vec{x} le vecteur-position d'un de ces électrons actifs par rapport à son noyau (supposé immobile). Initialement, nous avons:

$$\langle \vec{x} \rangle = 0 \quad (3.188)$$

En présence d'un champ électrique externe, la position moyenne de ces électrons va être décalée par la force de ce champ. Le déplacement des charges négatives par rapport aux charges positives du noyau constitue le dipôle électrique, mesuré par le moment dipolaire \vec{p} . Pour un électron, on a :

$$\vec{p} = -e\vec{x} \quad (3.189)$$

4.3.1.1 Modèle de l'électron-oscillateur classique

Un atome révèle des résonances lorsqu'il est soumis à des champs de certaines fréquences d'oscillation : il se met alors à répondre en émettant ou en absorbant du rayonnement électromagnétique.

Dans une représentation classique, un atome peut être décrit comme un noyau fixe entouré par un nuage d'électrons. Le modèle de l'*électron-oscillateur classique* (de l'anglais *classical electron oscillator model*) stipule qu'un champ électrique externe $\vec{E} = E\vec{e}_x$ (parallèle à l'axe x) peut induire un déplacement $\vec{x} = x(t)\vec{e}_x$ du nuage d'électrons par rapport à sa position d'équilibre. Lorsque le nuage de charge négative s'écarte de cette position, en raison des forces électrostatiques, le noyau chargé positivement exerce une force de rappel de la forme $\vec{F} = -K\vec{x}$ qui tend à ramener le nuage vers sa position d'équilibre. Le comportement d'un dipôle peut donc être assimilé à celui d'un oscillateur harmonique. L'équation du mouvement d'un électron situé dans ce nuage s'écrit donc de la manière suivante :

$$\ddot{x} + \omega_a^2 x = -\frac{e}{m_e} E_x \quad (3.190)$$

La fréquence propre ω_a d'oscillation du nuage électronique, dite de "résonance", vaut : $\omega_a^2 = K/m$. Lorsque le champ électrique oscille à une fréquence ω proche de ω_a l'amplitude des oscillations du dipôle est maximale.

4.3.1.2 Amortissement des oscillations

Comme l'électron-oscillateur est un oscillateur réel, son énergie se dissipe au fil du temps. L'équation différentielle, initialement 3.190, prend alors la forme suivante :

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} + \omega_a^2 x = -\frac{e}{m_e} E \quad (3.191)$$

γ est le coefficient d'amortissement des oscillations. Il correspond au *taux de relaxation en énergie* de l'oscillateur. Les pertes d'énergie ont des origines diverses. Elles peuvent être d'origine *radiative* : l'électron-oscillateur émet du rayonnement électromagnétique dans toutes les directions à la fréquence ω_a . Nous parlons ici du même phénomène que le phénomène d'*émission spontanée*. Cela signifie que l'électron situé au niveau supérieur de la transition laser, susceptible d'émettre un photon par émission stimulée, va relaxer vers le niveau inférieur. L'oscillateur peut également être amorti en perdant de l'énergie par *collision inélastique* avec un électron, un atome voisin ou la paroi de la cavité laser. En effet, au cours d'une collision, l'énergie interne d'oscillation est convertie en énergie cinétique

(chauffage des atomes voisins du gaz). L'importance de ces processus dépend des caractéristiques du plasma. L'expression de γ pour une relaxation radiative est donc liée à celle de l'émission spontanée et, pour une transition donnée, s'écrit :

$$\gamma = \frac{e^2 \omega^2}{6\pi \epsilon_0 m_e c^2} \quad (3.192)$$

γ doit prendre en compte l'ensemble des transitions possibles. On voit que le taux d'émission spontanée croît avec l'énergie de la transition. Il est donc maximal pour les transitions résonantes avec le fondamental, avec une énergie de transition de l'ordre de 100 eV. Ceci nous donne un temps de relaxation de l'ordre de la ns. Il s'agit donc d'un temps long comparé à la durée de vie du gain qui a été évaluée à quelques dizaines de picosecondes ($10^{-11} s$) pour un milieu amplificateur créé par OFI.

4.3.1.3 Equation du moment dipolaire microscopique \vec{p}

Le déplacement \vec{x} d'un électron par rapport à sa position d'équilibre crée un moment dipolaire, noté $\vec{p} = p\vec{e}_x$. Il s'exprime comme :

$$\vec{p} = -e\vec{x} \quad (3.193)$$

A partir des équations 3.191 et 3.193, on retrouve pour \vec{p} l'équation différentielle suivante :

$$\ddot{p} + \gamma\dot{p} + \omega_a^2 p = \frac{e^2}{m_e} E \quad (3.194)$$

Il faut remarquer que l'équation du mouvement 3.190 dont est issue l'équation différentielle ci-dessus s'applique à 1 seul électron (masse m_e) alors qu'on parle de déplacement du nuage d'électrons sous l'influence du champ. Ce n'est pas incompatible dans la mesure où un dipôle est associé à la transition dipolaire d'un seul électron. Au final, après la transition, un seul électron est censé avoir absorbé ou émis de l'énergie. On peut donc considérer que c'est le seul à avoir interagi avec le champ externe. Ceci correspond à l'approximation d'un coeur gelé avec un électron actif.

4.3.2 Etude de la polarisation macroscopique

Pour calculer la polarisation macroscopique \vec{P} induite par le champ résonant dans une unité de volume, il faut prendre en compte l'ensemble des dipôles contenus dans ce volume. Soit le moment dipolaire \vec{p}_i d'un dipôle i comptant parmi $N_D V$ dipôles d'un volume V (la densité de dipôles par unité de volume est notée N_D). La polarisation macroscopique du milieu s'exprime comme la somme vectorielle de tous les moments dipolaires microscopiques contenus dans ce volume V :

$$\vec{P} = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^{N_D V} \vec{p}_i \quad (3.195)$$

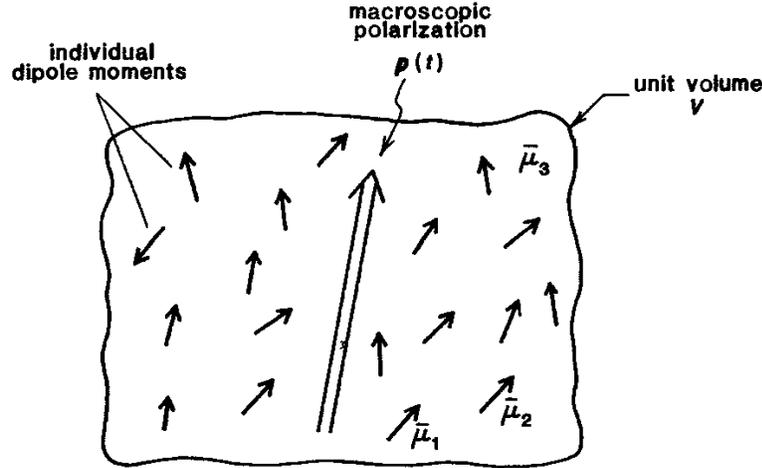


Figure 4.41: Ici, un ensemble de moments dipolaires \vec{p}_i dont l'orientation et la phase ont été perturbées. La polarisation macroscopique \vec{P} de cet ensemble est proportionnelle à la somme vectorielle de tous les moments dipolaires \vec{p}_i se trouvant dans le volume V . (schéma issu du livre Siegman [91])

Si tous les dipôles sont en phase et dans la même direction \vec{e}_x , alors : $\vec{p}_i = \vec{p}$. Ainsi, en reprenant la formule 3.195, la polarisation macroscopique vaut :

$$\vec{P} = N_D \vec{p} \quad (3.196)$$

Dans ce cas, et en reprenant l'équation différentielle appliqué à un seul dipôle 3.194, l'équation différentielle pour la polarisation macroscopique $\vec{P} = P \vec{e}_x$ est alors la suivante :

$$\ddot{P} + \gamma \dot{P} + \omega_a^2 P = \frac{N_D e^2}{m} E \quad (3.197)$$

4.3.2.1 Effets de déphasage

Un champ électrique résonant crée initialement des dipôles alignés et en phase. Mais dans la réalité, ces dipôles garder ces propriétés collectives au cours du temps. En effet, au cours d'une collision, élastique ou inélastique, le dipôle change d'orientation. En conséquence, la phase initiale n'est pas conservée et prend une valeur aléatoire. Ces collisions sont inévitables et dans le cas d'un gaz, elle se font avec d'autres particules du gaz ou avec la paroi du tube.

Soit $N_{D_{nc}}$ le nombre de dipôles dans une unité de volume V n'ayant pas encore collisionné et, dans ce même volume, N_{D_c} le nombre de dipôles ayant collisionné depuis un instant initial noté t_0 . On a :

$$N_D = N_{D_c} + N_{D_{nc}} \quad (3.198)$$

On note le temps moyen de déphasage des dipôles T_2 . Sans champ, le nombre de dipôles n'ayant pas encore collisionné décroît exponentiellement en ce temps T_2 :

$$\dot{N}_{D_{nc}} = -\frac{1}{T_2} N_{D_{nc}} \quad (3.199)$$

$$N_{D_{nc}}(t) = N_D e^{-(t-t_0)\nu}, \text{ à } t > t_0 \quad (3.200)$$

En raison de la direction aléatoire prise par les N_{D_c} dipôles ayant collisionné, la valeur moyenne de leur moment $\langle \vec{p}_c \rangle$ est nulle. La contribution à la polarisation \vec{P} de ces N_{D_c} dipôles correspond l'écart moyen à cette valeur moyenne (*Root Mean Square*). On note cette contribution \vec{P}_c et on calcule qu'elle vaut :

$$\langle \vec{p}_c \rangle = 0 \quad (3.201)$$

$$RMS(\vec{P}_c) = \sqrt{N_D - N_{D_{nc}}(t)} \vec{p} \ll N_{D_{nc}}(t) \vec{p} \quad (3.202)$$

La composante P_c provenant des dipôles de direction aléatoire peut donc être négligée comparée à la polarisation issue des $N_{D_{nc}}$ dipôles non entrés en collision. La polarisation totale du milieu vaut donc :

$$\vec{P} = \vec{P}_{nc} = N_{D_{nc}} \vec{p} \quad (3.203)$$

4.3.2.2 Temps de relaxation de phase T_2

Dans un plasma créé par OFI, les collisions provoquant le déphasage des dipôles sont essentiellement des collisions avec les particules chargées, électrons ou ions, qui produisent par une fluctuation de champ autour de l'ion émetteur, un élargissement Stark de la raie. Les densités étant relativement faibles, les électrons sont responsables de la majeure partie de cet élargissement. Une ordre de grandeur du temps de relaxation de phase T_2 de la polarisation macroscopique est donné par la fréquence de collisions électron-ion ν_{ei} :

$$\nu_{ei} = \frac{1}{T_2} = \frac{4\pi e^4 Z n_e \ln \Lambda_{ei}}{m_e^{1/2} (k_B T_e)^{3/2}} \quad (3.204)$$

Λ_{ei} est le logarithme de Coulomb.

4.3.2.3 Equation différentielle

On reprend l'équation différentielle 3.194 pour un moment dipolaire individuel \vec{p} et on remplace ce dernier par son expression dans la formule 3.194. En utilisant l'équation de $N_{D_{nc}}$ 3.199, on peut retrouver une équation différentielle suivante pour la polarisation macroscopique \vec{P} :

$$\ddot{\vec{P}} + \left(\gamma + \frac{2}{T_2} \right) \dot{\vec{P}} + \omega_a^2 \vec{P} = \frac{N_D e^2}{m_e} E \quad (3.205)$$

4.3.2.4 Transition atomique

Nous avons étudié la polarisation dans le cas d'oscillateurs-électrons classiques. Dans le cas d'un dipôle correspondant à une transition réelle entre 2 niveaux atomiques non dégénérés, l'équation différentielle 3.205 devient :

$$\ddot{P} + \left(\gamma + \frac{2}{T_2} \right) \dot{P} + \omega_a^2 P = \left(\frac{3\omega_a \lambda^3 \varepsilon_0 \gamma_{rad}}{4\pi^2} \right) \Delta N.E \quad (3.206)$$

ΔN correspond à la différence de population entre les 2 niveaux atomiques. D'après l'expression de γ_{rad} 3.192, on trouve :

$$\ddot{P} + \left(\gamma + \frac{2}{T_2} \right) \dot{P} + \omega_a^2 P = \left(\frac{e^2 c}{m_e} \right) \Delta N.E \quad (3.207)$$

4.3.3 Approche quantique de la polarisation

Jusqu'ici, nous avons étudié la dynamique d'un dipôle classique sous l'action d'un champ électrique externe. Elle permet de comprendre physiquement le mécanisme d'induction d'une polarisation dans un milieu par un champ. Néanmoins, nous n'avons pas pris en compte que le moment dipolaire doit être associé à la transition laser et dépend des données atomiques qui la décrivent (comme par exemple la force d'oscillateur f_{ij}). De plus, les transitions dipolaires s'effectuent entre sous-niveaux. L'équation de la polarisation est donc différente de celle déduite de l'approche classique.

4.3.3.1 Cas d'une transition entre 2 sous-niveaux

Fonction d'onde d'un atome à deux niveaux "effectifs"

On considère que le système atomique ne peut se trouver que dans 2 états possibles : l'état excité $|e\rangle$ et l'état fondamental $|g\rangle$. La fonction d'onde du système est donc :

$$|\psi\rangle = c_e |e\rangle + c_g |g\rangle \quad (3.208)$$

c_g et c_e sont les amplitudes de probabilité.

Opérateur polarisation

En mécanique quantique, le moment dipolaire n'est plus seulement un vecteur mais aussi un opérateur, faisant passer un système d'un état à un autre. On considère l'opérateur moment dipolaire $\tilde{\mathbf{p}}$ de transition entre les états $|e\rangle$ et $|g\rangle$. Sa valeur moyenne dans le système atomique est :

$$\langle \tilde{\mathbf{p}} \rangle = \langle \psi | \tilde{\mathbf{p}} | \psi \rangle \quad (3.209)$$

On développe la fonction d'onde $|\psi\rangle$ avec son expression 3.208 et on calcule l'opérateur moment dipolaire $\tilde{\mathbf{p}}$ induit par le champ électrique \vec{E} . Un moment dipolaire est toujours

associé à une transition entre 2 états. En l'occurrence, $\tilde{\mathbf{p}}$ est associé à la transition entre $|e\rangle$ et $|g\rangle$. On peut donc en déduire que les éléments diagonaux $\langle e|\tilde{\mathbf{p}}|e\rangle$ et $\langle g|\tilde{\mathbf{p}}|g\rangle$ sont nuls. A partir de 3.209, on écrit :

$$\vec{p} = \langle \tilde{\mathbf{p}} \rangle = c_e^* c_g \langle e|\tilde{\mathbf{p}}|g\rangle + c_g^* c_e \langle g|\tilde{\mathbf{p}}|e\rangle \quad (3.210)$$

$$= \langle e|\psi\rangle \langle \psi|g\rangle \langle e|\tilde{\mathbf{p}}|g\rangle + \langle g|\psi\rangle \langle \psi|e\rangle \langle g|\tilde{\mathbf{p}}|e\rangle \quad (3.211)$$

L'opérateur $|\psi\rangle \langle \psi|$ qui apparaît dans la formule (3.210) constitue ce qu'on appelle la matrice-densité $\boldsymbol{\rho}$, dont les éléments diagonaux $\langle i|\boldsymbol{\rho}|i\rangle = \rho_{ii}$ correspondent à la densité des états i , et les éléments non diagonaux $\langle i|\boldsymbol{\rho}|j\rangle = \rho_{ij}$ ($i \neq j$) aux *cohérences* entre les états i et j :

$$\boldsymbol{\rho} = |\psi\rangle \langle \psi| \quad (3.212)$$

On définit les éléments de matrice du moment dipolaire de la formule 3.210 comme étant :

$$\vec{M} = -\langle g|\tilde{\mathbf{p}}|e\rangle \quad (3.213)$$

$$\vec{M}^* = \vec{M} = -\langle e|\tilde{\mathbf{p}}|g\rangle \quad (3.214)$$

L'expression du moment dipolaire \vec{p} (3.210) est alors simplifiée en posant $d = \langle e|\boldsymbol{\rho}|g\rangle = \rho_{eg}$:

$$\vec{p} = -\left(\vec{M}^* d + \vec{M} d^*\right) \quad (3.215)$$

Il est à noter qu'il existe une relation entre l'élément de matrice \vec{M} et le coefficient d'Einstein A . Nous sommes ici dans le cas d'un atome à 2 états e et g (niveaux non dégénérés : $g_g = 1$ et $g_e = 1$), avec ω_{eg} la fréquence de transition entre ces 2 états. Le coefficient d'Einstein vaut ainsi :

$$A_{e \rightarrow g} = \frac{g_e}{g_g} \frac{e^2 \omega_{eg}^3}{m_e \varepsilon_0 \pi c^3} f_{eg} = \frac{2\omega_{eg}^3}{3\varepsilon_0 h c^3} \left| \vec{M} \right|^2 \quad (3.216)$$

avec :

$$\left| \vec{M} \right|^2 = \frac{g_e}{g_g} \frac{3\hbar e^2}{m_e} f_{eg} \quad (3.217)$$

Hamiltonien du système

On définit l'hamiltonien du système par l'hamiltonien atomique \mathbf{H}_A (dont les valeurs propres sont les énergies des 2 états $|e\rangle$ et $|g\rangle$) ajouté de l'hamiltonien d'interaction dipôle-champ \mathbf{H}_E . L'hamiltonien \mathbf{H}_E associé à l'énergie d'interaction dipôle-champ correspond à l'énergie potentielle électrique du dipôle. On écrit :

$$\mathbf{H}_E = -\tilde{\mathbf{p}} \cdot \vec{E} \quad (3.218)$$

Le champ électrique est exprimé en notation complexe :

$$\vec{E} = \frac{1}{2} \left(\vec{E}^{(+)} + \vec{E}^{(-)} \right) \quad (3.219)$$

$\vec{E}^{(+)}$ est le complexe conjugué de $\vec{E}^{(-)}$.

En appliquant l'approximation de l'onde tournante (en anglais *Rotating-Wave approximation*), on montre que :

$$\mathbf{H}_E = -\frac{1}{2} \langle e | \tilde{\mathbf{p}} | g \rangle | e \rangle \langle g | \vec{E}^{(+)} - \frac{1}{2} \langle g | \tilde{\mathbf{p}} | e \rangle | g \rangle \langle e | \vec{E}^{(-)} \quad (3.220)$$

$$\mathbf{H}_E = \frac{1}{2} \vec{M}_{ge}^* \vec{E}^{(+)} | e \rangle \langle g | + \frac{1}{2} \vec{M}_{ge} \vec{E}^{(-)} | g \rangle \langle e | \quad (3.221)$$

L'hamiltonien total s'écrit :

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_A - \tilde{\mathbf{p}} \cdot \vec{E} \quad (3.222)$$

Equation du moment dipolaire

L'évolution temporelle se calcule à partir de celle de la matrice-densité. Cette dernière est déterminée par l'équation de Bloch, déduite de l'équation de Schrödinger dépendante du temps :

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [\mathbf{H}, \rho] \quad (3.223)$$

La résolution de cette équation permet de trouver l'équation d'évolution de la cohérence d :

$$\dot{d} = -i\omega_{eg}d + \frac{1}{2i\hbar} \vec{M}_{ge} \vec{E}^{(+)} (\rho_{ee} - \rho_{gg}) \quad (3.224)$$

$N_e = N\rho_{ee}$ et $N_g = N\rho_{gg}$ correspondent respectivement à la densité des états e et g . Pour rester en notation complexe, on pose :

$$\vec{p} = \frac{1}{2} (\vec{p}^{(+)} + \vec{p}^{(-)}) \quad (3.225)$$

A partir des formules 3.215 et 3.224, on retrouve l'équation d'évolution du moment dipolaire \vec{p} dans un système décrit par l'hamiltonien H , c'est-à-dire, où seule figure l'interaction dipôle-champ :

$$\left(\frac{d\vec{p}^{(+)}}{dt} \right)_{ch.} = -i\omega_{eg}\vec{p}^{(+)} - \frac{1}{i\hbar} \left| \vec{M}_{ge} \right|^2 \vec{E}^{(+)} (\rho_{ee} - \rho_{gg}) \quad (3.226)$$

4.3.3.2 Cas de la transition laser X-UV

La différence entre le cas simple étudié précédemment et la transition laser est que cette dernière implique 2 niveaux lasants et non plus 2 sous-niveaux. Si le niveau supérieur de la transition laser ne comporte qu'un seul sous-niveau, ce n'est pas le cas du niveau inférieur, qui en comporte 3.

Transitions dipolaires électriques entre les niveaux lasants

Lors d'une *transition dipolaire électrique* (de type E1), on observe un changement bien défini du nombre quantique J , défini comme le moment angulaire total : $\Delta J = 0, \pm 1$ sauf pour la transition $J = 0 - J = 0$, qui est interdite. On observe également un changement de M_J , projection de J sur l'axe de quantification (axe de propagation du champ électrique), selon la polarisation du champ électrique (π , parallèle à l'axe de quantification, ou σ^+ et σ^- , transverse à cet axe) et selon qu'il y ait émission ou absorption d'un photon :

Photon	Absorption	Emission
σ^+	$\Delta M_J = +1$	$\Delta M_J = -1$
σ^-	$\Delta M_J = -1$	$\Delta M_J = +1$
π	$\Delta M_J = 0$	$\Delta M_J = 0$

(3.227)

La raie laser entre les niveaux $3d^9 4p$ $3d^9 4d$ pour le KrIX et $4d^9 5p$ et $4d^9 5d$ pour le XeIX comporte 2 transitions dipolaires électriques décrites par le schéma suivant. La transition entre les états $|u\rangle$ et $|l_-\rangle$ est réalisée avec un champ de polarisation circulaire-droite (σ^+), et celle entre les états $|u\rangle$ et $|l_+\rangle$ avec un champ de polarisation circulaire-gauche (σ^-). Le schéma ci-dessous décrit les différentes transitions E1 qui peuvent avoir lieu dans notre cas. On peut remarquer que le sous-niveau $|l_0\rangle$ du niveau inférieur n'est pas impliqué dans la raie laser.

Calculs des moments dipolaires \vec{p}_{σ^+} et \vec{p}_{σ^-}

Selon le schéma atomique décrit dans la figure 4.42, on note \vec{p}_{σ^+} le moment dipolaire de transition entre les états $|u\rangle$ et $|l_-\rangle$ (polarisation circulaire-droite) et \vec{p}_{σ^-} celui entre les états $|u\rangle$ et $|l_+\rangle$, (polarisation circulaire-gauche). En reprenant l'équation 3.226, on trouve l'équation d'évolution de ces moments :

$$\begin{aligned}
 \left(\frac{d\vec{p}_{\sigma^+}^{(+)}}{dt} \right)_{ch.} &= -i\omega_{ul} \vec{p}_{\sigma^+}^{(+)} - \frac{1}{i\hbar} \left| \vec{M}_{ul-} \right|^2 \vec{E}_{\sigma^+}^{(+)} (\rho_{uu} - \rho_{l_-l_-}) \\
 \left(\frac{d\vec{p}_{\sigma^-}^{(+)}}{dt} \right)_{ch.} &= -i\omega_{ul} \vec{p}_{\sigma^-}^{(+)} - \frac{1}{i\hbar} \left| \vec{M}_{ul+} \right|^2 \vec{E}_{\sigma^-}^{(+)} (\rho_{uu} - \rho_{l_+l_+})
 \end{aligned}
 \tag{3.228}$$

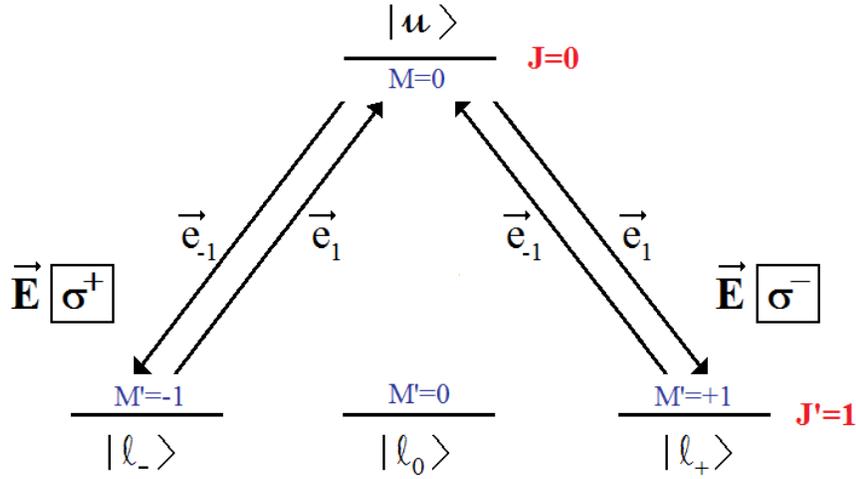


Figure 4.42: Schéma atomique de la raie laser, comprenant l'ensemble des sous-niveaux, et les transitions dipolaires existant entre ces derniers.

Equation de la polarisation macroscopique

Le moment dipolaire total \vec{p} , somme des composantes σ^+ et σ^- , vaut :

$$\vec{p} = \vec{p}_{\sigma^+} + \vec{p}_{\sigma^-} \quad (3.229)$$

De la même manière que \vec{p} , on écrit également \vec{P} en notation complexe :

$$\vec{P} = \frac{1}{2} \left(\vec{P}^{(+)} + \vec{P}^{(-)} \right) \quad (3.230)$$

On considère dans un premier temps que tous les dipôles restent en phase. Pour retrouver l'équation de la polarisation macroscopique \vec{P} induite par le champ, on multiplie le moment dipolaire moyen \vec{p} par la densité atomique N . On peut alors trouver $\vec{P}^{(+)}$ en fonction des composantes $\vec{p}_{\sigma^+}^{(+)}$ et $\vec{p}_{\sigma^-}^{(+)}$:

$$\vec{P}^{(+)} = N\vec{p}^{(+)} = N \left(\vec{p}_{\sigma^+}^{(+)} + \vec{p}_{\sigma^-}^{(+)} \right) \quad (3.231)$$

En incluant cette égalité dans les 2 équations 3.228, on trouve que :

$$\frac{d\vec{P}^{(+)}}{dt} = -i\omega_{ul}\vec{P}^{(+)} - \frac{1}{i\hbar} \left[\left| \vec{M}_{ul-} \right|^2 \vec{E}_{\sigma^+}^{(+)} W_- + \left| \vec{M}_{ul+} \right|^2 \vec{E}_{\sigma^-}^{(+)} W_+ \right] \quad (3.232)$$

Dans le cas de niveaux dégénérés, la définition de la probabilité radiative A_{ij} n'est plus la même que celle qui a été énoncée en 3.216. On a toujours :

$$A_{ul} = \frac{g_u}{g_l} \frac{e^2 \omega_{ul}^3}{m_e \epsilon_0 \pi c^3} f_{ul} = \frac{2\omega_{ul}^3}{3\epsilon_0 \hbar c^3} \left| \vec{M} \right|^2 \quad (3.233)$$

Désormais, $|\vec{M}|^2$ correspond à la somme des carrés des éléments de matrice \vec{M}_{ul_+} et \vec{M}_{ul_-}

:

$$|\vec{M}|^2 = |\vec{M}_{ul_-}|^2 + |\vec{M}_{ul_+}|^2 \quad (3.234)$$

Mais par symétrie, on a :

$$|\vec{M}_{ul_-}|^2 = |\langle l_- | \tilde{\mathbf{p}} | u \rangle|^2 = |\langle l_+ | \tilde{\mathbf{p}} | u \rangle|^2 = |\vec{M}_{ul_+}|^2 \quad (3.235)$$

L'expression 3.232 peut donc être simplifiée :

$$\left(\frac{d\vec{P}^{(+)}}{dt} \right)_{ch.} = -i\omega_{ul}\vec{P}^{(+)} - \frac{1}{2i\hbar} |\vec{M}|^2 \left[\vec{E}_{\sigma^+}^{(+)} (N_u - N_{l_-}) + \vec{E}_{\sigma^-}^{(+)} (N_u - N_{l_+}) \right] \quad (3.236)$$

ω_{ul} est, pour rappel, la fréquence de transition laser, $N_u = N\rho_{uu}$, $N_{l_+} = N\rho_{l_+l_+}$, et $N_{l_-} = N\rho_{l_-l_-}$ la densité des sous-niveaux u , l_+ , et l_- . Si on ajoute dans l'équation 3.236 l'effet des collisions provoquant le déphasage des moments dipolaires en un temps caractéristique T_2 , on trouve l'évolution temporelle de la polarisation :

$$\frac{d\vec{P}^{(+)}}{dt} = - \left[i\omega_{ul} + \left(\frac{\gamma}{2} + \frac{1}{T_2} \right) \right] \vec{P}^{(+)} - \frac{1}{2i\hbar} |\vec{M}|^2 \left[\vec{E}_{\sigma^+}^{(+)} (N_u - N_{l_-}) + \vec{E}_{\sigma^-}^{(+)} (N_u - N_{l_+}) \right] \quad (3.237)$$

Cette équation de la polarisation, calculée par les équations de la mécanique quantique, diffère de l'équation différentielle 3.207. Néanmoins, on peut montrer que leur résolution mène à des solutions équivalentes, à une différence près liée à la prise en compte des sous-niveaux atomiques dans le cas du calcul par la mécanique quantique.

4.3.4 Réponse en fréquence de la polarisation

Soumis à un champ électrique d'amplitude \hat{E} constante, la polarisation atteint un régime stationnaire, avec pour caractéristiques une amplitude \hat{P} constante, et une fréquence d'oscillation ω . On retrouve alors la relation de la susceptibilité diélectrique qui a été évoquée en début de chapitre 2.182.

4.3.4.1 Susceptibilité diélectrique

Le régime stationnaire de la polarisation est obtenu en posant les relations suivantes :

$$\begin{aligned} \vec{E} &= \text{Re} \left\{ \hat{E}^{(+)} e^{i\omega t} \right\} = \frac{1}{2} \left[\hat{E}^{(+)} e^{i\omega t} + \hat{E}^{(-)} e^{-i\omega t} \right] \\ \vec{P} &= \text{Re} \left\{ \hat{P}^{(+)} e^{i\omega t} \right\} = \frac{1}{2} \left[\hat{P}^{(+)} e^{i\omega t} + \hat{P}^{(-)} e^{-i\omega t} \right] \end{aligned} \quad (3.238)$$

En remplaçant ces expressions 3.238 dans l'équation 3.206, on peut retrouver l'expression de l'amplitude $\widehat{P}^{(+)}$ en fonction de $\widehat{E}^{(+)}$:

$$\widehat{P}^{(+)}(\omega) = \frac{1}{(\omega_a^2 - \omega^2) + 2i\omega\Gamma} \left(\frac{e^2 c}{m_e} \right) W \cdot \widehat{E}^{(+)}(\omega) \quad (3.239)$$

Γ correspond au taux de relaxation total de la polarisation :

$$\Gamma = \gamma/2 + \frac{1}{T_2} \quad (3.240)$$

Dans l'*approximation de la résonance*, la fréquence d'excitation a une valeur proche de la fréquence de résonance : on pose $\omega \simeq \omega_a$ ce qui signifie que :

$$\omega_a^2 - \omega^2 \simeq 2\omega(\omega_a - \omega) \quad (3.241)$$

On peut alors simplifier l'expression 3.239. Après séparation des parties réelle et imaginaire, on trouve :

$$\vec{P}^{(+)}(\omega) = \left[\left(\frac{\omega_a - \omega}{(\omega_a - \omega)^2 + (\Gamma)^2} \right) + i \left(\frac{-\Gamma}{(\omega_a - \omega)^2 + (\Gamma)^2} \right) \right] \left(\frac{e^2 c}{2m_e \omega} \right) \Delta N \cdot \vec{E}^{(+)}(\omega) \quad (3.242)$$

Par identification avec la formule 2.182, la susceptibilité diélectrique $\chi(\omega)$ comporte donc une partie réelle et une partie imaginaire, respectivement $\chi'(\omega)$ et $\chi''(\omega)$:

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) + i\chi''(\omega) \quad (3.243)$$

$$\chi'(\omega) = \frac{\omega - \omega_a}{(\omega_a - \omega)^2 + (\Gamma)^2} \left(\frac{e^2 c}{2m_e \omega} \right) \Delta N \quad (3.244)$$

$$\chi''(\omega) = -\frac{\Gamma}{(\omega_a - \omega)^2 + (\Gamma)^2} \left(\frac{e^2 c}{2m_e \omega} \right) \Delta N \quad (3.245)$$

Leur allure est représentée sur le graphique 4.43. L'unité de l'abscisse est en unité de $\frac{\omega - \omega_a}{\Delta\omega_a}$, $\Delta\omega_a = 1/\Gamma$ étant la largeur homogène de la raie (voir ci-après pour la largeur).

Cette approximation de l'état stationnaire peut être réalisée lorsque la variation de l'amplitude du champ électrique est lente par rapport au temps de réponse $1/\gamma$ du dipôle :

$$\left| \frac{\partial A(t)}{\partial t} \right| \ll |\gamma A(t)| \text{ et } t \gg 1/\Gamma. \quad (3.246)$$

Autrement dit, si on parle en fréquence, la largeur spectrale de l'impulsion laser X-UV incidente doit être beaucoup plus faible que la largeur de la raie laser $\Delta\omega_a$.

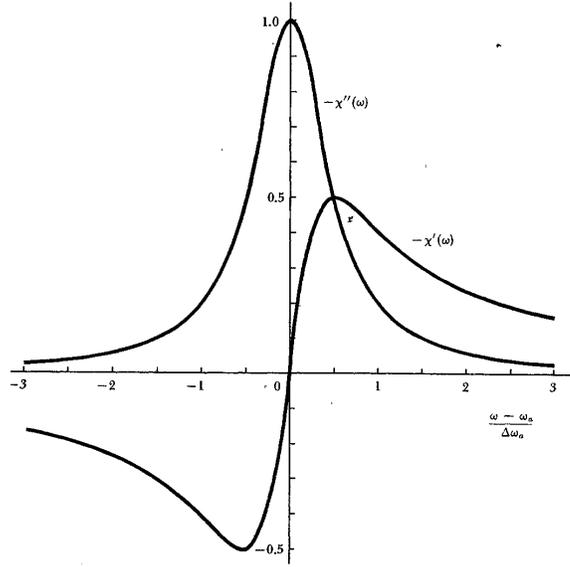


Figure 4.43: Evolution des parties réelle χ' et imaginaire χ'' de la susceptibilité diélectrique, en fonction de la fréquence d'excitation ω

4.3.4.2 Elargissement de la raie laser

On distingue 2 types d'élargissement : l'élargissement *homogène* qui dépend uniquement des propriétés atomiques des atomes du gaz et est donc identique pour tous les atomes, et l'élargissement *inhomogène*, qui dépend de facteurs extérieurs (effets collectifs) et peut varier selon la région de plasma considérée.

Elargissement homogène

L'élargissement est tout d'abord *naturel* : en effet, les niveaux de la raie laser ont une durée de vie limitée τ dont le taux correspond à la somme des taux de désexcitation radiative A_{ij} :

$$\frac{1}{\tau_i} = \gamma = \sum_{j < i} A_{ij} \quad (3.247)$$

Il s'agit du même taux γ que celui de la relaxation en énergie du dipôle. A cet élargissement naturel, vient s'ajouter un autre effet : celui du déphasage des dipôles lié aux collisions en un temps caractéristique T_2 . Le déphasage des dipôles a pour effet de raccourcir davantage le temps de relaxation de la polarisation, comme le montre l'équation différentielle 3.206 décrivant \vec{P} . La largeur de raie $\Delta\omega_a$ associée à l'élargissement homogène s'écrit de la manière suivante :

$$\Delta\omega_a = \gamma + \frac{2}{T_2} \quad (3.248)$$

Elargissement inhomogène

La cause essentielle d'élargissement inhomogène dans le plasma créé par OFI est l'effet Doppler $\Delta\omega_d$ généré par le mouvement des atomes du gaz. Il est responsable d'un profil de raie de forme gaussienne. L'élargissement provoqué vaut :

$$\Delta\omega_d = \sqrt{\frac{8kT_i \ln 2}{Mc^2}} \omega_a \quad (3.249)$$

Calcul de l'élargissement de la raie dans notre cas

Une étude a été effectuée dans la thèse d'A.Boudaa [1] sur l'importance relative des élargissements homogène et inhomogène. Il est clair que la contribution homogène croît avec la pression et la contribution inhomogène augmente avec la température. Le rapport entre ces deux contributions dépend donc de la pression dans la cellule et de la température des ions.

La température ionique a fait l'objet d'une étude particulière dans [69]. Comme nous l'avons vu, les ions sont relativement peu chauffés par le processus d'ionisation par champ, alors que les électrons ont une énergie moyenne de l'ordre de quelques centaines d'eV. Il y a donc un échange d'énergie entre les électrons et les ions. Cependant, la cinétique de cet échange est beaucoup plus long que la durée du gain. Le seul processus qui semble capable de chauffer les ions est un chauffage collectif de relaxation de l'énergie potentielle ion-ion créé lors de l'ionisation. Au final, la température ionique est de l'ordre de quelques eV. On trouve alors que l'élargissement homogène domine pour des pressions supérieures à 10-15 mbar. La prise en compte d'un élargissement inhomogène complique très sérieusement les équations de Maxwell-Bloch, puisqu'il faut alors décrire la modification de la fonction de distribution en vitesse induite par l'amplification. Le maximum de gain étant obtenu à des pressions supérieures à 15 mbar, nous n'avons considéré que l'élargissement homogène.

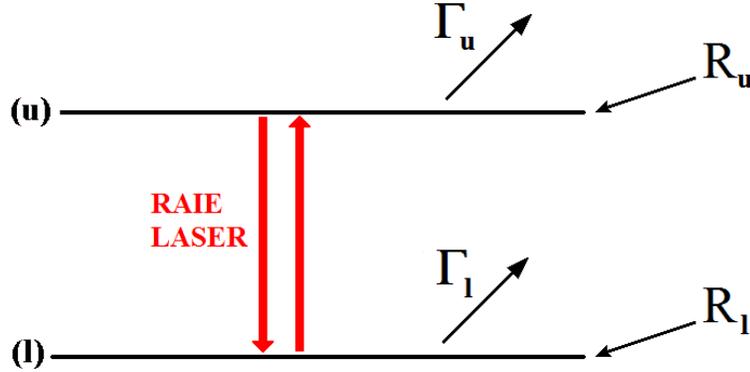
4.4 Cinétique des populations atomiques en présence d'un champ X-UV résonant

La population des niveaux lasants nous permet de déterminer le gain du milieu amplificateur. En effet, la réponse de ce dernier au champ électrique (polarisation) est, comme le montre l'équation proportionnelle à la différence de population entre les sous-niveaux lasants $W_+ = (N_u - N_{l_+})$ et $W_- = (N_u - N_{l_-})$. On a besoin de recalculer les populations des niveaux atomiques sans champ calculées par le code OFI-0d en ajoutant l'effet du champ.

4.4.1 Modèle à 2 niveaux

Pour recalculer la population des niveaux lasants avec le champ résonant, on propose un modèle collisionnel-radiatif simplifié composé uniquement des 2 niveaux lasants. En ne

recalculant la population d'aucun autre niveau, on réduit considérablement les temps de calcul. Le schéma est le suivant :



Sans la raie laser, on considère que 2 dynamiques régissent l'évolution des populations N_u et N_l . D'une part, il y a le pompage collisionnel des 2 niveaux, représenté par R_u et R_l , qui correspond à la contribution totale des autres niveaux à leur peuplement (le niveau fondamental est de loin le principal contributeur). R_u et R_l sont variables mais indépendants de N_u et de N_l . D'autre part, on a une perte de population liée à l'excitation collisionnelle vers des niveaux d'énergie supérieure et à l'ionisation collisionnelle, conduisant à un taux total respectif Γ_u et Γ_l .

A cela nous devons ajouter, en présence du champ X-UV, les processus associés à la raie laser, l'émission stimulée et l'absorption induite, représentés sur la figure 4.4.1 ci-dessus par les flèches rouges. La présence de ce champ va simplement modifier la répartition des populations entre les 2 niveaux lasants sans modifier la population totale de ces 2 niveaux. Dans un tel modèle à 2 niveaux, on peut, dans l'équation d'évolution de l'inversion de population $W = \frac{N_u}{g_u} - \frac{N_l}{g_l}$ entre les 2 niveaux, séparer la contribution des collisions de celle du champ résonant :

$$\frac{dW}{dt} = \left(\frac{dW}{dt} \right)_{Coll} + \left(\frac{dW}{dt} \right)_{champ} \quad (4.250)$$

Ce modèle n'est valide que s'il n'existe pas de niveau atomique autre que les niveaux lasants pouvant influencer sur l'inversion de population W . Il s'agit de niveaux dont la population pourrait être très sensible à un changement de W induit par le champ et, en retour, affecter la perturbation de sa population sur celle des niveaux lasants. Par exemple, on pourrait imaginer qu'il existe une boucle rétroactive, le niveau supérieur u se dépeuplant par excitation collisionnelle vers un niveau d'énergie supérieure, qui à son tour se désexciterait rapidement vers le niveau l . L'étude de la physique atomique de l'ion lasant a permis de mettre en évidence, à partir des taux radiatifs et collisionnels, qu'il n'existait aucun niveau intermédiaire capable d'influencer la population des niveaux lasants.

4.4.2 Equations de l'inversion de population sans champ

Dans le chapitre précédent, une équation de population a été écrite pour chacun des 2 niveaux lasants N_u et N_l , reproduisant avec précision l'évolution de la population des 2 mêmes niveaux calculée par le code OFI-0D. Ces 2 équations sont les suivantes :

$$\left(\frac{dN_u}{dt}\right)_{Coll} = C_{gu}N_eN_g - P_i^C N_eN_u - P_i^R N_u = C_{gu}N_eN_g - \Gamma_u N_u \quad (4.251)$$

$$\left(\frac{dN_l}{dt}\right)_{Coll} = C_{gl}N_eN_g - P_i^C N_eN_l - P_i^R N_l = C_{gl}N_eN_g - \Gamma_l N_l \quad (4.252)$$

$\Gamma_u = (P_u^C N_e + P_u^R)$ et $\Gamma_l = (P_l^C N_e + P_l^R)$ sont les taux totaux de pertes respectifs des niveaux u et l , C_{gu} et C_{gl} sont les taux d'excitation collisionnelle à partir du niveau fondamental g , N_e la densité électronique.

Le but est de trouver l'expression de $\left(\frac{dW}{dt}\right)_{Coll}$ qui se trouve dans la formule 4.250. C'est la différence de population entre ces 2 niveaux lasants, proportionnelle au gain, qui nous intéresse, et qui, pour rappel, s'exprime comme :

$$W = \frac{N_u}{g_u} - \frac{N_l}{g_l} \quad (4.253)$$

La soustraction des 2 équations de population 4.251 nous permet d'obtenir l'équation de W . On sépare, dans le membre de droite, la partie dépendante de W qui peut être affectée par le champ électrique E et la partie fonction de $(N_u + N_l)$ indépendant du champ résonant (comme nous l'avons évoqué dans la section sur les populations avec champ) :

$$\left(\frac{dW}{dt}\right)_{Coll} = -\left(\frac{\Gamma_u + \Gamma_l}{2}\right) w + \left(\frac{\Gamma_l - \Gamma_u}{2}\right) (N_u + N_l) + \left(\frac{C_{gu}N_eN_g}{g_u} - \frac{C_{gl}N_eN_g}{g_l}\right) \quad (4.254)$$

Les 2ème et 3ème termes du membre de droite peuvent être ramenés à un terme de pompage $R(t) = R_u(t) - R_l(t)$, lié aux processus collisionnels. Dans le même temps $\frac{\Gamma_u + \Gamma_l}{2}$ constitue un taux de relaxation de cette inversion de population W , faisant tendre cette variable vers zéro en l'absence de pompage. On a :

$$\left(\frac{dW}{dt}\right)_{Coll} = -\left(\frac{\Gamma_u + \Gamma_l}{2}\right) W + R(t) \quad (4.255)$$

Le temps $\frac{2}{\Gamma_u + \Gamma_l}$ correspond au temps de recouvrement du gain T_1 . En effet, si on considère $W(t=0) = 0$, et un pompage constant $R(t) = R_0$, on trouve que l'inversion de population se relaxe exponentiellement vers une valeur d'équilibre en un temps caractéristique $T_1 = \frac{\Gamma_u + \Gamma_l}{2}$:

$$W(t) = T_1 R_0 \left(1 - \exp\left[-\left(\frac{\Gamma_u + \Gamma_l}{2}\right)t\right]\right) \quad (4.256)$$

Dans cet exemple, la valeur d'équilibre (atteinte à l'état stationnaire) vaut :

$$W_0 = T_1 R_0 \quad (4.257)$$

On peut alors généraliser l'équation 4.255 et introduire la notion d'inversion de population d'équilibre $W_0(t) = T_1 R(t)$, variable, vers laquelle l'inversion de population $W(t)$ tend à se rapprocher en un temps caractéristique T_1 . L'équation devient alors :

$$\left(\frac{dW}{dt} \right)_{Coll} = -\frac{W - W_0(t)}{T_1} \quad (4.258)$$

4.4.3 Equation de l'inversion de population avec champ

4.4.3.1 Transfert d'énergie entre le champ et l'atome

Dans cette section, nous allons calculer le transfert d'énergie qui s'opère entre le champ et le dipôle. Ce transfert a une incidence sur les populations atomiques de l'atome. Si une étude a été faite sur le comportement d'un dipôle en présence d'un champ électrique, l'échange d'énergie entre les atomes et ce champ n'a pas été quantifié.

On considère un dipôle classique oscillant dans la direction x . L'énergie transférée au dipôle peut être ramenée au travail dU de la force du champ électrique exercé sur l'électron-oscillateur :

$$dU = -e\vec{E}d\vec{x} \quad (4.259)$$

dx est le déplacement de l'électron pendant la durée dt . On peut ramener la formule à :

$$\frac{dU}{dt} = \vec{E} \cdot \frac{d\vec{p}}{dt} \quad (4.260)$$

dU/dt est la puissance transmise à un seul dipôle. On considère dU_a/dt la puissance transmise à l'ensemble des dipôles d'une unité de volume. On peut alors remplacer le moment dipolaire \vec{p} par la polarisation \vec{P} :

$$\frac{dU_a}{dt} = \vec{E} \cdot \frac{d\vec{P}}{dt} \quad (4.261)$$

\vec{E} et \vec{P} se trouvent dans l'espace réel. Mais ils peuvent être décrits dans l'espace complexe de la manière suivante :

$$\vec{E} = \frac{1}{2} \left[\vec{E}^{(+)} + \vec{E}^{(-)} \right] = \frac{1}{2} \left[\widehat{E}^{(+)} e^{i\omega t} + \widehat{E}^{(-)} e^{-i\omega t} \right] \quad (4.262)$$

$$\vec{P} = \frac{1}{2} \left[\vec{P}^{(+)} + \vec{P}^{(-)} \right] = \frac{1}{2} \left[\widehat{P}^{(+)} e^{i\omega t} + \widehat{P}^{(-)} e^{-i\omega t} \right] \quad (4.263)$$

On applique l'approximation de l'enveloppe lentement variable. En moyennant sur les oscillations du champ ω , on trouve que la puissance transmise vaut :

$$\frac{dU_a}{dt} = \frac{i\omega}{4} \left(\vec{E}^{(-)} \vec{P}^{(+)} - \vec{E}^{(+)} \vec{P}^{(-)} \right) \quad (4.264)$$

Variation de population des niveaux lasants induite par le champ X-UV

La variable U_a correspond aussi à l'énergie interne des atomes par unité de volume, et une variation de celle-ci induit logiquement un changement dans les populations atomiques. On note i les niveaux d'énergie E_i de l'ion lasant. On peut alors poser :

$$U_a = \sum_i E_i N_i \quad (4.265)$$

On considère pour l'instant le champ de polarisation σ^+ provoquant les transitions radiatives entre les sous-niveaux u et l_- . La variation d'énergie interne des ions lasants associée à ce champ peut donc s'écrire :

$$\left(\frac{dU_a}{dt} \right)_{\sigma^+} = E_u \left(\frac{dN_u}{dt} \right)_{\sigma^+} + E_l \left(\frac{dN_{l_-}}{dt} \right)_{\sigma^+} \quad (4.266)$$

E_u et E_l sont l'énergie des sous-niveaux u et l_- . Il nous intéresse de connaître l'évolution de l'inversion de population $W_- = N_u - N_{l_-}$ entre ces 2 sous-niveaux, en fonction de \vec{E} et de \vec{P} . Comme les transitions radiatives induites par le champ (émission stimulée, absorption induite) s'effectuent entre les niveaux lasants, la somme de la population des 2 sous-niveaux se conserve au cours de ces transitions, ce qui nous donne :

$$\left(\frac{dN_u}{dt} \right)_{\sigma^+} = - \left(\frac{dN_{l_-}}{dt} \right)_{\sigma^+} \quad (4.267)$$

En introduisant 4.267 dans 4.266, on peut faire apparaître W_- . En remplaçant $\frac{dU_a}{dt}$ par son expression en 4.264, on obtient :

$$\left(\frac{dW_-}{dt} \right)_{\sigma^+} = -\frac{1}{2i\hbar} \left(\vec{E}_{\sigma^+}^{(-)} \vec{P}_{\sigma^+}^{(+)} - \vec{E}_{\sigma^+}^{(+)} \vec{P}_{\sigma^+}^{(-)} \right) \quad (4.268)$$

Par le même raisonnement, on peut retrouver l'évolution de l'inversion de population $W_+ = N_u - N_{l_+}$ liée au champ électrique σ^- :

$$\left(\frac{dW_+}{dt} \right)_{\sigma^-} = -\frac{1}{2i\hbar} \left(\vec{E}_{\sigma^-}^{(-)} \vec{P}_{\sigma^-}^{(+)} - \vec{E}_{\sigma^-}^{(+)} \vec{P}_{\sigma^-}^{(-)} \right) \quad (4.269)$$

En présence d'un champ, c'est donc l'inversion de population entre les sous-niveaux qui compte, c'est-à-dire $(N_u - N_{l_-})$ et $(N_{u-} - N_{l_+})$, et qui détermine un gain. Si on reprend l'approche quantique qui a été faite pour le calcul de la polarisation, le calcul de l'évolution des densités ρ_{ee} , $\rho_{l_-l_-}$ et $\rho_{l_+l_+}$ par l'équation de Schrödinger dépendante du temps permet de retrouver les mêmes résultats 4.268 et 4.269.

Equations avec champ

En l'absence de champ résonant, les inversions de population W_+ et W_- suivent la dynamique sans champ décrite par l'équation 4.258 :

$$\left(\frac{dW_-}{dt}\right)_{Coll} = -\frac{W_- - W_0(t)}{T_1} \quad (4.270)$$

$$\left(\frac{dW_+}{dt}\right)_{Coll} = -\frac{W_+ - W_0(t)}{T_1} \quad (4.271)$$

On ajoute maintenant la contribution du champ à l'aide de la relation suivante :

$$\frac{dW}{dt} = \left(\frac{dW}{dt}\right)_{Coll} + \left(\frac{dW}{dt}\right)_{Champ} \quad (4.272)$$

Au total, l'évolution de W_- et de W_+ est déterminée par la relation suivante :

$$\left(\frac{dW_-}{dt}\right)_{Coll} = -\frac{W_- - W_0(t)}{T_1} - \frac{1}{2i\hbar} \left(\vec{E}_{\sigma^+}^{(-)} \vec{P}_{\sigma^+}^{(+)} - \vec{E}_{\sigma^+}^{(+)} \vec{P}_{\sigma^+}^{(-)} \right) \quad (4.273)$$

$$\left(\frac{dW_+}{dt}\right)_{Coll} = -\frac{W_+ - W_0(t)}{T_1} - \frac{1}{2i\hbar} \left(\vec{E}_{\sigma^-}^{(-)} \vec{P}_{\sigma^-}^{(+)} - \vec{E}_{\sigma^-}^{(+)} \vec{P}_{\sigma^-}^{(-)} \right) \quad (4.274)$$

4.5 Equations de Maxwell-Bloch

4.5.1 Equations générales

L'étude du champ électrique, de la polarisation, et de l'inversion de population entre les sous-niveaux lasants à travers ce chapitre nous a permis de trouver les équations suivantes dites de *Maxwell-Bloch*. Elles s'appliquent dans le cas où l'HHG incidente n'a pas nécessairement une polarisation linéaire. Pour rappel, dans ce cas, il existe 2 équations de population, une pour l'inversion de population $W_- = N_u - N_{l_-}$ affectée par un champ de polarisation σ^+ et une autre pour l'inversion de population $W_+ = N_u - N_{l_+}$ sous l'effet d'une polarisation σ^- :

$$\left(\Delta - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \vec{E}^{(+)}(z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{(+)}(z, t) \quad (5.275)$$

$$\frac{d\vec{P}^{(+)}}{dt} = - \left(i\omega_{ul} + \frac{1}{T_2} \right) \vec{P}^{(+)} - \frac{1}{2i\hbar} |\vec{M}|^2 \left[\vec{E}_{\sigma^+}^{(+)} (N_u - N_{l_-}) + \vec{E}_{\sigma^-}^{(+)} (N_u - N_{l_+}) \right] \quad (5.276)$$

$$\frac{dW_-}{dt} = - \frac{W_- - W_0(t)}{T_1} - \frac{1}{2i\hbar} \left(\vec{E}_{\sigma^+}^{(-)} \vec{P}_{\sigma^+}^{(+)} - \vec{E}_{\sigma^+}^{(+)} \vec{P}_{\sigma^+}^{(-)} \right) \quad (5.277)$$

$$\frac{dW_+}{dt} = - \frac{W_+ - W_0(t)}{T_1} - \frac{1}{2i\hbar} \left(\vec{E}_{\sigma^-}^{(-)} \vec{P}_{\sigma^-}^{(+)} - \vec{E}_{\sigma^-}^{(+)} \vec{P}_{\sigma^-}^{(-)} \right) \quad (5.278)$$

4.5.2 Cas particulier de l'impulsion HHG

4.5.2.1 Polarisation linéaire

On suppose que l'HHG introduite dans le milieu amplificateur a une polarisation linéaire. Cela signifie que les composantes circulaires σ^+ et σ^- de la polarisation du champ ont une amplitude et une phase identiques :

$$\vec{E} = \vec{E}_{\sigma^+} + \vec{E}_{\sigma^-} \quad (5.279)$$

$$|\vec{E}_{\sigma^+}| = |\vec{E}_{\sigma^-}| \quad (5.280)$$

La conséquence première de ce choix d'une polarisation linéaire est que les populations N_{l_-} et N_{l_+} , par symétrie, vont suivre la même évolution :

$$N_{l_-} = N_{l_+} \quad (5.281)$$

On en déduit que les membres de droite des 2 équations 5.277 sont identiques. L'application d'un champ résonant n'induit pas de variation de la somme des populations des niveaux u et l , ce qui nous donne :

$$\left(\frac{dN_u}{dt}\right)_{Champ} = - \left(\frac{d(N_{l_+} + N_{l_-})}{dt}\right)_{Champ} \quad (5.282)$$

En sommant les 2 équations 4.268 et 4.269, on obtient une contribution du champ total qui peut être reliée à N_u à l'aide de la relation précédente :

$$\left(\frac{dW_+}{dt}\right)_{\sigma^-} + \left(\frac{dW_-}{dt}\right)_{\sigma^+} = \left(\frac{dN_u}{dt}\right)_{\sigma^+} + \left(\frac{dN_u}{dt}\right)_{\sigma^-} - \left(\frac{dN_{l_-}}{dt}\right)_{\sigma^+} - \left(\frac{dN_{l_+}}{dt}\right)_{\sigma^-} \quad (5.283)$$

$$= \left(\frac{d(N_u - N_{l_-} - N_{l_+})}{dt}\right)_{Champ} \quad (5.284)$$

$$= -\frac{1}{2i\hbar} \left(\vec{E}^{(-)}\vec{P}^{(+)} - \vec{E}^{(+)}\vec{P}^{(-)}\right) = 2 \left(\frac{dN_u}{dt}\right)_{Champ} \quad (5.285)$$

A noter que les produits $\vec{E}_{\sigma^-} \cdot \vec{P}_{\sigma^+}$ et $\vec{E}_{\sigma^+} \cdot \vec{P}_{\sigma^-}$, moyennés sur une période d'oscillation du champ, sont nuls, contrairement aux produits $\vec{E}_{\sigma^+} \cdot \vec{P}_{\sigma^+}$ et $\vec{E}_{\sigma^-} \cdot \vec{P}_{\sigma^-}$. En utilisant l'égalité 5.281, l'inversion de population peut s'écrire :

$$W = W_+ = W_- = N_u - \frac{N_{l_+} + N_{l_-}}{2} \quad (5.286)$$

Ceci nous permet, avec la relation 5.282, de trouver l'évolution de W au cours du temps :

$$\left(\frac{dW}{dt}\right)_{Champ} = \left(\frac{d\left(N_u - \frac{N_{l_+} + N_{l_-}}{2}\right)}{dt}\right)_{Champ} = \frac{3}{2} \left(\frac{dN_u}{dt}\right)_{Champ} \quad (5.287)$$

$$\left(\frac{dW}{dt}\right)_{Champ} = -\frac{3}{8i\hbar} \left(\vec{E}^{(-)}\vec{P}^{(+)} - \vec{E}^{(+)}\vec{P}^{(-)}\right) \quad (5.288)$$

Finalement, la variation totale prenant en compte collisions et champ résonant est donnée par :

$$\frac{\partial W(z, t)}{\partial t} = -\frac{W - W_0(z, t)}{T_1} - \frac{3}{8i\hbar} \left(\vec{E}^{(-)}\vec{P}^{(+)} - \vec{E}^{(+)}\vec{P}^{(-)}\right) \quad (5.289)$$

Un facteur (3/4) différencie cette équation par rapport à celle appliquée à un dipôle entre 2 sous-niveaux. Ce facteur est lié à 2 choses : d'une part, au fait que la population des 2 sous-niveaux inférieurs l_- et l_+ , qui se partagent le dépeuplement du sous-niveau u , évoluent 2 fois moins vite que ce dernier, et d'autre part au fait que le sous-niveau l_0 n'est pas impliqué dans l'interaction laser-dipôle.

En reprenant le raisonnement précédent, l'équation de la polarisation 5.276 peut également être simplifiée à l'aide des relations 5.279 et 5.281. Il nous reste alors 3 équations de Maxwell-Bloch :

$$\left(\Delta - \frac{1}{c_0^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2}\right) \vec{E}^{(+)}(z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}^{(+)}(z, t) \quad (5.290)$$

$$\frac{\partial \vec{P}^{(+)}(z, t)}{\partial t} = -\left(i\omega_{ul} + \frac{1}{T_2}\right) \vec{P}^{(+)} - \frac{1}{2i\hbar} |\vec{M}|^2 \vec{E}^{(+)} W \quad (5.291)$$

$$\frac{\partial W(z, t)}{\partial t} = -\frac{W - W_0(z, t)}{T_1} - \frac{3}{8i\hbar} \left(\vec{E}^{(-)} \vec{P}^{(+)} - \vec{E}^{(+)} \vec{P}^{(-)}\right) \quad (5.292)$$

4.5.3 Equations de Maxwell-Bloch finales

4.5.3.1 Projection sur la direction de polarisation (\vec{e}_x)

On propose de remplacer $\vec{P}^{(+)}(z, t)$ et $\vec{E}^{(+)}(z, t)$ par les expressions suivantes :

$$\vec{P}^{(+)}(z, t) = \hat{P}(z, t) e^{i(\omega_{ul}t - k_0z)} \vec{e}_x \quad (5.293)$$

$$\vec{E}^{(+)}(z, t) = \sqrt{2Z_{F_0}} A(z, t) e^{i(\omega_{ul}t - k_0z)} \vec{e}_x \quad (5.294)$$

On a choisi $\omega = \omega_{ul}$: il s'agit du cas où la fréquence d'oscillation du champ électrique et de la polarisation correspondent à la fréquence de résonance. L'expression du champ électrique est écrite de telle manière que $|A(z, t)|^2 = I(z, t)$, où $I(z, t)$ est l'intensité du champ électrique. On a donc :

$$Z_{F_0} = \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_0}} = \frac{1}{\varepsilon_0 c} = 377\Omega \quad (5.295)$$

4.5.3.2 Approximations

La première approximation que nous allons utiliser est l'*approximation de l'enveloppe lentement variable*. En effet, on considère les enveloppes $A(z, t)$ et $\hat{P}(z, t)$ lentement variables par rapport aux oscillations du champ (à la fréquence ω), ce qui nous mène aux conditions suivantes :

$$\begin{aligned} \left|\frac{\partial A}{\partial z}\right| &\ll |k_0 A|, \quad \left|\frac{\partial A}{\partial t}\right| \ll |\omega_{ul} A| \\ \left|\frac{\partial \hat{P}}{\partial z}\right| &\ll |k_0 \hat{P}|, \quad \left|\frac{\partial \hat{P}}{\partial t}\right| \ll |\omega_{ul} \hat{P}| \end{aligned} \quad (5.296)$$

On suppose ensuite que le champ se propage suivant l'axe z (vers les z croissants) (approximation 1D). Cela signifie qu'on considère que la divergence du faisceau X-UV due à la diffraction est faible. En effet, sa longueur de Rayleigh est $z_R = 24,5\text{cm}$ pour $\lambda = 32,8\text{nm}$ et avec un waist $w_0 = 50\mu\text{m}$ (taille du faisceau HHG). Avec les formules 5.293 et 5.295 ainsi que les approximations 5.296, la première équation de 5.290 devient alors :

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c_0} \frac{\partial}{\partial t}\right) A(z, t) = i\omega_{ul} \sqrt{\frac{Z_{F_0}}{2}} \hat{P}(z, t) \quad (5.297)$$

4.5.3.3 Equations utilisées par le code COFIXE_MB 1D

Dans le code COFIXE_MB, nous avons introduit la variable $D = i\omega_{ul} \sqrt{\frac{Z_{F_0}}{2}} \hat{P}$. On obtient alors les équations simplifiées suivantes :

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c_0} \frac{\partial}{\partial t}\right) A(z, t) = D(z, t) \quad (5.298)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} D(z, t) = -\frac{1}{T_2} D + \left(\frac{Z_{F_0} \omega_{ul}}{2\hbar} |\vec{M}|^2\right) AW \quad (5.299)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} W(z, t) = -\frac{W - W_0}{T_1} - \frac{3}{4\hbar\omega_{ul}} (A^* D + AD^*) \quad (5.300)$$

Pour arriver à ces équations, on est parti de notations complexes pour \vec{E} et \vec{P} . Ici, si on considère que A est un réel, comme l'inversion de population W l'est nécessairement, alors D l'est également d'après la 2ème équation 5.299. On peut alors écrire $A = A^*$ et $D = D^*$ et obtenir les équations suivantes :

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c_0} \frac{\partial}{\partial t}\right) A(z, t) = D(z, t) \quad (5.301)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} D(z, t) = -\frac{1}{T_2} D + \frac{Z_{F_0} \omega_{ul}}{2\hbar} |\vec{M}|^2 AW \quad (5.302)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} W(z, t) = -\frac{W - W_0}{T_1} - \frac{3}{2\hbar\omega_{ul}} AD \quad (5.303)$$

4.5.3.4 Remarques

Dans les équations 5.301, on peut voir qu'il n'existe aucun coefficient s'apparentant directement au gain dans le membre de droite de l'équation de propagation (1ère équation). Néanmoins, la variable $D(z, t)$, proportionnelle à l'amplitude de la polarisation, correspond au niveau d'émission des ions du plasma. D'après la seconde des 3 équations, le niveau d'émission n'est pas forcément proportionnel au champ incident. Si la durée d'impulsion est très courte par rapport au temps T_2 , à savoir la variation de l'amplitude du champ $A(t)$ rapide comparée à ce temps, alors le niveau d'émission D va monter pendant le passage de l'impulsion puis chuter en un temps caractéristique T_2 . En appliquant cette propriété à notre cas, le rayonnement produit par émission stimulée dans la zone amplificatrice est émis dans son intégralité après passage du pic HHG, et se retrouve donc à l'arrière de ce dernier.

A l'inverse, si ce temps T_2 est très court par rapport à la durée de l'impulsion HHG, le signal se déforme peu au cours de son amplification (s'il n'y a pas de saturation). On se trouve

alors dans le cas de l'*approximation adiabatique* (voir l'Annexe pour plus de détails) et il ne nous reste qu'une seule équation :

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c_0} \frac{\partial}{\partial t} \right) I(z, t) = G(z, t)I(z, t) \quad (5.304)$$

Cette expression est très classique de l'amplification laser. On peut retrouver la même équation avec cette fois les termes $I(z, \nu)$ et $G(z, \nu)$ comme elle est explicitée dans l'article d'Alain Sureau [94]. On notera que l'émission spontanée, représentée par le terme d'émissivité J , n'est pas prise en compte dans nos équations.

4.5.4 Emission spontanée

L'importance de l'émission spontanée dans le processus d'amplification laser X-UV par injection HHG doit être discutée. Si le niveau d'émission des dipôles après passage du pic HHG est beaucoup plus important que l'émission spontanée, alors cette dernière peut être négligée. Il est à noter que contrairement à l'émission stimulée, les photons émis par émission spontanée sont émis dans toutes les directions, ce qui réduit considérablement son pouvoir de nuisance sur le signal HHG cohérent à amplifier. La contribution de l'émissivité à l'amplification laser va donc non seulement dépendre de l'intensité de l'harmonique injectée, mais également de l'angle solide $\Omega = S/L^2$ formé par les atomes émetteurs (ponctuels) en entrée de tube capillaire ou de cellule et la section $S = \pi R^2$ de tube capillaire ou de cellule en sortie.

Pour l'évaluer, on peut comparer la variation d'inversion de population W induite par l'émission spontanée à celle induite par champ HHG résonant. On a :

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial W}{\partial t} \right)_{HHG} &= -\frac{3}{2\hbar\omega_{ul}} AD \\ \left(\frac{\partial W}{\partial t} \right)_{ém.sp.} &= \frac{4}{3} A_{ul} W \end{aligned} \quad (5.305)$$

A_{ul} est le coefficient d'Einstein. Le facteur $4/3$ est dû à la dégénérescence du niveau inférieur ($W = N_u - N_l/3$). Le rapport entre ces 2 grandeurs, en ajoutant la pondération par l'angle solide de l'émission spontanée, vaut :

$$\frac{\left(\frac{\partial W}{\partial t} \right)_{HHG}}{\frac{\Omega}{4\pi} \left(\frac{\partial W}{\partial t} \right)_{ém.sp.}} = 3,81.10^{-4} \times I_0(W.cm^{-2}) \quad (5.306)$$

Pour que l'amplification HHG prenne le pas sur l'émission spontanée, il faut que l'intensité I_0 du pic HHG soit largement supérieure à $2,62.10^3 W.cm^{-2}$. Dans notre cas, l'harmonique HHG injectée a une intensité de l'ordre de $I_0 \sim 10^6 - 10^8 W.cm^{-2}$, ce qui permet de négliger l'effet de l'émission spontanée. Les équations 5.298, 5.299, et 5.300 n'ont donc pas lieu d'être modifiées pour être introduites dans le code COFIXE_MB.

4.6 Conclusion

Ce chapitre nous a permis de retrouver les équations de Maxwell-Bloch pouvant être appliquées aux raies laser du Kr^{8+} et du Xe^{8+} comportant pour ces 2 ions 1 sous-niveau pour le niveau supérieur, et 3 sous-niveaux pour le niveau inférieur. Comme nous traiterons le cas d'une injection d'harmonique dont l'intensité d'impulsion est suffisamment grande, l'émission spontanée peut ne pas être prise en compte dans les équations.

Le code COFIXE_MB qui a été élaboré pendant cette thèse modélise l'amplification du laser X-UV à partir des équations de Maxwell-Bloch. En utilisant une équation de propagation à 1 seule dimension, on pourra obtenir des informations sur l'évolution du profil temporel de l'impulsion laser, de son profil spectral, ainsi que de son énergie d'impulsion, en fonction de différents paramètres. Des calculs 2D peuvent aussi être obtenus en couplant COFIXE_MB aux résultats du code OFI-Prop décrivant la répartition des ions lasants après OFI sur l'ensemble du gaz cible.

4.7 Annexe : Approximation adiabatique

L'approximation adiabatique peut être utilisée lorsque les temps T_1 et T_2 sont très courts par rapport à l'échelle de temps de variation de l'amplitude $A(z, t)$ du champ. Dans ce cas, le système atomique peut suivre les variations du champ en restant en phase avec celle-ci. Au niveau mathématique dans les équations de Maxwell-Bloch 5.299 et 5.300, ceci revient à négliger les termes de dérivées $\frac{\partial}{\partial t}$ par rapport à $1/T_1$ et à $1/T_2$:

$$\frac{\partial}{\partial t} D(z, t) + \frac{1}{T_2} D \simeq \frac{1}{T_2} D \quad (7.307)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} W(z, t) + \frac{W}{T_1} \simeq \frac{W}{T_1}$$

A partir des équations (5.299-5.300), on obtient ainsi les solutions adiabatiques D_A et W_A :

$$D_A = T_2 \frac{Z_{F_0} \omega_{ul}}{2\hbar} \left| \vec{M} \right|^2 A W_A \quad (7.308)$$

$$W_A = W_0 - \frac{3T_1}{2\hbar\omega_{ul}} A D_A \quad (7.309)$$

La combinaison de ces deux équations conduit à :

$$D_A = \frac{\frac{T_2 Z_{F_0} \omega_{ul}}{2\hbar} \left| \vec{M} \right|^2 A W_0}{1 + \frac{2T_1 T_2 \left| \vec{M} \right|^2}{\hbar^2} I} \quad (7.310)$$

Finalement, en remplaçant D_A dans l'équation du champ électrique 5.301, et en utilisant $|A|^2 = I$, on obtient :

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c_0} \frac{\partial}{\partial t} \right) I(z, t) = \frac{\frac{(\hbar\omega_{ul})T_2}{\varepsilon_0 c \hbar} \left| \vec{M} \right|^2 W_0}{1 + \frac{3T_1 T_2 \left| \vec{M} \right|^2}{4\varepsilon_0 c \hbar^2} I} I(z, t) = G I(z, t) \quad (7.311)$$

Cette équation met en évidence un gain G (unité : cm^{-1}) du milieu propagé. Il s'agit de celui s'appliquant à un rayonnement se trouvant à la fréquence résonante ω_{ul} . Ce gain peut être écrit de la manière suivante :

$$G = \frac{G_0}{1 + \frac{I}{I_s}} \quad (7.312)$$

Dans cette expression, I est l'intensité du signal, et I_s l'intensité de saturation. G_0 correspond alors au gain à faible signal ou faible saturation ($I \ll I_s$). A partir des équations précédentes où l'approximation adiabatique est appliquée, on en déduit les expressions de I_s et de G_0 :

$$I_s = \frac{4\varepsilon_0 c \hbar^2}{3T_1 T_2 |\vec{M}|^2} \quad (7.313)$$

$$G_0 = \frac{T_2 |\vec{M}|^2 \hbar \omega_{ul}}{\varepsilon_0 c \hbar^2} W_0 = \frac{4W_0}{3I_s T_1} (\hbar \omega_{ul}) \quad (7.314)$$

A titre d'exemple, dans le cas d'un plasma de KrIX et à une pression $P = 20\text{mbar}$, le code de physique atomique nous donne : $f_{ul} = 0,56$, $T_1 = 2,42\text{ps}$, $T_2 = 3,90\text{ps}$, $\hbar \omega_{ul} = 6,68.10^{-18}\text{J}$, ce qui conduit à :

$$\begin{aligned} I_s &= 1,61.10^7 \text{W.cm}^{-2} \\ G_0 &= 171\text{cm}^{-1} \text{ (avec } W_0 = 2.10^{15}\text{cm}^{-3}\text{)}. \end{aligned} \quad (7.315)$$

On retrouve ici la très grande valeur du gain à faible signal qui conduit très rapidement à une saturation pour des longueurs de cible de quelques mm. Cette grande valeur de gain est en particulier due à une valeur très faible de la largeur du gain, c'est-à-dire à une grande valeur du temps de décohérence T_2 . Il est probable que le code de physique atomique surestime ce temps, car il ne prend pas en compte l'ensemble des processus collisionnels. C'est pourquoi dans les applications, nous appliquerons généralement un facteur correctif à T_2 de l'ordre de 2. On peut remarquer également que les harmoniques injectées ont, à l'entrée du plasma, une intensité proche de l'intensité de saturation. Nous verrons cependant que l'élargissement temporel de l'impulsion par le gain va produire une amplification rapide de l'énergie du signal X-UV, la saturation n'étant obtenue qu'au bout de quelques millimètres, de façon analogue à l'amplification ASE.

Chapitre 5

Propagation du laser infrarouge dans le gaz cible (OFI-Prop)

La propagation du laser infrarouge dans le gaz cible provoque l'ionisation de ce dernier jusqu'à un certain stade et le chauffage des électrons libérés. L'interaction entre ce laser et les atomes du gaz a été traitée dans le chapitre I, et nous avons vu que l'état initial des ions et électrons du plasma créé dépendait, avec une certaine approximation, exclusivement de l'intensité d'impulsion de ce laser et de sa polarisation. En admettant que la polarisation demeure la même au cours de la propagation, cela veut dire qu'il faut seulement acquérir les données sur l'intensité maximale par laquelle chaque point du plasma a été traversé pour connaître l'état initial de l'intégralité du plasma. Dans ce chapitre, nous allons exposer les éléments de théorie introduits dans le code OFI-Prop qui permettent de traiter la propagation du laser de pompe dans un gaz cible et avec lesquels nous produisons des cartes d'intensité et d'ionisation. Nous montrerons ensuite les résultats de ce code dans les cas d'une propagation dans une cellule et d'une propagation dans un tube capillaire.

5.1 Description du modèle physique

Nous décrivons dans cette section le modèle physique qui sous tend le code numérique OFI-Prop. Dans le traitement de la propagation du laser infrarouge (IR) plusieurs approximations sont faites. Dans un premier temps, nous passerons ces approximations en revue. Puis, nous présenterons l'équation de propagation qui tient compte de ces approximations et qui est introduite dans le code. Enfin, nous appliquerons cette équation aux cas d'une propagation dans une cellule et dans un tube capillaire, qui nécessite pour tous deux de définir les conditions aux bords.

5.1.1 Approximations

Nous avons vu dans les chapitres I et III que la durée de l'impulsion infrarouge τ_{IR} , qui est de quelques dizaines de fs, est beaucoup plus courte que les temps moyens d'excitation et d'ionisation du plasma (de l'ordre de 1 à 10ps). On peut donc traiter la propagation du laser IR en négligeant les collisions et en ne considérant que l'OFI. La majeure partie du laser

interagit avec un plasma ionisé dans lequel la polarisation des électrons liés des ions joue un rôle négligeable. Vis-à-vis de la propagation de l'IR, le plasma sera donc considéré comme un ensemble de charges ponctuelles. L'indice de réfraction du milieu ne dépendant pas de la direction de propagation, le plasma est isotrope. La polarisation du faisceau restera donc inchangée au cours de la propagation.

Au cours de sa propagation, le laser ionise le gaz et donc perd de l'énergie. Dans le code OFI-Prop, cette perte d'énergie est négligée. Il est important de connaître les limites d'une telle approximation. Pour cela, considérons l'exemple d'un cylindre de plasma de rayon $R = 50\mu m$, contenant du krypton à une densité de $N_{at} = 6,18.10^{17}cm^{-3}$, ce qui correspond à une pression initiale de $25mbar$. L'action du laser arrache 8 électrons au Krypton et les porte à une énergie moyenne de $350eV$, soit une énergie totale dépensée de $2,9keV/atome$. Ceci conduit à une énergie perdue par le laser de $0,02J/cm$. Les cellules à gaz faisant moins de 1 cm, l'énergie perdue par ionisation est bien négligeable par rapport à l'énergie du laser de pompe (autour du joule). Elle peut devenir importante dans le cas d'un guidage par capillaire sur plusieurs centimètres à haute pression. Expérimentalement un guidage efficace par capillaire sur plusieurs centimètres, n'a été obtenu que pour des pressions faibles (en dessous de 15 mbar) pour lesquelles la perte de l'énergie par ionisation peut également être négligée.

Un dernier point concerne l'approximation paraxiale. Telle qu'elle est montrée dans l'Annexe I, l'approximation paraxiale est valable dans le vide si le rayon de la tache focale est beaucoup plus grand que la longueur d'onde du laser ($w_0/\lambda \gg 1$). Dans les conditions expérimentales que nous avons étudiées, w_0 est de l'ordre de $25\mu m$ et $\lambda = 0.8\mu m$, soit un rapport de 30, ce qui valide l'approximation des petits angles. En présence d'un plasma, le gradient de densité transverse augmente la divergence du faisceau. La densité critique à $0,8\mu m$ vaut $N_c = 1,6.10^{21}cm^{-3}$, la densité électronique dans les cellules de gaz est toujours inférieure à $N_c/100$. La dispersion n'augmente donc la divergence du faisceau que faiblement (suffisamment cependant pour réduire la longueur du plasma à haute pression). On peut donc considérer que l'approximation paraxiale reste valable dans les conditions expérimentales que nous avons étudiées.

5.1.2 Equation de propagation

Le code ofi-prop est un code 2D dans une géométrie à symétrie axiale autour de l'axe z de propagation du faisceau. Pour des simplifications d'écriture, nous utilisons ici une amplitude scalaire normée de façon à ce que son module au carré soit égal à l'intensité du champ électromagnétique. Le champ électrique est mis sous la forme :

$$E = A(\rho, z, t) \exp [i(k_0 z - \omega t)], \quad (1.316)$$

avec $k_0 = 2\pi/\lambda = \omega/c$. L'équation de propagation est la suivante :

$$\Delta E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E = \frac{\omega_p^2}{c^2} E \quad (1.317)$$

En y introduisant l'expression 1.316 du champ électrique, elle devient :

$$\frac{\partial A}{\partial t} = -c \frac{\partial A}{\partial z} + i \frac{c}{2k_0} \left[\frac{\partial^2}{\partial z^2} A + \Delta_{\perp} A - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} A \right] - i \frac{k_0 c}{2} \frac{N_e}{N_c} A. \quad (1.318)$$

L'impulsion laser occupe, suivant l'axe z , un espace beaucoup plus petit (de l'ordre de la dizaine de μm) que la longueur de la cible (cm). Pour limiter les calculs inutiles, l'impulsion est projetée sur une grille qui se propage à la vitesse de groupe du laser. Dans notre cas, la vitesse de groupe est très proche de c . Nous prenons donc une grille se propageant à la vitesse c que nous appellerons grille laser (la grille liée au plasma étant nommée grille plasma) et faisons le changement de variable : $A(\rho, z, t) = A^L(\rho, z, t')$, avec $t' = t - z/c$. Nous avons donc :

$$\frac{\partial A}{\partial t} = \frac{\partial A^L}{\partial t'} \frac{\partial t'}{\partial t} = \frac{\partial A^L}{\partial t'} \quad (1.319a)$$

$$\frac{\partial A}{\partial z} = \frac{\partial A^L}{\partial z} + \frac{\partial A^L}{\partial t'} \frac{\partial t'}{\partial z} \quad (1.319b)$$

$$\frac{\partial A}{\partial z} = \frac{\partial A^L}{\partial z} - \frac{1}{c} \frac{\partial A^L}{\partial t'} \quad (1.319c)$$

$$\frac{\partial^2 A}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} A = \frac{\partial^2 A^L}{\partial z^2} - \frac{2}{c} \frac{\partial^2 A^L}{\partial t' \partial z} \quad (1.319d)$$

$$\Delta_{\perp} A = \Delta_{\perp} A^L \quad (1.319e)$$

L'équation 1.318 devient :

$$\frac{\partial A^L}{\partial z} = \frac{i}{2k_0} \left[\frac{\partial^2 A^L}{\partial z^2} - \frac{2}{c} \frac{\partial^2 A^L}{\partial t' \partial z} \right] + \frac{i}{2k_0} \Delta_{\perp} A^L - i \frac{k_0 c}{2} \frac{N_e}{N_{cr}} A^L \quad (1.320)$$

Les deux membres dans la parenthèse constituent la correction à l'approximation paraxiale, mais ils n'ont pas la même importance. $\partial A^L / \partial z$ est lié à la variation de l'amplitude sur un point de la grille laser lorsque celle-ci se déplace. La longueur caractéristique de variation est donc la longueur de Rayleigh z_R . De son côté $\partial A^L / \partial ct'$ est lié à la variation de l'amplitude le long de la grille laser, sa longueur caractéristique est donc $c\tau_{IR}$. Pour $w_0 = 25\mu m$, $z_R = 2,5mm$ est à comparer aux quelques dizaines de microns pour $c\tau_{IR}$. On voit donc que le terme $\frac{\partial^2 A^L}{\partial z^2}$ est de plus d'un ordre de grandeur plus petit que le terme $\frac{2}{c} \frac{\partial^2 A^L}{\partial t' \partial z}$. Il peut donc être négligé.

Le terme $\frac{2}{c} \frac{\partial^2 A^L}{\partial t' \partial z}$ reste petit puisque nous sommes dans l'approximation paraxiale, mais il peut être utile de le prendre en compte car il est responsable de la dispersion longitudinale de l'impulsion. Ce terme induit un couplage entre t' et z qui complique fortement le schéma numérique de résolution de l'équation 1.320. Dans Ofi-Prop on utilise le fait que $\frac{2}{c} \frac{\partial^2 A^L}{\partial t' \partial z}$ est un terme correctif pour simplifier le schéma numérique.

5.1.3 Conditions aux bords

Pour résoudre l'équation 1.320 dans l'espace à deux dimensions (ρ, z) il nous faut imposer deux conditions aux bords, l'une longitudinale suivant z et l'autre transversale suivant r .

5.1.3.1 Conditions aux bords longitudinales

La cible est de taille finie, de longueur $L_C + 2\delta_C$, L_C étant la longueur de la cellule et δ_C la longueur de la fuite de gaz. C'est-à-dire, pour une distance à la cellule supérieure à δ_C , nous supposons que la densité de gaz devient suffisamment faible pour pouvoir négliger son influence sur la propagation du laser. Le laser se propage dans la direction des z croissants. Le plan d'entrée de la cellule est fixé à $z = 0$. Le gaz occupe donc l'espace des z $[-\delta_C, L_C + \delta_C]$. Pour $z < -\delta_C$, le laser se propage dans le vide, l'amplitude du champ est alors fixée par les conditions expérimentales de focalisation. En pratique, le champ est projeté sur un ensemble de mode Gaussiens (voir Annexe I) définis à partir d'une ou plusieurs images de l'intensité du laser autour du plan focal. Assez souvent il est nécessaire d'introduire deux gaussiennes, l'une représentant le pic central et l'autre un piédestal étendu. Généralement, on choisit deux gaussiennes contenant la même quantité d'énergie.

Au temps $t = 0$, du début du calcul, la grille laser est placée en dehors de la cible à $z < -\delta_C$. L'amplitude du champ sur chaque point de la grille laser est calculée à partir de la projection sur les gaussiennes. L'intégration de l'équation 1.320 peut alors commencer.

5.1.3.2 Conditions aux bords transversales, cas d'une cellule

Dans le cas d'une cellule à gaz, il n'y a pas a priori de condition aux bords physique, il est néanmoins nécessaire d'avoir un traitement particulier pour limiter l'espace mémoire et le temps de calcul. Si R est le rayon de la boîte de calcul, cela signifie que le champ E.M. est nul au delà, ce qui correspond à un conducteur parfait. Ce champ va donc être réfléchi par le conducteur, donnant lieu à des interférences avec le champ incident et à des surintensités, particulièrement fortes près de l'axe. Sans traitement particulier, il nous faut choisir une valeur de R suffisamment grande pour que le champ incident en R soit négligeable. Prenons par exemple un waist de $20\mu m$ et une longueur égale à dix fois z_R : le rayon de faisceau augmente donc d'un facteur 32 sur la longueur de propagation (en fait beaucoup plus à haute densité). En prenant un champ nul à une distance de deux fois le rayon du faisceau, ceci donne un rayon de la boîte de $20 \times 64 = 1280\mu m$. La taille de la maille étant de l'ordre du micron ceci impose une taille de grille d'au moins 1280 noeuds, taille qui doit être augmentée pour prendre en compte la réfraction due au plasma à haute pression. Le plasma amplificateur étant limité à une centaine de microns de rayon on voit que l'on doit avoir une taille de boîte numérique plus de dix fois plus grande que la taille du plasma, ce qui n'est pas acceptable en terme de performance.

Ce problème de réflexion aux bords de la boîte numérique est un problème que l'on rencontre classiquement lorsque qu'on traite la propagation d'onde E.M. Dans le cas des codes E.M. de type Particule en Cellule (PIC pour Particle In Cell) de nombreux travaux ont été publiés sur ce sujet. En particulier, il a été récemment proposé ([99], [100]) des schémas permettant d'amortir l'onde incidente (d'angle d'incidence variable) sur un très faible nombre de mailles (deux par exemple). De tels schémas n'existent pas lorsque, comme dans notre cas, on ne considère que l'équation de l'enveloppe. Dans le code OFI-Prop, nous avons rajouté une couche absorbante d'épaisseur $\Delta = 100\mu m$. Le taux d'amortissement est une fonction croissante de r , partant de zéro à $r = R$, pour devenir maximale à $r = R + \Delta$.

La valeur du taux d'amortissement a été trouvée de façon empirique en minimisant les taux de réflexion dans les domaines de pression et d'intensité pertinents pour le laser OFI.

5.1.3.3 Conditions aux bords transversales, cas d'un capillaire

Dans le cas d'un capillaire de rayon R , ce rayon définit également la taille transverse de la boîte numérique. Pour définir les conditions aux bords, nous nous sommes appuyés sur les travaux de N. Andreev et ses collaborateurs [5] qui conduisent à la formule suivante :

$$\left[\frac{\partial A^L(\rho, z, t')}{\partial r} \right]_{r=R} = ik_{w\perp} \left(1 + \frac{i}{k_0 c} \frac{\partial}{\partial t'} \right) A^L(\rho, z, t') \quad (1.321)$$

$$k_{w\perp} = \frac{2\sqrt{\epsilon_w - 1}}{\epsilon_w + 1} \quad (1.322)$$

où ϵ_w est la constante diélectrique du capillaire qui dans notre cas est du SiO_2 avec $\epsilon_w = 2,25$. Cette dernière valeur n'est valable qu'en dessous du seuil d'ionisation, au delà duquel le SiO_2 est ionisé.

5.2 Résultats du code OFI-PROP

Le rôle du faisceau infrarouge est d'ioniser le gaz cible et de créer les ions $8+$. On présente ici des résultats dans le cas du Krypton. On a vu dans le chapitre I consacré à l'interaction du laser IR avec le gaz cible, que pour créer les ions Kr^{8+} constituant le milieu amplificateur, l'intensité maximale I_0 de l'impulsion laser doit être comprise entre $I_1 = 3,5 \cdot 10^{16} W/cm^2$ et $I_2 = 2 \cdot 10^{17} W/cm^2$. L'objectif pour le laser IR est de créer le volume de milieu amplificateur le plus important possible. Autrement dit, il s'agit d'atteindre le plus souvent cet intervalle d'intensités $[I_1, I_2]$ au cours de la propagation dans le gaz.

Le faisceau infrarouge utilisé est de type gaussien (profil transverse et profil temporel). Il est donc caractérisé par un col, c'est-à-dire un minimum de largeur, dont le rayon est appelé *waist*. Dans ce cas d'un faisceau gaussien, on trouve que la relation entre l'énergie d'impulsion E_{tot} , l'intensité maximale I_0 , le waist w_0 et la durée d'impulsion τ_{IR} est :

$$E_{tot} = 1,6720 \times I_0 w_0^2 \tau_{IR} \quad (2.323)$$

Le laser infrarouge généré par la chaîne laser Ti-Sa a une énergie d'impulsion de l'ordre de $1J$, une durée $\tau_{IR} = 35fs$ et une longueur d'onde $\lambda = 810nm$. Mais il n'est encore adapté pour créer un milieu amplificateur. En effet, il possède un waist de 1 à $2cm$, bien plus important que le rayon d'une cellule ou d'un tube capillaire, pour pouvoir être utilisé. D'autre part, son intensité maximale d'impulsion est bien inférieure à l'intervalle d'intensités requis. Avant d'être injecté dans le gaz cible, il faut donc le focaliser à l'entrée de la cellule ou du tube de gaz cible à l'aide d'une lentille convergente.

Focaliser le faisceau va créer un col plus petit à l'arrière de la lentille, dont le rayon est déterminé, entre autres, par la distance focale de la lentille. Ce col sera positionné à l'entrée ou dans le gaz cible selon le besoin, pour profiter de la concentration de l'énergie. En effet,

le fait de le focaliser va avoir pour effet de concentrer l'énergie d'impulsion dans un volume plus petit (waist plus petit). Comme cette énergie se conserve au cours de la focalisation (le laser se propage dans le vide créé dans l'enceinte), l'intensité du laser au niveau du waist sera beaucoup plus élevée qu'avant focalisation. Dans le cas où l'énergie d'impulsion se conserve, on a :

$$w_0^2 I_0 = cste \quad (2.324)$$

Le fait que I_0 dépende de w_0 est intéressant. Il suffit d'agir sur la focalisation pour ajuster l'intensité I_0 au niveau du col. On suppose que le col du faisceau se trouve à $z = 0$. Le rayon du faisceau évolue en fonction de z de la manière suivante :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad (2.325)$$

z_R constitue la longueur de Rayleigh, la distance après le col au bout de laquelle l'intensité du faisceau est divisée par 2. Elle est fonction de la longueur d'onde λ de la radiation laser et du waist w_0 lui-même :

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (2.326)$$

Ainsi, pour des conditions de focalisation données, on peut retrouver l'intensité maximale I_0 en fonction de z . En fonction de r , t , et z donc, et en supposant le sommet de l'impulsion à $z = 0$ à $t = 0$ ainsi qu'une vitesse de propagation $v = c$, on trouve l'expression suivante de l'intensité IR :

$$I(z, r, t) = I_0 \frac{w_0^2}{w^2(z)} \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right) \exp\left(-4 \ln 2 \frac{(t - z/c)^2}{\tau_{IR}^2}\right) \quad (2.327)$$

Voici ci-dessous les intensités I_0 que l'on retrouve pour différents waists w_0 , calculées à partir des caractéristiques initiales du faisceau $E_{tot} = 0,6J$ et $\tau = 35fs$:

$w_0(\mu m)$	$I_0(W.cm^{-2})$
30	$1,23.10^{18}$
40	$6,94.10^{17}$
50	$4,44.10^{17}$
60	$3,09.10^{17}$
75	$1,97.10^{17}$
80	$1,74.10^{17}$
90	$1,37.10^{17}$
100	$1,11.10^{17}$
125	$7,11.10^{16}$
150	$4,94.10^{16}$
200	$2,78.10^{16}$
250	$1,78.10^{16}$

(2.328)

5.2.1 Propagation dans une cellule

Dans le cas d'une cellule, il n'y a pas de réflexions sur les bords, la cellule étant très large. Si le laser est suffisamment focalisé à l'entrée, sa propagation se fait dans le gaz uniquement et non à travers les parois de la cellule. Outre sur le waist du faisceau, on va pouvoir agir sur la position Δz de ce waist sur l'axe de propagation z , entre l'entrée et la sortie de la cellule.

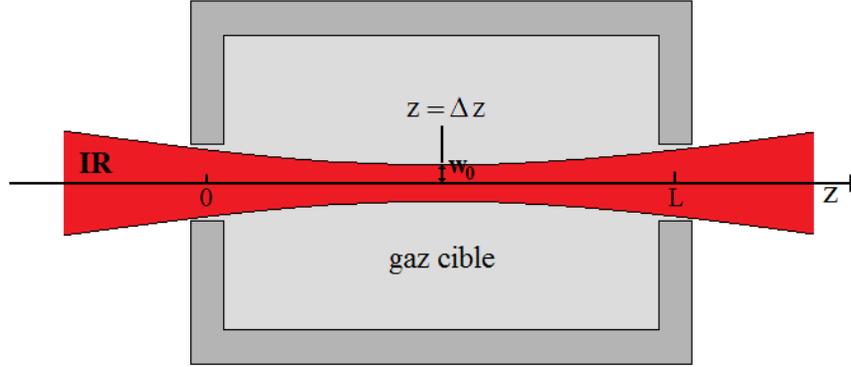


Schéma d'une cellule de gaz

5.2.1.1 Etude analytique

Optimisation du volume de milieu amplificateur

Le volume de milieu amplificateur créé est tout d'abord déterminé par sa section transverse. Le profil transverse du faisceau est gaussien, ce qui signifie que l'intensité s'y répartit comme suit :

$$I(r, z') = I_0 \frac{w_0^2}{w^2(z')} \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z')}\right) = I_0 \frac{1}{1 + \frac{z'^2}{z_R^2}} \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z')}\right) \quad (2.329)$$

On a supposé $z' = z - \Delta z$. En considérant une symétrie cylindrique, on suppose que cette intensité est indépendante de l'angle polaire θ , ce qui nous permet de trouver la surface S de la section de milieu amplificateur. Si I_0 est supérieur à la limite supérieure I_2 de l'intervalle d'intensités donnant du KrIX, on trouve qu'en reprenant 2.329, au niveau du col, cette surface est déterminée par la relation suivante :

$$\frac{I_1}{I_2} = \frac{3,5 \cdot 10^{16}}{2 \cdot 10^{17}} = 0,175 = \frac{I(r_1, z' = 0)}{I(r_2, z' = 0)} = \exp\left[-\frac{2(r_2^2 - r_1^2)}{w_0^2}\right] = \exp\left(\frac{2S}{\pi w_0^2}\right) \quad (2.330)$$

Soit :

$$S = \frac{\pi \ln 0,175}{2} w_0^2 \quad (2.331)$$

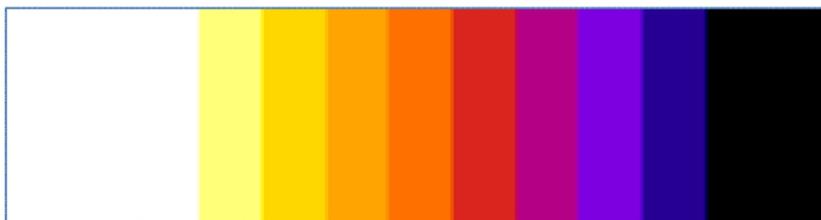
La section de milieu amplificateur au niveau du col augmente uniquement avec le carré du rayon du waist w_0^2 , et ce quelque soit $I_0 > I_2$. L'intérêt est donc de maximiser w_0 tout en maintenant $I_0(z')$ à des valeurs supérieures ou égales à $2.10^{17}W.cm^{-2}$.

Loin du col du faisceau, la section S de milieu amplificateur va dépendre du rayon $w(z')$. Plus le faisceau laser est divergent, plus vite l'intensité $I_0(z', r)$ va chuter sous le seuil I_1 . D'après l'expression 2.326 du z_R , plus le waist w_0 est petit, plus cette divergence est élevée. Donc, pour obtenir le milieu amplificateur le plus long possible, il faut une fois de plus maximiser le waist w_0 .

Les expériences du groupe de S.Sebban [89] sur cellule ont montré que la longueur de cellule pour laquelle l'amplification du laser X-UV est maximale est $L = 7,5mm$. Nous avons donc pris cette longueur de cellule pour les simulations de propagation du laser de pompe effectuée à l'aide du code OFI-Prop.

Le volume d'amplification sera donné par le volume de plasma où l'état d'ionisation est proche de 8. Nous donnons ci-dessous le code des couleurs qui sera utilisé dans les figures:

>10 10 9 8 7 6 5 4 3 2 1 <1



Influence de la pression du gaz

Les électrons libres du plasma créent de la dispersion transverse provoquant une perte en intensité de l'impulsion près de l'axe, de plus l'ionisation induit une perte d'énergie d'impulsion, et donc également de son intensité. Plus la pression du gaz cible est grande, plus ces phénomènes sont importants. L'intensité du laser aura donc tendance à chuter plus rapidement au cours de la propagation à pression plus élevée. Pour compenser cette perte d'intensité, si le col du faisceau se trouve à l'intérieur de la cellule (Δz important comparé à la longueur L de la cellule), on peut focaliser à un waist plus petit, mais cela a pour conséquence de diminuer le volume de milieu amplificateur, ou rapprocher le col de l'entrée de la cellule (diminuer le Δz).

5.2.2 Résultats OFI-Prop dans une cellule

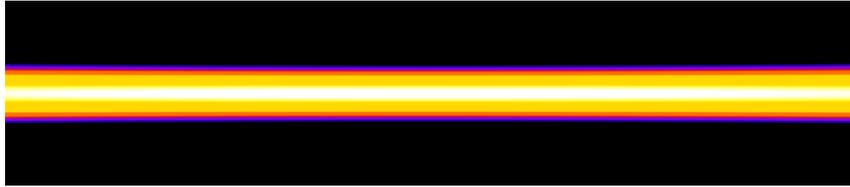
Considérons dans un premier temps une cellule de gaz d'une longueur de $7,5mm$. Le nombre de paramètres ajustables (énergie, focalisation et position du foyer pour ce qui concerne le faisceau, mais aussi pression et nature du gaz) est trop élevé pour présenter une liste exhaustive. Nous nous contentons de donner des exemples pour dégager les grandes tendances. Le principal critère sera l'étendue et la forme du milieu amplificateur, caractérisé

par le domaine où l'ionisation moyenne est proche de 8. Le Krypton et le Xénon donnent des résultats très semblables (modulo la valeur de l'intensité laser). Nous ne présenterons donc que les résultats relatifs au Krypton.

5.2.2.1 Influence du waist w_0 du faisceau

Comme premier test, nous prenons une cible de très basse densité, qui nous a permis de vérifier qu'OFI-Prop redonne bien le résultat connu pour une gaussienne dans le vide. À titre d'exemple nous montrons l'évolution de la cartographie 2D de l'ionisation du Krypton (le jaune-orangé correspond au Kr^{8+}) pour une énergie fixée à 0,96 J et un waist qui varie de 30 à 150 μm . Ceci donne une longueur de Rayleigh entre 3,5 mm et 8,8 cm.

$$w_0 = 50\mu\text{m} ; \Delta z = 3,75\text{mm} ; P = 0\text{mbar} :$$



$$w_0 = 100\mu\text{m} ; \Delta z = 3,75\text{mm} ; P = 0\text{mbar} :$$



$$w_0 = 150\mu\text{m} ; \Delta z = 3,75\text{mm} ; P = 0\text{mbar} :$$



Outre le fait que l'on retrouve bien l'intensité d'une gaussienne se propageant dans le vide, on peut faire plusieurs constatations à partir de ces résultats.

- Comme nous avons effectué les calculs pour une longueur de cellule de 7,5mm, nous n'observons pas la divergence du faisceau dans les cartes d'ionisation. Néanmoins,

l'énergie disponible nous permet d'atteindre les niveaux d'intensités nécessaires pour atteindre un grand volume d'amplification. Au moins à basse pression, des longueurs de plusieurs mm voire de plusieurs centimètres semblent accessibles.

- En prenant en compte le facteur géométrique πR_p^2 , R_p étant le rayon du plasma amplificateur, on observe que le volume d'amplification dépend fortement du waist et donc de la focalisation. Une trop forte focalisation produit une surionisation dans les régions proches de l'axe, alors que pour une valeur trop grande du waist, l'intensité devient trop faible sur les bords du plasma. Dans notre exemple la valeur optimum est $100 \mu\text{m}$, ce qui conduit à une très grande valeur de z_R .
- On remarque une limite très marquée de la zone d'amplification. Un profil radial montrerait un passage rapide de la charge 8 à 7, pratiquement sans zone intermédiaire (charge moyenne de 7,5 par exemple). Ceci traduit l'aspect très non-linéaire de l'ionisation par effet tunnel avec un seuil très marqué pour la charge 8+, dont la configuration est très stable. Nous avons vu dans les chapitres 2 et 3, que l'ionisation des états de charge inférieurs à 8 était trop lente pour participer à l'amplification d'un signal injecté. La zone de gain est donc confondue avec la zone d'état de charge initial=8. Les résultats montrent que cette zone de gain va avoir un gradient très fort sur les bords. Une bonne approximation pour les plasmas ci-dessus avec w_0 est de les représenter comme un cylindre de rayon R_p , avec un gain uniforme à l'intérieur de ce cylindre (modulo la prise en compte du décalage temporel induit par la propagation du faisceau IR) et un gain nul à l'extérieur de ce cylindre. Ceci justifie l'approche 1D

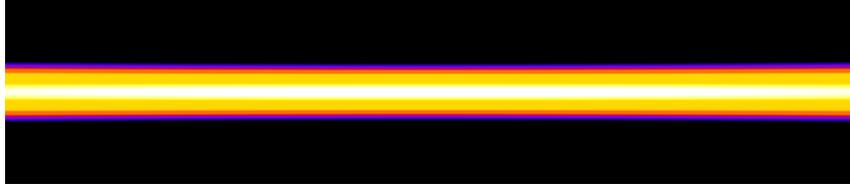
développé dans le prochain chapitre, au moins pour faire des études paramétriques.

Pour des valeurs de waist plus faible, la surintensité près du centre va conduire à un gain pratiquement nul dans ces régions, le cylindre doit être remplacé par un tube, toujours avec des gradients très forts sur ses bords.

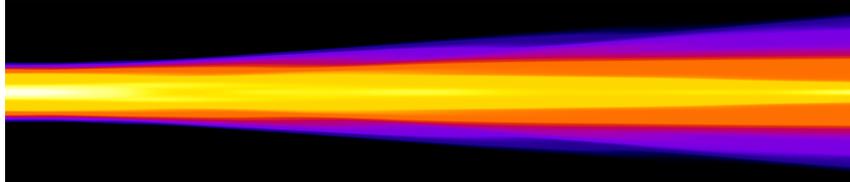
5.2.2.2 Influence de la pression

Le gain, et plus encore, l'intensité de saturation, augmentent avec la pression. On a donc intérêt, en ce qui concerne l'amplification, à augmenter la pression pour un volume d'amplification donné. D'autre part, nous avons vu que la cinétique du plasma est plus rapide lorsque la pression augmente. Les fortes pressions vont donc conduire à un meilleur couplage entre le signal injecté et le milieu amplificateur. La principale limitation sur la pression vient de la réduction du volume d'amplification lorsque la pression est trop forte. Un exemple sur l'influence de la pression est reporté sur les figures ci-après, pour un waist de $50 \mu\text{m}$, qui correspond à une longueur de Rayleigh de $9,8 \text{ mm}$.

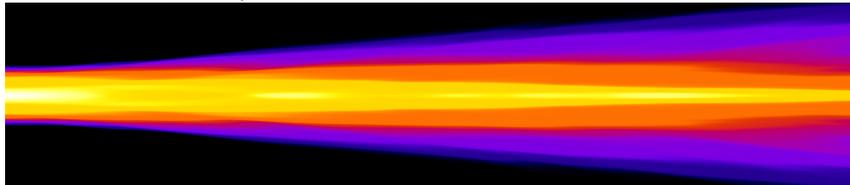
$w_0 = 50 \mu\text{m}$; $\Delta z = 3,75 \text{mm}$; $P = 0 \text{mbar}$:



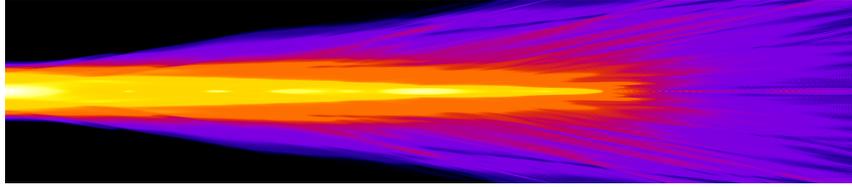
$w_0 = 50 \mu\text{m}$; $\Delta z = 3,75 \text{mm}$; $P = 10 \text{mbar}$:



$w_0 = 50 \mu\text{m}$; $\Delta z = 3,75 \text{mm}$; $P = 20 \text{mbar}$:



$$w_0 = 50\mu\text{m} ; \Delta z = 3,75\text{mm} ; P = 50\text{mbar} :$$



A la plus basse pression (5 mbar), le plasma joue un effet négligeable sur la propagation du laser et on retrouve les résultats précédents avec un domaine d'amplification qui s'étend sur plus de 1 centimètre. A partir de 10 mbar, l'effet de la réfraction par le gradient transverse de densité est clairement visible. L'intensité près de l'axe étant plus forte, la densité d'électrons libres décroît du centre vers les bords. L'indice du plasma augmente donc lorsqu'on passe du centre au bord, le plasma se comporte comme une lentille (faiblement) divergente. Le point de plus forte intensité (plan focal apparent) se rapproche de l'entrée de la cible et au-delà, la divergence du faisceau augmente sensiblement avec la pression du gaz, conduisant à une forte réduction de la longueur du domaine de gain. Ceci montre qu'on n'a pas intérêt à focaliser à l'entrée de la cible car cela augmenterait encore la divergence du faisceau. A l'inverse, si l'on focalise trop à l'intérieur de la cible, le faisceau ne va pas converger et l'intensité sera trop faible. Le centre de la cible semble être un bon compromis. Une comparaison directe avec les résultats expérimentaux est assez délicate à faire car dans l'expérience, il y a une fuite de gaz vers le vide de l'enceinte qui n'a pas été précisément calibrée, et qui conduit à une certaine défocalisation du faisceau.

Dans la limite des hautes pressions, le volume du plasma amplificateur est fortement réduit. Ainsi, on peut observer qu'à 50 mbar la longueur de ce domaine est trois fois plus faible qu'à 5 mbar. Il faut remarquer qu'à forte pression lorsque la longueur du plasma est plus faible que celle de la cible, le signal X-UV va être réduit par l'absorption sur le gaz faiblement ionisé ou neutre présent en bout de cellule. Cette absorption est clairement visible sur les résultats expérimentaux où le signal X-UV, aussi bien en régime ASE qu'en régime d'injection, chute exponentiellement au-delà d'une certaine longueur de cellule (contrairement au régime guidé comme nous le verrons plus loin).

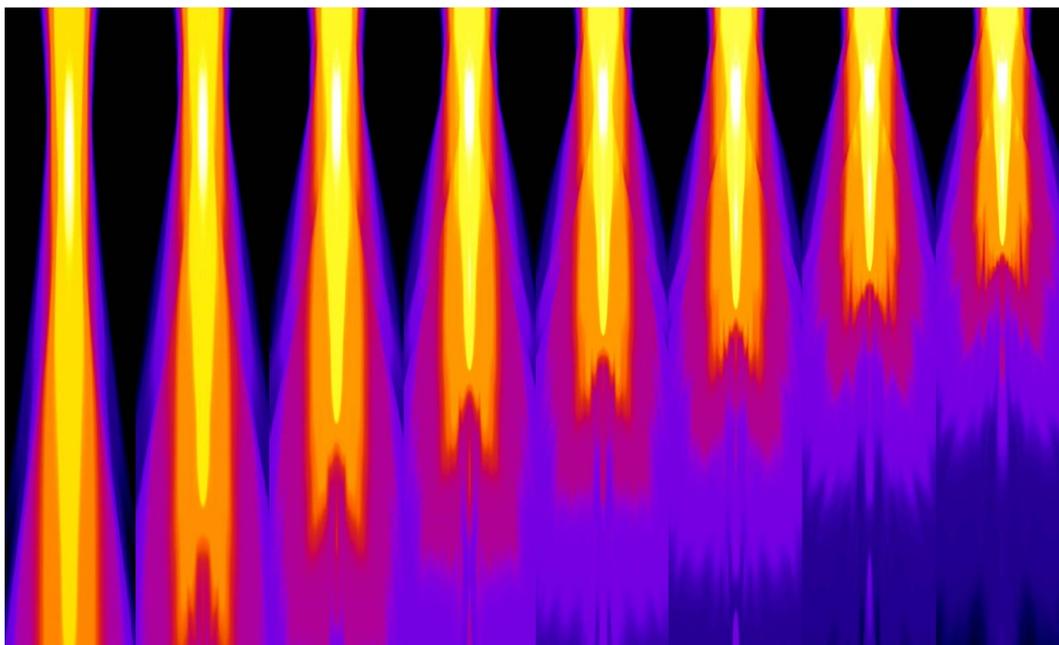
On peut également observer des zones de surintensité près de l'axe, qui conduisent à une diminution du gain autour de l'axe. Cet effet est renforcé par la symétrie cylindrique que nous avons supposée parfaite. En réalité, le faisceau incident n'a pas une symétrie parfaite et les surintensités près de l'axe sont probablement plus faibles dans les expériences. Nous verrons en calculant le facteur d'amplification, que cette diminution du gain près de l'axe de la cible, ne modifie que faiblement l'image en champ lointain. En effet, en terme d'énergie, la région près de l'axe ne représente qu'une faible proportion en volume du milieu amplificateur. Cependant, des résultats expérimentaux récents (en cours de publication) obtenus par l'équipe de S. Sebban au LOA, Palaiseau, semble montrer par la présence d'anneaux de diffraction la signature d'une surintensité près de l'axe.

La figure à 20 mbar est typique de ce que l'on obtient avec OFI-Prop en utilisant les paramètres expérimentaux qui conduisent au maximum d'amplification : une longueur de plasma amplificateur autour de 5-7 mm, un rayon de plasma amplificateur de quelques

dizaines de μm , et une ou plusieurs zones de surintensité. En conclusion, la longueur de propagation va être le facteur limitant à haute pression pour l'amplification. Cette longueur chutant fortement à partir de 50 mbar on s'attend à ce que la pression optimale soit inférieure à cette valeur dans une cellule.

La variation avec la pression est encore plus sensible lorsqu'on diminue la valeur du waist. Sur la figure 2 suivante, nous avons reporté la carte d'ionisation pour une intensité max dans le vide de 10^{18} W/cm^2 et un waist de $20 \mu\text{m}$ (valeurs correspondantes à ce qui peut être obtenu sur l'installation salle jaune du LOA). Les figures correspondent à une densité uniforme sur $7,5 \text{ mm} + 1\text{mm}$ de chaque coté pour la rampe en pression, soit une longueur totale de $9,5 \text{ mm}$. On peut voir une très forte réduction de la longueur du plasma ayant l'état de charge $8+$ de pratiquement un facteur 3 lorsqu'on passe de 5 mbar à 50 mbar. Aux pressions de 20-25 mbar qui expérimentalement produisent une amplification optimale du laser X-UV, la longueur de plasma amplificateur est entre $4,5$ et $5,5 \text{ mm}$, ce qui est proche mais inférieur à la longueur maximum d'amplification expérimentalement observée, qui est plutôt autour de 6 mm .

On observe pour les plus hautes pressions que le taux d'ionisation chute de plusieurs unités sur les derniers mm de la cellule pour atteindre des niveaux d'ionisation de 1 ou 2. Ces ions faiblement chargés ont une énergie d'ionisation inférieur à l'énergie des photons X-UV et peuvent donc les absorber. Cette absorption se rajoute à la diminution de la longueur d'amplification pour faire chuter le facteur d'amplification à haute pression. La longueur optimale de la cellule diminue donc lorsque la pression augmente.



Cartographie 2D de l'ionisation du plasma avec un profil radial de l'impulsion IR comportant 1 gaussienne : $w_0 = 20\mu\text{m}$; $\Delta z = 3,5\text{mm}$; $P = 5, 10, 15, 20, 25, 30, 40$ et 50 mbar

5.2.2.3 Influence du profil radial du laser de pompe

Profil donné par une somme de gaussiennes

Nous venons de voir qu'avec une valeur du waist proche de la valeur expérimentale, la longueur de plasma obtenue semble plus faible que celle observée expérimentalement. Une des raisons possibles est que l'énergie du laser de pompe, extérieur au pic central, va produire une certaine ionisation en périphérie du plasma central, réduisant ainsi l'effet de la réfraction et pouvant conduire à une augmentation de la longueur plasma. Une énergie de l'ordre de 50% de celle du laser de pompe peut se retrouver en dehors du pic central. A titre d'exemple, nous montrons dans la figure suivante 5.44 les résultats d'un calcul réalisé en prenant deux gaussiennes, l'une ayant un waist de $20\mu\text{m}$ et l'autre de $100\mu\text{m}$; l'intensité au centre est la même que dans le calcul précédent. Chacune des deux gaussiennes apporte la même quantité d'énergie.

On observe bien qu'en rajoutant la deuxième gaussienne, la longueur du plasma amplificateur est significativement augmenté, pour atteindre des valeurs qui sont en bon accord avec les résultats expérimentaux. Ces résultats montrent qu'il est possible d'optimiser le volume d'amplification en ajustant le profil radial, par exemple à l'aide d'optiques adaptatives. Il faut cependant remarquer une chose : nous avons supposé qu'il n'y avait aucune fluctuation de phase dans le plan focal. Il faudrait également optimiser l'amplitude du champ et non pas uniquement son intensité.

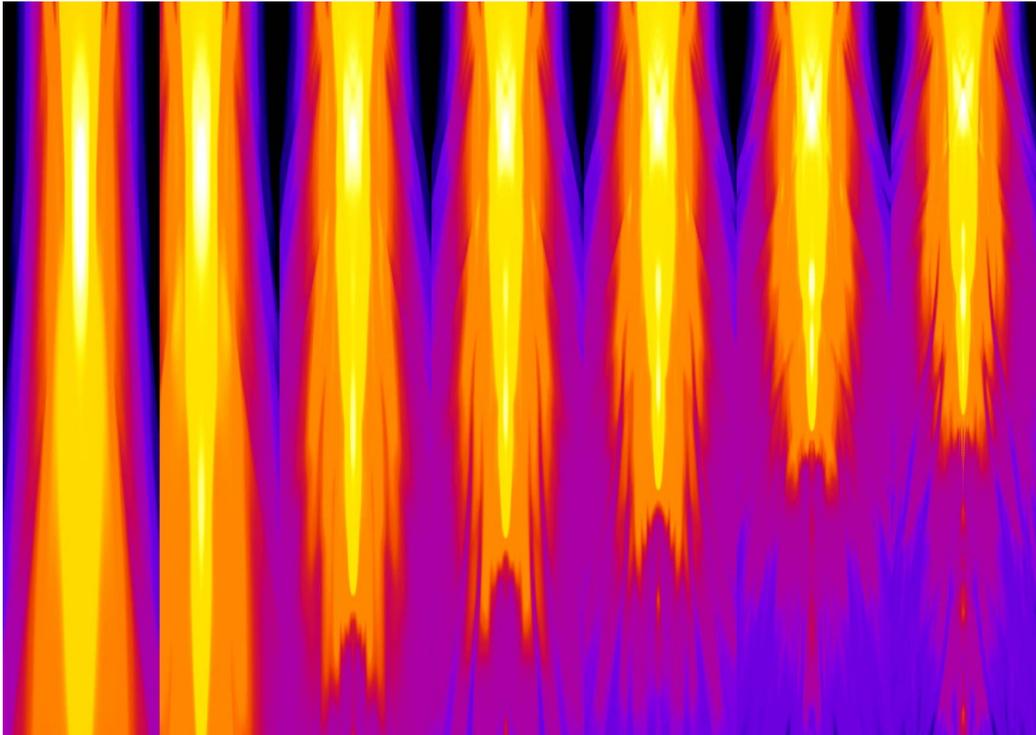


Figure 5.44: Cartographie 2D de l'ionisation du plasma lorsque le profil radial du faisceau de pompe comporte 2 gaussiennes : $w_0 = 20$ et $100 \mu m$; $\Delta z = 3,5 mm$; $P = 5, 10, 15, 20, 25, 30, 40$ et 50 mbar :

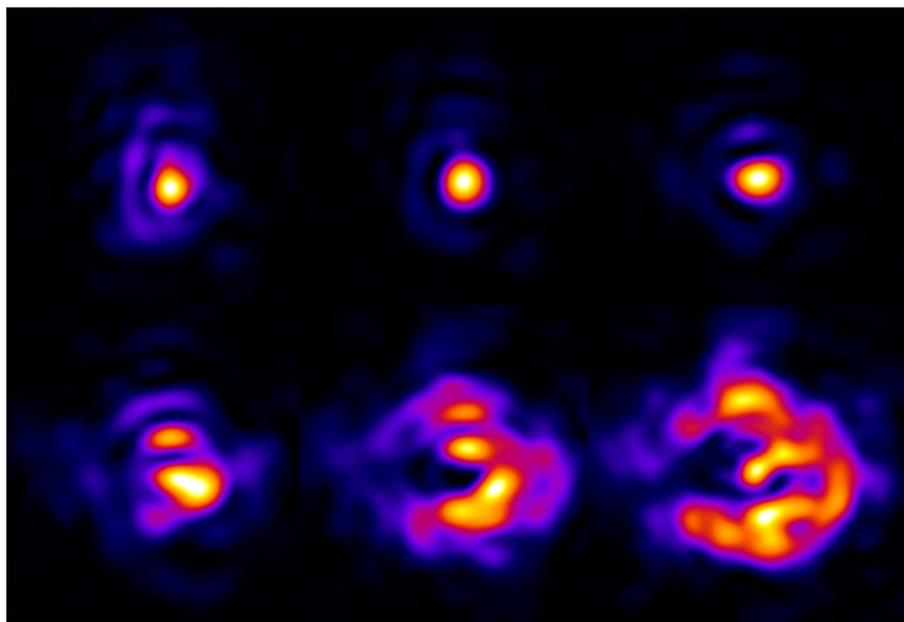


Figure 5.45: Carte 2D de l'intensité, pour les positions -2,-1,0,+1, +2 et +3 autour du plan focal (données expérimentales S. Sebban)

Profil donné par le mode zéro d'une décomposition en Laguerre-Gauss

Les techniques de miroir adaptatif couplé à un senseur de front d'onde permettent une certaine optimisation du front d'onde de l'IR. On cherche ici à optimiser le profil en intensité dans le plan focal. A partir de l'image de l'intensité dans le plan focal, on vérifie que l'intensité dans le pic central est bien optimisée, avec une diminution de l'énergie en dehors de ce pic. On pourrait donc en déduire que le faisceau "optimisé" peut être, avec une bonne approximation, représenté par une gaussienne. Les données du senseur de front d'onde permet une analyse plus fine en reconstruisant l'amplitude du champ de part et d'autre du plan focal. Des données expérimentales du groupe de S. Sebban sont reproduites sur la figure suivante. Les six images représentent une cartographie de l'intensité pour 6 positions de -2 à +3 mm, par pas de 1 mm (en partant du coin supérieur gauche, pour aller au coin inférieur droit).

A partir du pic central au point de meilleure focalisation, nous obtenons un waist de 19 μm , soit une longueur de Rayleigh de 1,4 mm. On observe sur la figure une forte déformation du profil d'intensité, par rapport au profil gaussien dès que l'on s'écarte de plus de 1 mm du plan focal, c'est-à-dire sur une distance plus faible que la longueur de plasma créé. Il est clair qu'une telle déformation va affecter le volume d'amplification. Ceci met en évidence une des difficultés pour interpréter les résultats expérimentaux, car les fluctuations de phase ont des variations importantes en fonction du temps (d'un jour à l'autre par exemple). A l'heure actuelle, il n'est pas encore possible d'avoir simultanément les informations sur le front d'onde du laser de pompe et sur l'amplification X-UV.

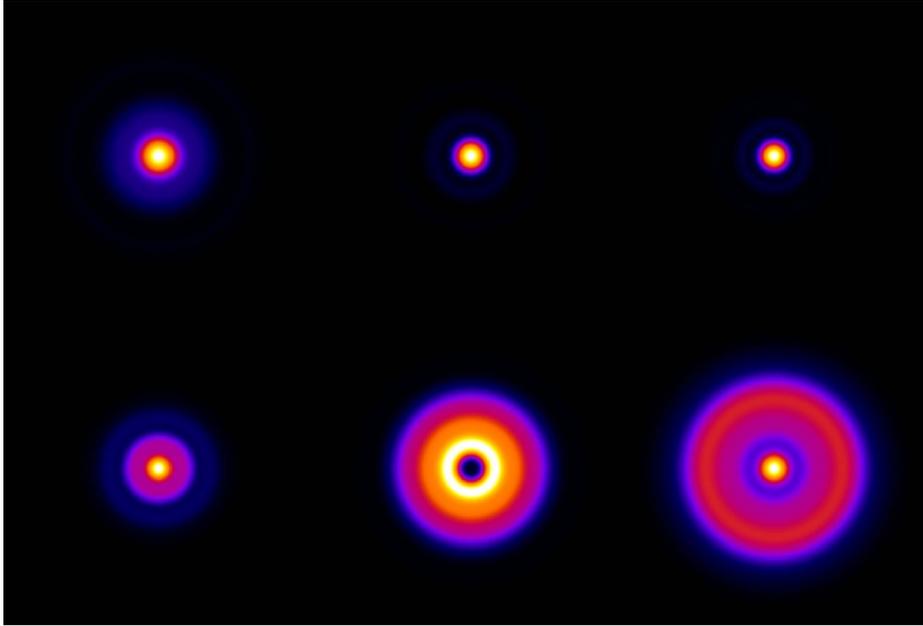


Figure 5.46: Carte 2D de l'intensité, pour les positions -2,-1,0,+1, +2 et +3 autour du plan focal, calculée en ne gardant que la partie symétrique de la décomposition en Laguerre-Gauss

Une version 3D du code OFI-Prop n'est pas pour l'instant disponible. Pour avoir une certaine estimation du volume de plasma créé avec le front d'onde expérimental, nous avons opéré de la façon suivante : à partir des données du senseur de front d'onde, nous avons projeté l'amplitude du champ sur la base des modes Laguerre-Gauss (voir Annexe). Puis nous n'avons retenu que les termes qui ont une symétrie cylindrique : les modes ayant le nombre azimutal nul. Le résultat obtenu pour la cartographie de l'intensité autour du plan focal est reporté sur la figure suivante :

On observe que le profil calculé évolue sur les mêmes longueurs caractéristiques que le profil expérimental. Par contre, bien sûr, la symétrie imposée modifie la forme.

A partir de la projection sur les modes Laguerre-Gauss symétriques, nous avons calculé le volume de plasma créé. Un exemple de résultat est reporté sur la figure suivante à 20 et 30 mbar pour une intensité maximale de 10^{18} W/cm².

En comparant ces derniers résultats avec ceux obtenus avec une gaussienne de 20 μ m, on observe une réduction assez importante du volume d'amplification.

En conclusion, nous venons de voir que tout étant égal par ailleurs, le profil radial a une forte influence sur le volume d'amplification et ce d'autant plus que la pression est élevée. En effet, le gradient en densité électronique est directement lié au gradient en intensité. La réfraction sur le gradient d'indice s'additionne à la diffraction pour faire rapidement diverger le faisceau à forte pression. Le moyen le plus simple pour réduire cette divergence est d'augmenter la taille du faisceau en utilisant une longue focale. Le facteur limitant est alors l'énergie disponible dans le faisceau. On peut noter que l'augmentation du volume d'amplification avec l'énergie du laser de pompe augmente avec la pression du gaz. Enfin

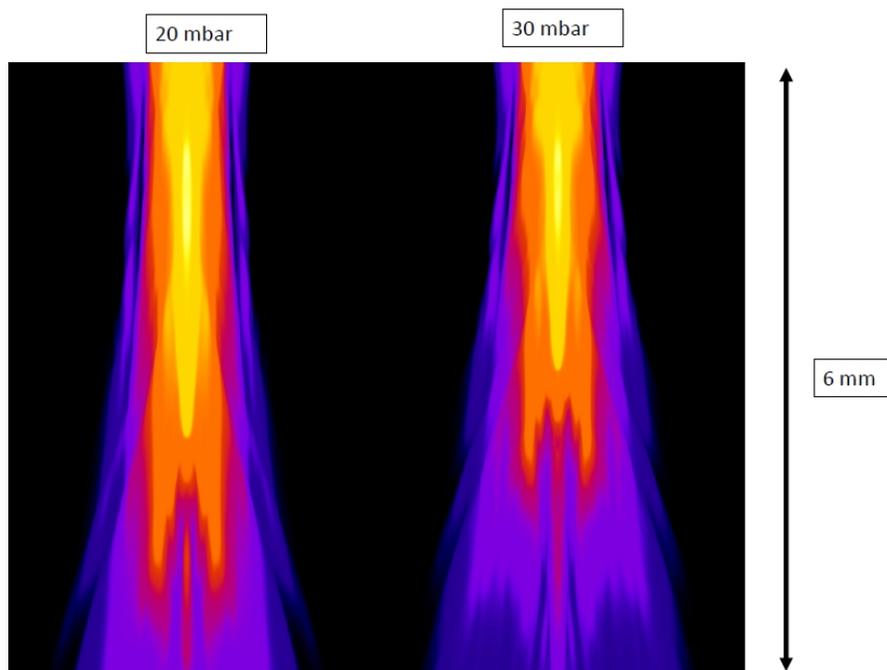


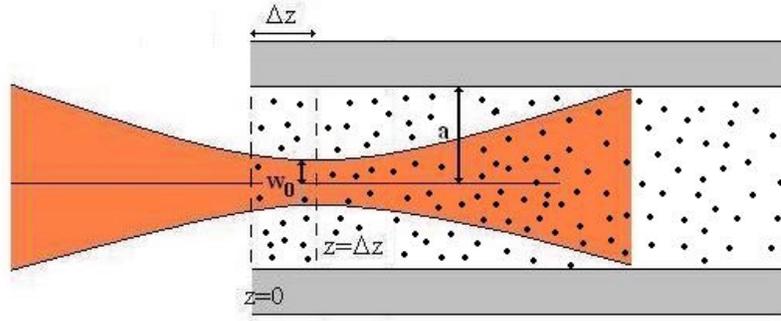
Figure 5.47: Carte d'ionisation obtenue en projetant l'IR sur des Laguerre-Gauss symétriques

le code Ofi-Prop permet de retrouver les bons ordres de grandeur des dimensions longitudinales et transverses du volume d'amplification mais une comparaison précise reste encore difficile. Une tendance générale semble être que le code sous-estime la longueur d'amplification d'environ 20%. Il n'est pas encore établi si cette différence vient des effets à 3 dimensions, d'une mauvaise estimation expérimentale de la densité à l'intérieur de la cellule, ou encore à des effets physiques non considérés comme la photoionisation.

5.3 Propagation dans un tube capillaire

L'idée initiale de l'utilisation d'un tube capillaire est que le guidage du faisceau par les parois du capillaire va réduire la dispersion du faisceau observée à hautes pressions, et permettre ainsi d'obtenir de grandes longueurs d'amplification à des pressions élevées permettant d'atteindre de très grandes valeurs d'amplification. Les résultats expérimentaux obtenus jusqu'à présent par l'équipe du LPGP et du LOA, n'ont pas permis d'atteindre ce régime. En effet, il a été observé une forte chute de la transmission du tube dès que la pression dépasse les 10 mbar. L'explication donnée est que la divergence du faisceau induit des flux de photons élevés sur les parois conduisant à la création d'un plasma fortement collisionnel qui va atténuer fortement le faisceau IR. Il est possible que ce problème trouve une solution en changeant la configuration ou le matériau utilisé. Il n'en demeure pas moins que l'utilisation du capillaire à basse pression (5-10 mbar) a conduit à un signal ASE supérieur à celui obtenue dans une cellule fonctionnant à sa pression optimale. L'injection d'un signal

IR



68.pdf

Figure 5.48: Schéma illustrant la focalisation du faisceau de pompe à l'entrée d'un tube capillaire et ses paramètres d'ajustement

X-UV dans un plasma créé à l'intérieur d'un capillaire garde ainsi tout son intérêt, et c'est pourquoi nous avons réalisé son étude.

Dans le cas d'un tube capillaire, il faut prendre en compte les réflexions sur les parois du verre. La divergence du faisceau déterminée par la longueur de Rayleigh n'est plus le phénomène régissant la décroissance de l'intensité $I_0(z)$ au cours de la propagation. La propagation du laser dans le tube est tout de même déterminée par les conditions de focalisation, à savoir le waist w_0 du faisceau, et la position Δz du col, mais elle va dépend également du rayon a du tube de verre.

5.3.1 Etude analytique

L'étude de la propagation du laser IR dans un tube capillaire revient à étudier la propagation d'un champ électromagnétique dans un guide d'onde cylindrique. Ce problème a été traité par *B.Cros et al* [22]. Dans ce cas, on décompose le champ électrique \vec{E} et le champ magnétique \vec{B} incident en série de fonctions de Bessel. Le laser est alors décomposé en modes de propagation. Il s'agit de modes hybrides (HE), où les champs, comme un faisceau laser divergent, peuvent avoir une composante longitudinale (sur l'axe de propagation z). L'objectif de cette étude est de déterminer l'amortissement de chaque mode à travers le tube et d'en déduire quels paramètres choisir (a , w_0 , Δz) pour que le mode qui s'amortit le moins soit le mode dominant.

5.3.1.1 Décomposition du champ en fonctions de Bessel

En coordonnées cylindriques, les champs électrique \vec{E} et magnétique \vec{B} peuvent être décomposés en une somme infinie de modes m :

$$\vec{E} = \sum_{m=1}^{\infty} A_m J_0(u_m r/a) \cos(\omega t - k_{mz} z) \exp(-\alpha_m z) \vec{u}_x \quad (3.332)$$

$$\vec{B} = \sum_{m=1}^{\infty} A_m J_0(u_m r/a) \frac{k_{mz}}{\omega} \cos(\omega t - k_{mz} z) \exp(-\alpha_m z) \vec{u}_y \quad (3.333)$$

J_0 est la fonction de Bessel d'ordre 0. A_m correspond au poids du mode m , et au coefficient d'amortissement α_m de ce mode au cours de la propagation :

$$\alpha_m = \frac{u_m^2 \lambda^2}{4\pi^2 a^3} \frac{1 + n^2}{\sqrt{n^2 - 1}} \quad (3.334)$$

u_m est le m -ième zéro de J_0 , λ la longueur d'onde du laser, et n l'indice de réfraction de la paroi du tube. Enfin, k_{mz} est le nombre d'onde de chaque mode et celui du faisceau :

$$k_{mz} = \sqrt{k_0^2 - \left(\frac{u_m}{a}\right)^2} = \sqrt{1 - \frac{u_m^2 \lambda^2}{4\pi a^2}} \quad (3.335)$$

5.3.1.2 Puissance des modes et longueur d'amortissement

La longueur d'amortissement, longueur au bout de laquelle l'intensité est divisée par 2, se calcule à partir du vecteur de Poynting $\vec{\Pi}$ qui permet d'obtenir, après intégration sur la section πa^2 du tube, la puissance de chaque mode sur cette section :

$$P_m = \frac{\pi a^2}{2\omega\mu_0} J_1^2(u_m) k_{mz} A_m^2 \exp(-2\alpha_m z) \quad (3.336)$$

J_1 étant la fonction de Bessel d'ordre 1. Les coefficients A_m se calculent en résolvant l'égalité suivante qui apparaît dans l'expression du champ électrique 3.332 :

$$E_0 \exp\left(-\frac{r^2}{w_0^2}\right) = \sum_{m=1}^{\infty} A_m J_0(u_m r/a) \quad (3.337)$$

C'est en intégrant entre $r = 0$ et $r = a$ qu'on trouve que :

$$A_m = \frac{\int_0^a E_0 \exp\left(-\frac{r^2}{w_0^2}\right) J_0(u_m r/a) r dr}{\int_0^a (J_0(u_m r/a))^2 r dr} \quad (3.338)$$

D'après l'expression de P_m , on montre que la longueur d'amortissement vaut :

$$L_m = \frac{\ln 2}{2\alpha_m} = \left(\frac{2\pi^2 \ln 2}{\lambda^2} \frac{\sqrt{n^2 - 1}}{1 + n^2}\right) \frac{a^3}{u_m^2} \quad (3.339)$$

Cette longueur d'amortissement est fonction de α_m et dépend donc du mode de propagation m . Le graphique suivant montre L_m pour les premiers modes de Bessel dans le cas d'une paroi de verre ($n = 1,5$), en fonction du rayon du tube :

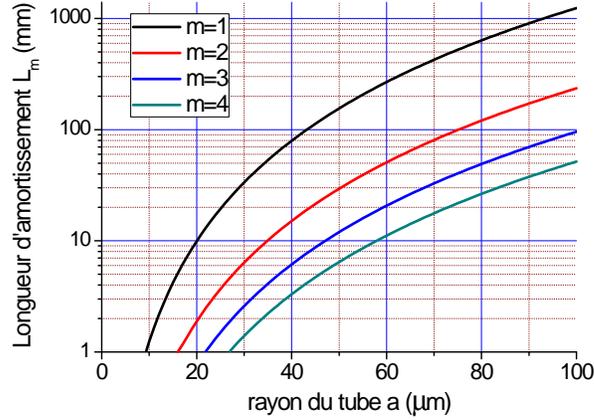


Figure 5.49: Longueur d'amortissement du rayonnement laser en fonction du rayon a du tube capillaire de verre, pour les premiers modes de propagation.

L_m augmente très rapidement en fonction de a . En effet, cette longueur est proportionnelle au cube du rayon a du tube 3.339. On s'aperçoit aussi que le 1^{er} mode est celui qui s'amortit le moins vite. L_1 atteint d'ailleurs 1 mètre lorsque $a = 100\mu m$, ce qui est énorme comparé au z_R calculé pour la cellule de gaz (quelques cm maximum). Cela permettrait de créer un milieu amplificateur sur une grande longueur, d'où l'intérêt du tube capillaire pour la génération du laser X-UV. Un guidage monomode, c'est-à-dire sur le 1^{er} mode de propagation principalement, doit donc être recherché pour un plus faible amortissement du laser.

5.3.1.3 Conditions d'un guidage monomode

La répartition de la puissance du laser sur les différents modes est étudiée pour déterminer les conditions d'un guidage monomode. La variable permettant de trouver cette répartition est le rapport P_m/P_{tot} de la puissance de chaque mode sur la puissance totale P_{tot} du laser. Il est approprié de calculer cette répartition à l'entrée du tube ($z = 0$) car elle persiste au cours de la propagation jusqu'à ce que l'amortissement des modes ne devienne plus négligeable.

La puissance totale est déterminée par la relation suivante :

$$P_{tot} = I_0 \int_0^a 2\pi r dr \exp\left(-\frac{2r^2}{w_0^2}\right) \quad (3.340)$$

Les P_m sont calculés à l'aide des expressions 3.336 et 3.338. On considère alors $\Delta z = 0$ (col à l'entrée du tube). Illustrés par le graphique ci-dessous, les calculs montrent l'évolution de P_m/P_{tot} pour différents modes ($m = 1$ à $m = 4$) en fonction du rapport a/w_0 , qui figure comme la principale dépendance.

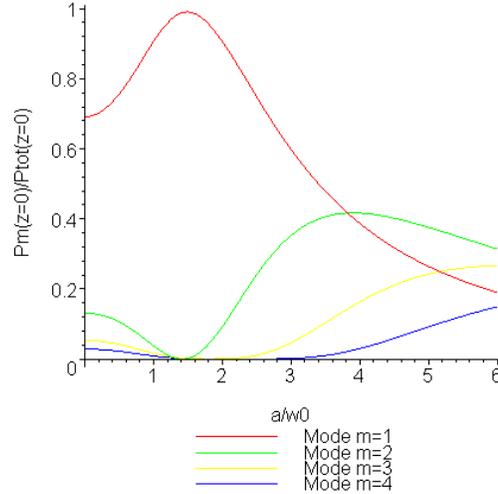


Figure 5.50: Répartition de la puissance du laser sur les différents modes, en $z=0$

D'après ce graphique, on peut mettre en évidence qu'il existe un rapport a/w_0 optimal, pour lequel le guidage est quasiment monomode, c'est-à-dire lorsque $P_1/P_{tot} \simeq 1$. Ce rapport est :

$$w_0 = 0,672a \quad (3.341)$$

5.3.2 Résultats OFI-Prop dans un capillaire

Nous allons ici donner des exemples de résultat obtenus à l'aide du code OFI-Prop pour analyser la propagation dans un régime guidé par capillaire sur une très grande longueur : $L = 5cm$. Ces résultats montrent l'intérêt de l'utilisation d'un code utilisant l'équation d'enveloppe par rapport à des codes s'appuyant directement sur les équations de Maxwell. Par exemple, un code de type Particule en Cellule (PIC en anglais) demanderait des moyens informatiques très lourds pour pouvoir traiter des cibles de plusieurs centimètres.

Nous allons prendre une grande focale pour avoir un large waist $w_0 = 60\mu m$ produisant une faible divergence (longueur de Rayleigh de 1,4 cm). L'intensité est choisie de façon à ce que l'on soit dans le plan focal, près de la limite haute de l'intensité ($3,09.10^{17}W/cm^2$ d'après le tableau 2.328).

5.3.2.1 Influence du rayon a du tube à w_0 constant

On a cherché, à partir du waist w_0 , à trouver quel rayon du tube permettait d'optimiser la taille de milieu amplificateur. Pour les simulations effectuées, le faisceau infrarouge a été focalisé en entrée ($\Delta z = 0mm$) et la pression à l'intérieur du tube a été fixée comme nulle (vide). Les cartes d'ionisation suivantes sont des cas de simulations où seul le paramètre a a été modulé. Les échelles de dimension transverse et longitudinale sont identiques ce qui

fait qu'on peut directement comparer les surfaces de milieu amplificateur, apparaissant en jaune-orangé.

$$a = 75\mu m ; w_0 = 60\mu m ; \Delta z = 0mm ; P = 0mbar$$



$$a = 90\mu m ; w_0 = 60\mu m ; \Delta z = 0mm ; P = 0mbar$$



$$a = 120\mu m ; w_0 = 60\mu m ; \Delta z = 0mm ; P = 0mbar$$



$$a = 150\mu m ; w_0 = 60\mu m ; \Delta z = 0mm ; P = 0mbar$$



Le constat le plus visible concerne la longueur de milieu amplificateur. Pour les valeurs de a les plus courtes 75 et 90 μm pour lesquelles, le rayon R_p de milieu amplificateur varie peu au cours de la propagation. Ce n'est pas surprenant, car d'après les calculs analytiques, le rapport w_0/a correspond ici à un guidage quasi-monomode, dont le taux d'amortissement est le plus faible. En conséquence, on observe sur les cartes que des zones de surintensités sont observées au niveau de l'axe du tube. La raison est que le faisceau naturellement divergent est régulièrement réfléchi par les parois du tube. Le milieu amplificateur est donc observé sur toute la longueur de tube, et pourrait vraisemblablement s'étendre sur des longueurs de tube bien plus importantes, de plusieurs dizaines de cm, comparables à la longueur d'amortissement calculée analytiquement. Cette longueur est à comparer à celle dans le cas d'une cellule, qui est limitée par la divergence du faisceau (quelques centimètres tout au plus). Dans un tube capillaire, l'effet de la divergence du faisceau est compensé par les réflexions de la paroi de verre. Le seul effet négatif de ces réflexions est qu'elles renvoient l'énergie vers le centre du tube et que des zones de surintensités sont susceptibles d'apparaître autour de ce centre. Ces zones se font plus importantes lorsque le rayon du tube est plus petit. Pour les valeurs de a les plus élevées, 120 et 150 μm , le rayon R_p de milieu amplificateur est beaucoup plus variable. La divergence du faisceau semble s'exprimer sur les premiers millimètres, alors qu'aucune surintensité traduisant une éventuelle réflexion n'est observée jusqu'à mi-chemin. C'est là que le faisceau semble se refocaliser. Néanmoins, à partir de

maintenant on constate que le guidage n'est plus monomode puisqu'à $a = 150\mu m$ notamment, la zone amplificatrice prend la forme d'un anneau après la refocalisation. Les calculs analytiques l'avaient prévu pour une telle valeur de w_0/a . La section transverse de milieu amplificateur se réduit alors (très visible encore une fois pour $a = 150\mu m$).

L'effet de guidage consistant en les réflexions sur les parois est donc essentiel pour générer des longueurs de milieu amplificateur plus importantes, et il est essentiel d'avoir une taille de tube adaptée à celle du faisceau en respectant une valeur w_0/a proche du rapport optimal 0,672. L'intérêt d'avoir de telles longueurs est bien sûr d'obtenir un facteur d'amplification plus élevé à partir du rayonnement X-UV injecté. Mais, nous le verrons dans le chapitre VI consacré aux résultats du code COFIXE_MB, c'est aussi dans le but de faire apparaître des pics de très courte durée dans le profil d'intensité du laser X-UV amplifié.

5.3.2.2 Influence de la pression

La présence du gaz cible dans le tube est un facteur limitant pour la longueur de milieu amplificateur (toujours représentée dans les cartes d'ionisation ci-dessous en jaune-orangé). En raison principalement de la diffraction occasionnée sur le faisceau, cette longueur va être réduite, plus ou moins fortement selon la pression de ce gaz.

A une pression de 5 millibars, la diffraction reste relativement faible. Néanmoins, très tôt dans la propagation, on peut déjà observer une multitude de réflexions sur les bords associées à des zones centrales de surintensité. Les zones de sous-intensité ont une localisation beaucoup plus irrégulière qu'avant, et pour les mêmes raisons, on peut retrouver localement des régions amplificatrices sur les bords.

A 50 millibars, la diffraction du faisceau a alors un fort impact sur la forme du milieu amplificateur, qui consiste en une zone de plus en plus diffuse au fil de la propagation, mélangée à des zones de sous-intensité. Son rayon moyen R_p se réduit rapidement au bout de 1 à 2 cm. Ce rayon stagne cependant ensuite, laissant place à un profil transverse diffus à peu près constant, comportant une très fine zone de surintensité (filament blanc). Comme les zones non amplificatrices sont absorbantes, l'amplification du laser X-UV sera affecté par la forme du milieu amplificateur. On se retrouverait en sortie avec une impulsion d'intensité élevée mais de faible dimension transverse si on choisit une grande longueur capillaire, car seule la zone autour de l'axe reste amplificatrice.

Si on souhaite une longueur d'amplification amenant une saturation élevée du signal X-UV, on doit choisir une longueur de tube maximale. Si on désire maximiser l'énergie d'impulsion X-UV, nécessitant d'optimiser le rayon R_p , il nous faut prendre une longueur de tube de 1 à 2 cm. Ces résultats montrent en tout cas qu'on peut obtenir à toute pression des longueurs de milieu amplificateur beaucoup plus importantes que dans une cellule de gaz, qui, quant à elle, nous limite à quelques millimètres. Cela constitue un sérieux avantage dans la quête d'une laser X-UV plus intense et de durée d'impulsion plus courte.

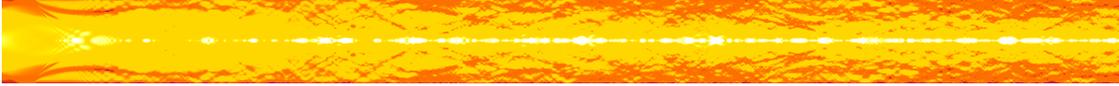
$$a = 90\mu m ; w_0 = 60\mu m ; \Delta z = 4mm ; P = 0mbar$$



$$a = 90\mu m ; w_0 = 60\mu m ; \Delta z = 4mm ; P = 10mbar$$



$$a = 90\mu m ; w_0 = 60\mu m ; \Delta z = 4mm ; P = 20mbar$$



$$a = 90\mu m ; w_0 = 60\mu m ; \Delta z = 4mm ; P = 50mbar$$



5.4 Conclusion

Le code OFI-Prop permet d'obtenir des cartes d'ionisation d'un plasma créé par OFI qui, une fois couplés à des éléments de cinétique du plasma après OFI, constituent une quantité de données suffisante pour traiter l'amplification du laser X-UV. Des résultats sur cette amplification peuvent alors être obtenus à 2 dimensions, car reprenant des données suffisantes sur l'évolution du milieu amplificateur.

Les résultats d'OFI-Prop ont permis de déterminer, en fonction notamment des caractéristiques du laser de pompe incident et de la pression du gaz cible, quelles dimensions de la cellule et du tube capillaire génèrent le milieu amplificateur le plus long ou le plus volumineux pour une amplification du laser X-UV optimale. A ce jeu, la propagation dans un tube capillaire fournit de meilleurs résultats car la réflexion du laser sur les parois permet de propager le laser sur de plus longues distances.

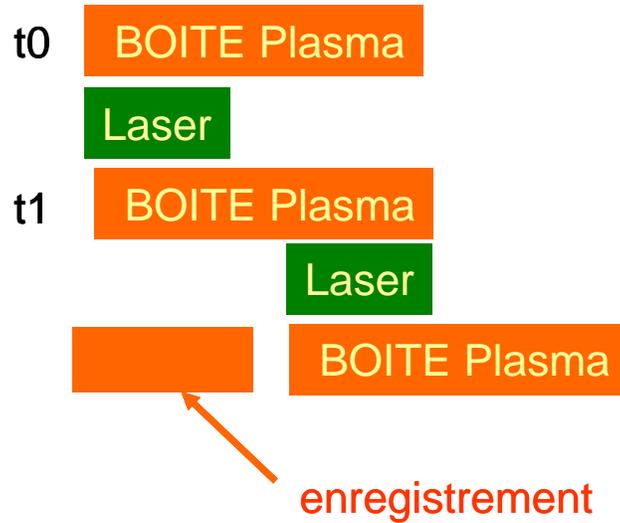
5.5 Annexe : résolution numérique

Le code OFI-Prop résout l'équation 1.320 en prenant en compte les conditions aux bords pour la propagation, et pour l'ionisation du plasma par OFI, utilise la formule ADK. C'est une version modifiée du code PROPAGATE développé par G.J. Pert et son étudiant L.M. Upcraft [98]. Les principales modifications que nous avons apportées à ce code sont : la prise en compte des conditions aux bords décrites ci-dessus (à la fois pour une cellule et pour un capillaire) ; une prise en compte du terme croisé $\frac{2}{c} \frac{\partial^2 A^L}{\partial \tau \partial z}$ dans l'équation de propagation ; une segmentation du plasma en plusieurs tranches ; une standardisation et une optimisation

du code. Le temps de calcul requis est typiquement de l'ordre de 1 à 20 heures sur un PC standard récent. Nous donnons ci-dessous quelques indications sur le schéma numérique utilisé.

OFI-Prop utilise deux grilles : la grille "plasma" fixe qui doit couvrir toute l'étendue 2D de la cible et la grille "laser" plus courte (typiquement 300 microns). Les tailles de maille utilisées sont de $1\mu\text{m}$ sur l'axe longitudinal pour la grille "plasma", et $0,5\mu\text{m}$ pour la grille "laser". Les deux grilles ont le même maillage transversal de $1\mu\text{m}$.

La cible peut avoir plusieurs centimètres de longueur, ce qui donne un nombre de mailles pouvant aller jusqu'à 150×100000 , ce qui est excessif. Heureusement, les données du plasma ne sont utiles que dans le domaine où les deux grilles se recouvrent, c'est-à-dire sur $300\mu\text{m}$. Pour limiter l'espace du plasma décrit inutilement, le plasma est séparé en un certain nombre de tranches (typiquement entre 50 et 200), qui prises en compte et enregistrées au fur et mesure que la grille "plasma" les parcourt, comme indiqué sur la figure ci-après.



5.5.0.3 Intégration de l'équation de propagation

Partons de l'équation de propagation sans le terme croisé $\frac{2}{c} \frac{\partial^2 A^L}{\partial \tau \partial z}$:

$$\frac{\partial A^L}{\partial z} = +\frac{i}{2k} \Delta_{\perp} A^L - i \frac{kc}{2} \frac{n_e}{n_{cr}} A^L \quad (5.342)$$

On cherche à déterminer la variation de A^L entre t et $t + \Delta_t$. On mettra un exposant 1 pour les grandeurs à l'instant t , 3 à l'instant $t + \Delta_t$ et 2 à l'instant $t + \Delta_t/2$. Pendant Δ_t , pour une valeur de τ fixe (un point de la grille laser), z varie de $dz = c\Delta_t$. Le schéma centré sur z de l'équation précédente s'écrit :

$$A^{L3} - A^{L1} = \frac{ic\Delta_t}{2k} \Delta_{\perp} A^{L2} - i \frac{c\Delta_t kc}{2} \left(\frac{n_e}{n_{cr}} A^L \right)^2 \quad (5.343)$$

avec :

$$A^{L2} = 0.5 (A^{L3} + A^{L1}) \quad (5.344)$$

$$\left(\frac{n_e}{n_{cr}} A^L \right)^2 = 0.5 \left[\left(\frac{n_e}{n_{cr}} A^L \right)^3 + \left(\frac{n_e}{n_{cr}} A^L \right)^1 \right]. \quad (5.345)$$

On peut remarquer que le système ci-dessus correspond à un schéma implicite puisque les grandeurs (inconnues) au temps 3 interviennent dans les deux membres de l'équation discrétisée. Dans le code PROPAGATE initial, le maillage transverse est irrégulier (la maille augmente linéairement avec la distance à l'axe), pour avoir un domaine transverse très large et limiter ainsi les problèmes de réflexion aux bords. On peut montrer que ceci introduit une erreur systématique. C'est pour cela que nous avons préféré utiliser un maillage régulier en ajoutant des conditions aux bords absorbantes dans le cas d'une cellule. Soit Δ_ρ la taille de la maille transverse, et soit ℓ l'indice de chaque maille, nous avons :

$$\Delta_\perp A = \frac{\partial^2 A}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial A}{\partial \rho} \quad (5.346)$$

$$\frac{\partial A_\ell}{\partial \rho} = \frac{1}{2\Delta_\rho} (A_{\ell+1} - A_{\ell-1}) \quad (5.347)$$

$$\frac{\partial^2 A_\ell}{\partial \rho^2} = \frac{1}{\Delta_\rho^2} (A_{\ell+1} - 2A_\ell + A_{\ell-1}), \quad (5.348)$$

L'équation 5.343 devient alors :

$$X_\ell A_{\ell-1}^{L3} + Y_\ell A_\ell^{L3} + Z_\ell A_{\ell+1}^{L3} = T_\ell, \quad (5.349)$$

avec :

$$X_\ell = -i\alpha \left(1 - \frac{1}{2\ell} \right) \quad (5.350)$$

$$Y_\ell = 1 + 2i\alpha + i\beta^3 \quad (5.351)$$

$$Z_\ell = -i\alpha \left(1 + \frac{1}{2\ell} \right) \quad (5.352)$$

$$T_\ell = -X_\ell A_{\ell-1}^{L1} + (1 - 2i\alpha - i\beta^1) A_\ell^{L1} - Z_\ell A_{\ell+1}^{L1} \quad (5.353)$$

$$\alpha = \frac{\Delta_t}{4k\Delta_\rho^2} \quad (5.354)$$

$$\beta = \frac{\Delta_t k n_e}{n_{cr}} \quad (5.355)$$

L'équation 5.349 correspond à une matrice tri-diagonale qui s'intègre très facilement par la méthode de Gauss. Une itération est cependant nécessaire puisque β par l'intermédiaire de la densité n_e , n'est pas connu à l'instant 3. $\frac{n_e}{n_{cr}}$ étant $\ll 1$, l'itération converge rapidement.

On peut remarquer que l'équation 5.349 ne fait directement intervenir que la variable ρ , cette équation doit être résolue en chaque point du maillage en τ de la grille laser de façon indépendante. En introduisant le terme croisé $\frac{2}{c} \frac{\partial^2 A^L}{\partial \tau \partial z}$, les différents points de la grille laser

vont être couplés. Un schéma implicite sera alors difficile à mettre en oeuvre. Tirant profit du fait que $\frac{2}{c} \frac{\partial^2 A^L}{\partial \tau \partial z}$ peut être considéré comme un terme correctif, nous l'avons introduit de façon explicite dans un schéma au premier ordre, en notant m l'index pour la grille en τ , nous obtenons, en intégrant vers les m croissants :

$$A_{\ell,m}^{L3} = A_{\ell,m}^{L3} + [\text{sans terme croisé}] - i\delta [A_{\ell,m}^{L3} - A_{\ell,m-1}^{L3} - A_{\ell,m}^{L1} + A_{\ell,m-1}^{L1}], \quad (5.356)$$

avec $\delta = 1/(kc\Delta_\tau)$, Δ_τ étant la largeur de la maille en τ de la grille laser. Ceci redonne l'équation 5.349 avec les coefficients :

$$X_\ell = -i\alpha \left(1 - \frac{1}{2\ell}\right) \quad (5.357)$$

$$Y_\ell = 1 + 2i\alpha + i\beta^3 + i\delta \quad (5.358)$$

$$Z_\ell = -i\alpha \left(1 + \frac{1}{2\ell}\right) \quad (5.359)$$

$$T_\ell = -X_\ell A_{\ell-1}^{L1} + (1 - 2i\alpha - i\beta^3 + i\delta) A_\ell^{L1} - Z_\ell A_{\ell+1}^{L1} + i\delta (A_{\ell,m-1}^{L3} - A_{\ell,m-1}^{L1}) \quad (5.360)$$

$$+ \frac{1}{2} (A_{\ell,m-1}^{L1} + A_{\ell,m+1}^{L1} - 2A_{\ell,m}^{L1}) \quad (5.361)$$

$$\alpha = \frac{\Delta_t}{4k\Delta_\rho^2} \quad (5.362)$$

$$\beta = \frac{\Delta_t k n_e}{n_{cr}} \quad (5.363)$$

Pour la grille laser, on impose que le champ est nul aux deux extrémités en τ . En suivant les m croissants, la première valeur de A est donc connue ($=0$). Le terme $A_{\ell,m-1}^3$ est donc fixé de façon explicite. La dernière parenthèse dans l'équation 5.360 correspond à la correction proposée par Lax [82]. Pour limiter les erreurs systématiques, l'intégration est faite alternativement vers les m croissants et vers les m décroissants. Dans ce dernier cas il faut changer dans les équations précédentes $m - 1$ par $m + 1$ et réciproquement.

Chapitre 6

Résultats du code COFIXE_MB

Ce chapitre est consacré aux résultats du code COFIXE_MB élaboré pendant la thèse et qui traite l'amplification de l'harmonique X-UV (HHG) au cours de sa propagation dans un plasma créé par OFI. Les calculs sur ce code ont été effectués parallèlement aux expériences de laser X-UV par injection HHG réalisées dans la salle jaune du LOA par l'équipe de S. Sebban (voir thèse de J.P. Goddet [38]).

Les expériences sont celles qui ont été réalisées dans le cas d'une cellule de gaz avec du Krypton pour le gaz cible. Elles ont fourni des données sur l'énergie d'impulsion du laser X-UV, son profil spectral, ainsi que sa cohérence (temporelle et transverse) en sortie de la cellule. A partir des résultats du code COFIXE_MB, nous pourrions étudier dans le même cas du Krypton, les données suivantes : le profil temporel, donnée non mesurée dans les expériences, le profil spectral, le profil spatial, ainsi que l'énergie d'impulsion. Toutes ces données sont fonctions de différents paramètres caractérisant le milieu amplificateur et l'impulsion HHG injectée. La version précédente du code, COFIXE, qui a été utilisé pour l'équipe ITFIP pour les calculs de laser X-UV avant ce travail de thèse, était basée sur l'approximation adiabatique. Elle a été utilisée principalement pour décrire l'amplification en régime ASE où les temps caractéristiques sont suffisamment longs pour que cette approximation puisse être utilisée. L'utilisation de l'approche Maxwell-Bloch à deux niveaux effectifs permet de s'affranchir de l'approximation adiabatique pour s'appliquer à l'injection des signaux très courts issus de la source harmonique. Cependant, l'émission spontanée étant négligée, COFIXE_MB ne s'applique qu'à l'amplification de signaux injectés. Les deux approches COFIXE et COFIXE_MB sont ainsi complémentaires. Une analyse détaillée de la différence entre ces deux approches est exposée dans la thèse d'Amar Boudaa. COFIXE_MB a l'avantage supplémentaire de traiter directement l'amplitude complexe du champ et non simplement son intensité comme dans COFIXE. Nous pouvons ainsi faire une analyse de la cohérence temporelle et spatiale en supposant celle du faisceau injecté connue.

Les résultats seront exposés à trois niveaux. Dans un premier temps, nous nous intéresserons à la physique de l'amplification dans un plasma uniforme. Nous avons vu que la diffraction avait peu d'effet, et que les propriétés du volume d'amplification étaient effectivement très uniformes. L'approximation d'un plasma uniforme est donc une bonne approximation qui permet de plus de bien identifier les caractéristiques de l'amplification pour un plasma donné. Dans un deuxième temps, nous analyserons les résultats en intégrant la

carte 2D du plasma telle que calculée par OFI-Prop. Ceci va nous permettre de quantifier le couplage entre la propagation de l'IR et l'amplification X-UV. Enfin, les derniers résultats concerneront un calcul d'amplification 3D. L'objectif sera de prendre en compte les caractéristiques du faisceau HHG injecté telles que fournies par le senseur de front d'onde et ainsi de se rapprocher de la situation expérimentale. Nous débuterons ce chapitre en précisant le principe du calcul et les principales approximations utilisées.

6.1 Principe de la modélisation

6.1.1 Cadre du modèle

Dans le modèle utilisé, nous décrivons l'amplification d'un signal X-UV dans un milieu caractérisé par des variables locales. Il n'y a pas de transport autre que celui du signal X-UV. En effet, chaque grandeur du plasma peut s'écrire comme une fonction $f(\vec{r}, t - t_0(\vec{r}))$ avec, du fait de la symétrie cylindrique, la position \vec{r} représentée par le couple de valeur (ρ, z) , ρ étant la distance à l'axe et z l'abscisse suivant l'axe, l'entrée de la cellule étant à $z = 0$. Le temps local $t - t_0(\vec{r})$ est compté à partir d'une origine $t_0(\vec{r})$ définie par le passage du faisceau IR $t_0(\vec{r})$, par exemple le maximum de l'impulsion. La durée du faisceau de l'ordre de 50 fs étant nettement plus courte que la cinétique du plasma, on peut donc négliger la déformation de l'impulsion IR pour le temps $t_0(\vec{r})$. De plus, pour une cible de 1 cm, le temps de parcours de l'impulsion IR est de 33 ps. Le retard pris par l'IR du fait de la dispersion du plasma est de l'ordre de 10^{-3} (rapport entre la densité du plasma et la densité critique pour l'IR), soit un retard inférieur à 50 ps. L'ensemble des effets (déformation du signal + vitesse de groupe inférieur à c) entraîne une variation inférieure à 0,1ps pour un transport sur plusieurs mm. Nous l'avons donc négligé dans nos calculs, ce qui nous donne $t_0(\vec{r}) = z/c$. Le seul cas où cette approximation deviendrait discutable est l'amplification sur plusieurs centimètres à forte pression, ce qui n'a pas encore pu être réalisé expérimentalement.

Dans l'équation de Maxwell-Bloch à deux niveaux effectifs, il n'y a que trois fonctions autres que les constantes atomiques, qui dépendent de l'état du plasma : l'inversion de population et les deux temps T_1 et T_2 . Ces derniers ont une évolution faible (de l'ordre de 10%) et pratiquement linéaire durant le temps de vie du gain. Nous avons simplement pris une valeur moyenne calculée par le code OFI-0d.

La dernière difficulté concerne la paramétrisation de l'inversion de population. Il n'est pas possible de calculer puis de stocker l'évolution de la cinétique sur chaque point de la grille en 2D (typiquement 500 000 noeuds). En analysant les résultats des calculs de cinétique, nous avons pu constater que l'ionisation par effet tunnel était un processus rapide et donc que l'évolution du plasma ne dépendait principalement que de l'intensité maximale $I_{\max}(\rho, z)$ de l'IR au point considéré. L'inversion de population peut ainsi s'écrire comme une fonction $f(\vec{r}, t - t_0(\vec{r})) = f(I_{\max}(\rho, z), t - z/c)$, cette fonction a été écrite sous forme paramétrique, la valeur des paramètres dépendant de la densité. Cette paramétrisation a été réalisée pour une dizaine de valeurs de pression entre 5 et 50 mbar. C'est pourquoi la version actuelle

du code ne fonctionne qu'avec une cellule de pression fixée, c'est-à-dire de densité initiale uniforme.

6.1.2 Equations utilisées et grandeurs physiques calculées

On rappelle les équations de Maxwell-Bloch qui sont utilisées par le code (version MB-1D) :

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c_0} \frac{\partial}{\partial t} \right) A(\rho, z, t) = D(z, t) \quad (1.364)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} D(\rho, z, t) = -\frac{1}{T_2} D + \frac{Z_{F_0} \omega_{ul}}{2\hbar} |\vec{M}|^2 AW \quad (1.365)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} W(\rho, z, t) = -\frac{W - W_0}{T_1} - \frac{3}{2\hbar\omega_{ul}} AD \quad (1.366)$$

Le rayonnement HHG injecté a une composante haute fréquence centrée sur la transition laser ω_{ul} : $E_{HHG}(t) = \sqrt{Z_{F_0}} A_{HHG}(\rho, t) e^{i(\omega_{ul}t - k_0z)}$. Les conditions aux limites pour l'équation MB-1D sont donc :

$$A(\rho, z = 0, t) = A_{HHG}(\rho, t) \quad (1.367)$$

$$D(\rho, z, t)_{t \rightarrow -\infty} = 0 \quad (1.368)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} W(\rho, z, t) + \frac{W(\rho, z, t)}{T_1} \Big|_{t \rightarrow -\infty} = \frac{W_0(I_{\max}(\rho, z), t - \frac{z}{c})}{T_1} \quad (1.369)$$

$W_0(I_{\max}(\rho, z), t - \frac{z}{c})$ est donné par la paramétrisation des résultats d'OFI-0D et $I_{\max}(\rho, z)$ par le code OFI-Prop. L'amplitude $A(\rho, z, t)$ permet de déterminer l'intensité $I(r, z, t) = |A(\rho, z, t)|^2$ dont l'intégration sur une section donnée équivaut à la puissance du faisceau X-UV. Cette puissance, intégrée sur le temps, nous donne l'énergie du faisceau X-UV en fonction de la longueur z de plasma. Expérimentalement, les signaux sont intégrés temporellement et donnent donc accès à l'énergie.

6.1.3 Description du milieu amplificateur

Afin de décrire la propagation laser dans un milieu amplificateur non uniforme, le code COFIXE_MB reprend les données fournies par les 2 codes OFI-0D et OFI-Prop dont les résultats ont été décrits dans les chapitres précédents. A partir d'OFI-Prop, l'intensité maximale du laser IR $I_{\max IR}(\rho, z)$ est calculée en chaque point de la grille 2D de la cible (Voir Chapitre V). OFI-0d fournit entre autres l'évolution en un point donné de l'inversion de population sans le champ laser X-UV, que l'on notera $W_{NR}(t)$, en fonction de la pression P du gaz cible, de l'intensité maximale $I_{\max IR}$ et de la polarisation ϕ du laser de pompe (voir Chapitre III). A noter que pour nos simulations de laser X-UV, la polarisation ϕ du laser de pompe est fixée à $\phi = 0,5$ (circulaire, dans le but maximiser l'inversion de population) et que la pression P est supposée uniforme sur l'ensemble de la cellule.

Calcul de l'inversion de population

Le code OFI-0D nous fournit la fonction $W_{NR}(I_{\max IR}, t)$, l'inversion de population sans champ X-UV. Cette fonction qui a été paramétrée, doit être solution des équations MB-1D avec $A(\rho, z, t) = 0$. Ceci nous permet d'en déduire l'expression de $W_0(\rho, z, t)$:

$$\frac{dW_{NR}(I_{\max IR}, t - z/c)}{dt} = -\frac{W_{NR}(I_{\max IR}, t - z/c) - W_0(\rho, z, t)}{T_1} \quad (1.370)$$

$$W_0(\rho, z, t) = T_1 \frac{dW_{NR}(I_{\max IR}, t - z/c)}{dt} + W_{NR}(I_{\max IR}, t - z/c) \quad (1.371)$$

En un point donné d'ordonnée z , l'inversion de population sera créée après passage du laser de pompe. Elle aura une durée de vie limitée de quelques ps (voir résultats OFI-0D Chapitre III) à comparer au temps de propagation de 16 ps pour une cible de 5 mm de longueur. A un instant donné, le milieu amplificateur n'est donc pas uniforme dans la cible. La zone amplificatrice se déplace avec une vitesse proche de c à l'arrière de l'impulsion laser Infrarouge. Nous avons vu que la différence entre les vitesses de groupe de l'IR et de l'X-UV introduisait un décalage inférieur à 50 fs pour une propagation d'1 cm. Ce décalage est négligeable par rapport au temps caractéristique de la cinétique du gain. On peut ainsi considérer que le délai entre l'IR et le signal HHG injecté sera constant au cours de la propagation. Ce délai constitue un des paramètres à optimiser pour l'amplification. Il concerne l'avant de l'impulsion HHG car au cours de la propagation, le signal X-UV va s'élargir, et le délai entre le maximum de l'IR et le maximum de l'X-UV va être modifié.

6.1.4 Description de l'impulsion HHG

6.1.4.1 Propagation dans le plasma

La figure ci-dessous 6.51 montre la façon dont on peut représenter la propagation du milieu amplificateur et du laser X-UV à l'arrière du laser de pompe. On voit bien que le délai entre l'impulsion IR et l'impulsion X-UV, que l'on notera $\Delta t_{IR-X-UV}$ va jouer un rôle important dans l'amplification du rayonnement X-UV.

6.1.4.2 Caractéristiques de l'impulsion HHG en entrée

Pour les simulations, on sera amené à modifier les caractéristiques de l'impulsion HHG afin de mettre en évidence certaines propriétés de l'amplification. Mais par défaut, on reprendra les caractéristiques de l'impulsion injectée lors des expériences de laser X-UV. A partir des données expérimentales, on sait que l'impulsion HHG à l'entrée de la cellule de gaz cible ($z = 0$) possède une durée proche (en fait un peu plus courte) de celle du laser de pompe, $\tau_{X-UV} = 35 fs$, et que son énergie est de l'ordre de $E_{X-UV} = 1 nJ$. Le waist du faisceau est quant à lui de l'ordre de $w_0 = 100 \mu m$. Si on suppose un profil temporel Gaussien:

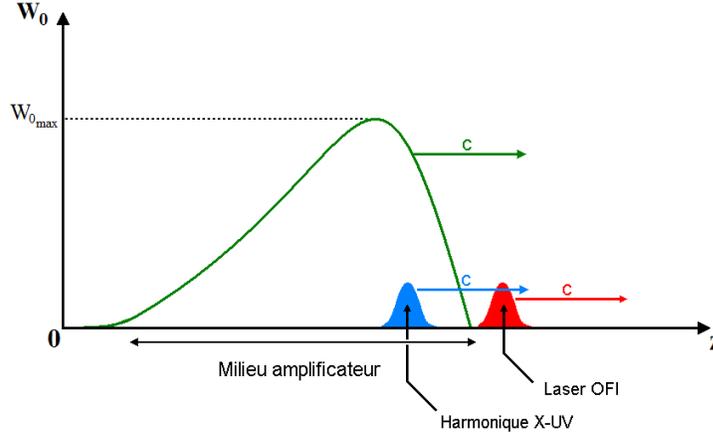


Figure 6.51: Positionnement des impulsions IR et X-UV par rapport au milieu amplificateur, décrit par son inversion de population W .

$$I(r, t) = I_0 \exp\left(-\frac{2r^2}{w_0^2}\right) \exp\left(-4 \ln 2 \frac{t^2}{\tau_{X-UV}^2}\right) \quad (1.372)$$

Quant à la relation donnant l'énergie, elle s'écrit :

$$E_{X-UV} = \int_0^\infty \int_0^{2\pi+\infty} \int_{-\infty}^\infty I(r, t) r dr d\theta dt = 1,672 \times I_0 \times w_0^2 \times \tau \quad (1.373)$$

Dans notre cas, à partir des valeurs données, on retrouve l'intensité maximale à l'entrée du plasma : $I_0 = 1,71.10^8 \text{W.cm}^{-2}$.

6.2 Analyse 1D

Pour les simulations à une dimension, on souhaite tout d'abord faire une étude qualitative des grandeurs physiques $A(z, t)$ (amplitude du champ), $D(z, t)$ (moment dipolaire), $W(z, t)$ (inversion de population) ainsi que $E_{X-UV}(z)$ l'énergie d'impulsion. Dans les calculs 1D, on considèrera $E_{X-UV}(z)$ étendue sur une section transverse de $1\mu\text{m}$ de rayon sur laquelle A est identique en tout point. On définit également le facteur d'amplification $F(z) = E_{X-UV}(z)/E_{X-UV}(0)$.

Dans ces simulations, afin d'éliminer toute autre dépendance, les paramètres I_s , T_1 , T_2 et la variable $W_0(t)$, qui conditionnent la propagation car figurant dans les équations de Maxwell-Bloch, doivent être indépendants de z . Par conséquent, la pression P étant déjà auparavant supposée uniforme, la valeur de I_{maxIR} , qui permet de calculer ces paramètres, doit également être indépendante de z (une seule valeur de I_{maxIR}). On suppose donc que le milieu amplificateur est **uniforme** sur la totalité de la longueur de plasma. A noter que l'amplitude

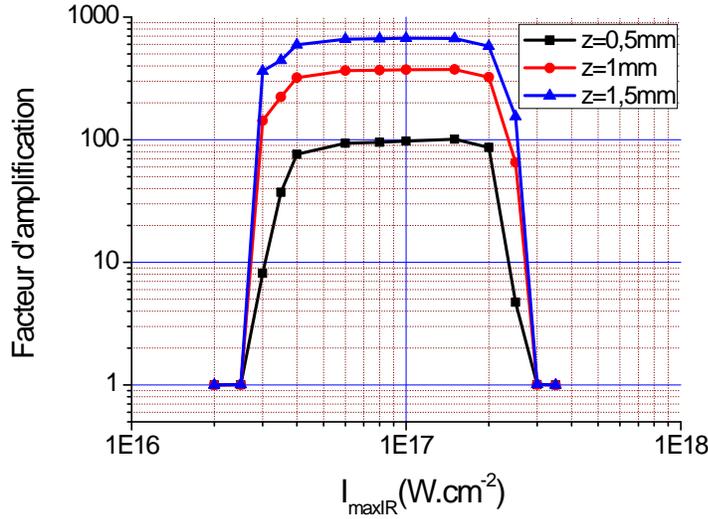


Figure 6.52: Simulation 1D. Facteur d'amplification à plusieurs distances de propagation en fonction de I_{maxIR} , pour une pression $P = 20mbar$

du champ $A(z, t)$ sera donnée, dans tous les graphiques que nous présenterons, en $W^{1/2}/cm$, et D en unités arbitraires.

6.2.1 Valeur des paramètres de simulation

L'étude de l'amplification à 1D en fonction de la valeur d'intensité du laser de pompe I_{maxIR} montre d'après le graphique 6.52, comme on pouvait s'y attendre, que l'amplification se produit dans le même intervalle d'intensité que celui dans lequel sont créés les ions lasants : $3, 5 \cdot 10^{16}$ à $2 \cdot 10^{17} W.cm^{-2}$. On remarque également, comme nous l'avons fait dans le chapitre III, qu'à l'intérieur de cet intervalle, l'amplification devient pratiquement indépendante de l'intensité. On retrouve ici qu'en raison de la grande stabilité de l'ion Kr^{8+} , l'amplification peut être uniforme sur un large volume. Pour les calculs, sauf mention du contraire, nous avons choisi $I_{maxIR} = 10^{17} W.cm^{-2}$.

Les différents paramètres pouvant affecter l'amplification sont principalement I_0 l'intensité initiale ($z = 0$) de l'harmonique X-UV injectée, le retard de l'impulsion X-UV $\Delta t_{IR-X-UV}$ par rapport à l'IR et P la pression du gaz. Nous analyserons également l'influence des deux temps caractéristiques de l'interaction : le temps de relaxation de phase T_2 , et le temps de recouvrement du gain T_1 . Les valeurs par défauts, qui sont proches des données expérimentales (en ce qui concerne les paramètres expérimentaux) sont :

- $P = 20mbar$, qui donne les valeurs suivantes dans le cas du Krypton : $T_1 = 2,43ps$, $T_2 = 2,54ps$, $I_s = 1,61 \cdot 10^7 W.cm^{-2}$.
- $I_0 = 1,7 \cdot 10^8 W.cm^{-2}$ pour une durée d'impulsion de l'harmonique $\Delta t_{X-UV} = 35fs$ (énergie

d'impulsion initiale $E_{X-UV} = 1nJ$ pour un waist de $100 \mu\text{m}$)
 $\cdot \Delta t_{IR-X-UV} = 3ps$.

6.2.2 Etude de l'évolution des variables au cours de la propagation

Les graphiques que nous présentons dans cette section sont issus de calculs utilisant les valeurs par défaut des paramètres énoncés précédemment.

6.2.2.1 Evolution des variables temporelles à faible saturation

A l'entrée de la cible, à de courtes distances de propagation, on se trouve dans un régime à faible saturation. L'émission des dipôles n'induit pas de variation significative de l'inversion de population W des ions traversés. Lors de son entrée dans le milieu amplificateur, l'harmonique X-UV possède une durée d'impulsion extrêmement courte par rapport au temps de relaxation T_2 de la polarisation. Les dipôles induits par cette impulsion vont continuer à émettre avec un temps caractéristique donné par T_2 après son passage. Cette dynamique est illustrée par la figure 6.53. Elle montre le profil temporel de l'impulsion laser X-UV à de courtes distances de propagation. On observe la formation d'une queue à l'arrière du pic HHG initial, dont l'évolution temporelle est une exponentielle décroissante. Le maximum de cette exponentielle décroissante, situé à la base du pic HHG, augmente linéairement avec la longueur de propagation.

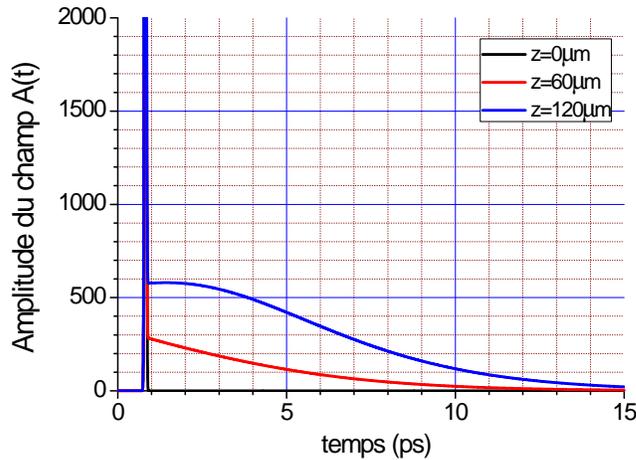


Figure 6.53: Profil temporel du champ pour de faibles valeurs de z , à $P=20\text{mbar}$ et $I_0=1,7 \cdot 10^8 \text{W/cm}^2$.

Pour interpréter ces résultats, considérons que le pic principal n'a pas eu le temps d'être modifié :

$$A(z, t) \sim A_{HHG}(z, t); t_i \leq t \leq t_f$$

t_i définissant le début de l'impulsion HHG et t_f sa fin ($t_f - t_i \simeq 100fs$). Pendant l'intervalle de temps $t_f - t_i$, la polarisation n'a pas le temps de se relaxer sur cet intervalle de temps. Dans l'équation 1.365, on peut alors négliger le terme en $1/T_2$. L'évolution de la variable $D(t)$ en un point donné devient ainsi :

$$\dot{D} = \alpha A_{HHG}(t) W_{NR} \quad (2.374)$$

Comme on est loin de la saturation, on peut négliger la variation de l'inversion de population W . Après passage du pic (entre t_i et t_f , on suppose que la totalité de l'énergie du pic a traversé le point) et à partir d'une valeur initiale nulle, le moment dipolaire D vaut donc :

$$D(t_f) = \alpha W_{NR} \int_{t_i}^{t_f} A_{HHG}(t) dt \quad (2.375)$$

Sur les premières longueurs de propagation, $D(t_f)$ est donc une constante. L'intégration de l'équation de propagation pour l'amplitude 1.364 donne alors :

$$A(z_f = ct_f, t_f) = z_f D(t_f). \quad (2.376)$$

On retrouve bien une croissance linéaire de l'amplitude juste derrière l'impulsion HHG. Après l'impulsion $t > t_f$, $A \simeq 0$ et on observe une phase de relaxation. Dans l'équation de Maxwell-Bloch 1.365, on peut négliger le terme dépendant de l'amplitude. Le moment dipolaire décroît alors exponentiellement en un temps caractéristique T_2 :

$$D(t > t_f) = D(t_f) \exp(-t/T_2) \quad (2.377)$$

C'est exactement ce que l'on observe pour $z \simeq 0$ mm comme le montre la figure 6.54 à gauche. Ensuite, à de courtes distances de l'entrée du plasma ($z \ll 1mm$), les dipôles sont affectés par le rayonnement nouvellement émis par les dipôles qui se trouvent à z inférieurs, et la forme de $D(t)$ évolue alors. L'amplitude du champ suit les variations de D mais avec une certaine inertie due à l'intégration. A ces mêmes distances de propagation ($z \ll 1mm$), l'inversion de population $W(t)$ n'est pas encore affectée et évolue, comme le montre la figure 6.55, dans une dynamique identique à celle sans champ.

6.2.2.2

Apparition de la saturation

Le rayonnement généré par les dipôles s'accumule à l'arrière du pic initial. A une pression $P = 20mbar$ et un retard $\Delta t_{IR-X-UV} = 3ps$, on trouve à des distances de propagation 3 à 4 fois supérieures à celles qu'on a montré précédemment, les profils temporels du champ suivants :

L'évolution constatée est que l'impulsion possède une intensité plus élevée ($I_{max} \simeq 2.10^7 W/cm^2$ à $z = 0,3mm$). La durée d'impulsion atteint quasiment la dizaine de picosecondes. On se rapproche un peu plus des conditions de l'approximation adiabatique que ce qu'on avait initialement à l'entrée du plasma car maintenant $\tau_{X-UV} > T_2$ (voir Chapitre IV). L'intensité

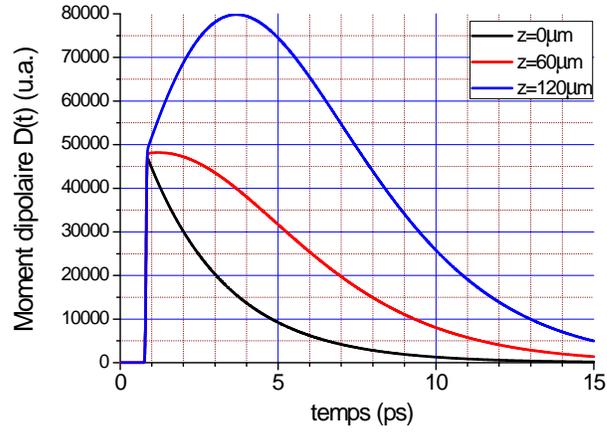


Figure 6.54: Evolution temporelle du moment dipolaire D en plusieurs point donnés près de l'entrée du plasma ($P=20\text{mbar}$)

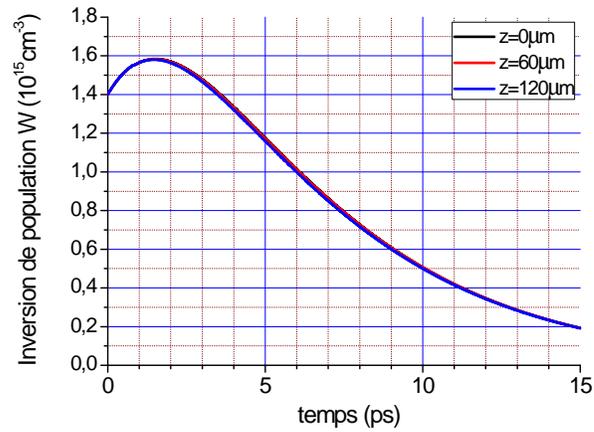
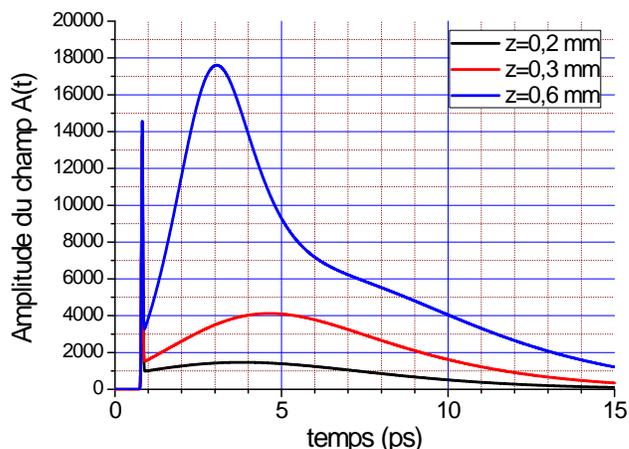


Figure 6.55: Evolution temporelle de l'inversion de population W en plusieurs point donnés près de l'entrée du plasma ($P=20\text{mbar}$)


 Figure 6.56: Profil temporel de l'amplitude du champ à $P = 20\text{mbar}$.

de l'impulsion peut alors être comparée à l'intensité de saturation. Ils se trouve que I_s vaut $3,64 \cdot 10^7 \text{W/cm}^2$ à une pression de 20 millibars : nous entrons donc dans un régime à forte saturation.

L'effet de saturation se retrouve premièrement dans l'inversion de population (figure 6.57). On voit qu'à $z=0,6\text{mm}$, au passage du maximum de l'impulsion autour de $t = 3\text{ps}$, l'inversion de population devient négative, ce qui signifie que le niveau supérieur de la raie laser se dépeuple. La conséquence première de ce dépeuplement est que l'amplitude du moment dipolaire D (figure 6.58) va chuter peu après, vers $t=4\text{ps}$, et devenir négative. A ce moment, le milieu sera absorbant. Ce phénomène est bien lié à la saturation de l'amplification, car il signifie que la puissance que le milieu amplificateur peut transmettre au rayonnement en une zone donnée, proportionnelle à l'inversion de population sans champ dans cette zone, est limitée.

Dans les graphiques 6.59 et 6.60, on voit bien qu'en $z = 0,3\text{mm}$ et $0,6\text{mm}$ la chute de l'inversion de population $W(t)$ coïncide avec l'arrivée du maximum de l'amplitude du champ $A(t)$ à $t = 4\text{ps}$. Réciproquement, la chute rapide de $A(t)$ observée à $z = 0,6\text{mm}$ à partir de $t = 5\text{ps}$ est associée à une inversion de population négative et croissante, ce qui est synonyme d'absorption de photons. Ce phénomène, déjà observable à $z = 0,3\text{mm}$ mais avec une tendance beaucoup moins forte (l'intensité du champ étant insuffisante), aura tendance à s'accroître au fil de la propagation.

6.2.2.3 Evolution à forte saturation

Le graphique 6.61 montre l'évolution du profil temporel à des distances de propagation plus élevées encore que précédemment (supérieures à 1 millimètre). Le dôme du profil temporel $A(t)$ qui s'est formé à l'arrière du pic HHG du champ ressemble de plus en plus à un

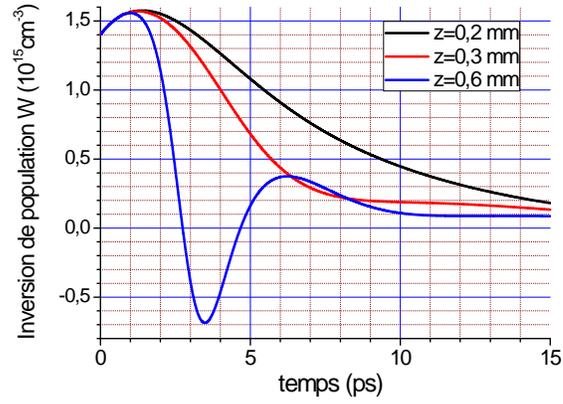


Figure 6.57: Evolution de l'inversion de population $W(t)$ à différents positions sur l'axe z , à $P=20\text{mbar}$, $\Delta t_{IR-XUV} = 3\text{ps}$, et $I_0 = 1,7 \cdot 10^8 \text{W.cm}^{-2}$

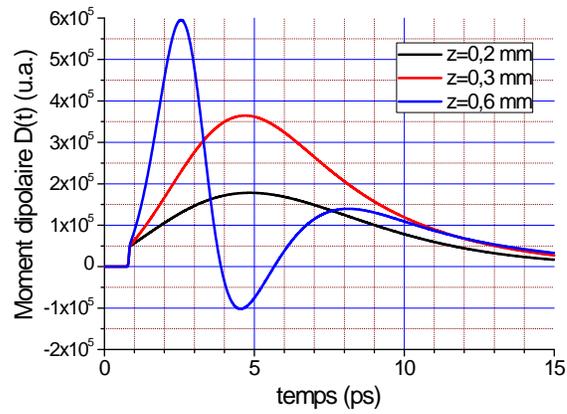


Figure 6.58: Evolution du moment dipolaire $D(t)$ à différents positions sur l'axe z , à $P=20\text{mbar}$, $\Delta t_{IR-XUV} = 3\text{ps}$, et $I_0 = 1,7 \cdot 10^8 \text{W.cm}^{-2}$

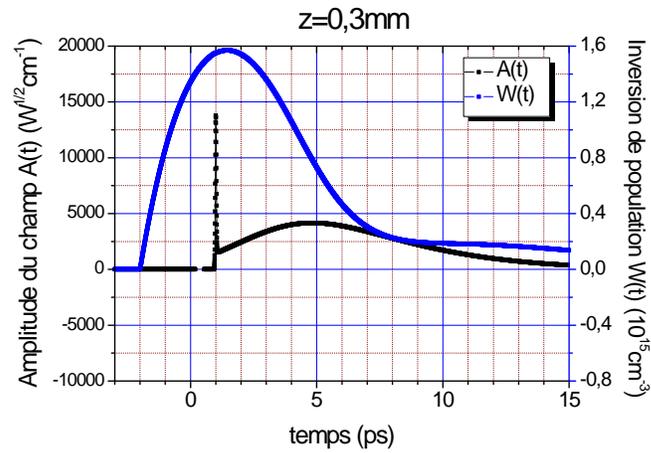


Figure 6.59: En $z=0,3\text{mm}$, profil temporel de l'amplitude du champ $A(t)$ et de l'inversion de population $W(t)$

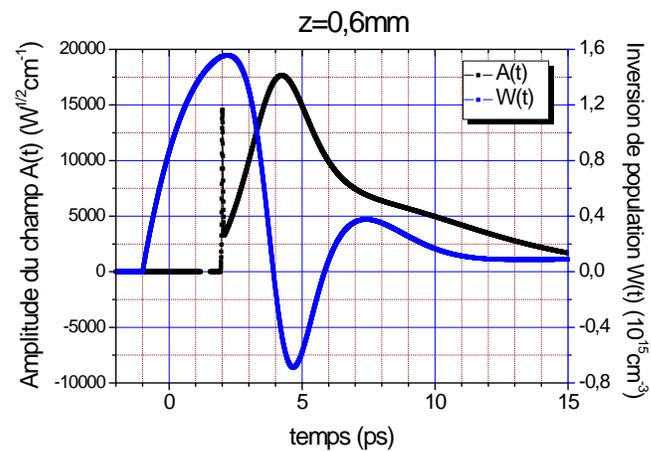
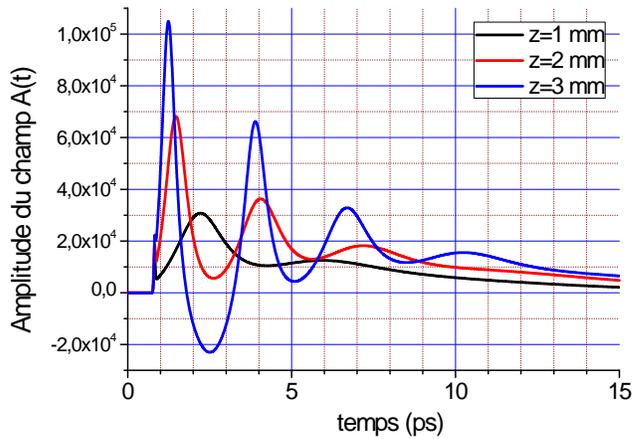


Figure 6.60: En $z = 0,6\text{mm}$ Profil temporel de l'amplitude du champ et de l'inversion de population.


 Figure 6.61: Profil temporel de l'amplitude du champ à $z=1,2$ et 3mm

pic : sa largeur se rétrécit et son sommet augmente. Ce qui était un dôme large à des distances de propagation plus de 10 fois plus courtes ($z = 0,3\text{mm}$) devient maintenant un pic très fin. Une autre caractéristique est que ce pic est le premier de plusieurs oscillations de l'amplitude du champ. Ces oscillations finissent par s'amortir, amenant $A(t)$ vers une valeur d'équilibre. Tout comme le premier pic, toutes les oscillations se font globalement plus amples à mesure que l'impulsion se propage.

À $z = 9\text{mm}$ (figure 6.62), la largeur temporelle du premier pic est maintenant de l'ordre de 100fs à 200fs . Les oscillations qui la suivent semblent complètement anharmoniques puis, avec la relaxation autour de la valeur d'équilibre, redeviennent sinusoïdales.

L'amplitude du champ n'est pas la seule à osciller. Les profils temporels du moment dipolaire $D(t)$ et de l'inversion de population $W(t)$ se caractérisent également par des oscillations amorties, comme le montrent les graphiques 6.63 et 6.64. Ces graphiques confirment aussi que $D(t)$ et $W(t)$ sont interdépendants : chaque maximum de D correspond à une chute de l'inversion de population. On remarquera par ailleurs que les oscillations ne sont pas toujours sinusoïdales, surtout à des distances de propagation élevées. En $z = 3\text{mm}$, le régime d'oscillations, notamment pour $D(t)$, est fortement non linéaire.

Les oscillations de l'inversion de population semblent une nouvelle fois être en forte corrélation avec celle de $A(t)$. Les pics d'oscillations du champ correspondent à une chute de W vers des valeurs négatives. Les oscillations de $W(t)$ sont vues comme un déséquilibre provoqué par le champ intense qui est soumis au milieu amplificateur. Elles s'amortissent lorsque le champ faiblit.

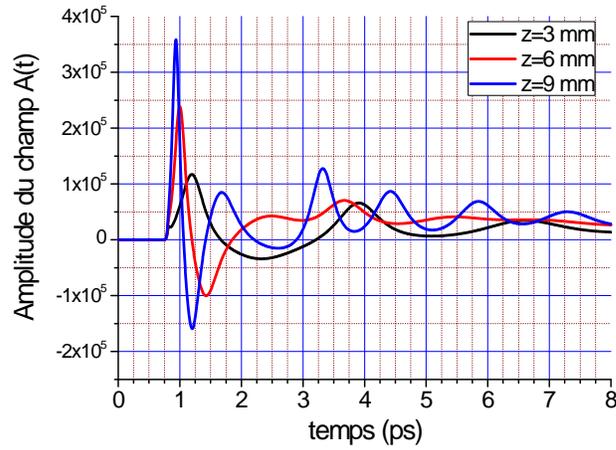


Figure 6.62: Profil temporel de l'amplitude du champ à $z=3,6$ et 9 mm

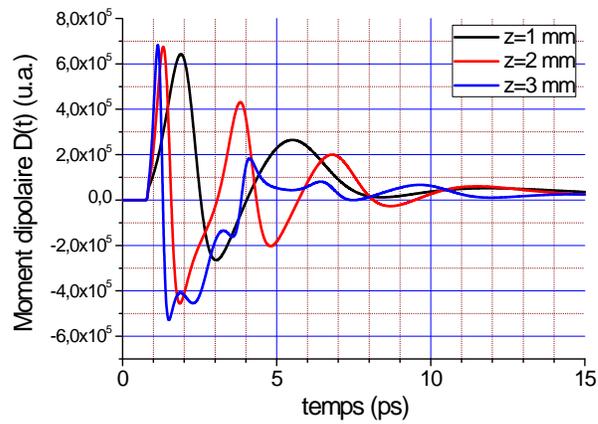


Figure 6.63: Evolution temporelle du moment dipolaire en $z=1, 2$, et 3 mm

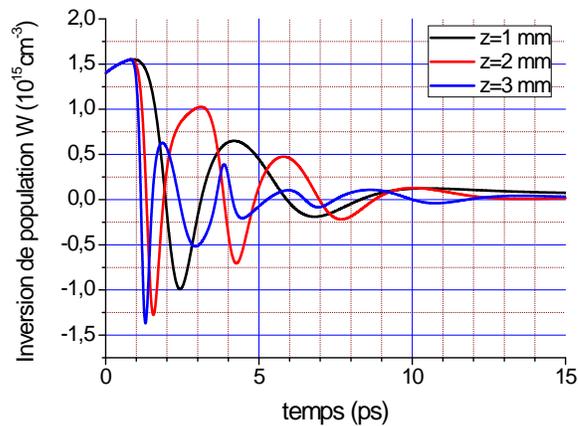


Figure 6.64: Evolution temporelle de l'inversion de l'inversion de population en $z=1,2$ et 3mm

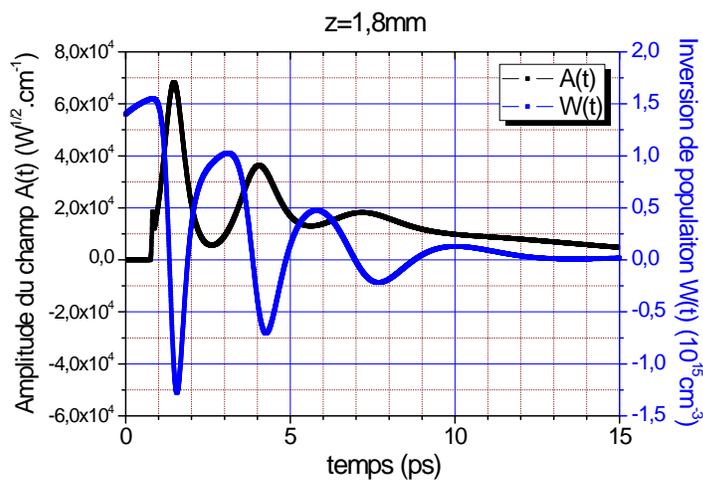


Figure 6.65: Evolution temporelle de l'amplitude du champ électrique et de l'inversion de population en $z = 1,8\text{mm}$

6.2.2.4 Interprétation

Les oscillations de Rabi

Les équations de Maxwell-Bloch (1.364 à 1.366) permettent de trouver l'explication aux oscillations qu'on observe dans le profil temporel à forte saturation. Pour cela, on néglige les termes de relaxation du dipôle et celle de l'inversion de population ($-D/T_2$ et $-(W - W_0)/T_1$). Cela permet d'isoler les dynamiques qui ne dépendent pas des temps T_1 et T_2 , comme les oscillations observées dont la période est très variable. On se retrouve alors avec les équations de \dot{D} et \dot{W} suivantes :

$$\begin{aligned}\dot{D} &= \frac{Z_{F_0} |\vec{M}|^2}{2\hbar} AW \\ \dot{W} &= \frac{3}{2\hbar\omega_{ul}} AD\end{aligned}\tag{2.378}$$

On constate que D et W sont interdépendants. Pour obtenir un résultat analytique, nous allons utiliser le fait que A étant lié à D par une intégration suivant z , a un taux de variation plus faible. Nous allons donc négliger les termes en $\partial A/\partial t$, par rapport à ceux en $\partial D/\partial t$ et en $\partial W/\partial t$. En dérivant la première équation, on fait apparaître \dot{W} , qu'on remplace par son expression de la seconde équation. On obtient ainsi l'équation différentielle de D suivante :

$$\ddot{D} = \left(\frac{3Z_{F_0} |\vec{M}|^2}{4\hbar^2} \right) I.D\tag{2.379}$$

Par le même procédé appliqué à la seconde équation, on trouve également l'équation différentielle suivante pour W :

$$\ddot{W} = \left(\frac{3Z_{F_0} |\vec{M}|^2}{4\hbar^2} \right) I.W\tag{2.380}$$

La résolution de ces équations est simple et montre que D et W ont un comportement oscillatoire, dont la fréquence n'est autre que la fréquence de Rabi Ω_R :

$$\Omega_R = \sqrt{\left(\frac{3Z_{F_0} |\vec{M}|^2}{4\hbar^2} \right) I} = \sqrt{\frac{I}{I_s T_1 T_2}}\tag{2.381}$$

Les oscillations de Rabi ne sont rien d'autre que celles des populations atomiques d'un système à 2 niveaux atomiques sous l'effet d'un champ externe. L'équation 2.381 montre d'ailleurs que la fréquence de Rabi est proportionnelle à la racine carrée de l'intensité I de ce champ. Une autre propriété émergeant cette fois des équations 2.378 est que, comme la dérivée \dot{W} est proportionnelle à D , les oscillations de W et D sont déphasées de $\pi/2$.

Ces oscillations sont celles observées à forte saturation dans l'évolution temporelle du moment dipolaire $D(t)$, et de l'inversion de population $W(t)$, mais également de l'amplitude du champ $A(t)$. Le déphasage est observé sur les courbes, et la période des oscillations est très variable selon sa position sur le profil et selon z . Les oscillations anharmoniques constatées sur les graphiques s'expliquent par le fait que l'amplitude A du champ varie fortement (ainsi donc la période d'oscillation de D et W).

Pour confirmer ces résultats analytiques, on peut reprendre le graphique 6.65 ($z = 1,8mm$). Les 2ème et 3ème oscillations du champ se font autour d'une valeur d'équilibre $A \simeq 2.10^4 W^{1/2}.cm^{-1}$, ce qui correspond à $I = 4.10^8 W/cm^2$. On calcule qu'à cette intensité, la période d'oscillation de Rabi T_R correspond bien à la valeur mesurée sur le graphique $A(t)$:

$$T_R = \frac{2\pi}{\Omega_R} \simeq 3,13ps \quad (2.382)$$

Amortissement des oscillations et valeur d'équilibre

L'amortissement des oscillations observé sur tous les graphiques provient des termes de relaxation $-D/T_2$ et $-(W - W_0)/T_1$. Les temps d'amortissement de D et de W remarqués sont effectivement du même ordre de grandeur que T_1 et T_2 . Cependant, l'accumulation le long du parcours, introduit par l'intégration de l'amplitude du champ, conduit à un allongement du signal lorsque z augmente.

Après la phase d'amortissement des oscillations, les variables A , D et W évoluent lentement et de la même manière. L'explication est que l'évolution devient adiabatique $T_2, T_1 \ll \frac{\partial A}{\partial t}, \frac{\partial D}{\partial t}, \frac{\partial W}{\partial t}$. Dans les équations de Maxwell-Bloch (1.365 et 1.366), on peut alors négliger les termes en $\frac{\partial D}{\partial t}$ et en $\frac{\partial W}{\partial t}$, ceci conduit aux relations suivantes :

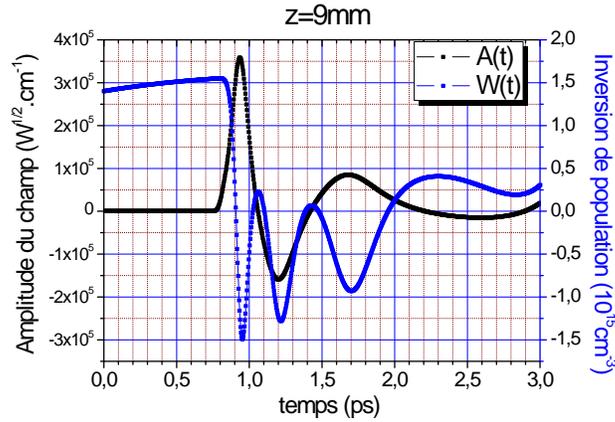
$$\begin{aligned} D_{adia} &\simeq \frac{Z_{F_0}\omega_{ul}}{2\hbar} \left| \vec{M} \right|^2 AT_2 W_{adia} \\ W_{adia} &\simeq \frac{W_0}{1 + \frac{I}{I_s}} \end{aligned} \quad (2.383)$$

En intégrant ces relations dans l'équation de propagation du champ (1.364), on retrouve l'équation classique d'amplification de l'intensité laser :

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c_0} \frac{\partial}{\partial t} \right\} I = \frac{G_0}{1 + \frac{I}{I_s}} I \quad (2.384)$$

$$G_0 = \frac{Z_{F_0}\omega_{ul}}{\hbar} \left| \vec{M} \right|^2 T_2 W_0 \quad (2.385)$$

Un défaut majeur de l'approximation adiabatique ci-dessus est de négliger la dispersion par le gain, qui même dans les cas où l'évolution temporelle de l'intensité est lente par rapport à T_2 et T_1 joue un rôle important pour des propagations sur plusieurs mm. On peut remarquer en particulier que dans l'équation ci-dessus, une zone de champ nul restera sans champ (dans le référentiel lié à l'impulsion) alors qu'en réalité il y a un allongement de


 Figure 6.66: Evolution temporelle de l'amplitude du champ et de l'inversion de population en $z=9\text{mm}$.

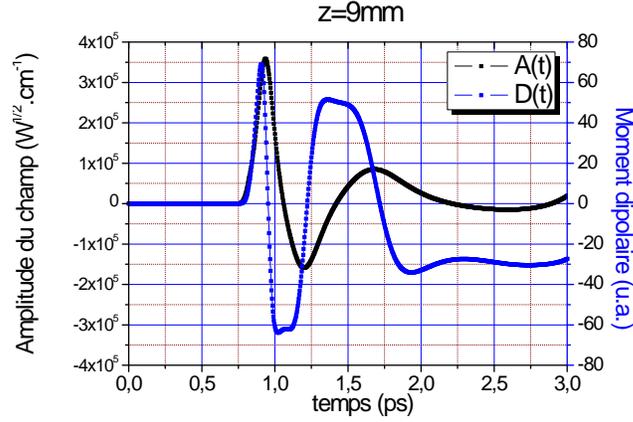
l'impulsion. Cet effet peut être pris en compte en ne prenant l'approximation adiabatique qu'au second ordre (on pose $\frac{\partial^2 D}{\partial t^2} = 0$ au lieu de $\frac{\partial D}{\partial t} = 0$). On trouve alors que dans l'équation de propagation, c_0 doit être remplacé par une vitesse de groupe dépendant du gain. C'est cette approximation adiabatique au deuxième ordre qui a été utilisée dans le code COFIXE (voir la thèse d'Amar Boudaa [1]).

Evolution du 1er pic d'oscillation

On peut remarquer que le premier pic d'oscillation (celui derrière le pic initial HHG), qui avait aux premiers instants de propagation une forme arrondie et une largeur temporelle significative (plusieurs picosecondes), s'affine et grandit au cours de la propagation. Cette évolution est très visible dans les graphiques 6.61 et 6.62. A $z = 9\text{mm}$ où la saturation est très forte, son amplitude est 3 fois plus grande que les autres pics (soit à peu près un facteur 10 en intensité).

D'après la figure 6.66 ci-dessous à gauche, au passage du premier pic d'oscillation ($t = 1\text{ps}$) en $z = 9\text{mm}$, l'inversion de population passe, en un temps de $0,15\text{ps}$ environ, d'une valeur de $W = 1,5 \cdot 10^{15} \text{cm}^{-3}$ à une valeur diamétralement opposée $W = -1,5 \cdot 10^{15} \text{cm}^{-3}$ au moment où $A(t)$ est maximum. C'est à ce minimum de $W(t)$ que $D(t)$ devient négatif (figure 6.67), traduisant une absorption du champ incident à ce moment. Le résultat de cette dynamique est une amplification à l'avant de ce pic, et une absorption à l'arrière. Cette dynamique contribue ainsi à affiner le pic et dans le même temps à augmenter la valeur maximale d'intensité.

La durée du pic peut être estimée. En effet, son intensité est si élevée et sa durée si courte qu'on se retrouve dans un régime similaire à celui des oscillations de Rabi, à part que durant cette période, l'intensité est fortement variable. Néanmoins, on peut utiliser une valeur moyenne de $A \simeq 2 \cdot 10^5 W^{1/2} \cdot \text{cm}^{-1}$ selon les graphiques pour $z=9\text{mm}$. En prenant cette valeur, la période de Rabi vaut dans ce cas $T_R = 0,31\text{ps}$. La corrélation entre ce calcul


 Figure 6.67: Evolution temporelle de l'amplitude du champ et du moment dipolaire en $z=9\text{mm}$.

et le résultat de la simulation est plutôt bonne car le passage de l'inversion de population de $1,5 \cdot 10^{15} \text{cm}^{-3}$ à $-1,5 \cdot 10^{15} \text{cm}^{-3}$ en $0,15 \text{ps}$ peut être assimilé à une demi-période d'oscillation. Au niveau du pic de $A(t)$, T_R correspond au temps séparant les valeurs $A \simeq 0$ à l'avant et à l'arrière du pic. La durée du pic vaudrait alors à peu près :

$$\Delta t_{pic} \simeq \frac{1}{2} T_R = 2\pi \sqrt{\frac{I_s T_1 T_2}{I}}, \quad (2.386)$$

I est l'intensité au sommet du pic. On peut retrouver que $I_s T_1 T_2$ est uniquement fonction de constantes atomiques et de la force d'oscillateur de la transition laser. Elle est donc indépendante de tout paramètre pouvant affecter l'amplification. Finalement, la durée du pic dépend uniquement de l'intensité I , à savoir qu'elle est inversement proportionnelle à la racine carrée de cette intensité.

Enfin, on peut supposer que l'augmentation de l'intensité du pic dépend uniquement de l'inversion de population sans champ W_{NR} au niveau du pic, qui dépend elle-même de $\Delta t_{IR-X-UV}$ et de la pression P du gaz cible. Si cette hypothèse est vérifiable dans les équations, elle l'est également dans les courbes. La chute de l'inversion de population de $W = W_{NR}$ à $W = -W_{NR}$ au passage signifie un transfert de l'énergie correspondant à cette chute dans l'intensité du pic. Au cours de la propagation, l'augmentation de l'énergie du premier pic est donc une constante liée à l'énergie E_u disponible par unité de longueur

traversée en vidant entièrement le niveau supérieur de la raie laser, on a ainsi :

$$\frac{\partial E_{pic}}{\partial z} = E_u \quad (2.387)$$

$$\frac{\partial \Delta t_{pic} I_{pic}}{\partial z} \propto E_u \quad (2.388)$$

$$\frac{\partial \sqrt{I_{pic}}}{\partial z} \propto E_u \quad (2.389)$$

$$I_{pic} \propto z^2 \quad (2.390)$$

$$\Delta t_{pic} \propto \frac{1}{z} \quad (2.391)$$

Le modèle prévoit donc que l'énergie du pic principal augmente linéairement avec la distance (d'amplification), que sa durée diminue comme l'inverse de la distance et que son intensité maximale augmente comme le carré de la distance. Cette dernière relation est bien vérifiée sur la figure (6.62) où l'on observe qu'entre 3 et 9 mm, l'amplitude augmente linéairement avec z .

6.2.2.5 Evolution du profil spectral

A faible saturation

Au cours de l'amplification, tout comme le profil temporel, le profil spectral est amené à évoluer. Lors de son entrée dans le plasma, l'impulsion HHG possède un profil spectral de forme Gaussienne dont la largeur $\Delta\omega_{HHG}$ est élevée comparée à celle de la raie laser. En effet, la durée d'impulsion est de $\Delta t_{HHG} = 35 fs$ alors que le temps de relaxation de la polarisation est de $T_2 \approx 1 ps$. La largeur de raie est donc bien inférieure à la largeur spectrale initiale : $\Delta\omega_{raie} = \pi/T_2 \ll \pi/\Delta t_{HHG} = \Delta\omega_{HHG}$.

Cette différence de largeur est illustrée par les graphiques 6.68 et 6.69. Ils montrent le profil spectral à de très courtes longueurs de propagation (début de l'amplification). On remarque qu'un pic d'amplification très fin se forme, centré sur la longueur d'onde de la raie laser ($\lambda = 2\pi c/\omega_{ul} \simeq 32,81 nm$ pour le Kr^{8+}), qui correspond au centre de la gaussienne du profil HHG. Ce pic augmente en intensité au cours de l'amplification pour conduire, au moment où on atteint la saturation, à un profil spectral plus étroit que le profil lorentzien du gain (figure 6.69).

A forte saturation

L'amplification du pic fin central conduit normalement à son affinement. La durée limitée du gain (décrite par l'inversion de population sans champ $W_{NR}(t)$) ainsi que la saturation contribuent à limiter cet affinement.

Mais l'effet principal de la saturation est l'apparition de bandes latérales (sidebands) de part et d'autre de la fréquence centrale de la raie laser. Elle sont liées aux oscillations de

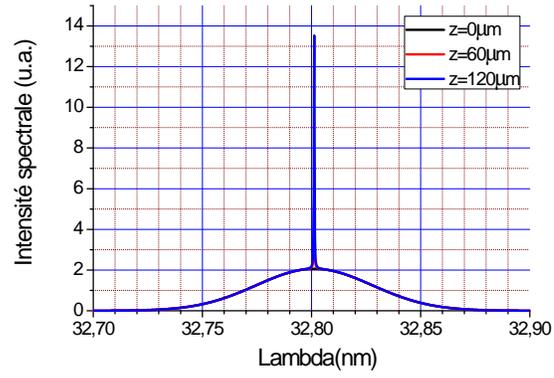


Figure 6.68: Profil spectral du champ $I(\lambda)$ à de faibles distances de propagation.

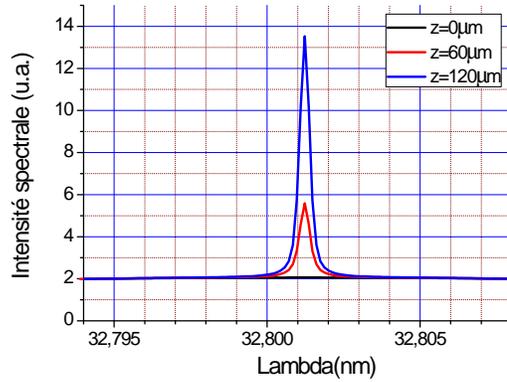


Figure 6.69: Zoom sur le profil spectral à l'endroit du pic d'amplification.

Rabi et il est prévu qu'elles se trouvent à des fréquences $\omega_{\pm} = \omega_{eg} \pm 2\Omega_R$, ce qui correspond à $\lambda_{\pm} = \lambda_0 \pm \Delta\lambda = \lambda_0 \left(1 \pm \frac{\lambda_0}{cT_R}\right)$, λ_0 étant la longueur d'onde raie laser. La figure 6.70 illustre le spectre du rayonnement avec des sidebands. La courbe à $z = 1,8mm$ peut être comparée à la courbe du profil temporel 6.65, dont la période des oscillations de Rabi avait été calculée à $T_R \simeq 3ps$ 2.382. Elle correspond à un $\Delta\lambda = 1,195.10^{-3}nm$, valeur qui est observé sur le profil spectral.

Par ailleurs, il semble que d'autres bandes apparaissent à des distances de propagation plus élevées ($z = 2,7mm$) en deçà et au-delà de la bande initiale par rapport à λ_0 . Cela est dû au même fait que la fréquence de Rabi Ω_R est proportionnelle à l'intensité du champ $I(t)$: en effet, au cours de la propagation, la variabilité de cette intensité augmente au fil de la propagation, la bande est de moins en moins centrée sur sa position initiale.

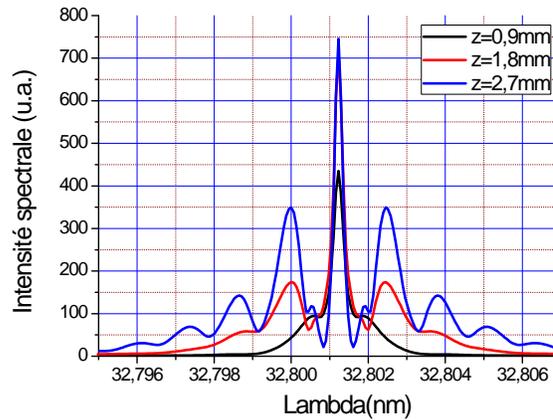


Figure 6.70: Profil spectral $I(\lambda)$ à des distances de propagation correspondant à une forte saturation

Il faut noter qu'il n'y a pas eu, jusqu'à présent, de confirmation expérimentales de la présence des oscillations de Rabi dans l'amplification d'un signal HHG, ou alors à un niveau beaucoup plus faible que celui que nous avons obtenu. Il est clair que nous avons choisi une situation optimisée d'un plasma uniforme ayant les conditions optimales d'amplification. Les variations transverses du gain conduisent probablement à un brouillage de ces oscillations. Néanmoins, il paraît assez surprenant de ne pas les observer. Un test plus direct pourrait être réalisé par une mesure du profil temporel de l'impulsion, avec la contrainte d'avoir une résolution temporelle de l'ordre de la centaine de fs.

6.2.2.6 Evolution du facteur d'amplification

Les 2 graphiques 6.71 et 6.72 montrent l'évolution du facteur d'amplification, noté $F(z)$, au cours de la propagation. Cette grandeur physique correspond au rapport entre l'énergie d'impulsion traversant un point de l'axe z donné $E_{X-UV}(z)$ et l'énergie d'impulsion initiale

$E_{X-UV}(0)$. Il s'agit de la même donnée sur les 2 graphiques, l'un ayant un axe des ordonnées linéaire (6.71), et l'autre logarithmique (6.72).

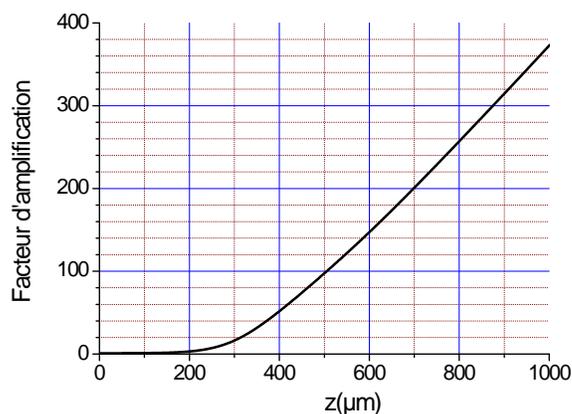


Figure 6.71: Evolution du facteur d'amplification en fonction de la distance parcourue par le signal XUV.

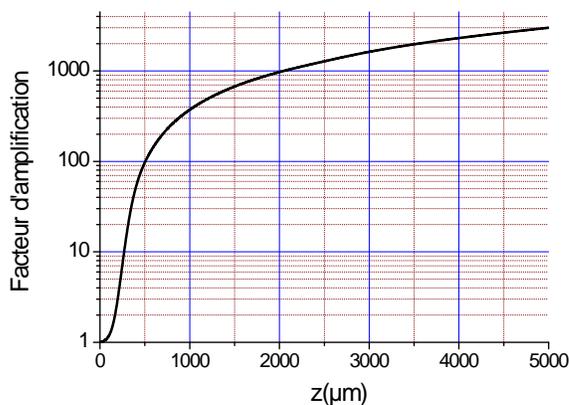


Figure 6.72: Même courbe que la précédente, avec l'abscisse en échelle logarithmique

Les courbes montrent 2 phases distinctes dans l'amplification. La première phase ($z = 0mm$ à $z = 0,3mm$) est une augmentation lente tout d'abord, puis exponentielle de l'énergie d'impulsion. Cette phase correspond à un régime à faible saturation. En effet, d'après le graphique 6.57 qui montre l'inversion de population au même intervalle de z et avec les mêmes paramètres de simulation, l'inversion de population commence à être affectée à partir de $z = 0,3mm$. Les 2 données montrent que la saturation se fait sentir à partir de $z = 0,5mm$ (point d'inflexion pour la courbe $F(z)$ à échelle logarithmique, oscillations pour le profil temporel).

Lorsque la saturation est atteinte, l'augmentation de l'énergie d'impulsion devient linéaire. Dans l'équation de propagation considérant l'approximation adiabatique, on peut retrouver cette dynamique à $I \gg I_s$. Dans le membre de droite de cette équation apparaît alors un terme constant $G_0 I_s$:

$$\left\{ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c_0} \frac{\partial}{\partial t} \right\} I = \frac{G_0}{1 + \frac{I}{I_s}} I \simeq \frac{G_0}{\frac{I}{I_s}} I = G_0 I_s \quad (2.392)$$

On peut observer que les facteurs d'amplification sont très élevés (rappelons que nous partons d'une énergie initiale de 1 nJ) qui laisserait penser que nous atteignons des énergies de plusieurs μJ pour une longueur d'amplification de 5 mm. Expérimentalement, le facteur d'amplification varie assez fortement suivant la configuration et la qualité des faisceaux laser de pompe et HHG. Dans nos calculs nous avons considéré une situation optimale, mais expérimentalement il y a de nombreux paramètres qui expliquent que l'on peut s'écarter assez fortement de la valeur théorique. Un premier effet est purement géométrique : le diamètre du plasma est inférieur à celui de l'harmonique injecté, donc l'énergie réellement introduite dans le plasma est inférieure au nJ. Notons simplement que nous obtenons le bon ordre de grandeur : dans une configuration optimisée, le facteur d'amplification peut s'approcher d'un facteur 1000, ce qui est assez considérable. Il faut tout de même remarquer qu'une partie significative de cette amplification est due à l'augmentation de la durée de l'impulsion.

6.2.3 Influence des temps de relaxation sur l'amplification

Les temps de relaxation T_1 et T_2 qui figurent dans les équations de Maxwell-Bloch jouent un rôle important dans l'évolution du profil temporel et du facteur d'amplification. Ce rôle est déterminé par les résultats du code. Par ailleurs, lorsqu'on change la pression du gaz cible, les temps de relaxation changent car ils dépendent principalement de la fréquence des collisions électron-ion.

6.2.3.1 Influence de T_2

T_2 est pour rappel le temps de relaxation de phase de la polarisation. Il est aussi relié à la largeur de la raie laser $\Delta\omega_{raie} \simeq 2/T_2$. Il dépend de la température du plasma (électronique et ionique) qui déterminent notamment la fréquence des collisions électron-ion et les interactions électrostatiques entre ions. La valeur de T_2 est limitée par le critère $T_2 \leq 2T_1$, la valeur $T_2 = 2T_1$ signifiant l'absence de processus pouvant provoquer le déphasage des dipôles. Tout phénomène venant déphaser les dipôles va participer à une diminution de la valeur de T_2 . Le temps T_2 est une valeur plus difficile à évaluer avec précision que T_1 , déterminé par les coefficients atomiques. C'est pourquoi il nous semble utile de voir ce qui se passe si on modifie sa valeur.

Etude du facteur d'amplification à plusieurs valeurs de T_2

Le graphique suivant 6.73 montre l'évolution du facteur d'amplification F en fonction de la distance d'amplification pour plusieurs valeurs de T_2 . La valeur la plus élevée $T_2 = 2,54ps$ correspond à celle calculée par le code OFI-0D. Dans OFI-0D, seuls les processus inélastiques sont pris en compte. On peut donc considérer que ce paramètre fournit l'amplification maximale possible. Car en pratique, les processus élastiques existent et induisent une réduction de T_2 donc de l'amplification.

La différence entre les 3 courbes illustrées se trouve surtout avant le point d'inflexion correspondant au seuil de forte saturation. Avant ce point d'inflexion, la pente de ces courbes, qui est proportionnelle au gain à faible saturation, diffère. Cette tendance est en accord avec l'expression du gain adiabatique à faible saturation $G_0 = 2.385$, qui montre une relation de proportionnalité avec T_2 .

À forte saturation, les courbes redeviennent parallèles ce qui signifie que le gain à ce régime d'amplification est le même quel que soit T_2 . Cette évolution de F est également en accord avec le résultat adiabatique. On voit en effet dans l'équation 2.392 que $G_0 I_s$ ne dépend pas de T_2 .

Il peut paraître étonnant qu'avant saturation on trouve la même tendance que l'approche adiabatique, c'est-à-dire que l'amplification décroisse avec T_2 . En effet, l'impulsion HHG est très courte ce qui conduit à un profil large. La largeur du profil de gain, beaucoup plus étroite, est inversement proportionnelle à T_2 . Dans une première approche, on aurait pu penser qu'en diminuant T_2 , on élargit le profil et on obtient un meilleur couplage avec le signal injecté. La réponse se trouve dans notre analyse en début de chapitre de l'amplification près de l'entrée. Nous avons vu que l'amplification sur la durée du signal HHG est indépendante de T_2 . T_2 ne va intervenir que sur le temps de relaxation. Plus il sera court, moins il y aura d'énergie. La diminution de l'énergie avec T_2 est donc, à faible signal, directement liée à la diminution de la durée de la relaxation, comme le montrent les résultats des prochains graphiques.

6.2.3.2 Evolution du profil temporel

On illustre par les graphiques 6.74 et 6.75 le profil temporel du champ à faible et à forte saturations, aux mêmes différentes valeurs de T_2 que pour $F(z)$. La différence la plus frappante concerne la durée de l'impulsion. À $z = 0,6mm$, cette durée n'atteint qu'environ $2ps$ pour $T_2 = 0,63ps$, alors qu'elle est supérieure à $10ps$ pour un T_2 4 fois plus grand. Cette différence se réduit à forte saturation ($z = 3mm$), bien qu'elle existe toujours. Par contre, le premier pic d'amplification garde à peu près la même dimension quelque soit T_2 , ce qui va dans le sens de l'hypothèse émise dans l'étude de ce pic, à savoir qu'il ne dépend que de coefficients atomiques et de z .

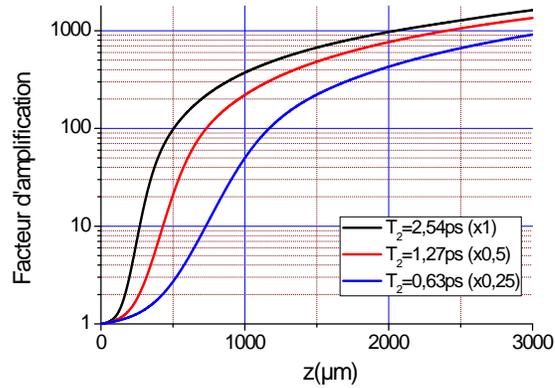


Figure 6.73: Evolution du facteur d'amplification pour différentes valeurs de T_2 ($T_2 = 2,54\text{ps}$ correspondant à la valeur calculée par OFI-0D)

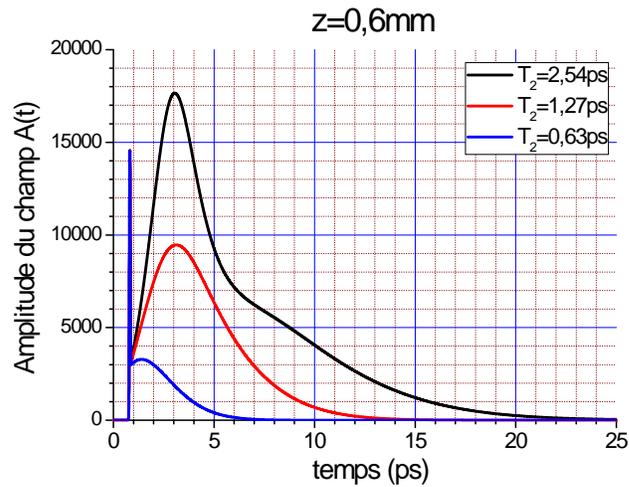


Figure 6.74: Profil temporel de l'amplitude du champ en $z=0,6\text{mm}$ et pour différentes valeurs de T_2 ($T_2 = 2,54\text{ps}$ correspondant à la valeur calculée par OFI-0D)

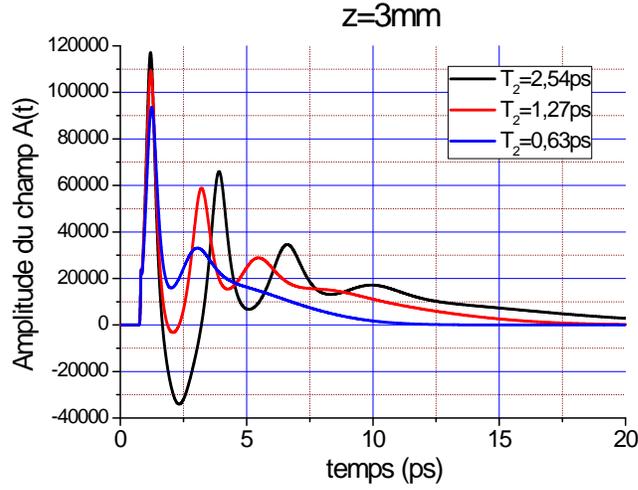


Figure 6.75: Profil temporel de l'amplitude du champ en $z=3\text{mm}$, à différentes valeurs de T_2

6.2.3.3 Influence de T_1

T_1 est le temps de recouvrement du gain (ou de l'inversion de population). Il est lié à la fréquence des processus atomiques assurant le repeuplement du niveau supérieur de la raie laser. On étudie son influence sur l'évolution du facteur d'amplification. Le graphique 6.76 ci-dessous montre $F(z)$ à plusieurs valeurs de T_1 (T_2 laissé constant). Aucune différence notable ne se fait à faible saturation ($z < 0,4\text{mm}$). A forte saturation, elle existe et s'explique par le fait que l'amplification dépend de la vitesse à laquelle le niveau supérieur de la raie laser se repeuple lorsqu'un champ intense vient le dépeupler brutalement. L'indépendance de l'amplification vis-à-vis de T_1 loin de la saturation est évidente, puisque l'inversion de population à ce stade reste proche de sa valeur sans champ $W \simeq W_{NR}$, valeur qui ne dépend pas de T_1 . A forte saturation, on peut remarquer que F est proportionnel à T_1 , ce qui est conforme au résultat adiabatique.

6.2.4 Influence des paramètres expérimentaux sur l'amplification

6.2.4.1 Influence du retard $\Delta t_{IR-X-UV}$

Le retard de l'impulsion X-UV par rapport à l'impulsion Infrarouge joue un rôle important dans l'amplification car il détermine la position du pic HHG dans la courbe $W(t)$, ce qui aura une incidence à la fois sur le profil temporel et sur le facteur d'amplification.

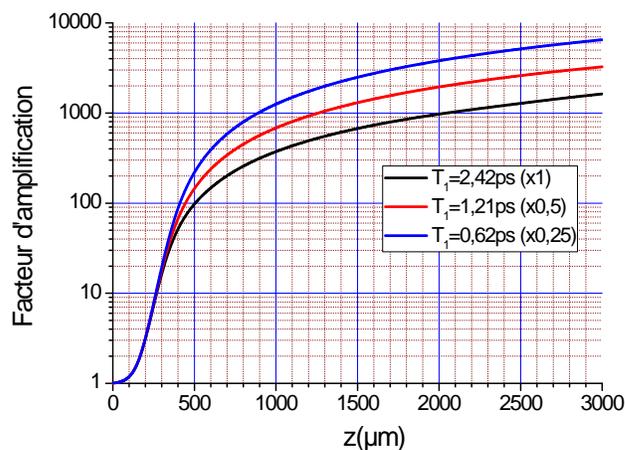


Figure 6.76: Evolution du facteur d'amplification en fonction de la distance de propagation, pour différentes valeurs de T_1 ($T_1 = 2,42ps$ correspondant à la valeur calculée par OFI-0D)

Profil temporel

L'influence du retard de l'impulsion est illustré dans la figure 6.77 décrivant les profils temporels à $z = 0, 3mm$ à plusieurs $\Delta t_{IR-X-UV}$, avec leur position dans la courbe d'inversion de population $W(t)$. On en déduit clairement que si le retard de l'impulsion HHG est trop important, l'amplification ne sera pas optimale car elle ne se fera pas sur toute la longueur du milieu amplificateur.

Le graphique 6.78 montre le profil temporel du signal sur une distance plus importante, pour plusieurs $\Delta t_{IR-X-UV}$. Le signal est beaucoup plus saturé et amplifié lorsque l'impulsion HHG est injectée en amont du maximum de la courbe d'inversion de population $W(t)$. Il est intéressant de remarquer que le pic principal est favorisé par un délai assez long. Pour le délai correspondant au maximum du gain, le premier pic est fortement amplifié. Pour une grande valeur du délai (10 ps) le gain a diminué, mais la durée du premier pic également, pic qui redevient prédominant à ce délai.

Energie d'impulsion

Le graphique suivant 6.79 illustre des courbes de valeurs d'énergie d'impulsion en fonction de $\Delta t_{IR-X-UV}$ à plusieurs longueurs d'amplification. L'ordonnée, représente l'énergie d'impulsion $E_{X-UV}(z)$ retranchée de l'énergie injectée $E_{X-UV}(0)$; chaque courbe est renormalisée à 1 pour sa valeur maximale.

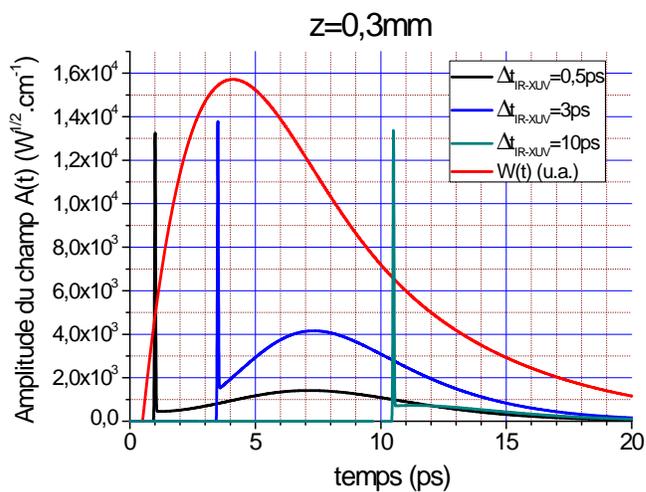


Figure 6.77: Profils temporels du champ en $z=0,3\text{mm}$ pour différentes valeurs du délai Δt_{IR-XUV} , comparés avec la courbe d'inversion de population sans champ $W(t)$. Le temps $t=0$ correspond ici au passage du laser de pompe.

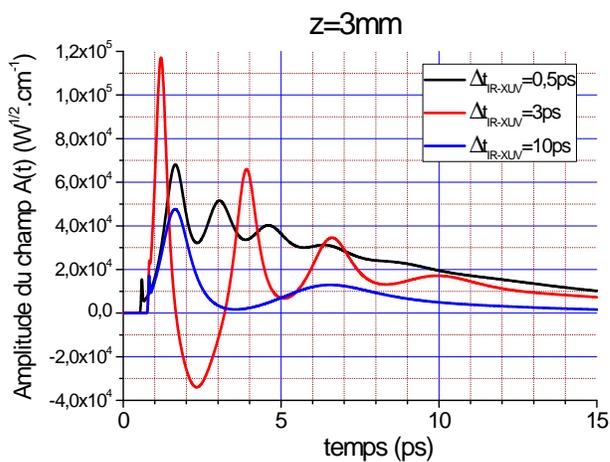


Figure 6.78: Profil temporel du champ en $z=3\text{mm}$ à différentes valeurs du délai entre le laser de pompe et l'impulsion HHG

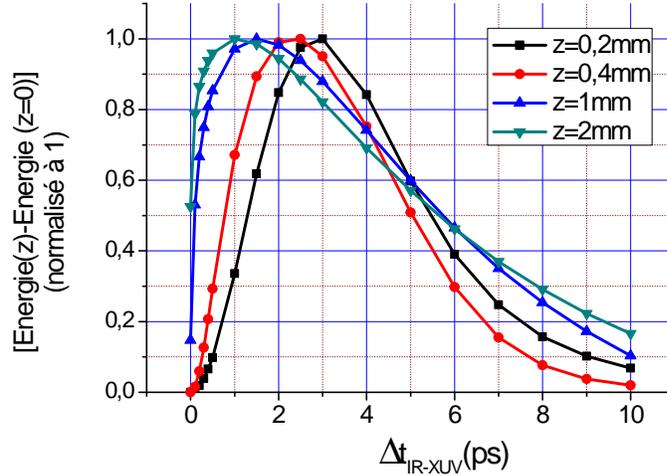


Figure 6.79: Facteur d'amplification en fonction du délai et différentes distances de propagation

A très faible saturation, la position de l'optimum se trouve à $\Delta t_{IR-X-UV} = 3ps$, correspondant au maximum d'inversion de population. L'explication est qu'à ce régime, l'impulsion est plus confinée (durée plus courte). Son gain en énergie est donc relié à l'inversion de population locale. Le facteur d'amplification est donc de la forme $F \simeq \exp(\alpha W_0)$ à z constant (α est une constante).

A des z plus élevés (forte saturation), l'impulsion s'étant étalée à l'arrière du pic HHG, le facteur d'amplification dépend de la surface d'inversion de population couverte par l'impulsion, c'est-à-dire entre $t' = \Delta t_{IR-X-UV}$ et $t' = +\infty$, ce qui explique pourquoi F devient optimal à des valeurs de $\Delta t_{IR-X-UV}$ proches de 0ps.

Les résultats expérimentaux (figure 6.80) montrent une courbe du facteur d'amplification en fonction du retard (délai) ressemblant plutôt à la courbe à faible saturation pour ce qui est de la position du maximum, alors qu'il est certain que nous sommes à forte saturation. La largeur à mi-hauteur de l'ordre de 4 ps expérimentalement est en assez bon accord avec la valeur théorique de 5 ps.

En ce qui concerne l'évolution de l'amplification à faible délai, les résultats expérimentaux font penser à un retard à l'allumage du gain de l'ordre de 2 ps à 20 mbar. L'explication de ce retard n'a pas encore été trouvée. Une piste possible est le peuplement des trois états dégénérés du niveau bas de la transition laser. Nous avons supposé qu'ils étaient également peuplés par collision électronique. Dans ce cas, l'inversion de population apparaît immédiatement. Les électrons créés par OFI n'ont pas une distribution de vitesse isotrope puisque le champ est perpendiculaire à l'axe z . Cela peut créer une dissymétrie de peuplement. Le retard à l'allumage serait donc lié à l'isotropisation de la fonction de distribution des vitesses. Un temps caractéristique de 2 ps semble être le bon ordre de grandeur. Ceci n'est pour l'instant qu'une hypothèse qui doit être confirmée par un calcul quantique. Il faut toutefois

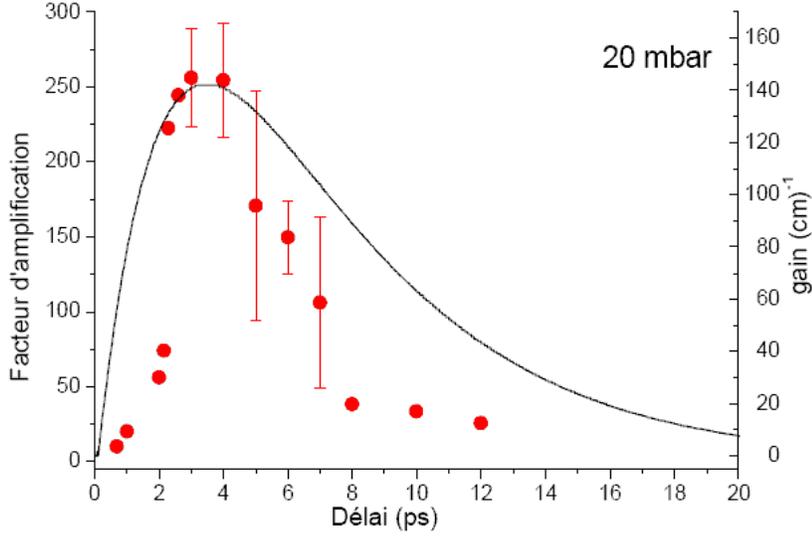


Figure 6.80: Résultat expérimental montrant le facteur d'amplification en fonction du retard Δt_{IR-XUV} à $P = 20\text{mbar}$. à une longueur de propagation $L = 7,5\text{mm}$. L correspond à la longueur de plasma et non de milieu amplificateur (Graphique issu de la thèse J.P.Goddet [38]). La courbe de gain correspond au résultat OFI-0D à $P = 20\text{mbar}$.

noter qu'il y a une assez grande dispersion des résultats expérimentaux sur le retard du gain et en particulier sur sa dépendance avec la pression.

6.2.4.2 Amplification en fonction de l'intensité I_0 de l'harmonique injectée

On calcule le facteur d'amplification F en fonction de z avec différentes intensités d'impulsion X-UV injectées. La durée d'impulsion reste constante, l'énergie $E_{HHG}(0)$ injectée augmente donc linéairement avec l'intensité. On obtient les résultats suivants :

A faible épaisseur nous retrouvons le résultat du début du chapitre : l'énergie en sortie est proportionnelle à l'énergie injectée. A forte saturation, on observe un fort rapprochement des courbes. L'énergie en sortie ne dépend que faiblement de l'énergie en entrée. L'approximation adiabatique redonne bien ce résultat puisque le gain linéaire en énergie devient indépendant de l'intensité. Par conséquent, si on souhaite avoir en sortie du plasma l'énergie la plus élevée possible, l'énergie d'injection n'est pas un paramètre prépondérant. Il est toutefois important que l'énergie injectée soit suffisante pour dominer l'émission spontanée, source d'incohérence du faisceau. Il est également intéressant d'atteindre assez rapidement le régime de saturation pour augmenter l'uniformité transverse du gain. En effet, à faible saturation une variation de la longueur d'amplification a une influence beaucoup plus forte que dans le régime fortement saturé. On peut remarquer que la relation linéaire observée en entrée du plasma entre l'énergie injectée et l'énergie de sortie est valable même pour des intensités du signal HHG largement supérieures à l'intensité de saturation. Ceci est une autre illustration du fait qu'en entrée du plasma l'amplification est indépendante des temps T_1 et T_2 . Elles ne

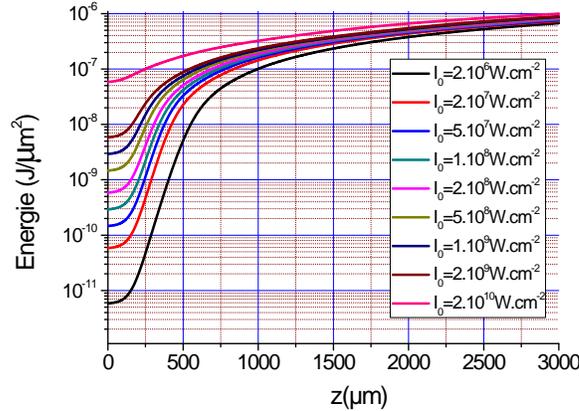


Figure 6.81: Evolution du facteur d'amplification en fonction de z , pour différentes valeurs de l'intensité initiale I_0 de l'HHG injectée

dépendent que de l'inversion de populations et de grandeurs atomiques (force d'oscillateur de la raie).

6.2.4.3 Influence de la pression

La pression du gaz cible est un paramètre accessible expérimentalement. Comme nous l'avons déjà vu auparavant, elle détermine l'évolution du gain à faible signal du milieu amplificateur (proportionnel à W_0) en un point donné, notamment la durée de ce gain et sa valeur maximale. On rappelle, d'après les résultats OFI-0D du chapitre IV, que plus la pression initiale du gaz est élevée, plus la durée du gain est faible mais plus sa valeur maximum est élevée (dans la courbe d'évolution temporelle). La pression du gaz influence également directement les valeurs des temps de relaxation T_1 et T_2 . On note dans le tableau ci-dessous les valeurs calculées par OFI-0D, à diverses pressions. Les temps de relaxation deviennent plus courts lorsque la pression est plus élevée. La dépendance pas tout à fait linéaire entre l'inverse de la pression et les temps traduit la contribution des transitions radiatives, contribution qui diminue avec la pression.

P(mbar)	$T_1(ps)$	$T_2(ps)$
5	6,53	10,77
10	4,14	6,83
15	3,06	4,98
20	2,43	3,90
30	1,72	2,75
40	1,33	2,12
50	1,08	1,73

(2.393)

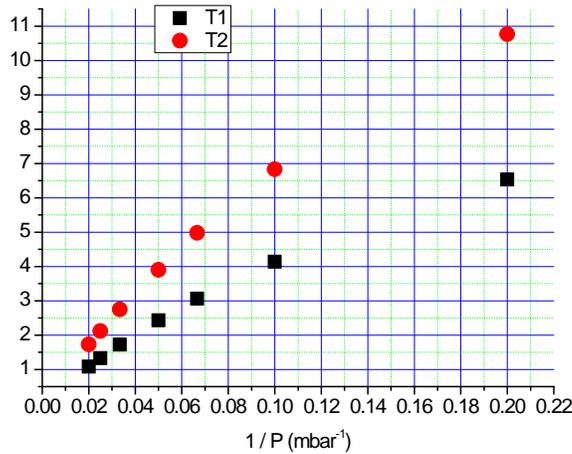


Figure 6.82: Evolution des valeurs de T_1 et de T_2 calculées par OFI-0D en fonction de la pression du gaz cible

Ceci se vérifie sur le graphe suivant où les valeurs de T_1 et T_2 sont reportées en fonction de l'inverse de la pression. On observe bien une dépendance linéaire à forte pression et ensuite une certaine saturation lorsque la pression diminue.

Facteur d'amplification

La figure 6.83 ci-dessous montre les courbes de $F(z)$ aux pressions $P=5, 20$ et 50 mbar calculées par COFIXE_MB pour un $\Delta t_{IR-X-UV} = 3ps$ et des intensités d'injection identiques. Nous retrouvons bien une amplification plus forte à faible et à forte saturation pour les pressions plus élevées.

L'augmentation du facteur d'amplification avec la pression vient de la combinaison de deux effets : le gain en intensité augmente fortement avec la pression et la durée décroît comme l'inverse de la pression. Le fait que l'énergie augmente démontre que l'augmentation du gain est plus que linéaire. Le facteur d'amplification est donc une fonction croissante de la pression pour une longueur de plasma donnée, alors qu'expérimentalement on observe un maximum autour de 20-25 mbar. Cette différence vient du fait que la longueur du plasma amplificateur, et plus généralement son volume, décroît avec la pression, pour produire au final une valeur de pression optimale.

Profil temporel de l'intensité

On compare le profil temporel de l'impulsion, cette fois en intensité $I(t)$, calculé à la pression la plus basse $P=5$ mbar, avec le profil calculé à la pression la plus élevée $P=50$ mbar. Les graphiques 6.84 et 6.85 montrent des profils à forte saturation entre $z=1$ mm et $z=4$ mm.

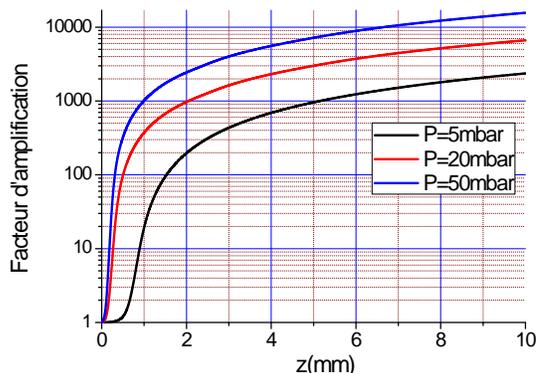


Figure 6.83: Evolution du facteur d'amplification au cours de la propagation pour différentes valeurs de pression du gaz cible.

On peut faire 2 constats. Le premier est que la durée d'impulsion est beaucoup plus élevée avec la plus faible pression (30ps) qu'avec la plus forte (2 ou 3ps), ce qui est en cohérence avec la durée du gain calculée avec les résultats OFI-0D pour ces 2 pressions. L'intensité moyenne à pression plus forte est plus élevée, ce qui est en accord avec l'augmentation du gain. Le second constat est que l'intensité des pics liés à la saturation est extrêmement élevée à $P = 50\text{mbar}$. En effet, l'inversion de population est beaucoup plus élevée à cette pression qu'à $P = 5\text{mbar}$. Les oscillations sont également de plus forte amplitude à $P=50\text{ mbar}$.

On observe en particulier que l'intensité s'annule entre les pics. La durée du premier pic est dans le rapport de l'inverse des pressions (0,2 ps à 50 mbar et 2 ps à 5 ps). On voit ainsi que l'augmentation de l'énergie du premier pic est supérieure au rapport des deux pressions. La proportion d'énergie contenue dans le premier pic est donc plus grande à 50 mbar qu'à 5 mbar.

Si on pouvait amplifier le signal sur une longueur de 1cm à $P=50\text{mbar}$, on pourrait obtenir des pics encore plus intenses et plus fins. Le graphique suivant montre qu'à $z = 1\text{cm}$, la largeur temporelle du pic principal peut devenir inférieure à 100 fs avec une énergie supérieure au μJ . On voit tout l'intérêt que présenterait une telle source. Reste à parvenir à guider le laser de pompe sur 1 cm à 50 mbar... Une autre option, coûteuse mais réalisable dès à présent, serait d'associer deux cellules de 5 mm chacune.

On observe qu'à 10 mm, la durée du pic principal est d'un ordre de grandeur plus court que le temps T_2 , ce qui conduit à une largeur spectrale 10 fois supérieure à la largeur du gain. Ce résultat un peu étonnant s'explique par un raccourcissement du temps de vie par l'émission stimulée. L'intensité du faisceau est suffisante pour que le phénomène le plus probable pour un état excité soit de faire une "collision" avec un photon du laser pour produire une émission stimulée.

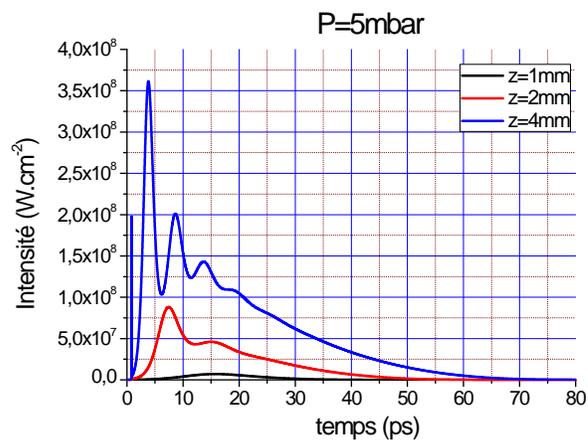


Figure 6.84: Profil temporel de l'intensité du champ $I(t) = A(t)^2$ en différents z et à $P = 5mbar$

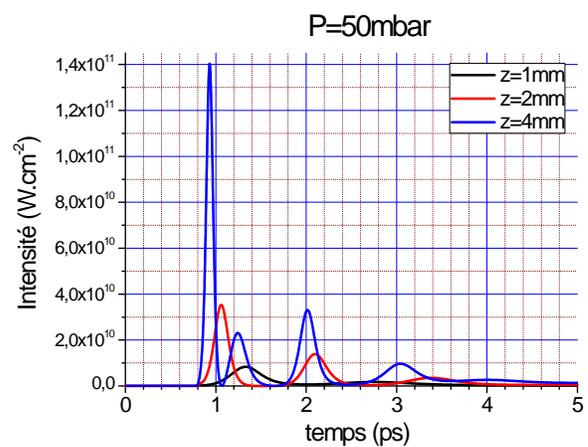


Figure 6.85: Profil temporel de l'intensité du champ $I(t) = A(t)^2$ en différents z et à $P = 50mbar$

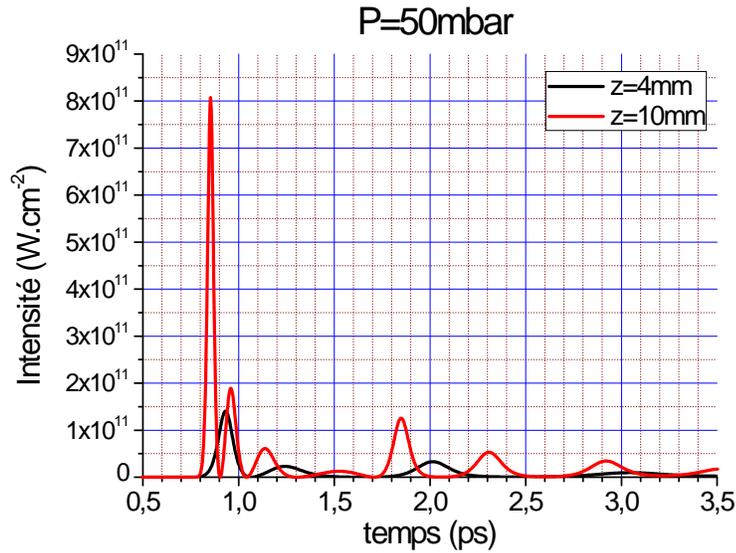


Figure 6.86: Profil temporel de l'intensité du champ $I(t)$ en $z=4$ et $z=10$ mm, et à $P=50$ mbar

6.2.5 Analyses 2D et 3D

Nous venons de voir les différentes caractéristiques de l'amplification dans un plasma uniforme de longueur donnée. Au niveau expérimental, la longueur et la largeur du plasma sont définies par l'OFI créée par le laser de pompe. Nous allons donc combiner les résultats du code OFI-prop pour les introduire comme données d'entrée du code COFIXE_MB. L'amplification va alors dépendre d'un très grand nombre de paramètres, liés à la fois au laser de pompe, à la cible et au signal HHG injecté. Nous avons déjà analysé séparément l'influence de chacun d'entre eux. Une revue de l'ensemble serait assez fastidieuse, nous allons donc nous restreindre ici à donner les principaux enseignements des nombreux calculs que nous avons réalisés. Une application des codes que nous avons développés lors de cette thèse a été de servir d'outil d'interprétation des expériences réalisées par l'équipe de S. Sebban sur l'installation salle jaune du LOA. Ce travail d'interprétation est, et a été réalisé dans le cadre des thèses de Jean Philippe Goddet et de Fabien Tissandier dans lesquelles on pourra trouver plusieurs exemples d'application de nos codes.

Nous avons vu que le plasma amplificateur semblait très uniforme. Ceci est dû à la grande stabilité de l'ion $8+$ et au fait que la FDE créée par OFI ne dépend principalement que de l'état d'ionisation atteint. De plus, l'aspect fortement non linéaire de l'ionisation par effet tunnel conduit à de très forts gradients au bord du volume d'amplification. On passe sur une courte distance, d'un état d'ionisation proche de $8+$, à un état d'ionisation moyen inférieur à 7 dans lequel le gain est nul. D'autre part, nous avons vu que près du centre il pouvait y avoir une zone de surionisation. Finalement, une "très bonne" approximation du volume amplificateur est de le simuler par la forme suivante :

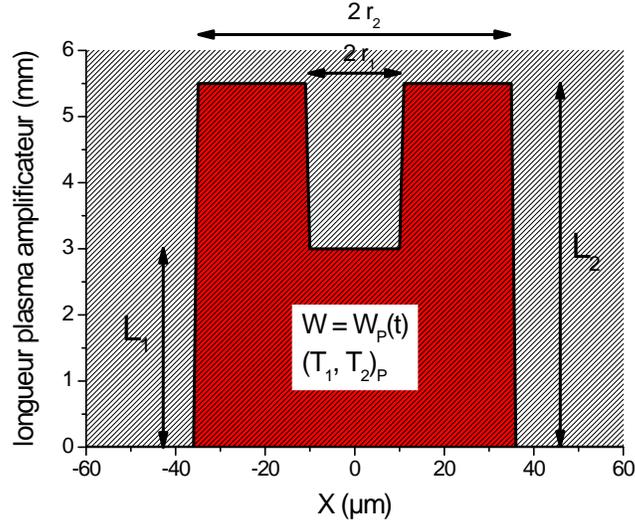


Figure 6.87: Forme simplifiée et schématisée du milieu amplificateur

En rouge, à l'intérieur du volume, le plasma est caractérisé par la fonction du temps qui donne l'inversion de population et par les deux temps T_1 et T_2 . Ces trois grandeurs ne dépendent que de la pression. Le volume est défini par deux cylindres : un cylindre externe de longueur L_2 et de rayon r_2 et un cylindre interne de longueur L_1 et de rayon r_1 . Sur le graphe, nous avons reporté des grandeurs typiques pour ces quatre grandeurs. La longueur d'amplification est plus faible près de l'axe du fait de la surionisation. L'importance de cette surionisation dépend bien sûr de l'intensité sur l'axe du laser de pompe.

L'amplification par le volume de la figure 6.87 d'un signal HHG centré sur l'axe et ayant un waist large, va donner en champ lointain une figure qui se rapproche plus ou moins d'une figure d'Airy. Elle consiste en un pic central, dont le profil pourra être approximé par une gaussienne, entouré d'anneaux plus ou moins intenses. L'influence du cylindre central ne sera visible que sur les anneaux. Il est important de remarquer que le volume du cylindre 1 est en général faible par rapport à celui du cylindre externe : la section du cylindre croît comme son rayon au carré. C'est pourquoi la surionisation au centre aura en fait une faible influence sur le pic central en champ lointain. En champ proche, nous allons théoriquement retrouver un profil qui se rapproche de la figure 6.87, c'est-à-dire une forme d'anneau plus sombre au centre, avec une taille caractéristique de l'ordre de $30 \mu\text{m}$ de rayon.

L'amplification du signal HHG par un amplificateur comme celui de la figure 6.87 aura deux effets : l'amplification et le filtrage. En reprenant les valeurs que nous avons obtenues pour la propagation IR et l'amplification 1D, on s'attend à des facteurs d'amplification de l'ordre de la centaine à l'ordre du millier. Le filtrage est un aspect très important de l'amplification OFI. De plus, il peut être modifié par l'expérimentateur en déplaçant le plasma par rapport au foyer des HHG. Nous avons en effet vu que lorsqu'on est fortement saturé, ce qui est le cas des cellules de plusieurs mm, alors le signal en sortie dépend relativement peu

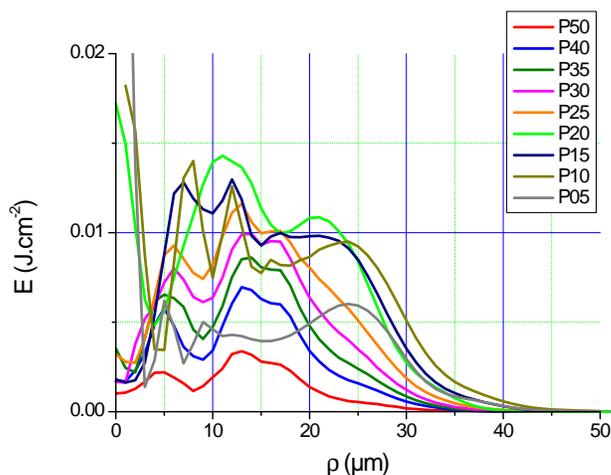


Figure 6.88: Profil de la fluence du signal XUV en sortie de cellule pour différentes pressions indiquées en mbar.

de l'intensité du signal d'entrée, pourvu que celui-ci soit suffisant pour dominer l'émission spontanée. On peut ainsi écarter l'amplificateur du foyer de l'HHG pour avoir un faisceau large par rapport au diamètre du plasma, sans réduire pour autant fortement l'énergie de sortie. Le plasma va alors agir comme un filtre efficace en augmentant fortement la cohérence transverse du faisceau et en réduisant sa divergence, pour atteindre des valeurs proches de la limite de diffraction, comme cela a été vérifié expérimentalement.

Nous mettons en évidence les grandes tendances que nous venons d'évoquer sur quelques exemples, dans un premier temps dans un calcul 2D avec un faisceau HHG Gaussien, puis dans un calcul 3D en utilisant un profil expérimental de l'amplitude du signal HHG.

6.2.5.1 Exemple d'un calcul 2D

Nous considérons un signal HHG parfaitement Gaussien de waist $50 \mu\text{m}$, de durée 35 fs et d'intensité 5.10^8 W/cm^2 , injecté dans une cellule de gaz de 7,5 mm de long, ionisée par un laser de pompe de waist $20 \mu\text{m}$ et d'intensité max 10^{18} W/cm^2 . Nous avons reporté figure 6.88 les profils en énergie par unité de surface pour différentes pressions entre 5 et 50 mbar.

Le profil est un peu plus chahuté que sur la figure 6.87 mais on retrouve une décroissance rapide sur les bords externes avec un rayon de $20 \mu\text{m}$ à $30 \mu\text{m}$, les plus grands rayons étant atteints à faible pression. Près de l'axe, nous avons également une chute de la fluence, parfois accompagnée d'un pic très près de l'axe qui peut être dû soit à une pointe de plasma, soit à un effet de diffraction. Il faut de nouveau insister sur le fait que la zone près de l'axe a une influence faible car elle correspond à un faible volume.

Nous avons vu chapitre 5, que la présence dans le faisceau IR d'énergie autour du pic central pouvait augmenter significativement le volume d'amplification. Nous avons repris

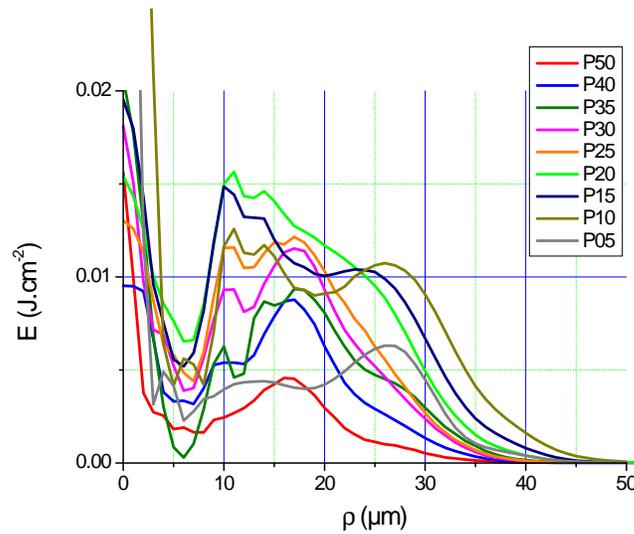


Figure 6.89: Profil de la fluence du signal XUV en sortie de cellule pour différentes pressions indiquées en mbar, avec un faisceau IR donné par 2 Gaussiennes.

l'exemple pour l'IR de deux Gaussiennes de $20\ \mu\text{m}$ et de $100\ \mu\text{m}$, avec la même intensité au centre de $10^{18}\ \text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$. Les résultats sont reportés figure 6.89.

Les résultats sont similaires à ceux obtenus avec une seule Gaussienne. La présence de la deuxième Gaussienne permet d'augmenter le volume du plasma, avec un gain en énergie plus élevé et un diamètre de plasma plus grand. Les fluctuations de profils sont un peu atténués, puisque les gradients transverses sont plus faibles. Le pic d'intensité au centre se retrouve de façon plus systématique.

Sur la figure 6.90, nous avons reporté l'énergie du faisceau X-UV en fonction de la distance parcourue à l'intérieur de la cellule (cas à une seule Gaussienne pour l'IR).

Nous observons la signature de l'évolution du volume de plasma amplificateur en fonction de la pression. À faible pression, le plasma s'étend sur toute la longueur de la cellule, alors qu'à haute pression, l'état d'ionisation $8+$ n'existe que dans les premiers mm. De plus, la réduction du rayon du plasma avec la pression tend à diminuer le facteur d'amplification à haute pression, avec au final un maximum d'énergie autour de 10-20 mbar. Le profil en z de l'énergie correspond à ce que nous avons vu en 1D : une première zone avec une faible augmentation linéaire, puis une croissance exponentielle et enfin une saturation. Les ordres de grandeur des distances sont en bon accord avec l'expérience avec cependant une longueur d'amplification théorique plus faible, comme nous l'avons déjà mentionné. Une autre différence avec l'expérience est que au-delà de la longueur d'amplification, le signal dans nos figures est constant alors qu'expérimentalement il décroît exponentiellement à partir d'une longueur de cellule de l'ordre de 7 mm à 20 mbar. L'explication de cette décroissance est l'absorption dans le gaz faiblement ionisé en sortie de plasma, absorption qui n'est pas encore été prise en compte dans nos calculs (l'absorption doit dépendre du temps puisque l'ionisation par collision peut la réduire).

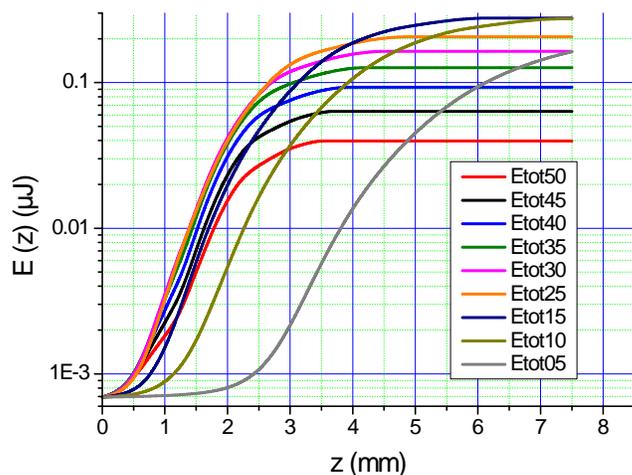


Figure 6.90: Evolution de l'énergie en sortie en fonction de la distance parcourue dans la cellule de longueur 7,5 mm. Chaque courbe correspond à une pression dont la valeur en mbar est indiquée dans la légende

Sur la figure 6.91, nous avons reporté le facteur d'amplification égal au rapport (énergie en sortie - énergie injectée) sur énergie injectée.

Il est assez difficile de faire une comparaison directe du facteur d'amplification avec les résultats expérimentaux car il dépend de l'énergie injectée dans le plasma. Nous pouvons remarquer que l'ordre de grandeur de quelques centaines est en bon accord avec les résultats mentionnés dans la thèse de Jean-Philippe Goddet.

A partir des résultats ci-dessus, nous avons tracé la variation de l'énergie en sortie en fonction de la pression du gaz

Nous pouvons voir une courbe en cloche avec un maximum autour de 15 mbar. La comparaison directe avec les résultats expérimentaux est ici aussi difficile. Un autre exemple de comparaison théorie-expérience est reporté dans la thèse de Jean-Philippe Goddet, avec une autre configuration qui donne un maximum théorique à plus forte pression. Notons ici également que l'ordre de grandeur est le bon. La principale différence avec les résultats expérimentaux vient de la chute plus rapide au niveau expérimental du gain à faible pression. Expérimentalement il semble y avoir un effet de seuil à basse pression qui n'est pas explicable par les calculs théoriques. Il faut tout de même remarquer qu'au niveau expérimental la pression est mesurée en amont de la cellule et qu'il est possible que la densité à l'intérieur de la cellule soit en fait plus faible.

6.2.5.2 Exemple d'un calcul 3D

Une version 3D d'OFI-prop n'existe pas encore. Le volume amplificateur reste donc à symétrie cylindrique. L'objectif d'un traitement du signal X-UV en 3D est de pouvoir faire une analyse plus détaillée du profil transverse et de la modification de la cohérence spatiale au cours de l'amplification. Nous décrivons tout d'abord le principe du calcul.

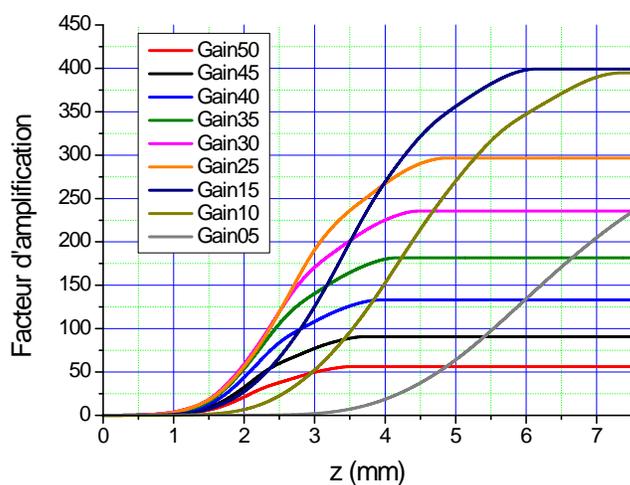


Figure 6.91: Evolution du facteur d'amplification en sortie en fonction de la distance parcourue dans la cellule de longueur 7,5 mm. Chaque courbe correspond à une pression dont la valeur en mbar est indiquée dans la légende

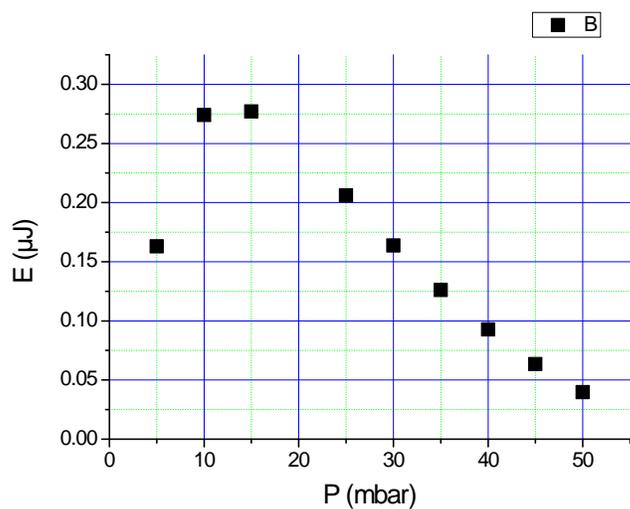


Figure 6.92: Energie en sortie de cellule en fonction de la pression du gaz

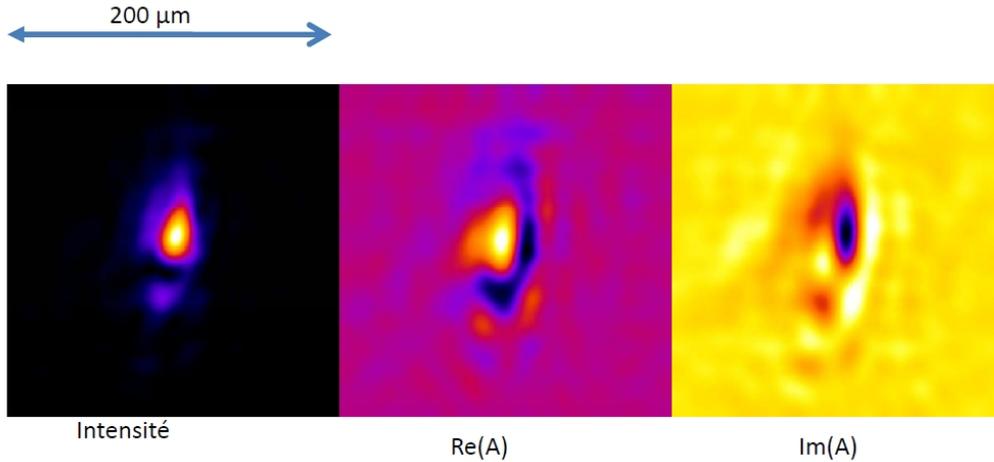


Figure 6.93: Intensité (à gauche), partie réelle (au centre) et partie imaginaire (à droite) dans le plan focal telle que déduites des données du senseur de front d'onde

Principe du calcul

A partir des données du senseur de front d'onde fournies par l'équipe de S. Sebban, nous déterminons, par projection sur des modes Laguerre-Gauss ou Hermite-Gauss (voir Annexe à la fin du mémoire), l'amplitude complexe du champ HHG injecté dans le plasma. Il faut noter que le senseur de front d'onde fournit des données intégrées sur le temps. Pour pouvoir remonter à une amplitude complexe, il faut supposer qu'il n'y a pas de fluctuation de phase transverse, autrement dit dans un plan transverse à l'axe de propagation, la phase ne diffère que d'un terme indépendant du temps. C'est une approximation assez forte. La tache de diffraction sur l'écran du senseur de front d'onde semble montrer que cette approximation est assez correcte. En effet, le niveau de fluctuation de la phase est nettement inférieur à la phase moyenne. Dans le cas contraire, on observerait un étalement de l'image de chaque trou du senseur. Un exemple de données est représenté figure 6.93.

On peut voir en comparant l'image de l'intensité avec celles des parties réelle et imaginaire du champ que la phase n'est pas constante dans le plan focal. Ceci est confirmé en regardant la déformation de l'intensité sur la figure 6.94 en fonction de la distance au plan focal (comptée positivement dans le sens de propagation).

Expérimentalement, le plasma est placé à une distance de l'ordre de 10-20 mm par rapport au plan focal pour avoir une couverture quasi-uniforme du plasma. Nous voyons qu'à cette distance, le profil devient assez éloigné d'une Gaussienne. Une fois fixée la position du plasma, l'amplitude complexe du champ à l'entrée du plasma ($z=0$) est déterminée à partir des données du senseur de front d'onde. L'amplitude est alors projetée sur des modes azimutaux :

$$A(\rho, \theta, z, t) = \sum_{\ell=-N}^{\ell=+N} a_{\ell}(\rho, z, t) \exp(i\ell\theta), \quad (2.394)$$

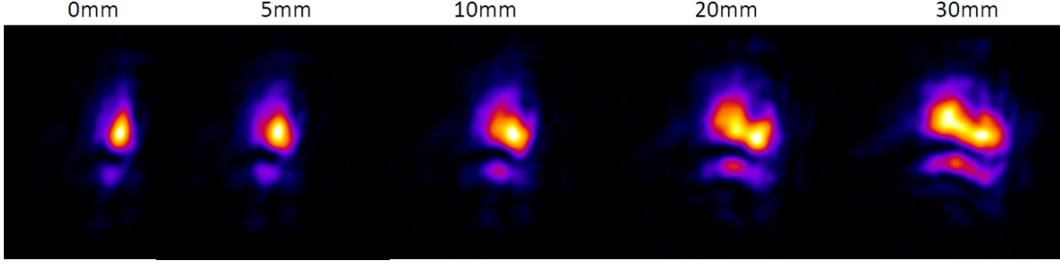


Figure 6.94: Cartes 2D d'intensité du signal HHG en fonction de la distance au plan focal

$2N + 1$ est le nombre de modes pris en compte (typiquement une cinquantaine). Le système d'équation Maxwell-Bloch se transforme alors en :

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) a_\ell(\rho, z, t) = \frac{i}{2k} \left(\frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} - \frac{\ell^2}{\rho^2} \right) a_\ell(\rho, z, t) + D_\ell(\rho, z, t) \quad (2.395)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} D_\ell(\rho, z, t) = -\frac{D_\ell(\rho, z, t)}{T_1} + \alpha \sum_m a_m(\rho, z, t) W_{\ell-m}(\rho, z, t) \quad (2.396)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} W_\ell(\rho, z, t) &= -\frac{[W_\ell(\rho, z, t) - W_0(\rho, z, t)\delta_\ell]}{T_1} - \sum_m a_m(\rho, z, t) D_{\ell-m}^*(\rho, z, t) \\ &\quad + \sum_m a_m^*(\rho, z, t) D_{\ell+m}(\rho, z, t) \end{aligned} \quad (2.397)$$

Dans la première équation, nous avons introduit la diffraction radiale. On peut remarquer que cette équation n'introduit pas de couplage de mode azimutal. L'unique source de couplage vient du caractère non-linéaire de l'amplification. On peut penser en particulier qu'à forte saturation, les amplitudes de fluctuations sont réduites, c'est-à-dire que l'amplification peut agir comme un filtre passe bas pour les modes azimutaux. En sortie, on aura en grande partie perdu les imperfections du signal d'entrée. On aura par contre accumulé les variations du plasma (si elles existent). Une bonne qualité du faisceau de sortie sera donc une preuve expérimentale du haut niveau d'uniformité du volume d'amplification créé par OFI.

Résultats d'un calcul 3D

Nous montrons ci-dessous un exemple de résultats pour une pression de 10 mbar. Le faisceau IR a un waist de $19 \mu\text{m}$ et est focalisé à l'entrée de la cellule.

On peut voir sur cette figure la modification de l'intensité en champ proche en fonction de l'intensité du laser de pompe. On retrouve à haute intensité, une zone sombre au centre sur laquelle se rajoute un pic d'intensité très proche de l'axe. Pour l'intensité maximale de $10^{18} \text{W}/\text{cm}^2$, la largeur du profil a augmenté de façon significative.

Les images en champ lointain présentent nettement moins de différences. Le pic central est pratiquement identique, sauf à $10^{18} \text{W}\cdot\text{cm}^2$, où il est légèrement moins large. Comme nous

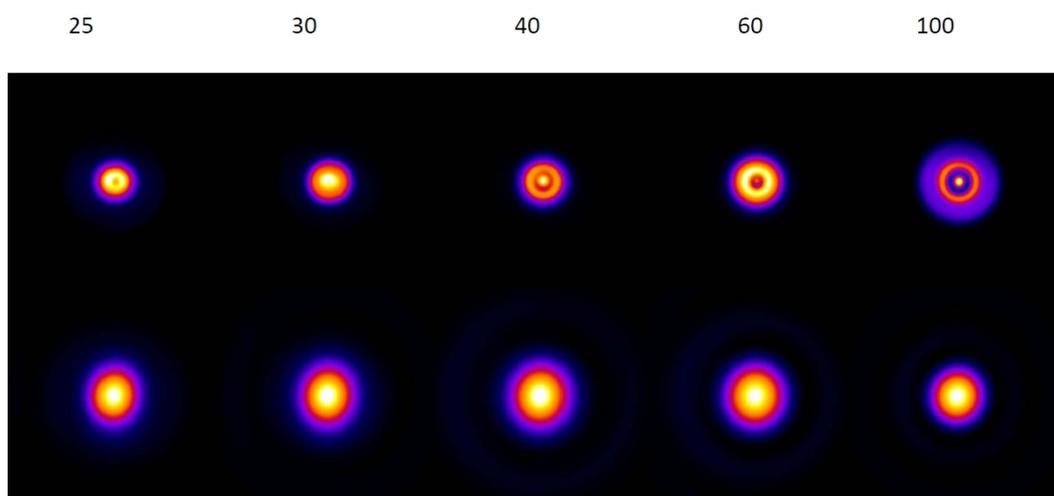


Figure 6.95: Intensité du faisceau XUV amplifié en sortie du plasma (en haut) et à 2 m du plasma (en bas). Le nombre au-dessus de chaque couple d'image indique la valeur de l'intensité IR en 10^{16}W/cm^2 .

l'avions annoncé, les fluctuations d'amplification près de l'axe se traduisent en champ lointain par une modulation de l'intensité sous forme d'anneaux, à peine visibles sur les figures. Ce type de figure se retrouve pratiquement dans toutes les configurations, à plus ou moins haute pression, intensité IR, à différentes positions de la focalisation IR et différents positionnements du plasma par rapport au plan focal du signal HHG. Seuls changent l'énergie totale amplifiée, comme montré dans les calculs 2D, et, dans une moindre mesure, la divergence du faisceau, le positionnement et l'intensité relative des anneaux. Sur la figure 6.96, nous montrons le profil radial à 4 m du plasma, pour une focalisation de l'IR à 1,5 mm à l'intérieur de la cellule.

On retrouve sur cette figure un profil très propre du pic central, dont la largeur décroît à plus forte intensité IR. A ce pic central, se rajoute un anneau de faible intensité. Nous sommes proche d'une figure d'Airy. Le plasma se comporte ainsi comme un cylindre ayant un très fort facteur d'amplification de valeur constante à l'intérieur de ce cylindre. La figure de diffraction est alors identique à celle d'un trou. La divergence du faisceau est alors directement liée à la taille du trou, c'est-à-dire au diamètre du plasma. On voit sur la figure que cette divergence (calculée comme le rapport entre le diamètre et la distance plasma-écran) varie entre 1 et 2 mrad lorsque l'intensité maximale de l'IR passe de $2,5 \cdot 10^{17}$ à $1,5 \cdot 10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$. Le rayon du plasma étant de faible dimension (20 à 30 μm), le filtrage du plasma améliore très fortement la cohérence transverse du faisceau, comme l'ont démontré les résultats expérimentaux [38].

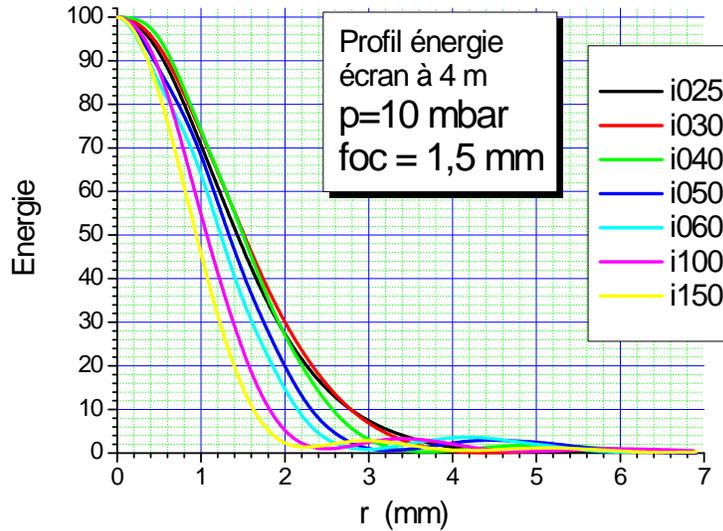


Figure 6.96: Profil en énergie à 4 m du plasma pour différentes intensité indiquée par la légende en $10^{16}W/cm^2$

6.3 Conclusion

Dans la première partie de ce chapitre, nous avons analysé la physique de l'amplification. Nous avons montré que dans une première phase, l'amplification est indépendante de la cinétique du plasma (largeur du profil du gain et temps de recouvrement du gain) : l'impulsion, de durée très courte, vide une certaine quantité du niveau haut de la transition laser. L'émission des photons de la transition s'effectue ensuite avec un certain retard, donné par le temps de cohérence, typiquement autour de 1 ps, et ce sont ces photons qui vont être principalement amplifiés. Ce processus en deux étapes explique que la durée du signal amplifié est directement lié au temps de cohérence et pratiquement indépendant de la durée initiale. Ceci explique également que bien que l'intensité de l'HHG puisse être proche ou supérieure à l'intensité de saturation du plasma, l'amplification initiale reste proportionnelle à l'énergie injectée, et la distance de saturation est proche de celle observée en ASE. A forte saturation, nous avons montré l'influence des oscillations de Rabi qui conduisent à l'apparition d'un premier pic de forte puissance et de faible durée. Le gain en énergie de ce pic est donné par l'énergie contenue dans l'inversion de population, c'est-à-dire à un facteur $2/3$ près le produit de la densité d'état excité par l'énergie de la transition. Pour des longueurs d'amplification proches du cm, notre modèle prévoit un premier pic très intense et de durée inférieure à 100 fs, ce qui aurait beaucoup d'applications. A l'heure actuelle, il n'y a pas de confirmation expérimentale de la présence de ce pic.

Dans la deuxième partie du chapitre, nous avons combiné l'ensemble des codes OFI-Prop, OFI-0D et COFIXE_MB, pour simuler l'amplification en utilisant au maximum les données expérimentales, en particulier celles des senseurs de front d'onde. L'analyse de nos résultats, en bon accord avec les résultats expérimentaux, montre que le plasma OFI est un amplifi-

cateur aux propriétés remarquables. Il permet un très fort facteur d'amplification et une amélioration des propriétés du faisceau : réduction de la divergence et amélioration de la cohérence spatiale. Il est assez étonnant de constater que le plasma qui est souvent présenté comme une source d'instabilités où de très fort gradient de champ, montre ici des qualités d'uniformité quasi parfaite, alors qu'on le fait interagir avec des intensités produisant des champs d'amplitude supérieure à celle des champs atomiques. Ceci est dû à l'efficacité du processus d'ionisation par effet tunnel, qui injecte toute son énergie aux électrons sans perturber les ions. La grande énergie acquise par les électrons permet d'obtenir un plasma cinétique de grande densité d'énergie thermique, ainsi ce plasma est peu sensible aux fluctuations des micro-champs électrostatiques.

Conclusion générale et perspectives

Les études récentes du laser X-UV OFI de l'équipe de S.Sebban du LOA ont porté sur la caractérisation de l'amplification du signal X-UV injecté en fonction des différents paramètres du système. L'enjeu a été d'optimiser cette amplification, afin d'obtenir en sortie le laser X-UV le plus cohérent, le plus intense possibles et possédant la durée d'impulsion la plus courte possible.

L'objectif de cette thèse, consacrée à la modélisation du même laser X-UV OFI par injection HHG, a été de construire les outils théoriques permettant d'une part d'interpréter les résultats expérimentaux et d'autre part de fournir des informations prédictives sur ce que l'on peut attendre de nouveaux dispositifs, par exemple des plasmas plus longs et/ou des impulsions du laser de pompe plus énergétiques. Le code COFIXE_MB élaboré au cours de la thèse et traitant l'amplification du laser X-UV OFI, a donc été développé avec la particularité, contrairement au code précédent COFIXE, de considérer que les temps caractéristiques de variation des populations atomiques et de la polarisation du milieu pouvaient être beaucoup plus longs (quelques ps) que la durée d'impulsion du champ HHG incident (35fs). Nous avons pour cela implémenté les équations de Maxwell-Bloch, qui sont les équations de base pour décrire le transfert radiatif, et dans lesquelles aucune approximation majeure n'est effectuée sur l'évolution temporelle de la forme du signal. L'utilisation dans le traitement Maxwell-Bloch de deux niveaux effectifs, nous a permis de réduire les ressources informatiques et ainsi de pouvoir traiter des situations expérimentales avec des cibles de grandes longueurs. COFIXE_MB se base aussi sur les données des codes OFI-Prop et OFI-0d, qui décrivent à eux 2, l'ionisation OFI par le laser de pompe, la propagation de ce dernier dans le gaz, le chauffage des électrons libres, ainsi que l'évolution des populations atomiques de l'ion lasant. Le calcul des populations atomiques requiert lui-même l'utilisation d'un modèle collisionnel-radiatif reprenant des données de calculs de codes de physique atomique. Nous avons souhaité dans ce manuscrit décrire la physique utilisée dans les trois codes numériques et en particulier ce qui concerne la physique atomique, qui n'est que rarement exposée en détails. Le couplage des trois codes conduit à des confrontations directes théorie/expérience

Lors des simulations 1D de COFIXE_MB (plasma 1D uniforme), on a pu caractériser l'évolution de la forme du signal X-UV au cours de son amplification. Lorsque l'HHG pénètre dans le milieu amplificateur, l'émission stimulée de photons par ce dernier est retardée, ce qui fait que le rayonnement d'amplification se place à l'arrière du pic HHG. Lorsque la saturation arrive, on observe l'apparition d'oscillations de Rabi sur le profil temporel,

Conclusion générale et perspectives

dues aux oscillations des populations atomiques (donc du gain) lorsque le champ électrique incident est fort. Surtout, on remarque que le premier pic d'oscillation est de plus en plus intense par rapport aux autres. Les calculs montrent que pour le Kr^{8+} , à une pression $P = 50\text{mbar}$ et une longueur d'amplification de 1 cm, ce pic doit être très intense (8.10^{11}W/cm^2) et d'une durée de quelques dizaines de femtosecondes. La production d'un tel pic pourrait avoir beaucoup d'applications. Une confirmation expérimentale de ce pic est espérée, en utilisant soit des techniques de guidage, soit un laser de pompe de plus grande énergie pour atteindre des valeurs de waist plus élevées, soit encore en combinant deux cibles amplificatrices.

Les versions 2D et 3D du code COFIXE_MB ont permis d'obtenir une description complète de l'amplification à partir de profil d'impulsion IR et X-UV injectée expérimentaux, et de calculer le front d'onde de l'impulsion X-UV en sortie. En ajustant les conditions de focalisation des impulsions IR et X-UV dans le plasma OFI, on peut alors augmenter la cohérence spatiale et diminuer la divergence du faisceau X-UV en sortie, lui conférant une très bonne qualité optique. La stabilité et l'uniformité du plasma au cours du processus d'amplification fait ainsi du plasma OFI un amplificateur aux propriétés remarquables. Ces qualités associées à de faibles dimensions transverses, font que l'amplificateur OFI a des coefficients d'amplification élevés de plusieurs centaines d'unités. Il filtre également le signal d'entrée, en augmentant sa cohérence longitudinale et transverse et en réduisant sa divergence.

La confrontation avec les résultats expérimentaux a mis en évidence des différences et des points qui restent actuellement inexplicables. On peut citer par exemple au niveau quantitatif des écarts sur le profil d'amplification en fonction de la polarisation du faisceau de pompe et de la pression de la cible. Une autre différence a été observée sur le niveau d'amplification lorsque le délai IR-HHG est faible. Dans ce cas, l'expérience semble indiquer des facteurs d'amplification beaucoup plus faibles que les valeurs prévues par notre modèle. Il faut également noter l'incertitude importante qui demeure sur le profil temporel de l'impulsion amplifiée. Les fortes oscillations observées dans notre modèle à grandes longueurs d'amplification n'ont pas encore été confirmées expérimentalement.

Les perspectives de prolongement de ce travail sont directement liées aux expériences qui seront faites. Au niveau expérimental, il nous semble que trois priorités se dégagent : obtenir un diagnostic précis du profil temporel du signal X-UV avant et après amplification, en fonction de l'épaisseur de milieu amplificateur traversé. Ceci permettrait d'obtenir une validation directe de l'approche Maxwell-Bloch à faible et à fort niveau d'amplification, et une estimation de la valeur des coefficients physiques utilisés dans cette approche. La deuxième priorité est d'augmenter la longueur d'amplification pour obtenir une signature de la présence du premier Pic d'oscillation. La voie la "plus simple" semble être d'associer plusieurs cellules amplificatrices. La troisième priorité est d'utiliser des cibles de plus forte densité pour obtenir à la fois des facteurs d'amplification plus élevés et également des impulsions de plus courte durée. Une voie qui a déjà commencé à être explorée, est le guidage par canal de plasma dans des jets de gaz à forte pression.

Au niveau de l'amélioration des modèles utilisés, plusieurs axes peuvent être identifiés :

- i) Réaliser une modélisation entièrement 3D. Ceci concerne principalement le passage à 3D d'OFI-Prop et la prise en compte dans COFIXE_MB d'un ensemble de modes azimutaux

pour l'inversion de population sans champ. Ceci permettra d'utiliser les données expérimentales du senseur de front d'onde pour l'IR. ii) Insérer dans la modélisation un profil longitudinal de densité de gaz. La principale difficulté est en fait d'obtenir soit expérimentalement soit avec une modélisation fluide, le profil qui sera ensuite intégré dans les codes. La valeur de la densité à l'intérieur de la cible reste actuellement un facteur d'incertitude important. iii) Au niveau plus directement théorique la poursuite de l'étude paraît particulièrement importante sur deux points : l'influence du transport et l'extension du modèle M-B à plusieurs niveaux. Le premier point concerne à la fois l'absorption du X-UV dans les zones froides et également l'influence de l'excitation des zones périphériques par le rayonnement issu des zones centrales chaudes. En ce qui concerne Maxwell-Bloch à plusieurs niveaux, l'intérêt se porterait plus particulièrement sur la cinétique des trois sous-niveaux bas de la transition X-UV.

Annexe : Modes de propagation dans le vide

La projection du champ E.M. sur des modes de propagation permet de déterminer le champ partout dans l'espace (supposé vide) à partir de sa connaissance seulement dans un plan, sans avoir à résoudre l'équation de propagation. Les modes que nous décrivons dans cette annexe sont solutions de l'équation de propagation dans l'approximation paraxiale. Nous allons tout d'abord rappeler les propriétés du mode fondamental gaussien puis introduire les modes Laguerre-Gauss (LG) en géométrie (r, z) puis (r, z, θ) et ensuite les modes Hermite-Gauss (HG) en géométrie (x, y, z) .

A.1 Mode Gaussien

Soit un repère $\mathfrak{R} = \{0, \vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z\}$, les coordonnées d'un point M dans \mathfrak{R} étant (x, y, z) . Nous utiliserons l'approximation des petits angles aussi appelée approximation paraxiale. Nous supposons donc que l'onde électromagnétique se propage approximativement suivant Oz (les normales aux surfaces d'onde forment un angle petit avec \vec{e}_z) et que son amplitude n'est notable qu'au voisinage de l'axe Oz (à des distances petites comparées au rayon de courbure de la surface d'onde mais éventuellement grandes par rapport à la longueur d'onde). La condition de transversalité du champ électrique permet alors de négliger la composante de \vec{E} le long de Oz (en fait $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0$ conduit à une composante le long de Oz petite, de l'ordre de λ/w par rapport à la composante transverse, λ étant la longueur d'onde et w la dimension transverse du faisceau).

Nous considérons une onde de fréquence angulaire ω se propageant suivant \vec{e}_z . La variation de l'amplitude suivant x, y et z est faible sur une longueur d'onde λ . L'onde est polarisée rectilignement (approximativement) suivant \vec{u} ($\vec{u} \cdot \vec{e}_z = 0$). En notation complexe, le champ électrique vaut :

$$\vec{E} = \text{Re} \left(\tilde{E}(x, y, z) \exp[-i\omega t] \right) \vec{u}, \quad (1.399)$$

$\tilde{E}(x, y, z)$ est une grandeur complexe. L'équation de propagation pour le champ (équation de Helmholtz) donne :

$$\Delta \tilde{E}(x, y, z) \vec{u} + k^2 \tilde{E}(x, y, z) \vec{u} = \vec{0}, \quad (1.400)$$

k est le nombre d'onde : $k = \frac{\omega}{c} = \frac{2\pi}{\lambda}$. On cherche un mode propre de propagation tel que $z = 0$ soit un plan d'onde et la densité d'énergie pour z fixé tende vers zéro quand x et y

Annexe : Modes de propagation dans le vide

tendent vers $\pm\infty$. L'onde étant proche d'une onde plane, le champ électrique est mis sous la forme :

$$\tilde{E}(x, y, z) = f(x, y, z) \exp [ikz]. \quad (1.401)$$

Dans l'équation de Helmholtz, ceci donne

$$\frac{\partial^2 f}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 f}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 f}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial f}{\partial z} = 0. \quad (1.402)$$

Pour simplifier la résolution de ce problème, on utilise le fait que l'amplitude varie peu suivant z pour négliger le terme $\frac{\partial^2 f}{\partial z^2}$ (approximation des petits angles). L'équation de propagation devient :

$$\frac{\partial^2 f}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 f}{\partial y^2} + 2ik \frac{\partial f}{\partial z} = 0. \quad (1.403)$$

Nous nous plaçons dans le cas d'une symétrie de révolution autour de l'axe Oz . Nous allons chercher une solution de la forme:

$$f(x, y, z) = A e^{ik(x^2+y^2)/(2q(z))} e^{ip(z)}, \quad (1.404)$$

avec A réel positif et $q(z)$ et $p(z)$ complexes (la partie réelle de $i/q(z)$ doit être négative). Les deux précédentes équations donnent :

$$\frac{k^2}{q^2} (x^2 + y^2) \left(\frac{dq}{dz} - 1 \right) - 2k \left(\frac{dp}{dz} - \frac{i}{q} \right) = 0 \quad (1.405)$$

D'où on obtient :

$$\frac{dq}{dz} = 1 \implies q(z) = q_0 + z \quad (1.406)$$

$$\frac{dp}{dz} = \frac{i}{q} \quad (1.407)$$

On impose que $z = 0$ soit un plan d'onde, la phase du champ doit donc être indépendante de x et de y pour $z = 0$. Donc q_0 doit être un imaginaire pur. On pose :

$$\frac{ik}{2q_0} = -\frac{1}{w_0^2}, \quad (1.408)$$

w_0 est la demi-largeur de la gaussienne en $z = 0$ (à une distance w_0 de l'axe, l'intensité est réduite de $2/e^2$). L'équation précédente donne :

$$q_0 = -\frac{i\pi w_0^2}{\lambda} = -iz_R. \quad (1.409)$$

$k = \frac{2\pi}{\lambda}$, λ est la longueur d'onde, $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ est appelée longueur de Rayleigh. L'équation 1.406 donne :

$$q(z) = -iz_R + z. \quad (1.410)$$

Soit $R(z)$ et $w(z)$ tels que :

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} + i \frac{\lambda}{\pi w^2(z)}, \quad (1.411)$$

$w(t)$ est la demi-largeur de la gaussienne dans le plan $z = t$ et la signification de $R(z)$ apparaîtra plus loin. Notons que $R(0) = \infty$. Nous avons :

$$\frac{1}{R(z)} + i \frac{\lambda}{\pi w^2(z)} = \frac{z + iz_R}{z^2 + z_R^2}, \quad (1.412)$$

soit :

$$R(z) = z + \frac{z_R^2}{z} \quad (1.413)$$

et :

$$w^2(z) = \frac{\lambda}{\pi} z_R^2 \left(1 + \frac{z^2}{z_R^2} \right)$$

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{z_R^2}}. \quad (414)$$

On vérifie que $w(z)$ est minimum en $z = 0$. $z = 0$ correspond à un point de focalisation ou d'étranglement du faisceau, qui est appelé col du faisceau (waist en anglais). Les équations 1.407 et 1.410 donnent :

$$\frac{dp}{dz} = i \left[\frac{z}{z^2 + z_R^2} + \frac{i}{z_0 (1 + z^2/z_R^2)} \right]$$

$$p(z) - p(0) = i \left[\frac{1}{2} \ln \left(\frac{z^2 + z_0^2}{z_R^2} \right) \right] - \arctan \left(\frac{z}{z_R} \right)$$

soit :

$$e^{ip(z)} = \sqrt{\frac{z_R^2}{z^2 + z_R^2}} e^{-i\phi(z)}$$

$$\phi(z) = \phi_0 - \arctan \left(\frac{z}{z_R} \right).$$

La partie complexe de $p(0)$ revient à changer la valeur de l'amplitude A . Finalement :

$$\tilde{E}(x, y, z) = \frac{A e^{-i\phi(z)}}{\sqrt{1 + (z/z_R)^2}} e^{ikz + ik(x^2 + y^2)/2R(z)} e^{-(x^2 + y^2)/w^2(z)}. \quad (1.415)$$

et :

$$\vec{E}(x, y, z) = \frac{A}{\sqrt{1 + (z/z_R)^2}} e^{-(x^2 + y^2)/w^2(z)} \times \quad (1.416)$$

$$\times \cos \left[kz + k(x^2 + y^2)/2R(z) - \omega t - \phi_0 + \arctan \left(\frac{z}{z_R} \right) \right] \vec{u} \quad (1.417)$$

Les deux équations précédentes représentent le mode fondamental Gaussien de propagation dans le vide. Quand $|z| \gg z_0$:

Annexe : Modes de propagation dans le vide

- $\phi(z) \approx \pm\pi/2$. Ceci donne un déphasage de π lorsqu'on traverse un point focal
- $\frac{w(z)}{z} \approx \frac{\lambda}{\pi w_0} = \theta$. On retrouve un faisceau géométrique convergent ou divergent .

L'approximation des faibles angles n'est donc valable que si $\frac{\lambda}{\pi w_0} \ll 1$.

- $R(z) \approx z \cdot \sqrt{z^2 + x^2 + y^2} \approx z + (x^2 + y^2) / 2R(z)$. Les surfaces d'onde sont donc des sphères de rayon $R(z)$. $R(z)$ est le rayon de courbure des surfaces d'onde (c'est en accord avec $R(0) = \infty$).

En $|z| = z_R$, $w(z) = \sqrt{2}w_0$, l'intensité sur l'axe en $|z| = z_R$ est réduite d'un facteur deux par rapport à l'intensité maximale dans le plan focal.

A.2 Modes Hermite-Gauss

Pour simplifier l'écriture, nous allons ici utiliser les unités atomiques ($\hbar = m_e = e = 1$). Définissons $\omega(z)$ tel que $\omega^2 = 2/w(z)$, $\gamma(z) = k/2R(z)$ et $\tau = z/k$. L'équation 1.403 peut s'écrire :

$$i \frac{\partial}{\partial \tau} \varphi(x, y, \tau) = -\frac{1}{2} \Delta_{\perp} \varphi(x, y, \tau), \quad (2.418)$$

Δ_{\perp} est le Laplacien dans l'espace à deux dimensions (x, y) . On reconnaît ci-dessus l'équation de Schrödinger dépendante du temps (ESDT) dans l'espace libre. La solution que nous avons trouvée en 1.415 peut se mettre sous la forme :

$$\tilde{E}(x, y, z) = \alpha_{00} u_0(x) u_0(y) \exp [i (\gamma (x^2 + y^2) + \tau - \phi_{00}(\tau))] \quad (2.419)$$

u_0 est le mode fondamental d'un oscillateur harmonique de pulsation ω . On reconnaît ci-dessus, à un terme de phase près, l'état cohérent Gaussien qui est bien solution de l'ESDT dans l'espace libre [61] ayant une impulsion nulle dans le plan (x, y) (puisque'il reste centré sur l'axe z). Le terme γ est lié à la variation de ω avec z . En suivant la référence [61], on peut généraliser l'équation 2.419 en incluant les états excités Hermite Gaussien :

$$\tilde{E}(x, y, z) = \sum_{l,m=0}^{\infty} \alpha_{lm} u_l(x) u_m(y) \exp [i (\gamma (x^2 + y^2) + kz - \phi_{lm}(z))], \quad (2.420)$$

avec :

$$u_k(\xi) = \left(\frac{\omega}{\pi}\right)^{1/4} h_k(X = \sqrt{\omega}\xi) \exp[-X^2/2] \quad (2.421)$$

$$h_k(X) = \frac{H_k(X)}{\sqrt{2^k k!}} \quad (2.422)$$

$$\phi_{lm}(z) = (l+m+1) \tan^{-1} \left[\frac{z}{z_R} \right], \quad (2.423)$$

H_k représente un polynôme d'Hermite et h_k un polynôme d'Hermite normalisé. L'ensemble de u_k forme une base orthonormée, ce qui veut dire que toute fonction (continue dérivable et de carré sommable dans le plan) peut s'écrire comme 2.420 en choisissant arbitrairement ω et la position du plan focal. Ainsi, par exemple à partir d'un détecteur de front d'onde, on peut utiliser 2.420 pour déterminer le champ partout dans l'espace sans avoir à connaître précisément la position du plan focal.

A.3 Modes Laguerre-Gauss

Le calcul fait ci-dessus s'applique également dans une géométrie (ρ, z, θ) , souvent mieux adaptée au cas d'un faisceau se propageant le long de l'axe z . L'avantage des modes de Laguerre est de pouvoir prendre en compte la symétrie cylindrique :

A.3.1 Symétrie cylindrique

L'amplitude du champ est indépendante de θ , l'équation 2.420 devient :

$$\tilde{E}(\rho, z) = \sum_{l=0}^{\infty} \beta_l u_l(\rho) \exp[i(k\rho^2/2R(z) + kz - \psi_l(z))] \quad (3.424)$$

$$u_l(\rho) = \frac{2}{w} L_l \left(\frac{2\rho^2}{w} \right) \exp[-\rho^2/w^2] \quad (3.425)$$

$$\psi_l(z) = (2l+1) \tan^{-1}(z/z_R), \quad (3.426)$$

L_l étant un polynôme de Laguerre, les $u_l(\rho)$ sont normalisés par :

$$\int_0^{\infty} u_l(\rho) u_m(\rho) \rho d\rho = \delta_{l,m} \quad (3.427)$$

A.3.2 Cas général

La dépendance en θ est introduite en faisant appel aux polynômes de Laguerre généralisés :

$$\tilde{E}(\rho, z, \theta) = \sum_{\ell, m=0}^{\infty} \beta_{\ell m} u_{\ell m}(\rho, \theta) \exp [i (k\rho^2/2R(z) + kz - \psi_{\ell m}(z))] \quad (3.428)$$

$$u_{\ell m}(\rho, \theta) = \left[\frac{\sqrt{2}\rho}{w} \right]^{|\ell|} \frac{1}{w} \sqrt{\frac{m!}{(m+\ell)!}} L_m^{|\ell|} \left(\frac{2\rho^2}{w} \right) \exp \left[-\frac{\rho^2}{w^2} - i\ell\theta \right], \quad (3.429)$$

$L_m^{|\ell|}$ est un polynôme de Laguerre généralisé et les $u_{\ell m}(\rho, \theta)$ forment une base orthonormée. De la même façon que les HG, les LG peuvent être utilisés pour calculer le champ dans tout l'espace connaissant sa valeur (complexe) dans un plan perpendiculaire à l'axe de propagation.

Références

- A.Boudaa. *Optimisation de sources X-UV générées par l'interaction d'un laser sub-picoseconde avec un gaz rare*. PhD dissertation, Université Paris-Sud / Université d'Alger, 2010.
- Afanas'ev, Y. V. and V. N. Shlyaptsev. "INTERACTION OF LASER RADIATION WITH MATTER. LASER PLASMAS: Formation of a population inversion of transitions in Ne-like ions in steady-state and transient plasmas," *Quantum Electronics*, 19:1606–1612 (December 1989).
- Al'Miev, I.R. and O. Larroche. "Dynamical description of transient x-ray lasers seeded with high-order harmonic radiation through Maxwell-Bloch numerical simulations," *Physics Review Letters*, 99:123902 (2007).
- Ammosov, M.V., et al. *Sov. Phys. JETP*, 64:1191 (1986).
- Andreev, NE, et al. "Laser wakefield structure in a plasma column created in capillary tubes," *PHYSICS OF PLASMAS*, 9(9):3999–4009 (SEP 2002).
- Augst, S., et al. "Laser ionization of noble gases by Coulomb-barrier suppression," *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, 8:858–867 (April 1991).
- Augst, S., et al. "Tunneling ionization of noble gases in a high-intensity laser field," *Physical Review Letters*, 63:2212–2215 (November 1989).
- Bar-Shalom, A., et al. "HULLAC, an integrated computer package for atomic processes in plasmas," *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 71:169–188 (October 2001).
- Becker, W., et al. "Above-Threshold Ionization : from classical features to quantum effects," *Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 48:38–98 (2002).
- Berrington, K.A., et al. "RMATRIX1: Belfast atomic R-matrix codes," *Computer Physics Communications*, 92:290–420 (December 1995).
- Bethe, H.A. and E.E. Salpeter. *Quantum Mechanics of One- and Two-Electron Atoms*. 1957.
- Bettaïbi, I. *Développement et caractérisation des lasers XUV créés par laser femtoseconde*. PhD dissertation, Ecole Polytechnique, 2005.

Bray, I. and A. T. Stelbovics. “The convergent close-coupling method for a Coulomb three-body problem,” *Computer Physics Communications*, 85:1–17 (January 1995).

Brinkmann, R. “The European XFEL Project.” *Proceedings FEL 2006, on JACOW*. 2006.

Burnett, K., et al. “Atoms in ultra-intense laser fields,” *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics*, 26:561–598 (February 1993).

CARILLON, A, et al. “SATURATED AND NEAR-DIFFRACTION-LIMITED OPERATION OF AN XUV LASER AT 23.6 NM,” *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, 68(19):2917–2920 (MAY 11 1992).

Ceglio, N. M., et al. “Multipass amplification of soft x rays in a laser cavity,” *Optics Letters*, 13:108–110 (February 1988).

Chin, S.L., et al. “Tunnel ionisation of Xe in an ultra-intense CO₂ laser field (10^{14}W cm^{-2}) with multiple channels,” *Phys. Rev. Lett.*, L213 – L215 (April 1985).

Condon, E.U. and G.H. Shortley. *The Theory of Atomic Spectra*. January 1935.

Corkum, P.B., et al. “Above-threshold ionization in the long-wavelength limit,” *Physical Review Letters*, 62(11):1259 (1989).

Cowan, R.D. *The theory of atomic structure and spectra*. Los Alamos Series in Basic and Applied Sciences, Berkeley: University of California Press, 1981, 1981.

Cros, B, et al. “Eigenmodes for capillary tubes with dielectric walls and ultra-intense laser pulse guiding,” *PHYSICAL REVIEW E*, 65(2, Part 2) (FEB 2002).

Da Silva, L. B., et al. “Electron Density Measurements of High Density Plasmas Using Soft X-Ray Laser Interferometry,” *Phys. Rev. Lett.*, 74(20):3991–3994 (May 1995).

Decker, C. D., et al. “Ionization-induced refraction in recombination x-ray lasers,” *Physics of Plasmas*, 3:414–419 (January 1996).

Delcroix, Jean-Loup. *Physique des Plasmas*. Savoirs Actuels, 1994.

Delone, N.B. and V.P. Krainov. “Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field,” *Physics Uspekhi*, 41(5):469–485 (1998).

- Desclaux, J.P. “A multiconfiguration relativistic DIRAC-FOCK program,” *Computer Physics Communications*, 9:31–45 (January 1975).
- Ditmire, T., et al. “Amplification of xuv harmonic radiation in a gallium amplifier,” , 51:4337–+ (June 1995).
- Duguay, M. A. and P. M. Rentzepis. “Some Approaches to Vacuum UV and X-Ray Lasers,” *Applied Physics Letters*, 10:350–352 (June 1967).
- Dunne, M., et al. “Experimental observations of the expansion of an optical-field-induced ionization channel in a gas jet target,” *Physical Review Letters*, 72:1024–1027 (February 1994).
- Eissner, W. “The UCL distorted wave code,” *Computer Physics Communications*, 114:295–341 (November 1998).
- Eissner, W., et al. “Techniques for the calculation of atomic structures and radiative data including relativistic corrections,” *Computer Physics Communications*, 8:270–306 (November 1974).
- Elton, R. C. “Extension of 3p – 3s ions lasers into the vacuum ultraviolet region,” , 14:97–101 (January 1975).
- Epperlein, E.M. “Fokker-Planck modeling of electron transport in laser-produced plasmas,” *Laser and Particle Beams*, 12:257–+ (1994).
- Fritzsche, S. and I.P. Grant. “A program for the complete expansion of jj-coupled symmetry functions into Slater determinants,” *Computer Physics Communications*, 92:111–126 (November 1995).
- Froese-Fischer, C. *Computer Physics Communications*, 1:151 (1969).
- G.Lambert. *Harmoniques cohérentes du laser à électrons libres générées à partir d’harmoniques produites dans les gaz sur le prototype de l’accélérateur SCSS*. PhD dissertation, Université Paris-Sud XI, 2008.
- Goddet, J.P. *Etude et développement de sources laser XUV par injectino d’harmoniques d’ordre élevé*. PhD dissertation, Ecole Polytechnique, 2009.
- Goeppert-Mayer, M. “Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen,” *Annalen der Physik*, 401:273–294 (1931).

- Gu, M.F. “Indirect X-Ray Line-Formation Processes in Iron L-Shell Ions,” , *582*:1241–1250 (January 2003).
- Gudzenko, L. I. and L. A. Shelepin. “Radiation Enhancement in a Recombining Plasma,” *Soviet Physics Doklady*, *10*:147–+ (August 1965).
- Hall, J.L., et al. “Laser Double-Quantum Photodetachment of I-,” *Physical Review Letters*, *14*:1013–1016 (June 1965).
- Hughes, V. and L. Grabner. “The Radiofrequency Spectrum of Rb85F and Rb87F by the Electric Resonance Method,” *Physical Review*, *79*:314–322 (July 1950).
- JACOW. *Initial Commissioning Experience with the LCLS Injector, Proceeding PAC 2007, on JACOW*, number 1302, 2007.
- Jaegle, P., et al. “Experimental evidence for the possible existence of a stimulated emission in the extreme UV range,” *Physics Letters A*, *36*:167–168 (August 1971).
- Jaeglé, P., et al. “Ultraviolet luminescence of CsI and CsCl excited by soft x-ray laser,” *Journal of Applied Physics*, *81*:2406–2409 (March 1997).
- Jamelot, G., et al. “Development of XUV laser applications at LSAI-LULI,” *3156*:124–134 (October 1997).
- Janulewicz, KA, et al. “Electron residual energy of optical-field-ionized plasmas driven by subpicosecond laser pulses,” *JOURNAL OF PHYSICS B-ATOMIC MOLECULAR AND OPTICAL PHYSICS*, *29*(4):901–914 (FEB 28 1996).
- Kaertner, Franz X. *Ultrafast Optics*. Cours du MIT, 2005.
- Kaiser, W. and CG Garrett. “Two-Photon Excitation in CaF2 : Eu2+,” *Physical Review Letters*, *7*:229–231 (September 1961).
- Kato, Y., et al. “Observation of gain at 54.2 Å on Balmer-alpha transition of hydrogenic sodium,” *Applied Physics B Photophysics Laser Chemistry*, *50*:247–256 (April 1990).
- Kazamias, S, et al. “Global optimization of high harmonic generation,” *PHYSICAL REVIEW LETTERS*, *90*(19) (MAY 16 2003).
- Keldysh, S.V. “Ionization in the field of a strong electromagnetic wave,” *Soviet Physics JETP*, *20*(5) (May 1965).

- Klisnick, A., et al. “Demonstration of a 2-ps transient x-ray laser,” , *65*(3):033810–+ (March 2002).
- Koch, J. A., et al. “Observation of gain-narrowing and saturation behavior in Se X-ray laser line profiles,” *Physical Review Letters*, *68*:3291–3294 (June 1992).
- Krainov, V.P. “Ionization rates and energy and angular distributions at the barrier-suppression ionization of complex atoms and atomic ions,” *Journal of the Optical Society of America B Optical Physics*, *14*:425–431 (February 1997).
- Kulander, K. ; Lewenstein, W. *Springer Handbook of Atomic, Molecular, and Optical Physics*, chapter Part F, 1077–1089. 2006.
- Larroche, O., et al. “Maxwell-Bloch modelling of x-ray-laser-signal building in single- and double-pass configurations,” *Physical Review A*, *62*:043815 (2000).
- Lemoff, B. E., et al. “Femtosecond-pulse-driven, electron-excited XUV lasers in eight-times-ionized noble gases,” *Optics Letters*, *19*:569–571 (April 1994).
- Lemoff, B.E., et al. “Demonstration of a 10-Hz Femtosecond-Pulse-Driven XUV Laser at 41.8 nm in Xe IX,” *Physical Review Letters*, *74*:1574–1577 (February 1995).
- Lenglet, A. and G. Maynard. “Wave Packet Molecular Dynamics to study atom electrons in strong fields,” *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research A*, *577*:343 (2007).
- LEWENSTEIN, M, et al. “QUANTUM-FIELD THEORY OF ATOMS INTERACTING WITH PHOTONS - FOUNDATIONS,” *PHYSICAL REVIEW A*, *50*(3):2207–2231 (SEP 1994).
- L’huillier, A., et al. “Calculations of high-order harmonic-generation processes in xenon at 1064 nm,” , *46*:2778–2790 (September 1992).
- Lichters, R., et al. “Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity,” *Physics of Plasmas*, *3*:3425–3437 (September 1996).
- Lotz, W. “Electron-impact ionization cross-sections and ionization rate coefficients for atoms and ions from hydrogen to calcium,” *Zeitschrift fur Physik*, *216*:241–247 (June 1968).
- Madey, J. M. J. “Stimulated Emission of Bremsstrahlung in a Periodic Magnetic Field,” *Journal of Applied Physics*, *42*:1906–1913 (April 1971).

- Maiman, T. H. “Stimulated Optical Radiation in Ruby,” , *187*:493–494 (August 1960).
- Matthews, D. L., et al. “Demonstration of a soft X-ray amplifier,” *Physical Review Letters*, *54*:110–113 (January 1985).
- Maynard, G., et al. “Determination of the ion temperature in a plasma created by optical field ionization,” *CONTRIBUTIONS TO PLASMA PHYSICS*, *47*(4-5):352–359 (2007).
12th International Workshop on Physics of Nonideal Plasmas, Darmstadt, GERMANY, SEP 04-08, 2006.
- Messiah, A. *Quantum mechanics*. 1962.
- Mevel, E., et al. “Atoms in strong optical fields: Evolution from multiphoton to tunnel ionization,” *Physical Review Letters*, *70*:406–409 (January 1993).
- Mocek, T., et al. “Dramatic enhancement of XUV laser output using a multimode gas-filled capillary waveguide,” *Physical Review A*, *71*:013804 (2005).
- Monot, P., et al. “High-order harmonic generation by nonlinear reflection of an intense high-contrast laser pulse on a plasma,” *Optics Letters*, *29*:893–895 (April 2004).
- Nagata, Y., et al. “Soft-x-ray amplification of the Lyman- α transition by optical-field-induced ionization,” *Physical Review Letters*, *71*:3774–3777 (December 1993).
- Nickles, P. V., et al. “Short Pulse X-Ray Laser at 32.6 nm Based on Transient Gain in Ne-like Titanium,” *Physical Review Letters*, *78*:2748–2751 (April 1997).
- Perelomov, A.M., et al. “Ionization of Atoms in an Alternating Electric Field,” *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics*, *23*:924–+ (November 1966).
- Pert, G. J. and S. A. Ramsden. “Population inversion in plasmas produced by picosecond laser pulses,” *Optics Communications*, *11*:270–273 (July 1974).
- PERT, G.J. “INVERSE BREMSSTRAHLUNG IN STRONG RADIATION-FIELDS AT LOW-TEMPERATURES,” *PHYSICAL REVIEW E*, *51*(5, Part B):4778–4789 (MAY 1995).
- Pert, G.J. “Electron distributions generated by tunnelling ionization during gas breakdown by high intensity laser radiation,” *JOURNAL OF PHYSICS B-ATOMIC MOLECULAR AND OPTICAL PHYSICS*, *32*(1):27–52 (JAN 14 1999).

- Pert, G.J. “The calculation of the electron distribution function following tunnelling ionization using a Fokker-Planck method,” *JOURNAL OF PHYSICS B-ATOMIC MOLECULAR AND OPTICAL PHYSICS*, 34(5):881–908 (MAR 14 2001).
- Poletto, L., et al. “Future seeding experiments at SPARC.” *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series 6634*. Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference. May 2007.
- Press, William H., et al. *Numerical Recipes 3rd Edition*. Cambridge University Press, 2007.
- Quéré, F., et al. “Coherent Wake Emission of High-Order Harmonics from Overdense Plasmas,” *Physical Review Letters*, 96(12):125004–+ (March 2006).
- Racah, G. “Theory of Complex Spectra. III,” *Physical Review*, 63:367–382 (May 1943).
- Rocca, J. J., et al. “Demonstration of a discharge pumped table-top soft-x-ray laser,” *Physical Review Letters*, 73:2192–2195 (October 1994).
- Ros, D., et al. “Perspectives of XUV sources development on LASERIX facility, ILE, and ELI.” *Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference Series 7451*. Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference. August 2009.
- Saraph, H.E. “Fine structure cross sections from reactance matrices,” *Computer Physics Communications*, 3:256–268 (April 1972).
- Saraph, H.E. “Fine structure cross sections from reactance matrices - a more versatile development of the program jajom,” *Computer Physics Communications*, 15:247–258 (October 1978).
- Sebban, S., et al. “Saturated amplification of a collisionally pumped optical-field-ionization soft X-ray laser at 41.8 nm,” *Physical Review Letters*, 86:3004–3007 (Avril 2001).
- Sebban, S., et al. “Demonstration of a Ni-Like Kr Optical-Field-Ionization Collisional Soft X-Ray Laser at 32.8nm,” *Physical Review Letters*, 89(25):253901–+ (November 2002).
- Siegman, A. E. *Lasers*. University Science Books, 1986.
- Slater, J.C. *Quantum theory of atomic structure*. McGraw-Hill (New York), 1960.

- Strickland, D. and G. Mourou. “Compression of amplified chirped optical pulses,” *Optics Communications*, 56:219–221 (December 1985).
- Sureau, A. and P. B. Holden. “From amplification of spontaneous emission to saturation in x-ray lasers: A Maxwell-Bloch treatment,” , 52:3110–3125 (October 1995).
- Takahashi, E. J., et al. “Coherent Water Window X Ray by Phase-Matched High-Order Harmonic Generation in Neutral Media,” *Physical Review Letters*, 101(25):253901–+ (December 2008).
- Teubner, U., et al. “Anomalies in high-order harmonic generation at relativistic intensities,” , 67(1):013816–+ (January 2003).
- Upcraft, Lee Mark. *Modelling collisionally pumped x-ray lasers in optical-field-ionised noble gases*. PhD dissertation, University of York, 2001.
- Upcraft, LM and GJ Pert. “Computational modelling of a Ne-like-Ar collisionally pumped OFI X-ray laser,” *JOURNAL DE PHYSIQUE IV*, 11(PR2):205–208 (JUL 2001). 7th International Conference on X-Ray Lasers, ST MALO, FRANCE, JUN 19-23, 2000.
- Vay, JL. “A new absorbing layer boundary condition for the wave equation,” *JOURNAL OF COMPUTATIONAL PHYSICS*, 165(2):511–521 (DEC 10 2000).
- Vay, JL. “Asymmetric perfectly matched layer for the absorption of waves,” *JOURNAL OF COMPUTATIONAL PHYSICS*, 183(2):367–399 (DEC 10 2002).
- Vinogradov, A. V. and J. J. Rocca. “SPECIAL ISSUE DEVOTED TO THE 80TH ANNIVERSARY OF ACADEMICIAN N G BASOV’S BIRTH: Repetitively pulsed X-ray laser operating on the 3p 3s transition of the Ne-like argon in a capillary discharge,” *Quantum Electronics*, 33:7–17 (January 2003).
- von der Linde, D., et al. “Generation of high-order harmonics from solid surfaces by intense femtosecond laser pulses,” *Phys. Rev. A*, 52(1):R25–R27 (Jul 1995).
- Voronov, G.S. and N.B. Delone. “Many-photon Ionization of the Xenon Atom by Ruby Laser Radiation,” *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 23:54–+ (July 1966).
- Zeitoun, P., et al. “A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam,” *Nature*, 431:426–429 (September 2004).

Zhang, J, et al. "A saturated X-ray laser beam at 7 nanometers," *SCIENCE*, 276(5315):1097–1100 (MAY 16 1997).