

RÉSUMÉ

Etude expérimentale et simulations numériques des propriétés spectrales de lasers X pompés par excitation collisionnelle. Experimental study and numerical simulations of the spectral properties of XUV lasers pumped by collisional excitation.

Doctorant: Limin Meng

Le rayonnement X-UV correspond conventionnellement à la gamme spectrale [2 - 50] nm. Ces deux dernières décennies ont vu le développement notable de trois sources XUV cohérentes produisant des impulsions très brèves et intenses : la génération d'harmoniques d'ordre élevé HHG (*High Harmonic Generation*) d'un laser visible/infrarouge, les lasers à électrons libres XFEL (*X Free Electrons Laser*) et les lasers X créés par plasmas sur lesquels porte le travail présenté dans ce manuscrit.

Les propriétés de ces différentes sources ont ouvert de tout nouveaux champs d'application (analyse d'échantillon biologiques, diagnostic de plasmas denses, imagerie 3D de molécules, étude de la *Warm Dense Matter...*) et suscitent un intérêt croissant au sein de la communauté scientifique.

La conversion d'un laser infrarouge en un rayonnement de fréquences multiples de sa fréquence repose sur des effets d'optique hautement non-linéaires. Les harmoniques d'ordre élevé peuvent être générées dans un gaz rare ou par l'interaction du laser infrarouge avec un miroir-plasma (créé lors de son interaction avec une cible solide). Ce deuxième procédé est récent et ne comporte pas encore d'applications. Dans le cas d'harmoniques d'ordres élevés générées dans un gaz rare, le champ électrique intense du laser provoque l'abaissement de la barrière de potentiel vue par l'électron lié d'un ion, et provoque son ionisation tunnel. L'électron est accéléré dans le champ du laser, puis, lorsque le champ change de signe, peut se recombinaison avec son ion parent et émettre l'énergie acquise dans le champ. Ce processus se répète toutes les demi-périodes du laser. Seuls les ordres impairs sont produits et le spectre harmonique présente un plateau d'intensité constante suivi d'une chute brutale de l'intensité due au fait que l'énergie cinétique acquise par l'électron est bornée (elle est proportionnelle au potentiel pondérateur du laser). Les ordres maximum atteints sont autour de 100 ce qui permet de créer un rayonnement de longueur d'onde ~ 10 nm. Elles ont une cohérence spatiale élevée et peuvent délivrer un train de pulses ultra-courts de l'ordre de quelques centaines d'attosecondes, durées qui n'ont encore jamais été atteintes par d'autres sources. De plus, il est possible d'utiliser des lasers de pompe à haut taux de répétition (kHz voire MHz). L'énergie des pulses est néanmoins limitée à $1 \mu\text{J}$ dans la gamme 30-40 nm et à 10 nJ en-dessous de 20 nm, l'efficacité de conversion étant faible ($\sim 10^{-6}$ - 10^{-8} dans la gamme 10-30 nm).

Le rayonnement laser des XFEL est généré par le passage d'un paquet d'électrons relativistes au travers d'un onduleur (enceinte comportant une série alternée d'aimants de pôles inversés) long de plusieurs centaines de mètres pour permettre une mise en cohérence et une amplification du rayonnement par effet SASE (*Self-Amplified Spontaneous Emission*). Le rayonnement synchrotron émis par l'oscillation du paquet d'électrons dans l'onduleur module sa densité électronique et le paquet d'électrons se divise peu à peu en micro-paquets (phénomène de *micro-bunching*) espacés de la longueur d'onde du rayonnement. Le rayonnement

synchrotron émis est donc de plus en plus cohérent et intense, puis arrive à saturation lorsque la modulation en micro-paquets est optimale. Les XFEL atteignent ainsi des puissances pic très élevées (~ 5 GW), ont une très bonne cohérence spatiale, et peuvent émettre des impulsions très courtes (~ 10 fs). Leur cohérence temporelle est néanmoins limitée. Les XFEL actuels émettent à des longueurs d'onde dans la gamme $\sim 0.1 - 10$ nm. Ce type de source a toutefois l'inconvénient d'être créé sur d'énormes installations (accélérateur d'électrons et onduleurs longs de plusieurs kilomètres) très coûteuses, donc rares et d'accès limité.

La production de lasers X créés par plasma, comme celle des harmoniques d'ordre élevé, est basée sur l'interaction laser-matière à haute intensité. Elle s'effectue donc sur des installations laser de taille bien inférieure aux installations XFEL, ce qui représente un avantage considérable pour leurs utilisateurs. C'est actuellement la source XUV la plus énergétique. Comme un laser optique, l'émission laser X repose sur une inversion de population : le rayonnement de longueur d'onde de la transition est amplifié par émission stimulée. Pour que ce rayonnement soit dans le domaine XUV, l'écart entre les deux niveaux lasants doit être important. Le milieu amplificateur est donc un plasma d'ions multichargés et l'on réalise l'inversion de population entre deux niveaux excités.

Les lasers XUV actuels sont tous basés sur le même mécanisme de pompage : le schéma de pompage par excitation collisionnelle réalisé dans un plasma dense et chaud, qui permet d'obtenir des gains élevés dans des plasmas de natures différentes. Aussi, différentes techniques de création de plasma furent employées au cours de ce travail de thèse afin d'étudier les propriétés spectrales et temporelles d'une variété de sources laser XUV différentes en terme de longueur d'onde, énergie ou durée d'impulsion. Une meilleure compréhension de ces propriétés spectrales et temporelles est en effet décisive pour la poursuite du développement des lasers XUV vers des impulsions significativement plus puissantes.

Les différents types de laser XUV étudiés, désignés par le mode de création du plasma dont ils sont issus, sont :

- (a) quasi-stationnaires QSS (*Quasi-Steady State*),
- (b) OFI (*Optical-Field Ionization*),
- (c) à décharge capillaire
- (d) transitoires.

Les paramètres de ces plasmas dans la zone de gain diffèrent toutes les unes des autres, ce qui représente un intérêt particulier pour l'étude du comportement spectral de la raie lasante.

Les propriétés spectrales des raies laser XUV contrôlent un certain nombre de paramètres physiques déterminants pour les applications, comme la durée minimum de l'impulsion que l'on puisse atteindre (dite limite de Fourier). Actuellement, la durée d'impulsion la plus courte atteinte expérimentalement est d'environ 1 ps. L'amplification d'un pulse cohérent d'harmonique d'ordre élevé dans un plasma de laser XUV, technique qui a fait ses preuves expérimentalement, ouvre des perspectives prometteuses de réduction du temps d'impulsion laser XUV à quelques

centaines de femtosecondes, à condition que la largeur spectrale du gain soit maintenue suffisamment large.

Le profil intrinsèque (optiquement mince) de la raie laser XUV est contrôlée par différents paramètres hydrodynamiques caractérisant le plasma (densité et température électronique, température ionique, ...). Un élargissement homogène et un élargissement inhomogène contribuent à l'élargissement total de la raie laser. Le profil intrinsèque de la raie est une convolution de ces deux profils d'élargissement. Pour un profil homogène Lorentzien et un profil inhomogène Gaussien, c'est un profil Voigt dont l'expression est :

$$V(\nu) = \int_{-\infty}^{+\infty} \phi_H(\nu' - \nu) \times \Phi_{inhom}(\nu') d\nu' \quad (1)$$

L'élargissement homogène provient d'origines diverses : élargissement naturel de la raie lié à son taux radiatif, et collisions élastiques ou inélastiques avec les électrons libres du plasma. L'élargissement inhomogène est lié à un décalage de fréquence dû à l'effet Doppler (mouvement des ions qui émetteurs) et à l'effet Stark (modification des états électroniques liés en présence d'un champ électrique).

L'amplification tend à rétrécir le profil de raie intrinsèque, on parle de rétrécissement par le gain (figure 1).

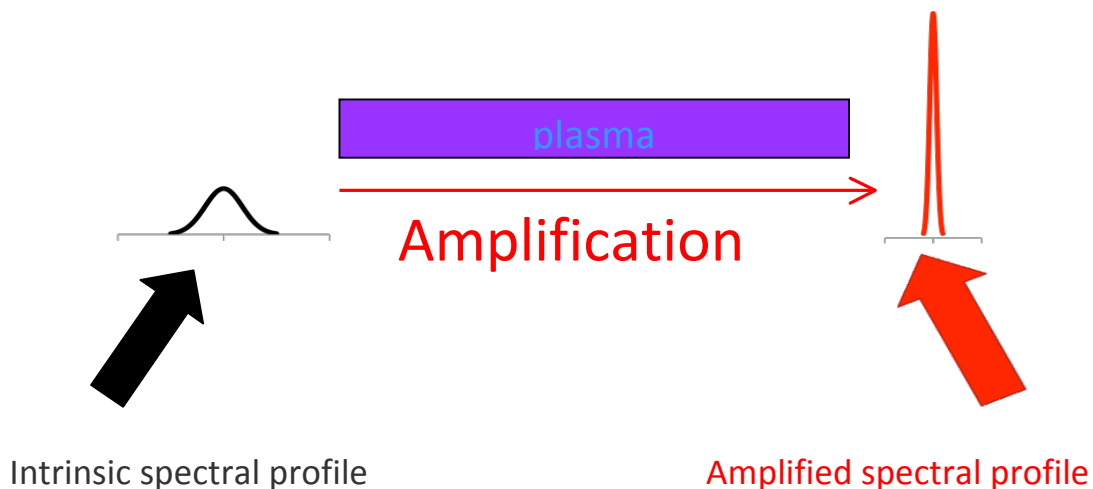


Figure 1

Des simulations numériques ont permis d'étudier le comportement du profil spectral de la raie laser XUV pendant son amplification et jusqu'à saturation. Le code de transfert radiatif 1D utilisé, développé par Olivier Guilbaud, calcule la distribution spectrale de l'intensité du rayonnement amplifié. Les profils intrinsèques d'entrée utilisés sont issus de calculs effectués par D. Benredjem (LAC, Orsay) et A. Calisti (PIIM, Marseille).

La faible largeur spectrale des lasers XUV ($\Delta\lambda/\lambda \sim 10^{-5}$) est bien inférieure à la résolution des spectromètres existants dans cette gamme spectrale. Un

interféromètre à division de front d'onde a été spécialement réalisé en 2003 par D. Joyeux (Institut d'Optique, Palaiseau) dans le but de mesurer la cohérence temporelle de lasers XUV et d'en déduire la profil spectral du laser XUV. Cet interféromètre est constitué de deux dièdres légèrement inclinés l'un vers l'autre (figure 2). Le faisceau arrive en incidence rasante sur les dièdres, les faisceaux réfléchis se recouvrent partiellement grâce à l'inclinaison entre les deux dièdres et interfèrent. La caméra CCD qui détecte la figure d'interférence est placée à 100-150 cm du bi-miroir, et est inclinée d'un angle de 35° dans le plan perpendiculaire aux franges d'interférence afin de les étirer et améliorer la résolution. Une platine de translation motorisée de précision permet le déplacement vertical contrôlé de l'un des deux dièdres afin d'introduire une différence de marche entre les deux faisceaux réfléchis.

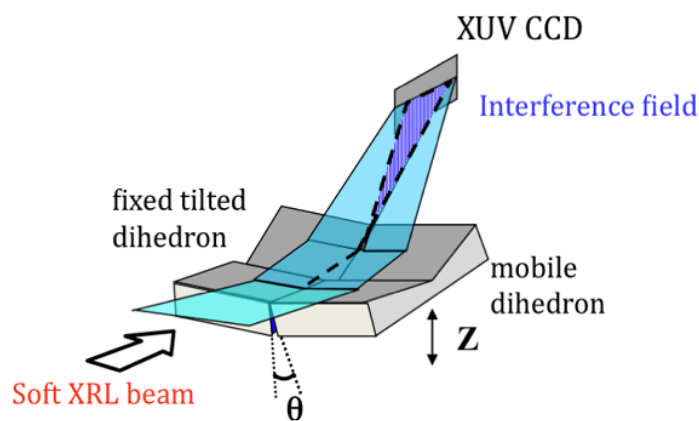


Figure 2

Au cours de mon travail de thèse, nous avons caractérisé trois types de lasers XUV : molybdène nickeloïde (raie 4d-4p J 0-1 à 18,9 nm) pompé en régime transitoire, argon néonoïde (raie 3p-3s J 0-1 à 46.9 nm) créé par décharge capillaire et zinc néonoïde (raie 3p-3s J 0-1 à 21.2 nm) pompé en régime quasi-stationnaire.

Nous avons non seulement fait des mesures précises de la cohérence temporelle du laser XUV dans chaque cas, mais avons également étudié le comportement spectral du laser en régime saturé et l'amplification d'harmoniques d'ordre élevé par un plasma de laser XUV.

Nos mesures de largeur de raie ont été comparées à des calculs détaillés incluant des mécanismes d'élargissement pertinents et les effets de transfert radiatif. L'évolution du profil de raie avec l'amplification et la saturation pour différents paramètres de plasma a également été étudiée et les durées limites de Fourier associées ont été évaluées.

Le temps de cohérence le plus court (ie la plus grande largeur spectrale) a été mesurée sur le laser XUV à pompage quasi-stationnaire, créé dans les plasmas à plus hautes densité électronique et température ionique parmi ceux étudiés.

Résumé des propriétés spectrales mises en évidence :

(1) Le pompage transitoire génère une impulsion laser XUV courte de l'ordre de quelques picosecondes. Le chauffage des électrons libre du plasma est trop court pour permettre un transfert significatif de leur énergie cinétique aux ions lourds avant que le plasma émette l'impulsion laser XUV. Ainsi la température ionique est significativement inférieure à la température électronique. La limite de Fourier mesurée est de l'ordre de 2 ps.

(2) Le pompage quasi-stationnaire génère des lasers XUV opérant sur des échelles de temps supérieures : 150 ps pour le zinc néonoïde et 2 ns pour le laser argon à décharge capillaire. Dans les deux cas, la température ionique est proche voire égale à la température électronique. Ainsi, l'élargissement Doppler contribue fortement au profil intrinsèque de la raie laser. Il est même dominant dans le profil intrinsèque du laser XUV de décharge capillaire en raison de la faible densité électronique et donc du faible élargissement collisionnel. Le ré-élargissement à saturation reste faible et ne peut pas être observé sur cette expérience. La durée limite de Fourier est similaire au cas du pompage transitoire, de l'ordre de 2 ps. Cette durée est bien inférieure à la durée de l'impulsion du laser XUV, et l'injection d'harmoniques d'ordre élevé dans ce type de laser donnerait lieu à un raccourcissement drastique de la durée de l'impulsion de sortie.

(3) Le laser XUV quasi-stationnaire de zinc néonoïde opère à haute densité électronique et haute température ionique. Il en résulte que ce laser présente la plus grande largeur de raie des lasers XUV pompés par excitation collisionnelle. Bien que nos résultats ne soient que préliminaires, il apparaît qu'une durée significativement en dessous de la picoseconde pourrait être atteinte pour ces lasers en mode injecté.

(4) Les lasers pompés par excitation collisionnelle sont caractérisés par une importante longueur de cohérence temporelle, comprise entre 200 μm et 1,6 mm. Cette particularité est liée à leur largeur de raie extrêmement étroite. Bien que cette caractéristique limite la durée à la gamme picoseconde, elle pourrait être d'un grand intérêt pour diverses applications nécessitant une très bonne cohérence temporelle, comme la lithographie interférométrique ou l'imagerie par diffraction.