



# **Cohérence, accordabilité, propriétés spectrales et spatiales de sources de lumière extrême-ultraviolette femtoseconde**

---

Synthèse

**Benoît Mahieu**

thèse soutenue le 17/06/2013

Thèse effectuée en cotutelle entre l'université Paris-Sud et l'université de Nova Gorica (Slovénie), les superviseurs rattachés à chaque université étant respectivement Prof. Giovanni De Ninno et Dr. David Garzella, associés aux laboratoires Elettra – Sincrotrone Trieste (Italie) et Service des Photons, Atomes et Molécules du CEA Saclay, respectivement.

Le jury de thèse était également composé des personnes suivantes : Prof. Annie Klisnick de l'université Paris-Sud, président du jury ; Prof. Serge Bielawski de l'université Lille 1, rapporteur ; Prof. Anne L'Huillier de l'université de Lund, rapporteur ; Prof. Samo Stanič de l'université de Nova Gorica, examinateur.

Cette synthèse présente succinctement, en langue française, l'activité et les résultats de thèse. Les détails et références se trouvent dans le manuscrit complet, en langue anglaise.



## Introduction

L'étude de phénomènes physiques, chimique ou biologiques ultrarapides a été en continuel développement au cours des deux dernières décennies, marquées à ce sujet en 1999 par l'obtention du Prix Nobel d'Ahmed H. Zewail pour ses travaux sur la femtochimie. La quête des courtes durées allât de pair avec les investigations sur des échantillons à échelle nanométrique. Or, pour sonder des phénomènes ultrarapides et/ou des structures fines, un des meilleurs outils est un intense faisceau de photons cohérents tel que l'est un laser. C'est ainsi que cette thèse porte sur le développement de sources de lumière permettant l'étude de tels phénomènes.

Pour analyser la dynamique d'un échantillon à une échelle temporelle ultra-rapide, la technique de type pompe-sonde a démontré une grande utilité. L'échantillon est excité par un premier faisceau « pompe » suivi, avec un délai contrôlé, par le faisceau « sonde » qui permet alors de mesurer les conséquences de l'excitation. Dans cet arrangement, l'utilisation de faisceaux pompe et sonde à des longueurs d'onde différentes peut être indispensable, c'est pourquoi l'étude de la génération de multiples couleurs a été une ligne directrice de cette thèse.

Plus généralement, afin d'atteindre les résolutions temporelles et spatiales souhaitées par les applications actuelles, les impulsions de lumières utilisées doivent respectivement avoir des durées ultrarapides (picoseconde à attoseconde) et une longueur d'onde nanométrique. Un important flux de photons est également requis, spécifiquement pour l'étude de processus non-linéaires qui requièrent de hautes intensités crêtes. Changer la longueur d'onde mais aussi la polarisation du faisceau, maîtriser sa structure temporelle et spectrale, améliorer sa stabilité et pouvoir le façonner spatialement sont des atouts importants.

Cependant, produire des sources de lumières réunissant toute ou partie des caractéristiques précitées n'est pas chose triviale. Ainsi, dû au manque de lasers conventionnels émettant à des longueurs d'onde inférieures à 150 nm, beaucoup d'applications sont limitées à des énergies de photons de l'ordre de quelques eV. Les Lasers à Electrons Libres (LELs) et la technique de Génération d'Harmoniques d'ordres Elevés (GHE) dans des gaz rares sont les deux solutions actuelles permettant d'outrepasser cette limite. Néanmoins, elles ne satisfont pas encore aux besoins de la communauté scientifique ; mais surtout, de nombreuses questions demeurent ouvertes concernant les processus physiques sous-jacents des LELs et de la GHE. C'est dans la motivation d'étudier ces processus que s'est effectué mon travail de thèse, résumé ci-après.

## Contexte et principes généraux

### *Limite de Fourier et cohérence*

D'un point de vue spectro-temporel, un aspect fondamental des impulsions à durée femtoseconde est la limite de Fourier selon laquelle la durée minimale d'une impulsion est dépendante de son spectre, la durée minimale étant inversement proportionnelle à la largeur spectrale. Ainsi, plus l'on voudra « réduire »

l'impulsion, plus elle sera composée d'une large bande spectrale. L'éloignement par rapport à cette limite est du à ce que l'on appelle la dérive de fréquence, ou plus communément le « chirp », qui correspond au fait que la longueur d'onde centrale ne soit pas la même à différentes positions dans l'impulsion. Les différentes composantes spectrales sont dans ce cas déphasées. En l'absence de chirp, la durée de l'impulsion est minimale respectivement à son spectre, dont la transformée de Fourier donne alors la forme temporelle.

Similairement, on va définir la limite de diffraction, qui correspond à un produit minimum entre la dimension d'un faisceau et sa divergence. La qualité spatiale d'un faisceau est généralement caractérisée par sa divergence, la qualité de son profil transverse et la planéité de son front d'onde. La cohérence, aussi bien spatiale que temporelle, est une caractéristique essentielle d'un faisceau dont elle quantifie en quelque sorte la stabilité et le caractère ordonné. Mathématiquement, elle est définie par la fonction de cohérence mutuelle :

$$\Gamma(x_1, x_2, \tau) = \langle E(x_1, t)E^*(x_2, t + \tau) \rangle.$$

Elle correspond à la moyenne (symbole  $\langle \dots \rangle$ ) sur un temps donné (durée de l'impulsion par exemple) de la corrélation du champ à deux coordonnées transverses et temporelles différentes. Pour caractériser la cohérence spatiale, lorsque  $\tau = 0$  (les points considérés correspondent au même front d'onde – ou plutôt, aux mêmes fronts d'ondes successifs sur lesquels la corrélation est moyennée), on utilise le facteur complexe de cohérence :

$$\mu(x_1, x_2, \omega) = \frac{W(x_1, x_2, \omega)}{\sqrt{W(x_1, x_1, \omega)W(x_2, x_2, \omega)}}$$

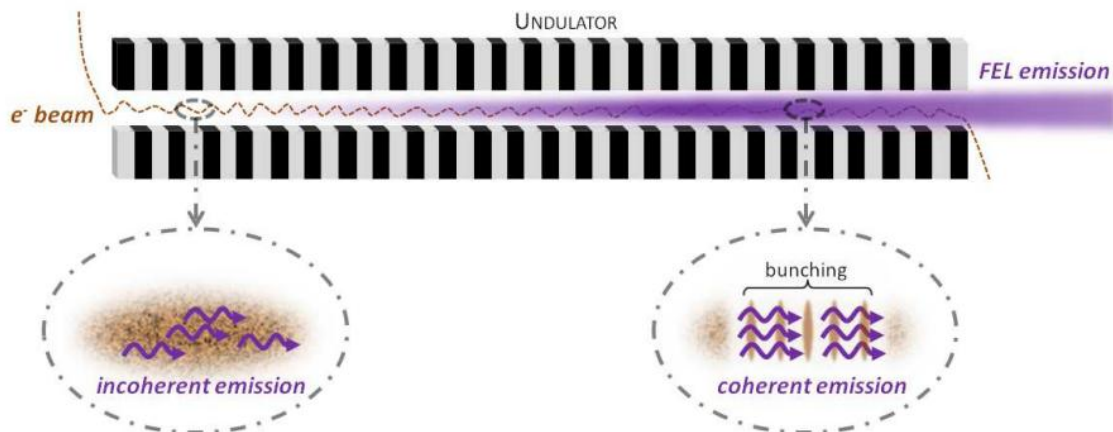
où  $W$  est la transformée de Fourier de  $\Gamma$ . Pour  $|\mu| = 1$ , il y a cohérence (spatiale) entre les points considérés ; incohérence pour  $|\mu| = 0$  ; cohérence partielle pour des valeurs intermédiaires. On remarque que pour  $x_1 = x_2$ ,  $\Gamma$  est simplement la fonction d'autocorrélation du 1<sup>er</sup> ordre du champ (généralement utilisée pour une mesure simple de la durée de l'impulsion) – et  $W$  le spectre. On peut noter aussi que si l'impulsion est chirpée i.e., si la fréquence centrale d'émission de cette dernière est différente à deux positions  $t$  et  $t + \tau$ , la corrélation du champ entre ces deux positions sera altérée dû à cette différence de fréquence centrale. En d'autres termes, le chirp a un impact sur la cohérence temporelle de l'impulsion, et c'est également pour cela que la possibilité de produire des impulsions proches de la limite de Fourier est un point important.

### *Laser à électrons libres*

Le LEL est un instrument généralement de grande envergure (plusieurs centaines de mètres) composé d'un accélérateur de particules (électrons dans notre cas) et de sections magnétiques. Nous ne nous concentrons pas ici sur la manière d'accélérer des électrons, mais uniquement sur ce qui suit, c'est-à-dire la partie où est la lumière.

Le principe général d'un LEL est le suivant : un paquet d'électrons accéléré à une vitesse relativiste ondule le long de sa propagation dans un champ magnétique statique et spatialement périodique, produit par un onduleur (succession périodique d'aimants). A cause de ce mouvement, les électrons perdent de l'énergie cinétique sous forme d'émission de photons qui vont ainsi se co-propager avec les électrons. La

longueur d'onde d'émission de ces photons correspond également à la condition de résonance d'un transfert d'énergie entre les électrons et les photons, ce qui permet ainsi d'obtenir un processus d'émission stimulée et une amplification du faisceau optique tout au long de l'onduleur. Au fil du processus (i.e., de la propagation le long de l'onduleur), les électrons vont se regrouper en « micro-paquets » séparés de la longueur d'onde de résonance : c'est ce que l'on appelle le « bunching ». Les micro-paquets successifs émettent donc des trains d'onde en phase, amenant ainsi à la génération d'un faisceau cohérent, ayant une durée correspondant à la longueur sur laquelle s'est effectué le bunching. La figure suivante schématise le processus LEL basique.



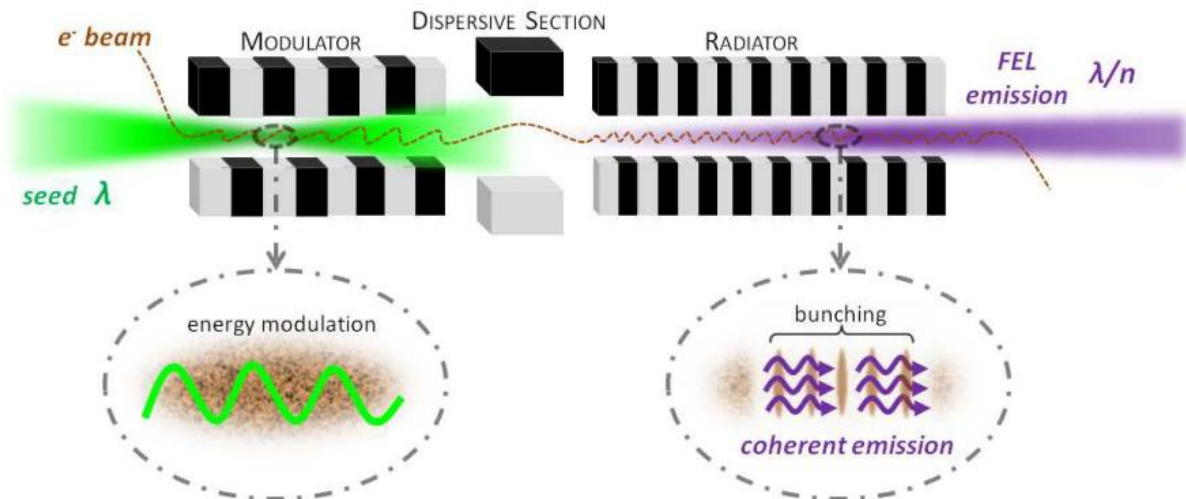
La longueur d'onde fondamentale d'émission sur l'axe de propagation est la suivante :

$$\lambda = \frac{L}{2\gamma^2} \left( 1 + \frac{K^2}{2} \right),$$

où  $L$  est la période longitudinale de l'onduleur,  $K$  est proportionnel au champ magnétique qu'il fournit et  $\gamma$  est le facteur de Lorentz, caractérisant l'énergie (c'est-à-dire la vitesse) des électrons. De manière basique, on voit qu'il faut des faisceaux d'électrons très énergétiques (énergie supérieure au GeV, en fait) pour obtenir des rayons extrême-ultraviolets ou X.

L'amplification peut également avoir lieu à des harmoniques de la longueur d'onde explicitée ci-dessus. En effet, l'amplification réside dans le fait que, à chaque période d'ondulation des électrons, ces derniers sont retardés d'exactly  $\lambda$  par rapport aux photons, qui sont plus rapides et ont une trajectoire rectiligne. Néanmoins, on note que des « glissements » de  $n\lambda$  ( $n$  étant un nombre entier) permettent également de respecter une telle résonance, c'est-à-dire que la longueur d'onde amplifiée peut être une harmonique du bunching créé. Techniquement, cela se fait dans un second onduleur, avec des valeurs de  $L$  et  $K$  correspondantes.

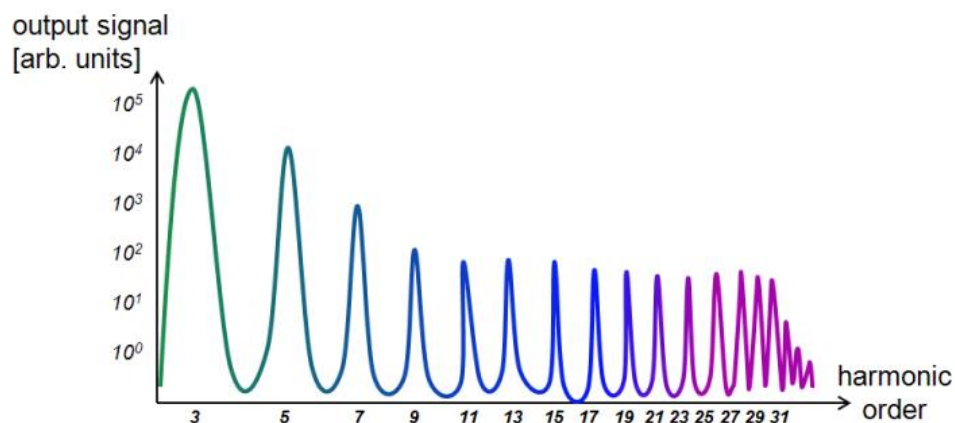
Dans la configuration du LEL FERMI de Trieste (Italie) sur lequel ont portées mes travaux, l'émission et amplification de photons est même initiée par un laser extérieur, appelé le « seed », fixé à la longueur d'onde de résonance. Ceci permet d'accélérer le processus et d'améliorer les caractéristiques spectro-temporelles de l'émission, qui est alors une copie du seed. En dehors de la zone de recouvrement seed-électrons, le processus LEL n'a pas le temps de se développer et le rayonnement produit se limite à un bruit de fond. Finalement, la configuration de ce LEL peut être résumée par le schéma suivant.



Dans cette configuration, les trois étapes de génération du LEL sont visuellement explicitées : dans le premier onduleur (appelé le modulateur), l'énergie des électrons est modulée ; dans la section dispersive, les électrons suivent un chemin dépendant de leur énergie et se séparent ainsi spatialement, créant le bunching ; dans le second onduleur (radiateur), l'amplification a lieu à une des harmoniques du seed. Dans le cas de FERMI, le seed est la troisième harmonique d'un laser Ti:Sapph et l'ordre harmonique amplifié peut monter jusqu'à  $n = 20$  environ. L'impulsion LEL se situe donc dans l'extrême ultraviolet avec une durée femtoseconde – car similaire à celle du seed.

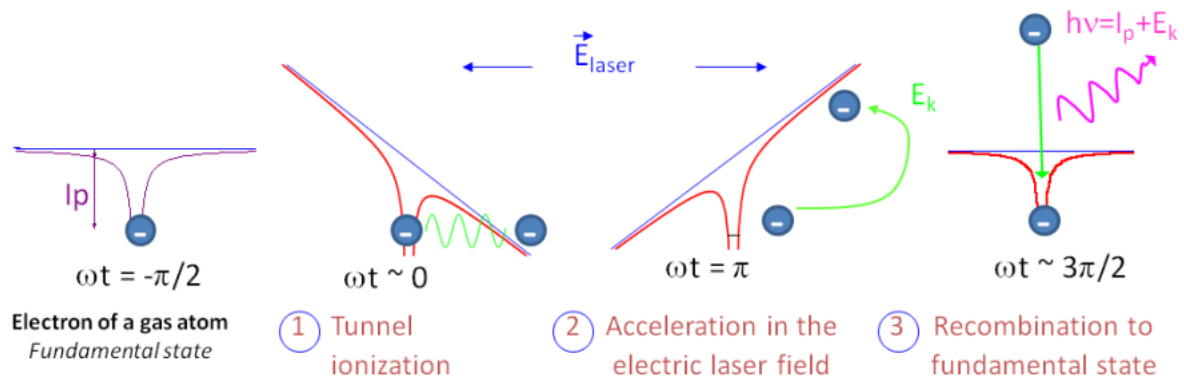
### Génération d'harmoniques d'ordres élevés

La GHE a été découverte en 1988 en parallèle par des équipes de Chicago et Saclay. Elle bénéficia de la possibilité de produire des impulsions laser de plus en plus intenses grâce à la technique dite CPA (amplification à dérive de fréquence, chirped-pulse amplification en anglais), grâce à laquelle on pût produire des impulsions d'une durée inférieure à 100 fs, avec une énergie de plusieurs millijoules à une longueur généralement située dans le proche infrarouge (spectre centré à 800 nm pour un laser Ti:Sapph). Lorsque des intensités de l'ordre de  $10^{14} \text{W/cm}^2$  sont atteintes lors de la focalisation du faisceau dans un jet de gaz rare, un peigne d'harmoniques impaires du laser est alors émis, résultant de l'interaction hautement non-linéaire entre le champ électrique du laser infrarouge et les atomes de gaz. Un spectre harmonique de ce genre est alors émis.



Pour les harmoniques d'ordres faibles (3, 5, 7), l'explication réside en fait tout simplement dans l'optique non-linéaire classique. Cependant, elle ne tient plus pour les ordres plus élevés : en effet, l'intensité des harmoniques élevées est similaire, ce qui signifierait que la probabilité d'ionisation multiphotonique serait identique pour chacun de ces ordres. De plus, la soudaine coupure du signal (à l'ordre 31 dans la figure ci-dessus) n'est pas expliquée non plus par des lois d'optique non-linéaire classique.

Un modèle semi-classique à 3 étapes a alors été proposé, permettant d'expliquer le phénomène de génération des harmoniques élevées. Il est résumé dans le schéma ci-dessous.



Tout d'abord, la situation est celle de l'état fondamental de l'atome de gaz rare : l'électron est dans un puits de potentiel. Sous l'action du champ laser, la barrière de potentiel se déforme telle que l'électron peut s'échapper par effet tunnel (étape 1). La force coulombienne due au champ laser accélère l'électron en question, qui gagne ainsi en énergie cinétique (étape 2). Finalement, l'électron peut se recombiner avec l'atome parent, émettant un photon dont l'énergie correspond au potentiel d'ionisation de l'atome, plus l'énergie cinétique accumulée par l'électron lors de son voyage hors du puits de potentiel (étape 3). Le fait que le processus puisse se dérouler à chaque demi-période du champ laser entraîne une interférence spectrale qui mène à l'émission d'une harmonique sur 2 uniquement. Le fait que les harmoniques en question soient impaires, et non paires, est dû au changement de signe de l'émission à chaque demi-période.

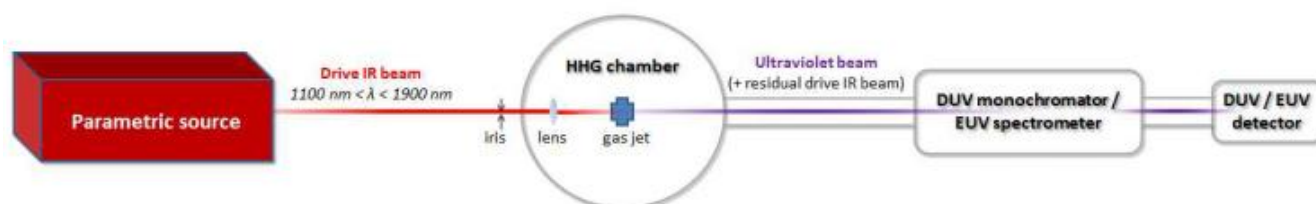
Il est à noter que le processus de GHE a une efficacité (rapport photons incidents / photons harmoniques) assez faible, car les probabilités d'ionisation tunnel puis de recombinaison radiative de l'électron avec son ion parent sont assez faibles. Typiquement, avec des impulsions Ti:Sapph de quelques dizaines de mJ, on peut obtenir un signal harmonique de l'ordre du  $\mu\text{J}$  au maximum, avec des paramètres optimisés (type de gaz, pression, focalisation, etc.). En outre, pour avoir une chance de recombinaison, le laser fondamental doit être polarisé linéairement puisque c'est lui qui guide la trajectoire de l'électron. Les harmoniques sont ainsi polarisées linéairement dans le cas général. Enfin, l'étude du mouvement de l'électron sous l'action du champ laser permet d'expliquer la coupure du spectre harmonique généré : en effet, on démontre facilement que l'énergie cinétique accumulée atteint un maximum, auquel correspond l'énergie maximale du photon émis (correspondant à l'harmonique de la coupure). Au-delà de cet aspect microscopique qu'est le modèle à trois étapes, l'aspect macroscopique est également primordial, puisque le milieu gazeux a une longueur donnée (quelques mm à quelques cm, de l'ordre de la longueur de Rayleigh du laser fondamental). Un accord de phase doit être respecté pour que les champs laser et harmonique se propagent à la même vitesse le long du milieu gazeux, permettant ainsi une construction cohérente du champ harmonique. Cet accord de phase dépend du gradient d'intensité laser, de la dispersion des

différents champs et de leur forme et guidage dans le milieu gazeux. Au-delà d'une certaine distance de propagation, la génération n'est plus constructive (le faisceau harmonique total correspond en fait aux interférences des photons émis tout au long du milieu gazeux) si les champs laser et harmonique en arrivent à être déphasés. La génération peut également être limitée par l'absorption du gaz. La longueur du milieu doit donc être inférieure à ces deux limites pour une génération efficace.

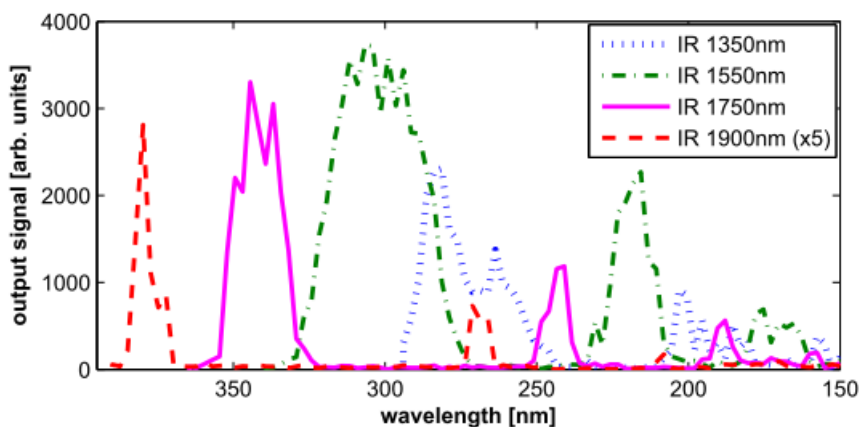
## Principaux résultats obtenus durant la thèse

### *Accordabilité des harmoniques*

Commençons par les activités liées plus particulièrement à l'HHG. Tout d'abord, je présente dans cette section une expérience simple qui tire son bénéfice des qualités du laser générateur. Le but de l'expérience était de démontrer l'accordabilité complète des harmoniques (qui sont, par définition, séparées spectralement, laissant ainsi des « zones de creux » entre elles – ce qui est éventuellement préjudiciable pour certaines applications). En particulier, entre 400 et 100 nm, on trouve peu de sources capables de produire des impulsions femtoseconde dont la longueur d'onde est modifiable à souhait. Ainsi, nous avons démontré expérimentalement une telle accordabilité en utilisant comme laser générateur la source paramétrique optique de l'institut Politecnico di Milano, elle-même accordable dans le proche infrarouge.



Dans le proche-ultraviolet, les harmoniques sont d'ordre faible (processus relevant de l'optique non-linéaire classique) ou « peu élevé ». On voit dans le graphe suivant le recouvrement des spectres correspondant à diverses longueurs d'onde du laser infrarouge générateur.





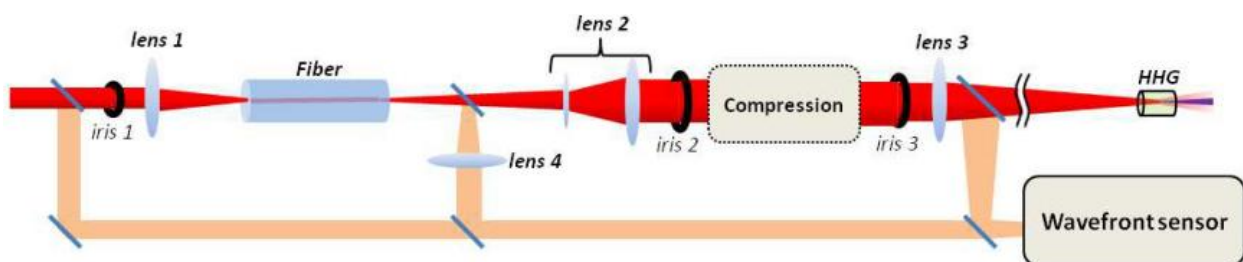
La mesure, à diverses longueurs d'onde du laser générateur, du nombre de photons/tir pour l'harmonique que nous pouvons considérer comme la première harmonique d'ordre élevé, soit l'harmonique 9, nous montre, comme cela avait été démontré récemment pour l'utilisation de krypton comme gaz rare, que le flux harmonique suit une loi d'échelle égale à la longueur d'onde du laser générateur à la puissance -6.

Les mêmes mesures de spectres ont été effectuées dans l'extrême-ultraviolet, démontrant de nouveau avec succès et sans surprise l'accordabilité des harmoniques. Dans cette gamme spectrale, les harmoniques sont de toute façon plus proches l'une de l'autre. En outre, d'autres techniques complémentaires existent pour obtenir une accordabilité fine : génération en utilisant un champ fondamental à 2 couleurs, chirp du laser générateur, etc.

Il est donc primordial de contrôler le laser générateur pour maîtriser les harmoniques : ceci est vrai spectralement comme nous venons de le voir, et dans la prochaine section nous allons démontrer que les caractéristiques spatiales jouent également un rôle majeur.

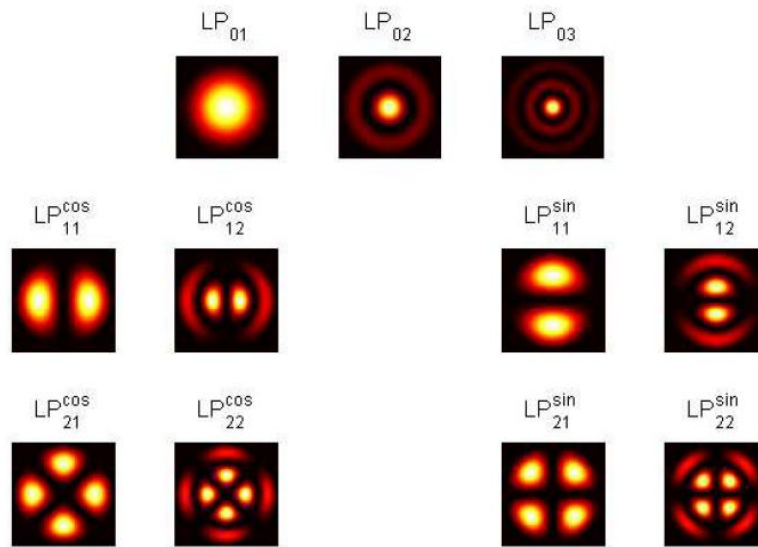
### Filtrage modal

Cette partie concerne mon activité au sein du laboratoire SPAM du CEA Saclay sur l'amélioration des caractéristiques spatiales du faisceau de la chaîne laser Ti:Sapph LUCA, dans le but d'optimisation de la génération d'harmoniques sur la ligne d'imagerie par diffraction cohérente. Le montage expérimental est relativement simple.

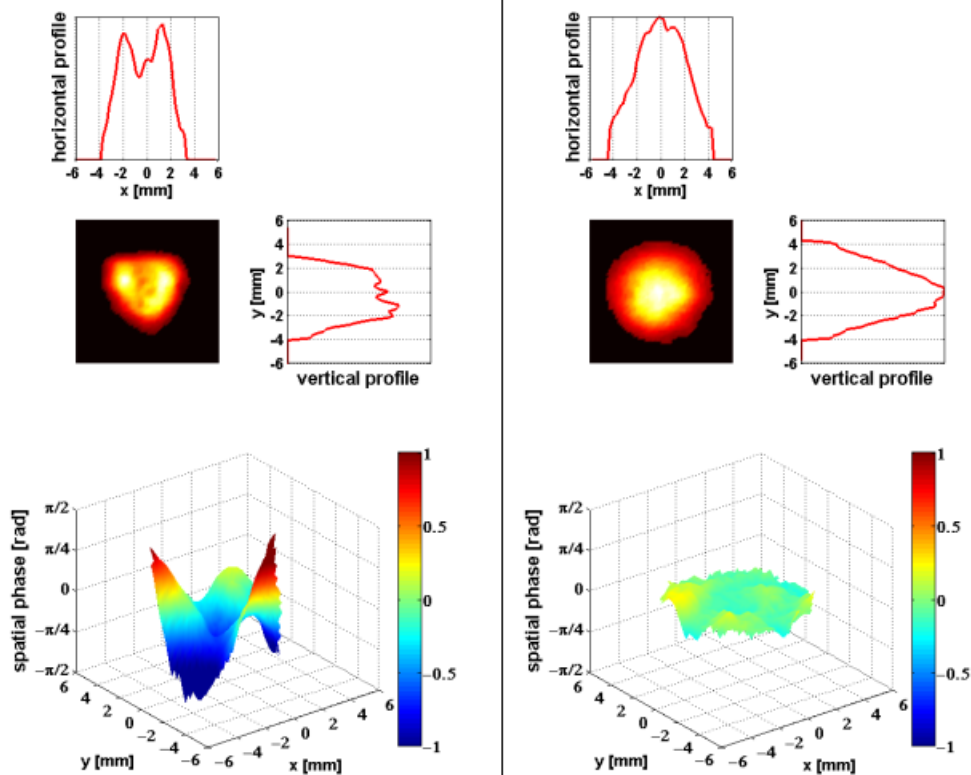


Il repose sur la propagation du faisceau dans une fibre, en l'occurrence un capillaire en silice à cœur creux. La fibre a été placée avant l'étage de compression (permettant de passer d'impulsions picoseconde à femtoseconde) de la chaîne CPA. Le principal diagnostic utilisé a été un senseur de front d'onde permettant d'obtenir la mesure du front d'onde et de l'intensité du faisceau avant et après la fibre, ainsi qu'après compression.

Le principe est le suivant : le faisceau se propage dans les modes propres du capillaire, dont les profils en intensité sont tracés ci-après. Il est clair que le mode  $LP_{01}$ , mode propre i.e., moins atténué dans le capillaire, est proche d'un mode gaussien. Ainsi, en couplant correctement le faisceau dans la fibre (de manière à maximiser le couplage dans  $LP_{01}$  et minimiser le couplage dans les autres modes), on peut obtenir à la sortie, avec de faibles pertes (jusque 80% de transmission dans notre cas), un mode quasi-gaussien. Un diaphragme est présent après la fibre pour filtrer les modes d'ordres supérieurs résiduels. En effet, ces modes sont plus divergents que  $LP_{01}$ , donc une grande partie de leur énergie est comprise dans de hautes fréquences spatiales.

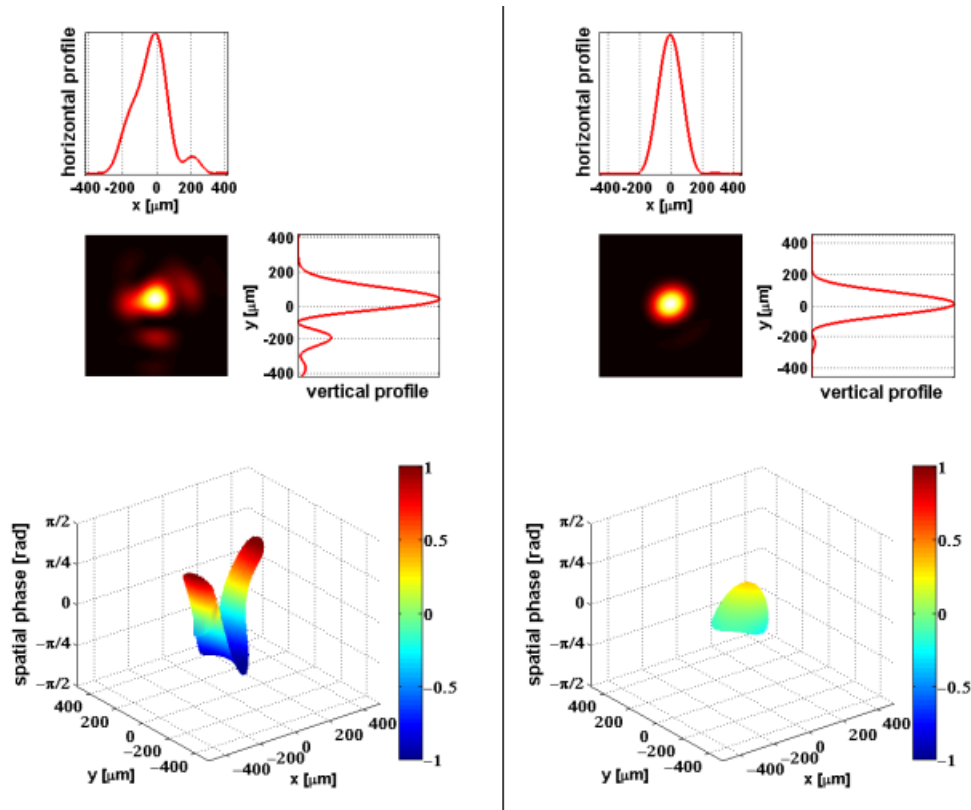


Les mesures menées avec le senseur de front d'onde devant (images de gauche) / derrière (images de droite) la fibre donnent le résultat suivant (en haut : profils en intensité ; en bas : surface du front d'onde).

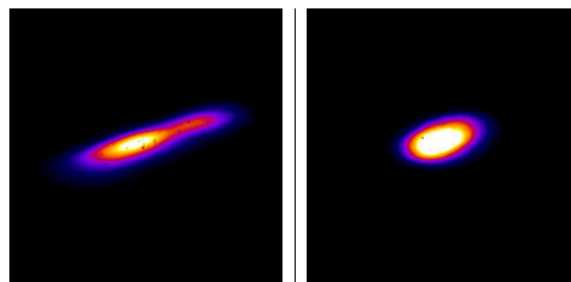


L'amélioration est claire, tant au niveau de la forme en intensité que de la planéité du front d'onde. Des mesures complémentaires ont montré que la divergence du faisceau était également améliorée ( $M^2$  passant de 2.1 à 1.4) et que les caractéristiques spectro-temporelles n'étaient pas altérées. De plus, nous avons démontré théoriquement la supériorité d'une telle technique par rapport à un filtrage spatial classique (à travers un trou) dans le cas d'un faisceau astigmatique au profil gaussien ou carré, comparable à ce que l'on retrouve dans les chaînes Ti:Sapph à haute énergie.

Enfin, la propagation numérique du faisceau (à partir du champ mesuré par le senseur de front d'onde derrière le compresseur) donne le comparatif suivant au foyer dans la cellule de gaz utilisée pour pour l'HHG.



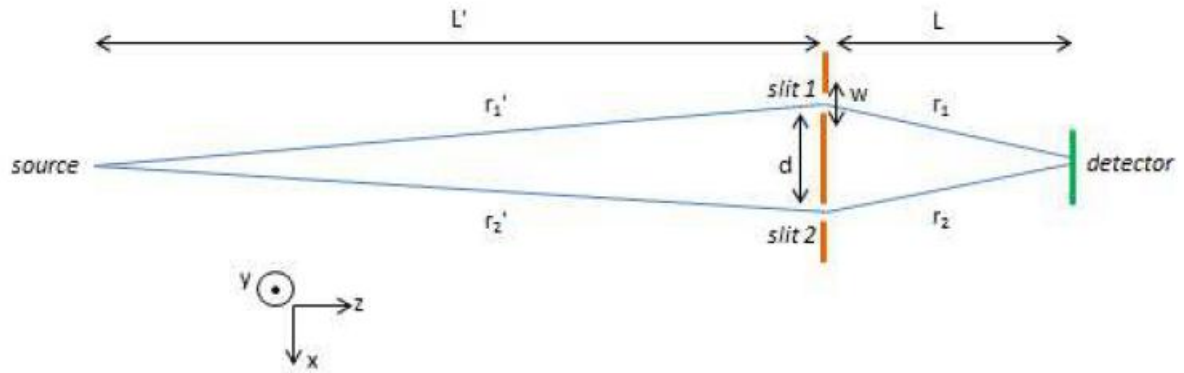
Encore une fois, l'amélioration est nette entre le faisceau non filtré (gauche) et celui filtré (droite). Ainsi, les répercussions sur l'HHG sont conséquentes : le processus global est optimisé, en particulier grâce à l'amélioration du front d'onde laser. En effet, l'HHG est un processus dépendant de l'accord de phase. De plus, l'efficacité de génération est aussi plus importante (jusque 6 fois plus élevée), ce qui est dû, outre l'amélioration du front d'onde, au fait que le faisceau laser ne comporte désormais que peu de hautes fréquences spatiales. En effet, ces dernières ne peuvent pas intervenir dans la génération puisque trop peu d'intensité laser y est comprise (n'atteignant pas les  $10^{14}\text{W}/\text{cm}^2$  requis), ce qui représente une perte dans le cas du faisceau non filtré. Finalement, la stabilité (intensité, pointé) des harmoniques est meilleure en présence de filtrage modal. L'image ci-dessous montre un exemple d'intensité en champ lointain de l'harmonique 25 utilisée ensuite pour les expériences d'imagerie par diffraction cohérente.



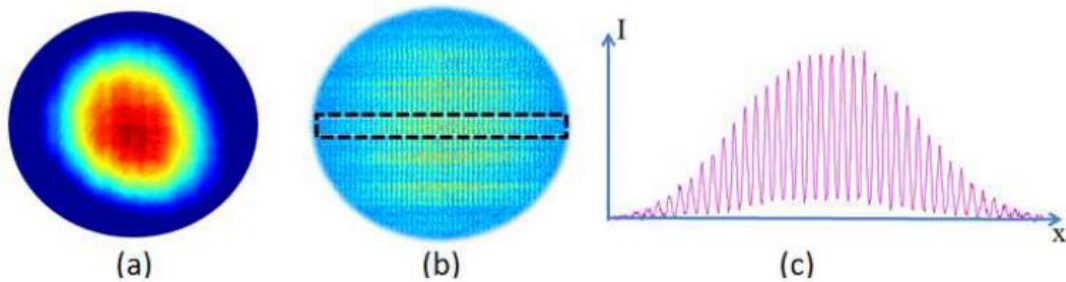
Pour continuer sur les propriétés spatiales de faisceau femtoseconde extrême-ultraviolet, la prochaine section va présenter les mesures de cohérence effectuées sur le LEL FERMI.

## Cohérence spatiale du LEL

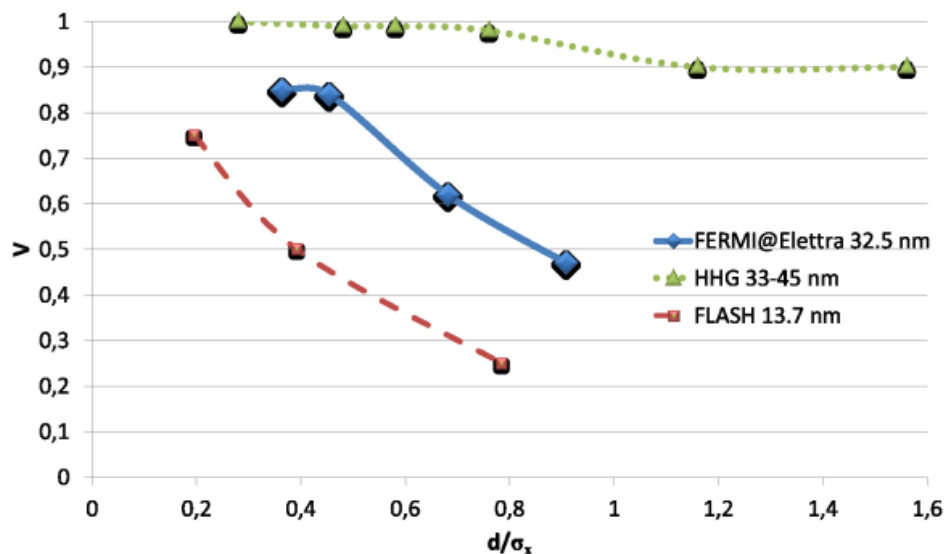
Une campagne de mesures de cohérence spatiale a été menée sur FERMI par un simple montage de fentes d'Young. Il est à noter que ces résultats font partie des premiers pour un LEL injecté. Nous mesurons donc, à l'aide du montage représenté ci-dessous, la corrélation entre deux portions transverses du faisceau LEL généré à 32.5 nm en polarisation circulaire, en faisant varier l'écartement entre les fentes afin de sonder différentes parties du faisceau.



Sur le détecteur, nous pouvons observer : (a) le faisceau direct, sans les fentes ; (b) la figure d'interférences une fois les fentes insérées ; (c) une coupe de cette figure sur laquelle est basée l'analyse des données.

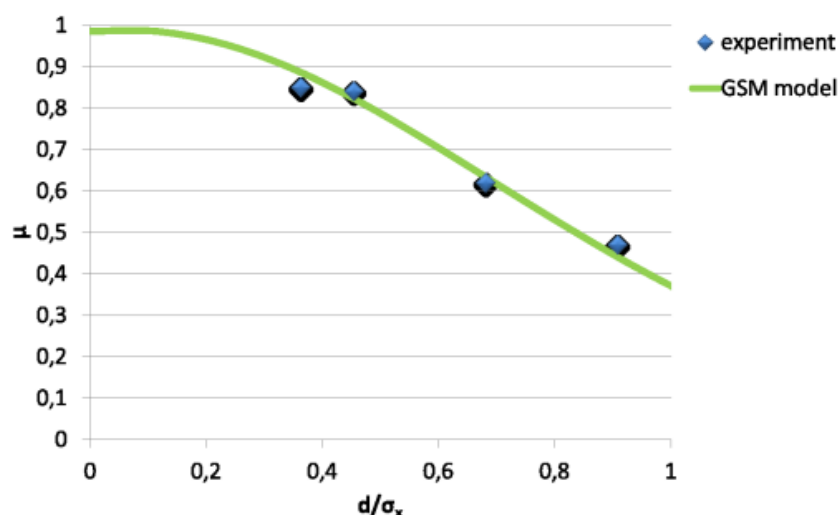


La visibilité  $V$  des franges est approximativement égale à la fonction  $|\mu|$  caractérisant la cohérence spatiale. On trace les courbes de visibilité en fonction de l'espacement entre les fentes, relatif à la taille du faisceau.



Ce graphique compare les résultats obtenus à FERMI (ligne pleine) et ceux trouvés dans la littérature, sur une source HHG (pointillés) où le jet de gaz est remplacé par un capillaire rempli de gaz et sur le LEL FLASH (tirets) fonctionnant en mode non-injecté, contrairement à FERMI. La haute cohérence de l'HHG s'explique par la qualité spatiale des harmoniques due à leur propagation dans un capillaire, comme pour le filtrage modal. La comparaison entre FERMI et un LEL non-injecté tend à montrer une cohérence spatiale supérieure pour un LEL injecté, en plus de meilleures caractéristiques spectro-temporelles comme cela était déjà admis depuis relativement longtemps par la communauté (le faisceau LEL « copie » le spectre et la forme temporelle du seed). Bien que les deux campagnes de mesures de cohérence sur FERMI et FLASH n'aient pas été effectuées de manière identique, les montages étaient similaires (fentes d'Young, pas de refocalisation du faisceau, longueurs d'onde proches, etc.), ce qui justifie une telle comparaison.

Au-delà du côté expérimental, il m'a paru intéressant de pousser la comparaison avec un modèle théorique. Notre LEL a été assimilé à un faisceau Gauss-Schell, dont le profil spatial et surtout la cohérence peuvent être calculés en toute position le long de sa propagation. Voici la comparaison entre les mesures de cohérence et les calculs du modèle :



Les mesures effectuées sur FERMI sont en parfaite adéquation avec la fonction de cohérence prédite par le modèle (cela se vérifie également pour le profil en intensité). Autrement dit, si l'on peut confirmer la justesse de ce modèle, la cohérence spatiale du LEL pourra être connue sans avoir besoin d'être mesurée, mais directement calculée.

Cette section clôt la partie des études de caractéristiques spatiales HHG et LEL. Il est à noter que des mesures de front d'onde ont été effectuées sur FERMI. Je ne les présente pas dans cette synthèse, bien qu'elles aient notamment permis une amélioration de la focalisation du faisceau LEL utilisé pour les expériences. Pour finir, je présente ci-après des études spectro-temporelles menées à FERMI.

### *Etudes de chirp sur FERMI*

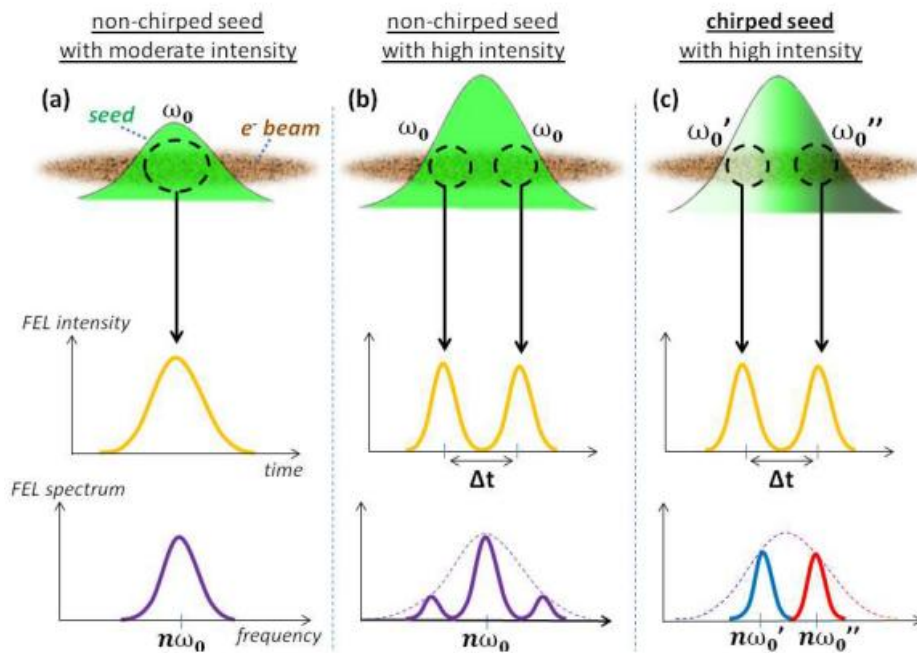
Je termine ce document par mon travail concernant le chirp sur FERMI. Cette activité a représenté beaucoup de temps et d'études numériques, expérimentales et parfois analytiques. Aussi, bien que cette

section soit relativement courte, les résultats ont été nombreux, mais j'en fais la synthèse pour éviter de tomber dans des détails qui seraient trop lourds ici, et que l'on peut retrouver dans le manuscrit complet.

Le chirp présent dans l'émission LEL sur FERMI provient de trois sources : le chirp du seed, celui du paquet d'électrons (correspondant à une dérive de l'énergie des électrons le long du paquet) et une composante, nommée chirp intrinsèque, émanant durant le processus d'amplification. Cette dernière cause de chirp est généralement négligeable devant ce qui est dû aux chirps du seed et des électrons. Pour ces 2 derniers, j'ai considéré un chirp linéaire du seed (linéaire en fréquence, phase quadratique) et un chirp quadratique des électrons (variation quadratique de l'énergie en fonction de la position dans le paquet), ce qui est proche du cas de FERMI, où les autres termes (chirp d'ordre supérieur) peuvent être négligés. Les simulations effectuées à l'aide du code Perseo (1D) ont montré que la phase temporelle de l'émission LEL se décompose en 3 parties : la phase de l'émission LEL obtenue avec un chirp des électrons mais sans chirp sur le seed  $\oplus$  la phase de l'émission LEL obtenue sans chirp sur les électrons mais avec un chirp sur le seed  $\ominus$  la phase de l'émission LEL obtenue sans chirp ni sur le seed ni sur les électrons (dans ce dernier cas, la phase de l'émission LEL correspond au chirp intrinsèque uniquement).

Des caractérisations du chirp sur le seed et des profils en énergie des électrons ont été menées. Le chirp sur le seed peut être contrôlé assez aisément (ajout de matériaux dispersifs, compresseur formé de deux réseaux en transmission) ; celui des électrons un peu moins ; mais les deux sont mesurables facilement. Dans la plupart des expériences menées, le chirp du seed était relativement élevé ce qui implique que le chirp des électrons n'avait que très peu d'influence sur le chirp de l'émission LEL. La situation se ramène donc à quelque chose d'assez simple : le chirp (la phase) de l'émission LEL est égal au chirp (à la phase) du seed multiplié par l'ordre harmonique amplifié.

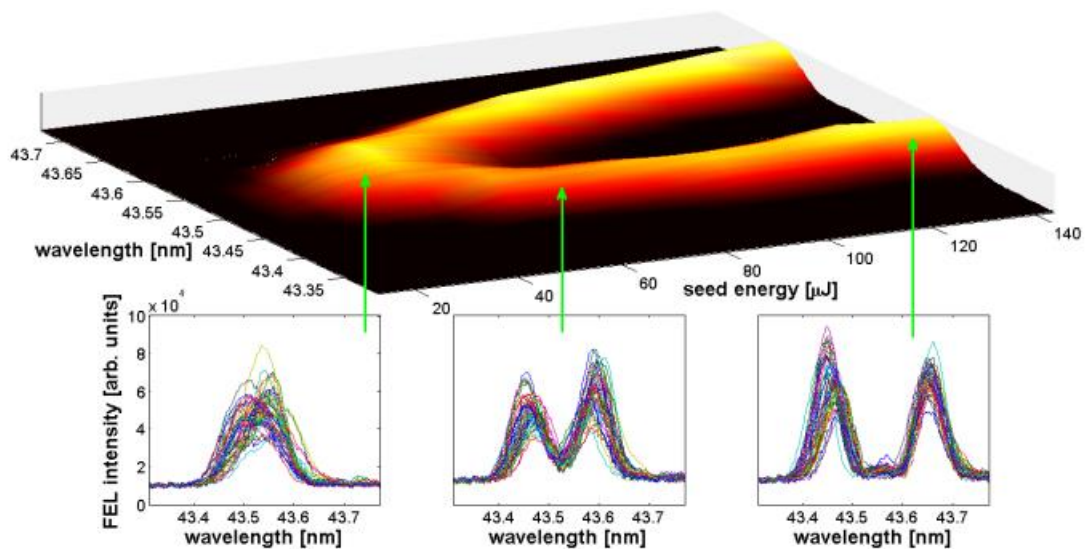
L'effet le plus original du chirp observé durant ma thèse est expliqué dans la figure suivante :



Dans le cas « classique » (a), l'émission LEL est une copie spectro-temporelle du seed. Lorsque le seed a une forte intensité (mais n'est pas chirpé), la modulation en énergie du paquet d'électrons au niveau de la

position centrale est trop forte ce qui induit un « over-bunching » local à cet endroit. Néanmoins, de part et d'autre de cette position, les électrons interagissent avec une portion du seed ayant la « juste » énergie pour un bunching efficace. Par conséquent l'impulsion se sépare temporellement en deux. Les deux sous-impulsions ainsi créées sont cependant centrées à la même fréquence. Dans le cas où le seed est intense et chirpé (c), qui nous intéresse ici, chaque sous-impulsion correspond à une fréquence différente, étant donné que le paquet d'électrons interagit avec un seed à une fréquence différente de part et d'autre du pic d'intensité du seed.

Nous avons ainsi pu observer une telle évolution du spectre LEL en augmentant progressivement la puissance du seed.



Puisque nous avons de cette manière la production de 2 impulsions séparées à 2 longueurs d'onde différentes, cela ouvre les horizons à l'utilisation de FERMI en tant que source pour des expériences pompe-sonde à 2 couleurs. Le comportement observé est parfaitement reproduit par les simulations, qui montrent également que la possibilité d'avoir un chirp important sur les électrons permettrait d'augmenter les possibilités de contrôle de l'émission à deux couleurs. Les simulations donnent également accès à l'information temporelle. Cette dernière, en l'état, n'est pas accessible sur FERMI, mais la séparation temporelle entre les 2 sous-impulsions peut néanmoins être calculée à partir de la séparation spectrale, et si le chirp du seed est connu. De plus, nous avons démontré que tout faisceau présentant un chirp linéaire suffisamment conséquent à une largeur spectrale donnée voit son profil en intensité temporelle être égal, via un simple changement de variable, à son spectre. Ainsi, les formes spectrale et temporelle de chaque sous-impulsion sont les mêmes et leur séparation temporelle est calculée directement. De plus, cette analogie spectro-temporelle s'applique à n'importe quel faisceau linéairement chirpé, dans n'importe quelle plage spectrale, bien que cette propriété soit plus intéressante dans l'extrême-ultraviolet et les rayons X, où les diagnostics temporels manquent.

## Conclusion

Cette thèse présente des travaux, principalement expérimentaux, sur les deux sources majeures de génération de faisceaux cohérents de durée femtoseconde dans l'extrême-ultraviolet. Des questions actuellement ouvertes y sont discutées (qualité spatiale, chirp, cohérence, accordabilité). Ce n'est qu'un début et d'autres voies restent à explorer.

De nombreux parallèles peuvent être tracés entre l'HHG et le LEL. Entre autres, nous voyons que les caractéristiques aussi bien spatiales que spectro-temporelles de l'HHG et du LEL dépendent grandement du laser générateur et du seed, respectivement. Ainsi, dans les deux cas les faisceaux peuvent être, indirectement, contrôlés aisément. C'est le cas pour l'optimisation de l'HHG grâce au filtrage modal, pour l'accordabilité HHG suivant celle du laser générateur, pour la génération de deux impulsions LEL séparées spectralement grâce au chirp du seed, voire pour l'amélioration de la cohérence spatiale du LEL, qui semblerait profiter de la présence du seed. A ce titre, en tant que perspective, il est intéressant d'étudier un possible façonnage spatial de l'émission LEL, en particulier via un contrôle du seed.

A court terme, les principales avancées concerneront la mesure temporelle, spécifiquement sur le LEL, tout en se rapprochant de la limite de Fourier. Pour atteindre des durées plus courtes avec des intensités crête élevées, l'on cherche à installer des montages de type CPA, en comprimant un faisceau LEL préalablement chirpé (via le seed par exemple). Concernant la possibilité d'atteindre de plus courtes longueurs d'onde, l'addition d'un second étage d'onduleurs sur FERMI permet désormais de multiplier l'ordre harmonique amplifié, atteignant ainsi la fenêtre de l'eau. Enfin, alors qu'il est possible sur LEL de générer des polarisations circulaires, cela reste un souci pour l'HHG, ce qui en fait une piste d'étude intéressante pour l'avenir.