

INTRODUCTION

Depuis leur découverte par Wilhelm Roentgen en 1895, les rayons X sont devenus un outil indispensable dans les techniques de mesure. Le pouvoir de pénétration de ces rayons qui est d'autant plus élevé que la longueur d'onde est courte, a permis des applications multiples dans différents domaines de la science : cristallographie, médecine (ablation de tumeurs,...), microscopie de contact et holographie en microbiologie... Les sources de rayons X produits par les tubes, les décharges plasmas et les synchrotrons sont actuellement bien caractérisées et exploitées, dans les laboratoires, dans les industries et dans les milieux hospitaliers.

Les dernières années ont été l'occasion de progrès considérables en ce qui concerne les sources de rayonnement XUV et X brèves et intenses, qui résultent pour une grande partie des améliorations apportées aux lasers de forte puissance. La puissance crête, c'est à dire la puissance atteinte lors du maximum de l'impulsion, a augmenté au fur et à mesure de la possibilité de délivrer l'énergie sur des temps de plus en plus courts. Le raccourcissement à des impulsions très courtes a été en particulier possible grâce à la technique de dérive de fréquence ou CPA (« Chirped Pulse Amplification »). Ainsi, la puissance crête est passée du gigawatt (10^9 Watt) dans les années 1980 au térawatt (10^{12} Watt) dans les années 1990 et actuellement certains lasers dépassent le pétawatt (10^{15} watt). La durée d'impulsions des lasers actuels peut atteindre quelques femtosecondes. Une fois le faisceau est focalisé, on peut produire un éclaircissement de l'ordre de 10^{21} W.cm⁻² dans une surface de quelques dizaines de microns de diamètre.

Ainsi se sont développées différentes sources XUV résultant de l'interaction d'un laser de puissance et d'une cible solide ou gazeuse. Ces nouvelles sources se distinguent par leur exceptionnelle brillance impulsionnelle, due à la combinaison d'une faible durée d'impulsion (de 25 à 100 ps) et d'un très grand nombre de photons par impulsion (10^8 à 10^{14}). Les lasers XUV, la génération d'harmoniques d'ordre élevé et les plasmas produits par laser sont les trois composantes de cette nouvelle génération de sources X et XUV. Ces sources ont en commun beaucoup plus que leur brillance exceptionnelle : Elles sont produites par des lasers impulsionnels de très grande puissance, et le milieu est le plus

souvent ionisé et c'est la propagation du rayonnement dans ce milieu qui génère les qualités de la sources (cohérence, divergence ...). En parallèle, les lasers à électrons libres étendent leurs longueurs d'onde vers les rayons X. Ces sources coûteuses et de grandes dimensions se posent comme les sources X cohérentes les plus performantes jamais construites.

Le but de ce chapitre est de faire une revue rapide sur les différentes sources de rayonnement XUV cohérentes et de présenter le contexte scientifique qui a amené les études présentées dans ce manuscrit. Nous présenterons tout d'abord les principales sources cohérentes de rayonnement XUV que sont les lasers à électrons libres, la génération d'harmoniques d'ordre élevé et les lasers XUV par plasma. Nous nous intéresserons d'avantages sur les différents types de lasers XUV tout en insistant tout particulièrement sur les lasers XUV créés par un laser femtoseconde.

1.1. LES SOURCES COHERENTES DU RAYONNEMENT XUV

1.1.1. Les synchrotrons

1.1.1.1. Les différentes générations de synchrotrons

Issus des anneaux de collisions de particules, les synchrotrons sont des sources de rayonnement électromagnétique allant de l'infrarouge aux rayons X. L'émission synchrotron est produite lorsque des électrons qui se déplacent à une vitesse proche de celle de la lumière sont déviés par un champ magnétique. Elle est mise en oeuvre dans de grands accélérateurs de particules linéaires ou circulaires. Les sources synchrotrons de la première génération datent des années 1960 et 1970, et servaient à la physique des particules. La deuxième génération regroupe dans les années 1980 des installations construites spécifiquement pour la production de rayonnement synchrotron. En 1992, un synchrotron de troisième génération est construit à Grenoble, l'ESRF ("European Synchrotron Radiation Facility"), capable de produire un rayonnement cohérent. Les autres sources de ce type sont actuellement le "Spring-8" au Japon, le synchrotron APS ("Advanced Photon Source") aux Etats-Unis et SOLEIL qui est en cours de construction sur le plateau de

Saclay. Ces sources peuvent couvrir un large domaine en longueur d'onde. Cependant la puissance crête est de l'ordre de $10^4 - 10^5$ Watts et la durée de l'impulsion reste relativement longue (de 50 à 100 ps).

1.1.1.2. Laser à électrons libres X (LEL)

Les Laser à électrons libres X (LEL X) représentent la quatrième génération de synchrotrons. Ils devraient produire des intensités supérieures de plusieurs ordres de grandeur à celle des sources actuelles. Le principe consiste à combiner le rayonnement synchrotron aux caractéristiques d'une source de laser « optique ». L'idée est de remplacer le milieu amplificateur par un faisceau d'électrons relativistes produit par un accélérateur de particules. Les paquets d'électrons, circulant dans un accélérateur linéaire ou circulaire traverse un champ magnétique fourni par un aimant « onduleur », dont les polarités sont alternées périodiquement à des intervalles de distance réguliers. A l'intérieur de cet onduleur, les électrons vont acquérir une vitesse transversale sinusoïdale permettant, par le couplage avec l'onde électromagnétique, d'émettre spontanément un rayonnement dit synchrotron. L'émission peut alors être amplifiée de deux façons :

- le rayonnement est stocké dans une cavité optique, délimitée par deux miroirs aux extrémités de l'onduleur (comme dans les lasers optiques), les photons émis peuvent interagir avec des paquets successifs d'électrons, ce qui, dans certaines conditions, provoque une forte amplification d'intensité du faisceau lumineux.
- Le faisceau est amplifié par un simple passage dans le milieu par SASE ("Self-Amplification of Spontaneous Emission"). Ceci permet de surmonter la difficulté de trouver des miroirs de bonne réflectivité dans la gamme de l'XUV en incidence normale. Comme le montre la figure 1.1.1, les électrons ayant une vitesse moins élevée absorbent les photons émis et sont accélérés, avant d'émettre à leur tour des photons à plus courtes longueurs d'onde.

Contrairement aux lasers optiques où la longueur d'onde est fixée par les niveaux atomiques du milieu amplificateur, la longueur d'onde d'un LEL varie de façon continue avec le champ magnétique de l'onduleur et l'énergie des électrons. Ce qui donne à la fin une source cohérente de rayonnement X accordable dont la longueur d'onde est donnée par :

$$\lambda = \frac{\lambda_0}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2}\right) \quad (1.1.1)$$

K est le paramètre de réflexion de l'onduleur, γ : l'énergie des particules normalisée par rapport à leur énergie au repos (0,511 MeV) et λ_0 : la longueur d'onde de l'onduleur. La longueur d'onde à la sortie varie linéairement avec la longueur d'onde de l'onduleur et inversement proportionnel au carré de l'énergie des particules. Il n'existe pas à priori une limite théorique de la longueur d'onde qu'on peut atteindre avec cette méthode.

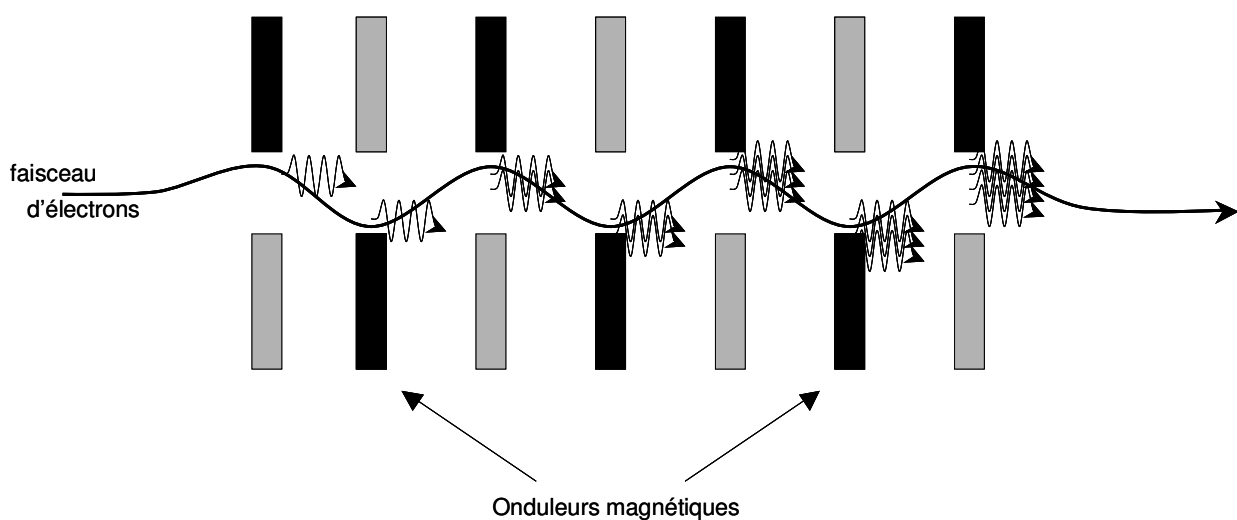


Figure 1.1.1. Schéma d'un LEL sous SASE. Le faisceau d'électrons traverse l'onduleur et absorbe les photons émis, conduisant à une émission cohérente dans le domaine de l' XUV

L'éclairement du faisceau obtenu dépend fortement du courant crête du faisceau d'électrons. La durée de l'impulsion du laser LEL qui dépend de la durée de l'impulsion du paquet de particules sera alors très courte (de l'ordre de 100 fs). De plus, on s'attend à d'excellentes qualités optiques : faible divergence, polarisation, cohérence spatiale. Un certain nombre de dispositifs autour du monde sont actuellement prévus ou en cours de construction et devraient fonctionner à des longueurs d'onde de l'ordre de 5 nm et à des puissances crêtes de l'ordre du gigawatt et au-delà. Citons le "Linac Coherent Light Source" (LCLS) à Stanford qui sera opérationnel en 2009, le LEL du "Massachusetts Institute of Technology" (MIT) à Cambridge, le TESLA, LEL au "Deutsches Elektronen-Synchrotron Laboratory" (DESY) à Hambourg, ou encore le projet "Berlin Electron Storage Ring for Synchrotron Radiation (BESSY). Le laser LEL a été déjà observée (en

2000) dans la gamme d'UV à 109 nm au DESY, avec une durée d'impulsion variant de 0,4 à 1 ps [1.1.1]. En 2002, l'ionisation d'atomes de xénon a été étudiée avec un champ laser créé par un LEL d'une longueur d'onde de l'ordre de la centaine de nanomètres, d'une durée de 100 fs et d'une intensité de $7 \cdot 10^{13}$ W/cm² [1.1.2]. Les performances exceptionnelles du laser LEL font de lui une source idéale pour les applications. Néanmoins, le coût très élevé et l'accès limité restent des limitations réelles pour son utilisation.

1.1.2. Génération d'harmoniques d'ordres élevées (HHG)

1.1.2.1. Dans les gaz

La génération d'harmoniques d'ordre élevé est réalisée en utilisant une configuration expérimentale qui est très semblable à celle utilisée dans nos expériences de laser XUV par OFI, et que nous décrivons par la suite. L'intensité laser utilisée est néanmoins moins élevée ($< 10^{15}$ W.cm⁻²). Une impulsion laser femtoseconde, polarisée linéairement, est focalisée dans le milieu gazeux (jet, cellule ou tube). Pendant son ionisation, l'électron peut se recombiner vers son ion parent, sous l'effet du champ électrique associé au laser. Au cours de cette recombinaison des harmoniques de la fréquence du laser sont émises dans l'axe du laser infrarouge et peuvent atteindre des ordres très élevés. Pour des raisons de symétrie, seuls les ordres harmoniques impairs sont produits [1.1.3]. Le spectre est caractérisé par une décroissance rapide, un large plateau sur lequel l'intensité des harmoniques est presque constante et une coupure franche. Les années 1990 ont connu une forte activité sur ces sources en utilisant les lasers CPA. En utilisant un laser Ti : Sapphire à 780 nm, on a observé le 131^{ème} harmoniques (5,99 nm) dans le néon et le 91^{ème} dans l'argon (9,7 nm) [1.1.4]. La plus courte longueur d'onde a été observée à 6,7 nm en utilisant un laser de KrF à 248 nm [1.1.5]. Ces sources délivrent un train d'impulsions de quelques centaines d'attosecondes qui ne sont produites par aucune autre source. Ceci constitue un atout pour les applications qui nécessitent une résolution temporelle élevée pour sonder des phénomènes très brefs tel que le mouvement des électrons sur les couches internes des atomes. De plus, le faisceau d'harmoniques possède de bonnes qualités optiques : cohérent spatialement, polarisé et un bon front d'onde.

Les performances de ce type de source dépendent de la gamme spectrale et de la géométrie de création du milieu émetteur. Elles sont tout particulièrement efficaces autour de 30 nm où elles peuvent délivrer de l'ordre de 10^{10} photons par tirs. Pour des longueurs d'onde plus courtes, le nombre de photons par tir décroît rapidement. Il est de l'ordre de 10^7 vers 13 nm.

Si les études sur ces sources utilisent pour beaucoup la nature attoseconde du rayonnement, la recherche d'ordres harmoniques et d'efficacités plus élevées est toujours très active. Plus récemment, des études menées au sein de mon groupe ont montré qu'il est possible d'amplifier le signal harmonique dans des plasmas de laser X [1.1.6]. Ces études ont utilisé les plasmas de xénon et krypton XI étudiés au cours de mon travail de thèse. Elles font l'objet de la thèse d'un co-doctorant G. Faivre et ont pour but de combiner les bonnes qualités optiques des harmoniques d'ordre élevé avec la forte énergie par impulsion des lasers X. Les résultats obtenus ont permis d'accroître d'un facteur 20 à 200 le signal d'harmonique injecté dans le plasma tout en conservant les qualités optiques du faisceau de départ. Ce travail ouvre la voie à la réalisation de source laser XUV de haute énergie ayant les qualités optiques des faisceaux harmoniques.

1.1.2.2. Sur les solides

En focalisant un laser intense à la surface d'une cible solide, il est aussi possible de générer des harmoniques d'ordre élevé d'un laser infrarouge. Ces harmoniques sont produits dans la direction spéculaire du laser infrarouge par réflexion non linéaire sur un plasma à fort gradient de densité. Une interprétation de ce processus peut être comprise de la façon suivante : le champ laser produit une oscillation de la densité critique du plasma formé donnant lieu à une modulation de phase du faisceau réfléchi [1.1.7]. A la différence des harmoniques produits dans les gaz, des harmoniques paires et impaires sont produites et leur génération est très sensible au gradient de densité électronique du plasma produit. Des calculs et des expériences récentes montrent que ce processus peut avoir une grande efficacité et peut donner lieu à la production d'un faisceau cohérent XUV de 1 à 100 μ J dans la gamme de 30 - 40 nm [1.1.8 - 1.1.9]. Un excellent contraste temporel est absolument nécessaire, ce qui impose l'utilisation de dispositifs tels que des miroirs plasma [1.1.9] pour obtenir un gradient de densité le plus raide possible.

1.1.3. Les Lasers XUV

C'est en 1970 que la première observation d'une amplification laser dans le domaine XUV (à 11,7 nm) a été réalisée [1.1.10] et depuis la course aux lasers à courte longueur d'onde n'a cessé de progresser. Du fait de la forte intensité nécessaire pour créer le milieu amplificateur, un plasma d'ions multichargés, les études se sont développées en utilisant des installations laser destinées à la physique de la fusion inertielle. En 1984, une forte amplification à 20,6 nm a été observée [1.1.11], en utilisant le laser le plus puissant disponible à l'époque (10 kJ), nommé NOVA. Les progrès réalisés par la suite, aussi bien sur les lasers de pompe que sur la physique des lasers X, ont permis de réduire l'énergie de pompe investie pour la création du milieu amplificateur. En 1991, le régime de saturation a été atteint sur une installation plus modeste sur la transition 3s - 3p du germanium néonoïde à 23,6 nm, pompé par excitation collisionnelle [1.1.12]. Les nombreuses études menées au cours des années 90 ont permis d'améliorer sensiblement les conditions de pompage, grâce notamment à l'utilisation d'impulsion de plus courte durée [1.1.13, 1.1.14] et de mieux contrôler des conditions de propagation du laser X dans le plasma par l'utilisation d'une préimpulsion de faible énergie [1.1.15].

Il existe aujourd'hui de nombreuses techniques qui permettent la réalisation d'un laser dans le domaine XUV. Ces sources fonctionnent en régime saturé dans la gamme spectrale 7 - 50 nm et le taux de répétition est souvent modeste (quelques tir par heures). Les performances de ces sources sont variables et dépendent étroitement des conditions de pompage. Elles peuvent délivrer jusqu'à 10 mJ pour une durée de 100 ps. Il est également possible de réduire la durée d'émission jusqu'à quelques picosecondes en utilisant un pompage plus bref, mais ceci s'opère au détriment de l'énergie du faisceau qui n'est alors que de quelques dizaines de μJ .

D'autre part, d'autres solutions de pompage ont été étudiées et ont mené à la réalisation de sources laser XUV. Citons en particulier les plasmas obtenus par décharge électrique rapide dans des capillaires qui ont permis l'observation d'une amplification saturée de la raie à 46,9 nm dans l'argon néonoïde [1.1.16].

Les applications de ces lasers X ont été développées parallèlement aux progrès réalisés sur la source. Les premières expériences ont permis de démontrer les potentialités des sources laser X, pour réaliser de nouvelles études fondamentales des domaines variés

tels que la physique du solide (luminescence de cristaux [1.1.17]), la physique des plasmas denses (interférométrie [1.1.18], [1.1.19]) ou la physique des surfaces [1.1.20].

Comme nous le montrerons dans ce manuscrit, la production d'amplificateurs XUV a été plus récemment étendue à des plasmas créés à très haute intensité par des lasers ultra-brefs (quelques dizaines de fs). La principale motivation de cette voie est de réaliser un laser X avec une cadence de 10 Hz. Le milieu d'interaction est un gaz ou un plasma sous-dense et la production des ions lasants est assurée directement par le champ électrique du laser de pompe. C'est l'étude de ce type de lasers qui fait l'objet de cette thèse.

1.2. PRINCIPE ET ETAT DE L'ART DES LASERS XUV

1.2.1. Schémas de pompage

Le laser X repose – comme tout effet laser – sur la création d'une inversion de population entre deux niveaux atomiques appropriés afin de permettre l'amplification du rayonnement par émission stimulée. Il faut que le milieu amplificateur soit suffisamment long et que sa durée de vie soit suffisamment grande pour permettre l'amplification du rayonnement tout au long du milieu. Les schémas de pompe les plus étudiés sont les schémas dits « par recombinaison » et « par excitations collisionnelles » dont nous allons brièvement rappeler les principes.

1.2.1.1 Pompage par recombinaison

Le principe du pompage par recombinaison [1.2.1] consiste à créer un plasma suffisamment froid et dense pour que des processus à trois corps dominent la recombinaison et peuplent fortement les niveaux supérieurs de l'ion considéré (figure 1.2.1). Dans ces conditions, l'inversion de population est créée pendant la cascade radiative collisionnelle qui suit la recombinaison. L'effet laser se produit pour des transitions du type $\Delta n = 1$ et $\Delta n = 2$ dans les ions de Z légers ($6 \leq Z \leq 17$) possédant un électron en sous-couche externe (lithiumoïde ou hydrogéoïde).

L'approche la plus étudiée consiste à créer un plasma chaud d'état d'ionisation désiré, par l'interaction d'une impulsion laser et d'une cible massive. L'inversion de

population est produite pendant la phase de refroidissement adiabatique du plasma après l'interaction. Généralement, comme l'expansion adiabatique du plasma est le processus principal favorisant un refroidissement du plasma, il est judicieux de le laisser se détendre librement dans tout l'espace [1.2.2].

Plus récemment des plasmas créés par laser femtoseconde ont montré qu'ils pouvaient être des bons amplificateurs du rayonnement XUV. La démonstration expérimentale la plus convaincante, d'un laser X-UV par OFI en recombinaison, a été effectuée sur la raie Ly_{α} du lithium hydrogénoïde à 135 Å. Un coefficient de gain de 20 cm^{-1} a été mesuré sur une colonne de plasma de 2 mm [1.2.3]. Cependant, le chauffage non désiré des électrons par des effets non linéaires limite fortement l'efficacité de ce système.

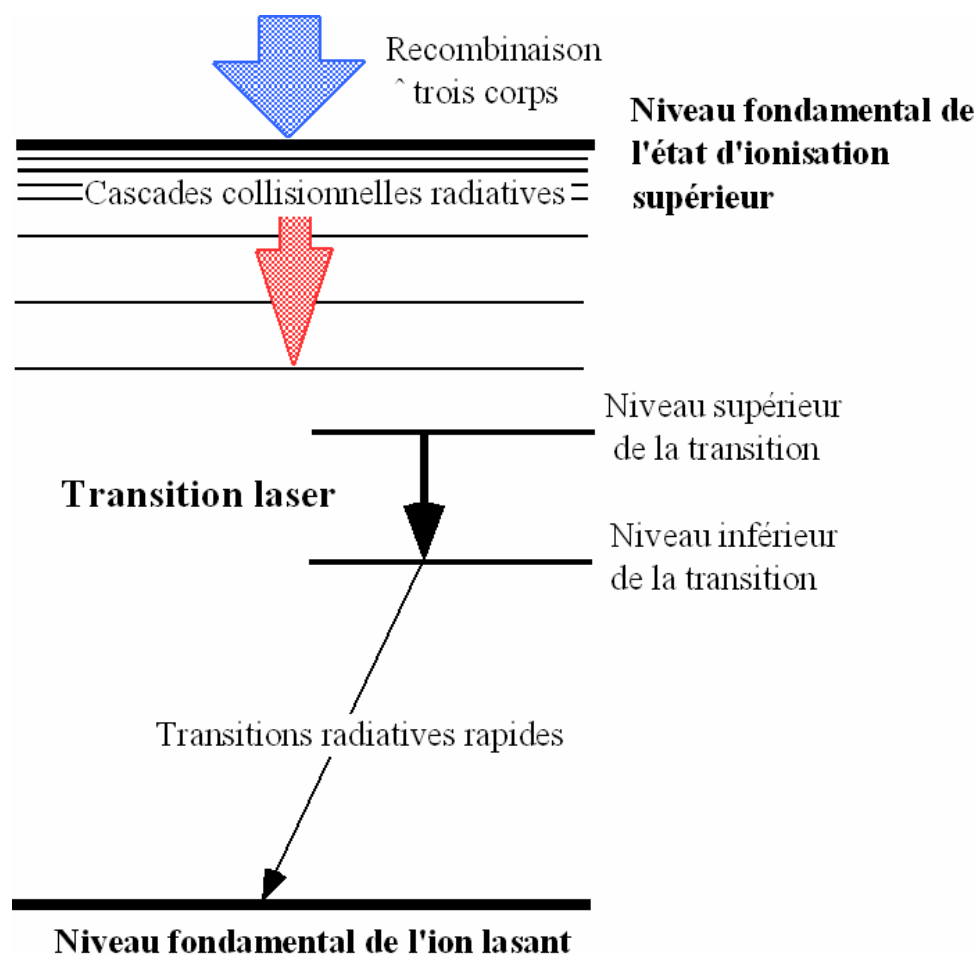


Figure 1.2.1. Mécanisme de pompage par recombinaison.

Si jusqu'à présent le schéma de recombinaison n'a pas encore permis la réalisation d'une émission saturée, il reste très néanmoins attrayant ; il permet d'atteindre des longueurs d'onde inférieure à 1 nm avec des énergies de pompe relativement modestes, comparativement aux schémas qui seront présentés par la suite. Toutefois l'étude de ce schéma est pour l'instant abandonné au profit du schéma collisionnel sur lequel nous nous concentrerons dans la suite de ce manuscrit.

1.2.1.2. Pompage par excitations collisionnelles

Comme nous l'avons dit précédemment, les résultats les plus marquants ont été obtenus en utilisant le schéma de pompage collisionnel qui nécessite des plasmas denses et chaud. La figure 1.2.2 décrit schématiquement son principe. Le niveau supérieur de la transition laser est peuplé par excitation collisionnelle, à partir du niveau fondamental de l'ion lasant qui constitue le réservoir de population. Parallèlement le dépeuplement du niveau inférieur de l'inversion est très rapide, car la désexcitation radiative de ce niveau vers le fondamental est très probable, alors que la désexcitation radiative du niveau supérieur vers le fondamental est interdite par les règles de sélection. Sous certaines conditions de densité et de température, il se crée alors une inversion de population entre ces deux niveaux. Les candidats les plus favorables à ce schéma sont des ions à structure à couche ou sous-couche fermée, de type néonoïde ou nickeloïde, parce qu'ils sont relativement stables vis à vis des processus d'ionisation. Nous verrons par la suite que les ions palladiumoïdes sont également des très bons candidats.

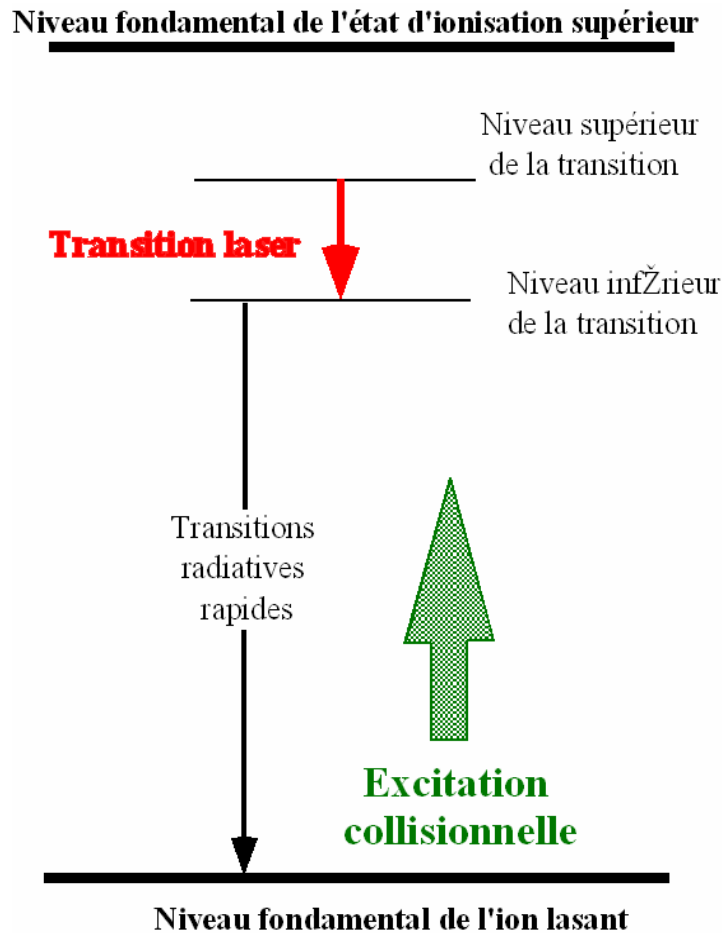


Figure 1.2.2. Mécanisme de pompage collisionnel.

1.2.2 Amplification du rayonnement XUV

Pour qu'un plasma soit un bon milieu amplificateur, celui-ci doit répondre simultanément à deux conditions. Il faut tout d'abord qu'il soit le siège d'une inversion de population. Simultanément, la géométrie du plasma doit permettre une longueur d'amplification suffisante pour générer une émission intense et collimatée. Nous verrons tout au long de ce mémoire que la propagation du faisceau laser dans un plasma prend une place très importante dans les caractéristiques des lasers XUV (intensité de sortie, angle d'émergence). Quand ces deux conditions sont réunies, l'intensité d'une raie laser croît exponentiellement avec la longueur L du milieu amplificateur traversé. Tant que la désexcitation radiative a une influence négligeable sur les populations (approximation du "petit signal"), cette relation est donnée par la résolution de transfert radiatif (équation

1.2.1). Après traversée d'un milieu de longueur L , l'intensité du rayonnement à la fréquence ν s'écrit :

$$I_\nu = S \cdot (\exp G_\nu L - 1) \quad (1.2.1)$$

Où S est la fonction source qui est indépendante de la probabilité de transition et G_ν est le coefficient de gain à la fréquence ν . Il s'écrit, pour une transition laser $j > i$ de longueur d'onde λ_0 et de probabilité d'émission spontanée A :

$$G(\nu) = \frac{\lambda_0^2}{8\pi} A \cdot g_j \cdot \Delta N \cdot \phi_0(\nu) \quad \text{avec } \Delta N = N_j/g_j - N_i/g_i \quad (1.2.2)$$

Où N_k et g_k sont respectivement la population et la dégénérescence du niveau k ($k=i, j$) et $\Phi_0(\nu)$ est la fonction profil associée à la transition $j \rightarrow i$.

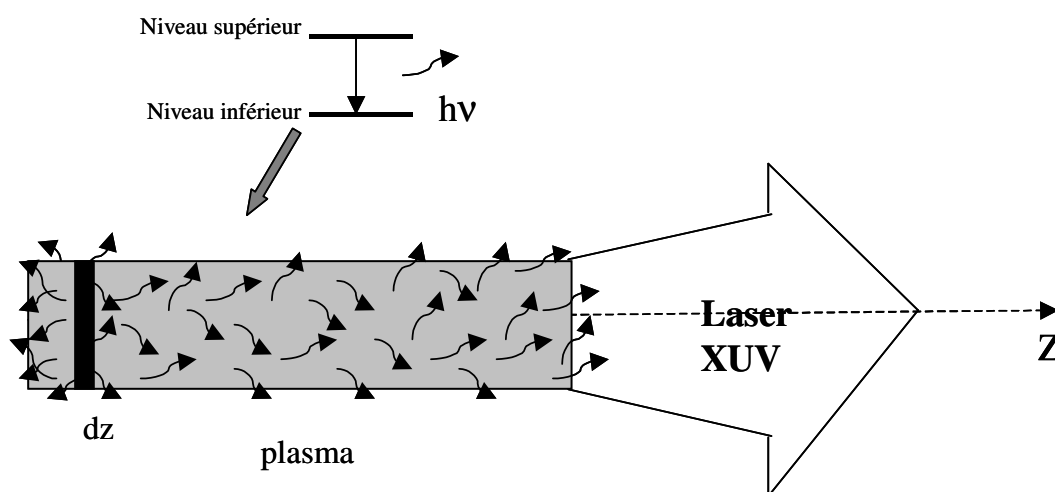


Figure 1.2.3. Amplification sous le système ASE. Si un photon $h\nu$ « naît » dans la section dz et si sa direction est dans l'axe du plasma (géométrie cylindrique), il se voit amplifié par les autres émetteurs tout au long de son trajectoire dans le plasma.

Les lasers XUV par plasma fonctionnent donc sous le régime d'ASE (« Amplified Spontaneous Emission »). Comme le montre la figure 1.2.3, l'émission spontanée est amplifiée par les autres ions pendant sa propagation dans le milieu. Le rayonnement

émergeant possède les caractéristiques d'un laser, c'est à dire : monochromaticité, brillance, directivité et cohérence. A la différence des lasers usuels (IR et visibles) qui montrent des coefficients de gain de 10^{-2} cm^{-1} , ceux des lasers XUV produits par plasma sont de l'ordre de 5 à 100 cm^{-1} , ce qui permet d'atteindre le seuil de saturation ($G_{\nu}L \sim 15$) sur une longueur de quelques millimètres. Le coefficient de gain ou le produit $G_{\nu}L$ (facteur de gain) sont les grandeurs utilisées pour caractériser le pouvoir amplificateur des plasmas de laser XUV. Nous les retrouverons tout au long de ce manuscrit quand nous décrirons les principaux résultats obtenus.

1.2.3. Etat de l'art des lasers XUV collisionnels

1.2.3.1. Lasers XUV collisionnels pompés par laser de 1 à 600 ps

Les premières expériences sur le laser X ont commencé sur des installations lasers à longue durée d'impulsion (nanoseconde). Ces lasers XUV sont appelés quasi-stationnaires [1.2.4, 1.2.5]. Les développements et surtout la découverte du rôle positif que joue l'utilisation d'une préimpulsion qui précède l'impulsion principale ont permis à la fois de réaliser des lasers XUV saturés et de générer des longueurs d'onde plus courtes [1.2.6, 1.2.7]. Les lasers XUV ainsi obtenus délivrent des impulsions de l'ordre de 1 à 10 mJ pour une durée de l'ordre de 100 ps. Compte tenu de la durée de vie de l'amplificateur, ce type de laser XUV peut fonctionner en double passage, ce qui permet d'accroître l'énergie de sortie et d'améliorer les qualités optiques du faisceau sans apport d'énergie de pompe supplémentaire. Au moment de la rédaction de cette thèse, seule une installation à travers le monde, le laboratoire PALS à Prague (République tchèque) étudie ce type de source et l'utilise pour différentes applications.

Par la suite, les études numériques et expérimentales ont montré que des impulsions plus courtes, de l'ordre de 100 ps, conduisaient à des conditions plus favorables pour le pompage par excitation collisionnelle [1.2.8, 1.2.9]. En effet un pompage plus rapide permet ainsi de chauffer d'avantage le plasma au moment où il atteint le bon état d'ionisation. Ceci a pour conséquence d'améliorer sensiblement les qualités amplificatrices du plasma et réduire l'énergie de pompe investie dans la création du plasma. Ce type de source est toujours à l'étude dans un laboratoire suisse et permet de délivrer des impulsions d'une durée de 20 à 40 ps et de 100 à 300 μJ .

Plus récemment le pompage dit « transitoire » [1.2.10] a permis de réduire sensiblement l'énergie nécessaire au pompage. Cette méthode consiste à découpler la phase d'ionisation du plasma (création des ions lasants) de celle de son chauffage (pompage des inversions de population), en utilisant deux impulsions de pompe de durées et d'intensités différentes. La première impulsion (sub-ns) crée un plasma contenant les ions lasants à « relativement » basse température. La deuxième impulsion (~ 1 ps) chauffe brutalement les électrons libres de la zone dense de ce pré-plasma, et induit l'excitation collisionnelle des ions lasants. Les expériences qui se poursuivent ces dernières années, ont permis d'améliorer les performances des lasers X transitoires [1.2.11, 1.2.12]. En particulier, l'introduction d'une irradiation en « onde progressive » [1.2.13, 1.2.14] a permis d'atteindre la saturation de l'amplification dans un plasma de quelques mm de longueur. Une des caractéristiques importantes des lasers X transitoires, outre leur besoin réduit en énergie de pompe, est la possibilité de générer des lasers X à impulsion courte. Une durée de 2 ps a ainsi été mesurée pour le laser transitoire à 13,9 nm dans l'argent nickeloïde [1.2.15]. Les énergies de pompe relativement modestes, nécessaires au fonctionnement de ce type de laser X, permettent la réalisation prochaine d'installations de petite dimension, destinée spécifiquement aux lasers XUV. Un projet de ce type nommé « LASERIX » [1.2.16] est en train d'être monté par un laboratoire de l'Université Paris XI (LIXAM) en étroite collaboration avec le LOA. Le projet est à la base une chaîne laser de pompe capable de délivrer 10 J en 500 ps et 10 J en 1 ps, à une cadence de tir de 0,1 Hz (1 tir toutes les 10 secondes). Il devrait être fonctionnel fin 2006.

D'autre part, l'utilisation de lasers ultra brefs (femtosecondes) et ultra intenses pour pomper le laser XUV est relativement récente et particulièrement attractive car ils permettent de délivrer des sources lasers X à taux de répétition élevée (10 Hz). Ce type de laser XUV fait l'objet de cette thèse et sera étudié en détails par la suite.

1.2.2.2. Laser XUV collisionnels par décharge électrique

En parallèle des lasers XUV créés par laser, une alternative pour délivrer l'énergie nécessaire pour le pompage repose sur l'emploi de décharges électriques. Le travail remarquable de J. Rocca depuis 1985 sur le schéma collisionnel a conduit à une source d'excellentes performances fonctionnant à 46,8 nm dans l'argon néonoïde [1.2.17 - 1.2.18]. L'appareil se compose d'un tube de diamètre interne de 3,2 mm et jusqu'à 36 cm de long,

rempli d'argon (jusqu'à 600 mbar). Ce type de source peut délivrer des impulsions mJ à une cadence proche de 10 Hz. Toutefois, ce type de laser X reste aujourd'hui limité à de grandes longueurs d'onde et à des longues durées d'impulsion (~ 1 ns). Néanmoins, la compacité du système de pompage, l'importante énergie par impulsion et la cadence élevée des tirs en font un laser XUV tout à fait remarquable.

1.2.4 Particularités des lasers XUV pompés laser femtoseconde

L'utilisation des impulsions femtoseconde pour pomper les lasers XUV a été principalement démontrée pour le schéma dit par « OFI » mais d'autres schémas, tel que le photo-pompage en couches internes, sont toujours à l'étude.

1.2.4.1 Lasers XUV collisionnels par ionisation OFI

Les mécanismes de pompage créant les inversions de population sont les mêmes que ceux utilisés dans les lasers XUV traditionnels pompés par des impulsions laser de plus longue durée mais le principe de création du plasma est différent. En effet, le plasma est créé par le champ électrique, induit par le faisceau laser ultra-intense (Optical Field Ionisation : « OFI ») et le pompage est ici assuré longitudinalement.

Si le schéma de recombinaison a également été appliqué au pompage par impulsion courte, nous nous contrerons ici sur les résultats obtenus en pompage collisionnel. Corkum et Burnett ont proposé dès 1988 l'extension du pompage collisionnel à des plasmas créés par OFI [1.2.19, 1.2.20]. En 1994, Lemoff et al. ont suggéré des expériences pour des ions spécifiques : l'argon néonoïde, le krypton nickeloïde et le xénon palladiumoïde [1.2.21]. Ces trois ions ont en commun d'être ionisés huit fois. L'intensité nécessaire pour les créer se situe entre 10^{16} et 10^{17} W·cm⁻². Un an après, le même groupe a observé la première amplification d'une raie 4d - 4p dans le xénon palladiumoïde à 41,8nm [1.2.22]. Le plasma amplificateur est créé par la focalisation d'une impulsion laser à 800 nm, 40 fs et 70 mJ, polarisée circulairement dans une cellule de gaz sous 5 à 12 Torr de pression. La cadence de tir est de 10 Hz. Malgré de nombreuses tentatives dans plusieurs laboratoires dans le monde (KAIST en Corée, Rutherford en Angleterre, Riken au Japon...), l'observation du laser à 41,8 nm n'avait pu être reproduite que cinq ans plus tard au LOA [1.2.23]. Ceci n'a pu être réalisé que grâce aux bonnes qualités des lasers utilisés et surtout au bon facteur de

contraste temporel de l'impulsion. Le laser à 800 nm, 35 fs et 330 mJ a été focalisé dans une cellule à 15 Torr de xénon. Le régime de saturation a pu être atteint pour la première fois. Une autre amplification saturée a été ensuite observée dans le krypton nickeloïde à 32,8 nm [1.2.24].

Au début de cette thèse, ces sources délivraient de l'ordre de 20-50 nJ par impulsion. Nous verrons dans la suite de ce manuscrit que nous avons pu améliorer sensiblement les performances de ces sources. La faible énergie de sortie est une conséquence de la faible densité du milieu lasant. Ceci constitue une des limitations majeures des lasers OFI.

Bien que ces deux sources aient été démontrées expérimentalement, plusieurs aspects importants de l'interaction n'étaient pas bien compris et maîtrisés. C'est là que mon travail de thèse commence. D'abord je me suis attaché à compléter l'optimisation et la caractérisation de ces deux sources. Ensuite il a fallu tenter de comprendre comment les qualités amplificatrices du plasma se comportent en fonction des différents paramètres tels que la densité du plasma, les conditions de focalisation et la polarisation du laser. Enfin, pour améliorer ces systèmes, une partie importante de mon travail a consisté à guider le faisceau laser de pompe dans des tubes capillaires remplis de gaz pour améliorer de façon significative les performances de ce type de lasers.

1.2.4.2. Pompage par photo-ionisation en couche interne

Je me suis aussi intéressé au schéma de pompage par photoionisation en couche interne d'atomes neutres. Ce schéma très prospectif est le plus ancien du laser X. Il a été proposé par Duguay et Rentzepis depuis 1967 [1.2.25] mais n'a pas été démontré expérimentalement jusqu'à présent. Dans ce schéma, un « flash » intense et rapide de rayonnement X, émis par un plasma d'ions lourds (c'est la pompe) induit une photoionisation en couche K et crée les ions lasants dans le niveau supérieur de l'inversion. Les énergies requises pour ioniser en couches internes sont très importantes (870 eV pour le Néon). Ce type de schéma est relativement attractif pour atteindre des longueurs d'onde aussi courtes que 1,5 nm dans le néon une fois ionisé.

Une contrainte importante est la durée l'inversion de population qui ne dure que quelques dizaines de fs. En effet, ce processus d'inversion est limité par des effets parasites tels que l'effet Auger qui est très rapide et relativement important. La faible durée de vie du

milieu amplificateur pose une autre contrainte. En effet, si on veut réussir à amplifier la raie laser X sur une longueur centimétrique, il faut synchroniser le moment du gain avec la propagation des X le long de l'amplificateur. Il faudra donc mettre en forme l'impulsion de pompe en inclinant son plan d'énergie, c'est-à-dire faire une onde inhomogène X de pompe [1.2.26]. Une partie de cette thèse a été consacrée à tester, comprendre et développer une géométrie de pompage qui permet de répondre aux contraintes posées par la faible durée de vie du milieu amplificateur. Les courtes longueurs d'onde accessibles par le pompage en couches internes et la brièveté de l'émission (10 - 50 fs) font que ce schéma est très attractif et devrait ouvrir la voie à de nombreuses applications.

1.2.5 Positionnement des sources lasers X

Le tableau ci-dessous présente de façon synthétique les caractéristiques principales des trois sources XUV cohérentes que nous venons de présenter en insistant d'avantage sur les lasers XUV. La diversité des sources lasers XUV fait que celles-ci occupent aujourd'hui une position intermédiaire entre les sources « harmoniques », compactes, ultrarapide avec d'excellentes qualités de cohérence, et les LEL X qui ont des performances remarquables mais qui sont très coûteux. En effet, les lasers XUV peuvent délivrer une énergie importante dans une gamme spectrale très étroite mais ont pour l'instant un taux de répétition relativement faible. Nous tenons à souligner ici la position particulière des lasers XUV OFI qui font l'objet de ce travail de thèse. En effet, ce type de source est pour l'instant une des alternatives possibles pour amener les lasers XUV vers les taux de répétition élevés mais ceci pour des énergies par impulsion relativement modestes.

	<i>Lasers XUV par plasma- laser</i>			<i>Génération d'harmonique d'ordre élevé</i>	<i>Laser à électrons libres X</i>
	<i>Quasi stationnaire</i>	<i>Transitoires</i>	<i>OFI collisionnels</i>		
λ (nm)	7 - 50 nm	10-30 nm	32,8 et 41,8nm	Quelques nm jusqu'à 60 nm	jusqu'à 0,1 nm
Photons par impulsion	$<10^{14}$	10^{11}	de 10^9 à 10^{11}	Entre 10^7 et 10^{10}	de 10^{12} à 10^{13}
Energie	≤ 10 mJ	10-50 μ J	de 50 nJ à 3 μ J	$< \mu$ J	de 40 μ J à 1 mJ
Durée	100 ps	2-5 ps	~ 2 ps	de 150 as à 20 fs	100 fs
$\Delta\lambda/\lambda$	$\geq 10^{-5}$	$\geq 10^{-5}$	de 10^{-5} à 10^{-6}	10^{-3}	10^{-5}
Polarisation	non	non	non	oui	polarisé
Cohérence spatiale	faible	faible	faible	excellente	excellente
Taux de répétition	Quelques tirs/ heure	Quelques tirs/ heure	10 Hz	0.01 à 10 kHz	10 Hz

Tableau 1.2.1 Etat de l'art des sources XUV-X cohérentes.

CONCLUSION

Les recherches sur les sources cohérentes X fs ultra-intenses font l'objet d'une concurrence acharnée sur le plan international. Si cette thématique a longtemps été pilotée par la communauté des physiciens travaillant avec les lasers à haute intensité, les projets récents de LELX font que la communauté des synchrotrons joue désormais un rôle de premier plan. Toutefois, il faut souligner que ces projets ne devraient aboutir que dans cinq ans à dix ans, et que du fait de leur coût extrêmement élevés, les LELX ne seront pas nombreux. L'accès à ce type de source risquerait d'être très restreint. Il est absolument nécessaire de continuer à développer des sources X cohérentes, alternatives moins

coûteuses mais de performance voisines, afin d'élargir comme il se doit les possibilités d'applications offertes par les faisceaux X ultra-intenses.

Comme nous l'avons montré précédemment, l'utilisation de laser femtoseconde pour le pompage des lasers XUV ouvre la voie à la réalisation de sources laser à haut taux de répétition dans le domaine XUV. Toutefois, les performances modestes de ce type de lasers XUV limitent les possibilités d'applications. Le travail que nous allons présenter par la suite va donc non seulement consister à mieux comprendre les différents phénomènes qui gouvernent la réalisation de sources lasers XUV pompées par laser femtoseconde mais aussi d'améliorer sensiblement leurs performances afin de les rendre plus attractives et compétitives en vue d'expériences d'applications.