



HAL
open science

ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE L'ÉMISSION X ISSUE DE L'INTERACTION LASER-AGRÉGATS

Tony Caillaud

► **To cite this version:**

Tony Caillaud. ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE L'ÉMISSION X ISSUE DE L'INTERACTION LASER-AGRÉGATS. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2004. Français. NNT: . tel-00008470

HAL Id: tel-00008470

<https://theses.hal.science/tel-00008470>

Submitted on 12 Feb 2005

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.

N°d'ordre : 2851

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX I

ÉCOLE DOCTORALE DE SCIENCES PHYSIQUES ET DE
L'INGÉNIEUR

par Tony CAILLAUD

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : NOYEAUX, ATOMES, AGRÉGATS et PLASMAS

ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE L'ÉMISSION X ISSUE DE
L'INTERACTION LASER-AGRÉGATS.

Soutenue le : 28 Septembre 2004

Après avis de :

Mme. S. JACQUEMOT **Rapporteur**

MM. P. MARTIN **Rapporteur**

Devant la commission d'examen formée de :

Mme. S. JACQUEMOT *Ingénieur de l'Armement*

M. P. MARTIN *Ingénieur de recherche*

M. F. DORCHIES *Chargé de recherche*

M. C. STENZ *Professeur*

M. F. VALLÉE *Directeur de recherche*

Mme. D. VERNHET *Directrice de recherche*

A toute ma famille ...

Remerciements

Cette thèse présente les résultats d'un peu plus de trois années de recherche au Centre de Lasers Intenses et Applications (CELIA). Merci à François Salin et Jean Claude Gauthier de m'y avoir accueilli et de m'avoir donné les moyens de mener à bien ce travail.

Je souhaite remercier les membres du jury :

- M. Fabrice Vallée qui m'a fait l'honneur de présider le jury de thèse.*
- Mme Sylvie Jacquemot et M. Philippe Martin qui ont accepté de rapporter mes travaux de thèse.*
- Mme Dominique Vernhet pour l'intérêt qu'elle a porté à mon travail.*

Je suis particulièrement reconnaissant à Christian Stenx d'avoir dirigé cette thèse.

Je voudrais témoigner toute ma gratitude à Fabien Dorchies pour m'avoir accompagné dans cette aventure scientifique. Je le remercie pour son dynamisme, sa joie de vivre et je lui suis très reconnaissant pour sa patience et son regard éclairé sur mon travail. Les nombreuses expériences au laboratoire ou en extérieur ont été pour moi l'occasion de découvrir en lui un ami.

Je remercie également Frédéric Blasco de m'avoir accompagné depuis le tout début alors que je n'étais que simple stagiaire. Sa patience et ses enseignements nombreux m'ont apporté beaucoup de rigueur dans mon travail.

Je remercie Emilie Lamour, Christophe Prigeant, Lamri Abdou, Jean Pierre Rexet et Dominique Vernhet du Groupe de Physique des Solides de l'université de Jussieu pour nous avoir permis de calibrer en absolu notre détecteur X et de m'avoir ainsi permis de confronter mes idées du problème à d'autres conditions expérimentales : ce qui a été pour moi très enrichissant.

Toute ma sympathie va à l'ensemble des thésards, postdocs et stagiaires du laboratoire (Christophe, Stéphane, Olivier, Amelle, Inigo, Benjamin, Jérôme, Samuel, Samira, Yannick, Gilles, Mikäel...) qui m'ont aidé, soutenu dans ce travail. Leur joie, leur bonne humeur, leur compassion dans les tournants importants de la construction personnelle d'un doctorant ont été importantes. Ces instants de soufflé autour d'un café, d'un chocolat ou d'une Dame de Pique en réseau resteront dans mes souvenirs. Une spéciale dédicace pour Christophe et Olivier qui ont supporté ma personnalité.

Pour leur soutien expérimental et leurs connaissances, je remercie Eric & Eric, Dominique et Gilles. Désolé pour ces nombreux mails qui ont pu vous perturber dans votre extrême concentration mais il faut savoir partager.

Je remercie également l'ensemble des membres de l'équipe Sources X, Plasmas et ions (SXPI) pour leurs conseils avisés et les discussions scientifiques.

Je remercie l'ensemble du secrétariat du CELIA pour sa compétence et sa gentillesse Catherine Termens et Sophie Aussel avec qui j'ai eu grand plaisir à discuter : Ses éclats de rires font partie de la vie de ce laboratoire.

Pour la mécanique et les besoins d'outils spécifiques, je remercie beaucoup Alain Legoff et Claude Lalaude. La disponibilité d'Alain et son ingéniosité ont souvent permis d'améliorer les conditions expérimentales voire même mon temps d'accès au laboratoire par des réparations miracles sur mon vélo...

Je remercie aussi tous les membres du laboratoire pour leur accueil, leurs conseils et leurs connaissances qu'ils ont su me faire partager.

À tout le personnel de la PALA (Plateforme Aquitaine Laser), je tiens à leur transmettre mes remerciements pour leur aide à la réalisation de pièces dont eux seuls ont le savoir-faire ou encore pour leurs conseils avisés sur l'aspect pratique des choses.

Je tiens à remercier très particulièrement tous les membres du club de Rugby de l'Union Sportive Neuvicquoise (Dordogne) pour leur amitié et leur chaleur. Ils ont su, chacun à leur manière, m'apporter des valeurs importantes dans les relations humaines que malheureusement on ne peut apprendre sur les bancs d'aucune école.

Un remerciement spécial pour le système social français, la CPAM de la Gironde et le docteur Philippe Colombet qui m'ont permis de retrouver par deux fois l'usage

de mon genou gauche. Merci à tous ceux qui ont cotisé et milité pour la défense de notre régime d'assurance maladie.

Enfin, pour leur participation précieuse à ma construction personnelle durant ces trois années, je tiens à donner toute mon affection et mon amour à ma famille, à mes parents et à mes amis ainsi qu'à celle qui a partagé avec moi ce travail et mes sauts d'humeur en sachant toujours modérer mon ardeur. Elle aussi par ses efforts a contribué à la réussite de cette thèse et surtout à mon bonheur.

Merci à tous ...

Table des matières

Remerciements	5
Introduction	13
1 Présentation de l'interaction laser-agrégats	19
1.1 État de l'art	19
1.1.1 Historique	20
1.1.2 Modélisation de l'interaction	28
1.1.3 Mécanismes "nano-plasma"	36
1.2 Objectifs et méthode de l'étude	46
1.2.1 Les sources X laser-agrégats	46
1.2.2 Le rayonnement X : un témoin de l'interaction	47
1.2.3 Nécessité d'approfondir les connaissances	51
1.2.4 Méthode	52
2 Caractérisation des agrégats	55
2.1 Production des agrégats	56
2.2 Caractérisation d'agrégats de gaz rares	57
2.3 Mesures par interférométrie Mach-Zehnder	60
2.3.1 Description de la méthode	60
2.4 Mesures par diffusion Rayleigh	63
2.4.1 Description de la méthode	63
2.4.2 Conclusion	65
2.5 Modélisation de la condensation	66
2.5.1 Calculs 1D	66
2.5.2 Calculs 2D	68
2.6 Résultats	70
2.7 Conclusion	75
3 Dispositif expérimental	77
3.1 Le laser	77

3.1.1	Description	77
3.1.2	Caractérisation temporelle des impulsions laser	79
3.1.3	Optiques de focalisation	85
3.2	Les diagnostics expérimentaux	87
3.2.1	Spectromètre X et imagerie sténopée	89
3.2.2	Calibration spectrale	92
3.2.3	Imagerie sténopée	94
3.2.4	Ombroscopie et mesure d'absorption	95
3.3	Conclusion	98
4	Etude du rayonnement X émis par des agrégats irradiés	101
4.1	Propriétés du rayonnement X	101
4.1.1	Résultats généraux	102
4.1.2	Effet de la polarisation du laser	102
4.1.3	Analyse des spectres	103
4.1.4	Nombre de photons	105
4.2	Phénomènes de propagation du laser dans le jet	106
4.2.1	Problématique	107
4.2.2	Etude préliminaire	109
4.2.3	Effets de la profondeur de focalisation	112
4.2.4	Simulations du code WAKE	122
4.2.5	Conclusion	126
4.3	Etude de la dynamique du chauffage	128
4.3.1	Effet du contraste ns	128
4.3.2	Effet de la durée de l'impulsion laser	130
4.3.3	Mesures à deux impulsions	138
4.4	Discussion	144
5	Discussion sur la dynamique de l'interaction	147
5.1	Introduction	147
5.2	Modèle d'expansion radiale du plasma	149
5.2.1	Résultats d'ombroscopie	150
5.3	Calculs de la dynamique de l'agrégat	155
5.4	Calculs Transpec	160
5.5	Discussions	165
	Conclusion générale	167
A	Elements de physique atomique	187

B Propriétés optiques d'un mélange d'agrégats et de gaz ionisés	189
C Calculs	193
Bibliographie	195

Introduction

Introduction

Cadre de la recherche

De nombreuses investigations ont été menées au cours des dernières années sur l'interaction d'impulsions laser ultra rapides ($\leq 1\text{ps}$) avec de la matière à la fois sous forme solide et gazeuse. Ces études ont apporté de nouvelles connaissances sur les propriétés fondamentales de la matière dans des conditions extrêmes de température et de densité. Elles ont permis de réaliser différentes applications telles que l'ignition de réactions nucléaires, l'accélération de particules, la production de rayonnement X pour la physique (diffraction X ultra-rapide), pour la médecine (radiographie, angiographie), la chimie (dynamique moléculaire ultra-rapide), les nanotechnologies (lithographie), etc...

Ces études ont permis de montrer qu'il existe des différences significatives dans la physique de l'interaction sur cible solide par rapport à celle sur cible gazeuse. Les conditions du plasma produit dans ces deux milieux sont très différentes. Les cibles solides irradiées par une impulsion laser intense sub-picoseconde peuvent générer des plasmas de densité proche de celle du solide avec des températures électroniques de plusieurs centaines d'eV. A l'inverse, les cibles gazeuses de basse densité absorbent de manière inefficace l'énergie du laser dans le domaine optique et conduisent à la formation de plasmas relativement froids avec des températures voisines de la dizaine d'eV.

Les jets supersoniques à haute pression permettent la production d'une combinaison unique d'agglomérats d'atomes (les agrégats) et de gaz. Les agrégats sont formés de l'assemblage de quelques-uns à plusieurs centaines de millions d'atomes. Les jets d'agregats de gaz rares constituent ainsi un milieu intermédiaire entre les cibles solides et gazeuses. Ils possèdent à la fois une densité moyenne avoisinant celle d'un gaz, ce qui permet la propagation d'une impulsion laser dans le milieu et ils présentent localement une forte densité proche de celle du solide, qui leur permet d'absorber de manière efficace l'énergie de l'impulsion laser.

Nombre d'études menées dans le domaine de l'interaction laser-matière ont été motivées par la génération de rayonnement X cohérent et incohérent, très énergétique, impulsionnelle, compacte et de moindre coût. L'irradiation de tous les types de cibles, com-

prenant les cibles solides, gazeuses ou d'agrégats par un laser ultra-bref (≤ 1 ps) et ultra intense ($\geq 10^{14}$ W.cm⁻²) produit une émission de rayonnement X plus ou moins intense. Cette émission provient de la désexcitation spontanée de niveaux ioniques excités. La structure principale des populations ioniques du plasma est observée dans les spectres résultant de l'émission X. Ainsi, la spectroscopie de l'émission X permet l'étude des plasmas créés par laser. De nombreuses informations sur les propriétés du plasma (densités, températures) sont accessibles à partir de cette technique. Également, ce type de sources présente une durée d'émission extrêmement brève (de l'ordre de la durée laser) bien inférieure à celle des synchrotrons (~ 50 ps) et de l'ordre de celle délivrée par les lasers à électrons libres (FEL : Free Electron Lasers). Mais ces nouvelles sources sont limitées pour l'instant au domaine de l'UV. Par ailleurs, les sources X formées à partir de l'interaction laser-matière, bien que moins brillantes, sont relativement moins coûteuses et plus compactes que les sources de type synchrotron ou les faisceaux d'électrons de type FEL.

Le développement récent des sources X créées par laser a permis non seulement d'améliorer certaines techniques existantes (comme la diffraction X ou l'angiographie) mais également d'envisager de nouvelles applications dans le domaine de l'ultra-bref. L'interaction laser sur cibles solides donne de bons résultats en terme de durée d'émission, de quantité de photons et de sélection en énergie de ces photons. Toutefois, le rendement entre l'énergie du laser et l'émission de photons n'est pas très élevé du fait de la technique indirecte de production du rayonnement X utilisée (accélération des électrons dans le plasma qui ionisent la matière froide conduisant à la désexcitation radiative du milieu et à l'émission de rayons X). De plus, lors de l'interaction, une quantité importante de débris est arrachée de la cible. Il est alors nécessaire de protéger les optiques afin de limiter leur pollution et celle de la chambre d'interaction. Cette pollution peut entraîner une altération de la réflectivité des optiques et une diminution du nombre de photons X émis et détectés. En revanche, la durée d'émission peut être très avantageuse (qq's 100 fs pour l'émission de type K_α). Des applications utilisant le rayonnement X émis par l'interaction laser sur une cible solide ont déjà vu le jour comme la diffraction X résolue en temps [1], [2], [3], la fusion non thermique [4] ou encore, la spectroscopie d'absorption de rayons X résolue en temps (EXAFS) [5], etc...

Ces différentes applications requièrent certaines spécificités concernant les propriétés des sources utilisées. La source de rayons X doit être impulsionnelle, de faible durée d'émission, posséder une brillance (nombre de photons émis par seconde, par milliradian carré et par millimètre carré de taille de la source dans une bande spectrale de 0,1 % de l'énergie du photon) suffisamment grande pour éclairer efficacement les échantillons ; le rendement et la nature spectrale (monochromaticité pour la diffraction X résolue en temps ou encore spectre large pour l'absorption résolue en temps) sont également des paramètres importants. Les conditions d'interaction (similaires à celles des cibles solides)

rendent prometteuses les sources de rayons X basées sur les jets d'agrégats car celles-ci, à l'inverse des cibles solides, ne produisent pas de débris. Le renouvellement permanent du jet est aussi un avantage important de ce type de cible. Du fait de la durée de vie très courte des agrégats lorsque ceux-ci sont chauffés, les plasmas créés par l'interaction du laser avec les agrégats vont *a priori* donner lieu à des émissions de rayonnement X très courtes (de l'ordre de la durée de vie de l'agrégat : $< qqs$ ps).

De nombreuses expériences ont été menées dans le domaine de l'interaction laser-agrégats. Plus particulièrement, dans le cas de l'interaction avec des agrégats de gaz rares, l'analyse du rayonnement émis par les agrégats a révélé la présence d'états de charge anormalement élevés aux intensités d'éclairement considérées ($10^{15} W.cm^{-2}$). Les agrégats présentent un très fort couplage avec le champ laser. Une absorption de l'énergie de 80 à 100 % a même été mesurée ainsi que des températures électroniques de l'ordre du keV et des températures ioniques de plusieurs centaines de keV. Ils constituent une source très variée de particules énergétiques, de rayonnement X ou XUV, de rayonnement harmonique, de particules chargées (ions, électrons), voire même de neutrons (avec des agrégats deutérés).

Sur un aspect plus fondamental, ces cibles d'un genre nouveau suscitent un intérêt quant à la simulation des mécanismes de l'interaction laser-plasma. Leurs dimensions très petites ($R_{ag} \sim 10$ nm) devant la longueur d'onde du laser ($\lambda \sim 800$ nm) peuvent être à l'origine de propriétés collectives qui n'ont lieu ni dans les solides ni dans les gaz. Plusieurs modèles ont vu le jour en se basant sur les connaissances acquises depuis de nombreuses années sur l'interaction laser-matière. Mais les hypothèses avancées afin d'expliquer le très fort couplage de la matière avec le champ laser sont encore discutées.

Les expériences présentées dans ce manuscrit ont été réalisées sur l'installation du laboratoire CELIA (1 kHz, 30 fs, 4 et 11 mJ). Une collaboration avec le Groupe de Physique du Solide (GPS) de l'université de Jussieu sur l'installation LUCA du CEA Saclay ont permis la calibration en absolu de certains diagnostics et l'étude d'une source X créée par interaction laser-agrégats dans des conditions expérimentales différentes. Les résultats obtenus lors de cette collaboration ne seront pas présentés ici et font l'objet des travaux de thèse de C. Prigent.

Le développement du spectromètre à rayons X et l'analyse des spectres de rayons X obtenus sur notre source ont fait l'objet de collaborations avec le Centre de Données Spectroscopiques d'Ions Multichargés du VNIIFTRI près de Moscou (Russie).

La caractérisation du jet d'agrégats s'est faite en collaboration avec l'institut de modélisation mathématique de Moscou (Russie) et le laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses (LULI) de l'École Polytechnique.

Objectifs de la thèse

L'objectif de cette thèse est double : d'une part, l'étude de l'interaction laser-agrégats en terme de rayonnement X et, d'autre part, l'étude des mécanismes fondamentaux de l'interaction. Sur le plan fondamental, nous avons cherché à travailler sur l'aspect quantitatif par la définition de conditions expérimentales propres (jet complètement caractérisé, paramètres laser maîtrisés). En effet, cette étude vise à fournir une source X multi-keV (spectre de couche K de l'Argon $\sim 3keV$), de haute cadence (jusqu'à $1 kHz$) et ultra-brève (gamme *ps* ou *sub-ps*).

Ce travail s'intéresse aussi à la description de la dynamique des mécanismes (chauffage, absorption de l'énergie laser et émission X) pour fournir des paramètres d'entrée à la modélisation et à la définition d'un scénario de l'interaction. Le travail effectué a consisté à caractériser la source en terme d'émission X (nombre de photons, énergie, durée) dans le but d'optimiser et d'étudier la faisabilité d'une nouvelle source X pour des applications. L'utilisation de ces données nous a apporté des connaissances supplémentaires concernant l'hydrodynamique de la source.

Organisation du manuscrit

L'organisation de la thèse s'articule autour de cinq chapitres.

Dans le premier chapitre, nous présentons un bilan des observations expérimentales et des modèles théoriques réalisés à ce jour dans le domaine. Puis, nous analysons les différents mécanismes invoqués pour tenter d'expliquer le couplage très fort entre le champ laser et les agrégats. Enfin, nous décrivons les axes de notre étude de la source de rayons X.

Dans le second chapitre, nous évoquons les outils développés pour la caractérisation du jet d'agréats d'Argon employé lors des expériences. Nous avons étudié deux types de buses (conique et Laval). Ceci nous a permis de définir un jet homogène d'agréats pleinement caractérisé, adapté à nos objectifs. Nous précisons ensuite les propriétés d'un jet dense (densité totale, densité d'agréats et taille moyenne des agrégats) utilisé dans nos conditions expérimentales.

Le troisième chapitre est dédié à la description du dispositif expérimental et des différents diagnostics développés et utilisés au cours des expériences.

Le quatrième chapitre est divisé en trois parties. La première est consacrée à la caractérisation de l'émission X de couche K d'atomes agrégés d'Argon. La seconde s'intéresse plus particulièrement aux problèmes de propagation que l'impulsion laser rencontre dans le jet dense d'agréats et la troisième porte sur la dynamique de l'interaction sur différentes échelles de temps (*ps* et *ns*).

Le chapitre cinq contient une analyse de l'énergie moyenne déposée par agrégat. Cette mesure est associée à une modélisation simple de l'expansion hydrodynamique de l'agréat

qui nous renseigne sur les paramètres du plasma au cours du temps. Le code TRANSPEC est utilisé pour reconstruire les spectres et pour analyser l'aspect temporel de la source X. Ce dernier résultat est comparé à une mesure temporelle de l'émission X autour de 3 *keV*. Les résultats mettent en évidence la durée très brève de la source ($< 2,5$ *ps*).

A la fin de ce manuscrit, nous présentons les conclusions de ce travail avant d'aborder les perspectives possibles d'amélioration de la source étudiée et sur la compréhension de la réponse d'un agrégat unique en champ laser intense.

Présentation de l'interaction laser-agrégats

Chapitre 1

Présentation de l'interaction laser-agrégats

1.1 État de l'art

Les agrégats sont des assemblages d'atomes pouvant atteindre des dimensions de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres et un nombre de constituants de plusieurs millions. Ils peuvent être de différentes natures : métalliques, organiques ou de type Van der Waals. C'est plus particulièrement ce dernier cas que nous nous proposons d'étudier dans ce manuscrit. Les agrégats utilisés sont produits par la détente adiabatique d'un jet de gaz au travers d'une tuyère. Les atomes du gaz s'agrègent entre eux à cause du refroidissement et se lient par des forces de Van der Waals de faible intensité. Ces forces sont induites par un potentiel dit de Lennard-Jones (figure 1.1). Ce potentiel contient un terme attractif en $1/r^6$ à longue distance compensé par un terme répulsif à courte distance qui s'explique par la difficulté de faire s'interpénétrer les nuages électroniques de chaque atome. La forme du potentiel est donnée par l'équation 1.1, dans laquelle, la première partie représente la répulsion des atomes entre eux et la seconde l'attraction :

$$V(r) = \frac{A}{r^{12}} - \frac{B}{r^6} \quad (1.1)$$

où A et B sont deux constantes positives caractéristiques du gaz utilisé.

Dans le cas d'agrégats d'Argon, l'énergie potentielle minimale est de $119,5 K$ et le rayon r_0 qui correspond à la distance pour laquelle l'énergie de liaison est maximale vaut $3,818 \text{ \AA}$.

Depuis une dizaine d'années, ces agglomérats d'atomes suscitent un grand intérêt dans le domaine de la conception de sources lumineuses dans la gamme des faibles longueurs d'onde ($\sim qqs \text{ nm}$). La taille et la densité des agrégats donnent lieu à des phénomènes de l'interaction laser-matière d'un genre nouveau. Les propriétés d'absorption de l'énergie du laser par les agrégats sont depuis lors largement étudiées. Ce type de cibles proposent

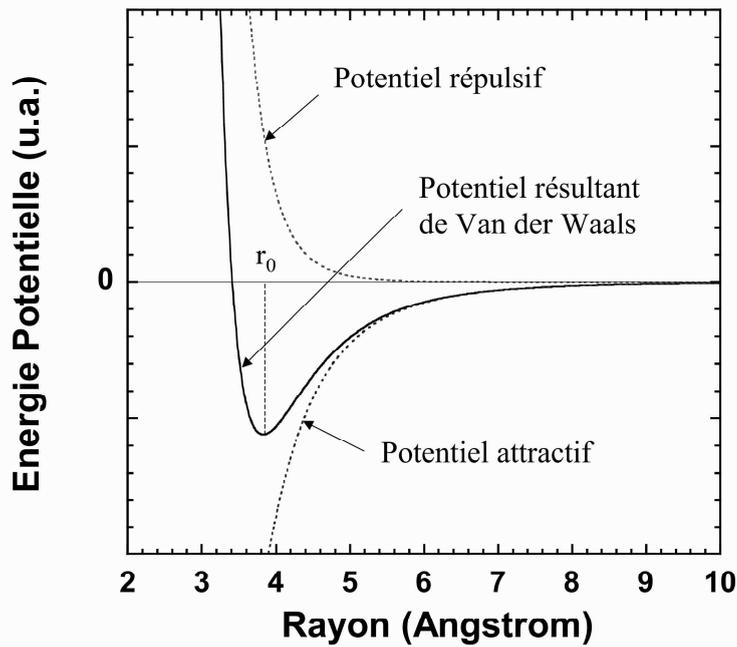


Fig. 1.1: Evolution du potentiel de Lennard-Jones en fonction du rayon entre les atomes. Le rayon r_0 correspond à la distance pour laquelle l'énergie de liaison est maximale.

une alternative non seulement aux cibles solides qui possèdent un faible rendement de conversion de l'énergie laser en rayonnement utile mais également aux cibles gazeuses dont la basse densité ne permet pas une absorption efficace de l'énergie du laser. De plus, ces cibles ne génèrent pas de débris lors de l'interaction comme c'est le cas avec des cibles solides.

Ce chapitre a pour objet la présentation des principaux modèles établis en vue de répondre aux observations expérimentales [6], [7], [8], [9]. Nous présenterons également les mécanismes mis en avant pour interpréter par l'un de ces modèles (plus adapté à notre situation expérimentale). Nous aborderons ensuite la description des différents travaux de recherche effectués à travers le monde en matière d'émission de rayonnements [10], [11], [12], de particules [13], [14], [15] et de chauffage [7], [16] d'agrégats de gaz rares au moyen de lasers ultra brefs et de haute intensité. Nous discuterons enfin des axes de recherche envisagés pour notre étude de l'interaction laser-agrégats.

1.1.1 Historique

Dans les années 80, l'étude de l'interaction de lasers intenses avec des jets de gaz pulsés [17], [18] a permis d'observer des raies d'émission provenant d'atomes de gaz rares anormalement chargés. Les états de charge obtenus aux éclaircements considérés ne pouvaient pas être expliqués par les mécanismes classiques d'ionisation d'un atome isolé. C'est en 1993

que A. McPherson *et al.* [10] démontrent pour la première fois que cette émission est liée à la présence d'agrégats dans le jet de gaz. Les conditions de formation des agrégats étudiées bien des années auparavant par O. Hagena avaient été réunies dans ces jets pourtant de faible densité [19]. Dès lors devait s'ouvrir un nouveau champ d'étude très prometteur en terme d'efficacité de conversion du rayonnement laser en rayonnement XUV.

Plusieurs équipes à travers le monde ont alors envisagé les jets d'agrégats comme des cibles potentielles de rayonnement X ou XUV : C. K. Rhodes *et al.* à Chicago dans l'Illinois, T. Ditmire *et al.* à Livermore en Californie, M. Schmidt *et al.* à Saclay en France, K. Kondo *et al.* à Chicago puis au Japon à Tsukuba, etc...



Fig. 1.2: Planisphère représentant les différentes zones géographiques dans le monde où l'interaction laser-agrégats est étudiée.

Premiers résultats

Après les premières séries d'expériences conduites sur l'interaction de jets d'agrégats de gaz rares avec un laser femtoseconde réalisées dans le groupe de A. McPherson [10], des expériences similaires ont été effectuées avec différents types de sources lasers montrant ainsi le rôle prépondérant des agrégats dans l'émission de rayonnement UV ou X.

T. Ditmire et son équipe ont étudié de manière plus approfondie l'influence des paramètres lasers et des agrégats sur les spectres d'électrons, sur les spectres ioniques, sur l'efficacité de l'absorption de l'énergie laser par les agrégats, la génération de rayonnement X, mais aussi la possibilité de générer un rayonnement harmonique [11], [12], [7], [13]. Ils ont notamment observé une augmentation de l'émission d'X en fonction du rayon moyen

des agrégats. Dans ces expériences, les agrégats ont des tailles de $10^3 - 10^6$ atomes/agrégat. Les résultats expérimentaux montrent une forte absorption de l'énergie laser par les agrégats. Une absorption proche de 100 % a même été mesurée dans des agrégats de Xenon [20].

L'absorption de l'énergie laser est très forte (80 à 100 %). L'émission de rayons X augmente avec la taille moyenne des agrégats.

Plus récemment, le groupe de M. Schmidt en collaboration avec le Groupe de Physique du Solide (GPS) de l'université de Jussieu a étudié l'interaction de jets d'agrégats pulsés de Krypton avec une impulsion laser ultra-courte (~ 130 fs) [21] et a observé l'émission de rayonnement X provenant d'ions multi-chargés. Sur la même installation laser, des études sur la production de rayonnement X à partir d'agrégats d'Argon, de Xénon et de Krypton ont été réalisées par le Groupe de Physique du Solide (GPS) de l'université de Jussieu [22]. L'étude du taux absolu de rayonnement X en fonction de l'intensité crête du laser a montré la production d'états de charges élevés (jusqu'à de l'Ar¹⁶⁺ avec seulement qqs 10^{17} W.cm⁻²) présentant des lacunes en couches K. La création de ces lacunes dans des atomes de gaz seuls ne peut pas être expliquée par les théories classiques de l'ionisation aux intensités laser rencontrées. Elle nécessite des intensités bien plus élevées.

Le signal était **isotrope** et augmentait avec l'intensité I du laser. Ce comportement a été expliqué par l'augmentation du volume focal avec l'intensité tant que le taux d'ions d'un état de charge donné était saturé. Mais d'autres études devaient quant à elles donner des tendances légèrement différentes. Ainsi, le taux de rayonnement X émis par des agrégats de Xénon, irradiés par une impulsion laser à 527 nm d'une durée de 2 ps (à mi-hauteur), a été mesuré au-dessus de 1 et 3 keV en fonction de l'intensité laser [20]. Le signal suit une loi de puissance bien définie et l'émission X évolue comme $\sim I^{3,0}$ au-dessus de 1 keV et comme $\sim I^{2,8}$ au-dessus de 3 keV pour des agrégats de 200 Å. En refroidissant le jet de gaz, il s'est avéré que cette loi passait à $\sim I^{2,4}$ (1 keV) et $\sim I^{2,3}$ (3 keV) pour des agrégats de 400 Å de rayon.

L'émission de rayons X semble augmenter en loi de puissance avec l'intensité laser. Cette augmentation peut être liée à l'accroissement du volume focal avec l'intensité.

Influence de la longueur d'onde laser

En fonction de la longueur d'onde de l'impulsion laser, l'étude de l'émission X permet de déduire la variation du couplage entre les agrégats et le champ laser. En ce sens, un groupe de chercheurs japonais a mesuré l'influence de la longueur d'onde sur le rendement de conversion entre le faisceau laser et le rayonnement X [23], [24] produit par l'interaction du laser avec des agrégats de gaz rares à différentes longueurs d'onde laser. Ils ont observé une émission 20 fois plus intense avec un laser Ti :Saphire ($\lambda = 800$ nm) et des agrégats

de Xenon (couche M) par rapport à un laser KrF ($\lambda = 248 \text{ nm}$) et des agrégats d'Argon (couche L).

D'autres études ont montré l'influence de la longueur d'onde du laser de pompe sur l'émission du rayonnement X [25], la diminution de la longueur d'onde permettait d'augmenter le signal de photons émis de près de 3 ordres de grandeur en passant de 800 nm à 248 nm .

Un autre groupe observait, quand à lui, aucun effet significatif avec la longueur d'onde de l'impulsion [26].

Les mesures de l'influence de la longueur d'onde du laser sur l'émission de rayonnement sont contradictoires.

Rendement de conversion

Un taux de conversion (entre l'énergie du laser et la quantité de photons émis) dans la gamme d'émission de $5\text{-}20 \text{ nm}$ de $1,1 \text{ \%}/\text{sr}$, proche des résultats obtenus avec des cibles solides, a été mesuré pour des raies d'émission de couche M du Xénon, dans le cas d'un laser Ti :Saphire ($\lambda = 800 \text{ nm}$) [24]. Ce taux était 20 fois plus faible dans le cas d'un laser KrF ($\lambda = 248 \text{ nm}$) pour lequel l'efficacité de conversion X n'est plus que de $0,11 \text{ \%}/\text{sr}$ dans la gamme de $2,5$ à 18 nm de longueur d'onde d'émission pour la couche L d'agrégats d'Argon [23].

Par ailleurs, un taux de conversion de l'énergie laser en rayonnement X de l'ordre de $1,7 \times 10^{-8}$ a été obtenu dans des agrégats de Krypton et de $1,7 \times 10^{-11}$ dans des agrégats d'Argon comportant trois fois moins d'atomes irradiés avec un laser de pompe à 800 nm [21], [27].

Les rendements de conversion observés sont relativement élevés (de l'ordre du %).

Influence de la polarisation

Ce même groupe a observé plus récemment l'influence sur l'émission de rayonnement X de la polarisation du laser. Ces résultats n'ont montré aucune dépendance de l'émission avec l'état de polarisation du laser [26]. Alors qu'en Allemagne, Schnürer *et al.* ont observé, au contraire, une influence de la polarisation de l'onde laser sur la génération de rayonnement XUV dans la gamme de 10 à 15 nm et ont constaté une augmentation de l'émission X d'un facteur $2,5$ en polarisation circulaire par rapport à la polarisation linéaire [28]. Une étude identique a également été menée par l'équipe de V. Kumarappan dans laquelle ils n'ont obtenu aucune dépendance de l'émission X de couche K de l'argon avec l'ellipticité du laser [29].

Dernièrement, une étude plus précise des spectres d'énergie des électrons dans l'interaction laser-agrégats a permis de mettre en évidence la production d'électrons ayant des énergies allant jusqu'à 6 keV [15]. L'analyse de la dépendance angulaire de la distribution

en énergie des électrons avec les paramètres du laser (polarisation et durée de l'impulsion) a mis en évidence une large distribution angulaire ($\sim 40^\circ$ à mi-hauteur) centrée sur l'axe de polarisation du laser. Ces résultats montrent également l'absence de variation de cette dépendance angulaire avec l'énergie des électrons comme observé par Shao [13].

L'influence de l'état de polarisation du laser sur l'émission de rayonnement X est contradictoire suivant les études réalisées.

Effet de la durée de l'impulsion

En fonction de la durée de l'impulsion laser, J. Zweiback & *al.* ont observé l'évolution de l'absorption de l'énergie laser d'une impulsion de 50 *mJ* par les agrégats de Xenon de 85 à 205 Å et d'Argon de 110 à 165 Å [30]. Cette absorption présente un optimum pour une durée laser donnée ($\simeq 70\%$ d'énergie absorbée à environ 1000 *fs* de durée laser pour des agrégats de Xenon de 205 Å). En fonction de la taille moyenne des agrégats irradiés, la valeur de la durée optimale est modifiée. De même, E. Parra *et al.* ont étudié l'influence de la durée d'une impulsion laser contenant 50 *mJ* sur l'intensité du rayonnement VUV dans des agrégats d'Argon de 400 Å et de Krypton de 660 Å [31]. Ils ont obtenu un optimum en durée qui dépend également de la taille des agrégats. L'émission de rayonnement issu de l'interaction laser-agrégat semble donc présenter un maximum à une durée laser donnée. De plus, du fait de l'énergie constante contenue dans l'impulsion, l'augmentation de la durée de l'impulsion se traduit par une diminution de l'intensité laser maximale accessible au foyer.

Un effet similaire a aussi été observé sur l'énergie des ions mesurés par spectrométrie à temps de vol par l'équipe de V. Kumarappan dans des agrégats de Xenon de 110 Å présentant une énergie maximale pour une durée laser d'environ 1 *ps* et contenant 12 *mJ* [32].

La production d'électrons a été mesurée par une méthode identique dans d'autres expériences [15]. Elle a également présenté un optimum avec la durée de l'impulsion laser autour de 500 *fs* fortement corrélé avec la production d'ions et accompagné d'une émission maximale de photons XUV. L'optimum observé est plus marqué dans le cas des électrons que pour les photons. Le minimum d'émission est enregistré pour une durée laser minimale. Ces derniers résultats semblent montrer l'existence d'une dépendance de l'énergie maximale des électrons avec la répartition temporelle des longueurs d'ondes du spectre dans l'impulsion laser (chirp). Une des propriétés des impulsions lasers étirées est la variation temporelle de la longueur d'onde dans l'impulsion (dérive de fréquence). Suivant que les longueurs d'ondes du côté "rouge" du spectre (vers les basses énergies) arrivent en premier sur les agrégats ou que ce soient les longueurs d'ondes du côté "bleu" du spectre (vers les hautes énergies), l'énergie électronique maximale accessible semble être affectée.

Le chauffage des agrégats apparaît optimal autour d'une durée laser donnée. L'opti-

mum semble dépendre de la taille moyenne des agrégats. Cet effet est observé en absorption, en émission X et XUV et dans l'énergie des électrons.

Énergie cinétique des ions

A l'Imperial College de Londres, K. Mendham *et al.* ont étudié l'influence de la forme temporelle de l'impulsion laser sur l'énergie cinétique des ions émis lors de l'explosion d'agrégats de Xenon, de Krypton et d'Argon [33], [34]. Ils ont constaté une variation du spectre en énergie des ions suivant le profil temporel de l'impulsion. Cette variation dépend de la dimension des agrégats ainsi que de l'espèce étudiée. Les énergies cinétiques observées sont plus élevées (d'un facteur 2) dans le cas d'une impulsion laser dissymétrique (possédant une montée en intensité temporellement plus rapide que la descente) par rapport à une impulsion gaussienne de même durée à mi-hauteur et de même intensité. Les énergies obtenues sont de 3 à 7 keV d'énergies moyenne des ions d'Argon de 80 Å de rayon irradiés à $10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ et de 10 à 30 keV d'énergies maximales.

Dans une autre étude, l'énergie moyenne des ions dépendait de la polarisation du laser, atteignant quelques 54 keV en polarisation verticale et $\sim 73 \text{ keV}$ en polarisation horizontale par rapport à l'axe du temps de vol [32].

Les mesures de l'énergie cinétique des ions ont montré que lors de l'explosion des agrégats les ions acquièrent une énergie cinétique importante. A priori, cette énergie est maximale si tous les électrons de l'agrégat sont arrachés en un temps inférieur au temps d'expansion τ_{exp} . Il faut pour cela que la durée de l'impulsion laser soit inférieure au temps caractéristique de l'explosion de l'agrégat qui dépend du rayon initial de l'agrégat. Si l'énergie cinétique acquise par les ions est suffisamment grande (plusieurs keV) et le jet assez dense, les ions de deux agrégats voisins vont pouvoir entrer en collision. Dans le cas d'agrégats deutérés, une telle collision peut donner lieu à la fusion des deux noyaux. Ce phénomène a pour la première fois été observé en 1999 par Ditmire *et al.* [14]. Ils ont mesuré l'émission de neutrons ($\sim 10^3$) à 2,45 MeV issus de la fusion d'agrégats de deutérium détruits par une impulsion laser de $7 \times 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ contenant seulement 30 mJ.

Dans la gamme des rayonnements X dits "mous", de 40 à 180 Å, Mocek *et al.* a reporté une forte dépendance du spectre mesuré avec la température d'un jet d'agrégats d'argon cryogéné [35]. L'émission augmente de façon non linéaire avec la diminution de la température du jet avant de saturer en-dessous d'une certaine température. Les mêmes observations sont reproduites avec des agrégats de Néon. Par ailleurs, avec la variation de la durée du rayonnement laser de 25 à 100 fs, Mocek observe dans ces mêmes expériences une augmentation du signal issu de l'émission d'ion Ne^{7+} .

L'énergie des ions diminue avec l'augmentation de la durée de l'impulsion. Elle semble dépendre de l'état de polarisation du laser et du chirp de l'impulsion.

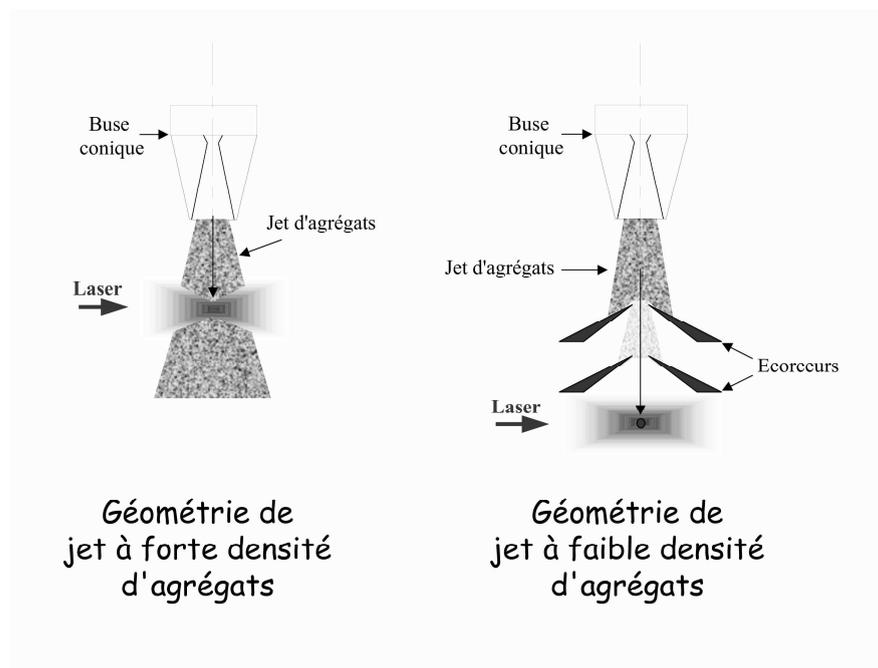


Fig. 1.3: Schéma des différentes géométries de l'interaction. À droite, des écorceurs sont placés sur le chemin du jet afin de limiter la densité de particules dans la zone d'interaction. À gauche, la géométrie sans écorceurs permet d'améliorer le signal recueilli en augmentant le nombre de particules au foyer du laser en focalisant directement à la sortie de la buse.

Durée d'émission X

En terme de durée d'émission du rayonnement X obtenu par l'irradiation laser d'agrégats, les premières expériences menées par T. Ditmire *et al.* ont été réalisées avec un temps de résolution de 10 ps [11], [7]. La couche M du Krypton et la couche L de l'Argon (émission autour de 100 eV) se sont avérées émettre du rayonnement durant quelques nanosecondes avec moins de 1 % de rayons X contenus dans un premier pic ayant une durée inférieure à 10 ps. Des résultats identiques ont été observés plus récemment par T. Shiraishi *et al.* en considérant l'émission de la couche N d'agrégats de Xénon (~ 100 eV) [36]. Néanmoins, ils ont observé des durées d'émission plus courtes à des énergies de rayonnement X plus grandes, dans la couche M du Xénon autour de 1 keV. La durée mesurée était limitée à la résolution temporelle de l'instrumentation qui était de 100 ps. Une autre étude montrait une durée d'émission de quelques ns pour la couche K d'agrégats d'Argon dans cette même gamme d'énergie (autour de 3 keV avec une résolution temporelle de 10 ps) [37].

La durée de l'émission X n'est pas bien définie pour l'heure. Il semble qu'elle soit inférieure ou de l'ordre de 10 ps.

Autres résultats

Dans une autre gamme d'émission, J. Tisch *et al.* se sont intéressés à la génération de rayonnement harmoniques dans les agrégats de Xenon [38], [39]. Les phénomènes liés aux propriétés collectives des agrégats (forte densité d'électrons actifs dans un même champ laser en un même point de l'espace) sont analysés afin de calculer l'accord de phase au sein de l'agrégat. La dépendance du signal d'harmoniques avec la pression du jet et l'intensité du laser est enregistrée. Cette étude révèle une augmentation de l'intensité du rayonnement d'harmoniques en présence d'agrégats ainsi qu'une dépendance plus forte du signal avec l'intensité du laser. La coupure du signal d'harmoniques est obtenue à des énergies plus grandes que dans le cas d'un jet de gaz classique. Toutefois, la ré-absorption du signal harmonique par l'agrégat s'avère un facteur limitant de la génération d'harmoniques.

La plupart des résultats expérimentaux présentés jusqu'ici ont été obtenus dans des géométries d'interaction où le jet d'agrégats est nettoyé par des écorceurs (cf. Figure 1.3) permettant de limiter la densité de particules dans la zone d'interaction. Toutefois, afin d'améliorer le rendement de conversion entre l'énergie laser et le nombre de particules émises, il est possible de focaliser le faisceau laser directement en dessous de la buse. On dispose alors d'un jet d'agrégats très dense dans lequel on peut éventuellement rencontrer des problèmes de propagation.

L'utilisation de ce type de jets denses montrait, dans un domaine légèrement différent, un optimum d'émission de neutrons à partir d'agrégats de deutérium de 10 à 100 Å dépendant de la position de la focalisation de l'impulsion laser de 120 mJ par rapport à

l'axe du jet cryogéné [40]. Cet optimum correspondait à une focalisation en bord du jet. Une étude avec l'énergie laser contenue dans l'impulsion donnait une dépendance en $I^{2,2}$ différente de celle obtenue par S. Dobosz *et al.* pour le rayonnement X [21].

Nous venons de décrire l'ensemble des résultats importants obtenus dans l'interaction d'un laser ultra-bref ($\Delta t < 100 \text{ fs}$) de haute intensité ($I > 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$) avec un jet d'agrégats de gaz rares. Les propriétés physiques de l'interaction présentent un comportement de la matière très particulier en terme d'efficacité de couplage de l'onde laser avec le milieu constitué d'agrégats. Nous allons à présent nous intéresser aux principaux mécanismes mis en avant afin de mieux comprendre ces observations et de tenter de les interpréter par des modèles plus ou moins validés par les expériences.

En résumé, d'un point de vue de l'émission de rayons X, celle-ci augmente avec la taille moyenne des agrégats. Il existe un optimum en fonction de la durée de l'impulsion laser et il semble dépendre de la taille moyenne des agrégats. Le nombre de photons de rayonnement X semble également augmenter avec l'intensité contenue dans l'impulsion laser. L'effet de la longueur d'onde du laser et de la polarisation sur cette émission sont contradictoires. La durée de l'émission X n'est pas bien définie pour l'heure. Parmi ces principaux résultats obtenus dans le domaine de l'interaction laser-agrégats, on a pu voir, que certains d'entre eux sont encore discutés.

1.1.2 Modélisation de l'interaction

Les jets d'agrégats de Van der Waals sont des milieux de densité intermédiaire entre les gaz et les solides. La dimension des agrégats est très petite ($\sim \text{qqs nm}$) devant la longueur d'onde du laser ($\simeq 800 \text{ nm}$). Elle leur confère des propriétés nouvelles et intéressantes à étudier d'un point de vue théorique. Afin de rendre compte des observations expérimentales, différents modèles inspirés des propriétés déjà connues de la matière à l'état solide ou gazeux en champ fort, ont été développés. Ils comportent différentes hypothèses souvent basées sur les expériences réalisées dans le domaine de l'interaction laser-atome voire de l'interaction sur des cibles solides. Au travers de codes, la réponse de l'agrégat ($\sim \text{qqs nm}$) en champ intense ($I_{\text{laser}} > 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, $\Delta t \simeq 100 \text{ fs}$) a été simulée pour traduire les différents comportements de la matière avec les paramètres du laser présentés au paragraphe précédent.

Modèle CEMM (Coherent Electron Motion Model)

Un premier modèle a été proposé par McPherson *et al.* au début des années 90 afin d'expliquer l'observation de rayonnements X issus d'ions anormalement chargés dans les expériences d'interaction laser-agrégats [10]. Il est basé sur des concepts de l'interaction

laser-atome. Il décrit l'ionisation des atomes de l'agrégat par le champ laser environnant. Dans ce modèle, les atomes de l'agrégat sont considérés comme indépendants et le rayon de l'agrégat complètement ionisé est inférieur à l'épaisseur de peau (absence de gradients thermiques). Les électrons libres produits lors de l'ionisation dans le champ laser vont exciter le cortège électronique des ions ou arracher des électrons et ainsi créer des lacunes en couches internes. Ceci conduit à l'émission de rayonnement X. Cette émission n'a lieu que pour une gamme donnée d'intensité laser : les électrons ont besoin d'une énergie suffisante pour créer des lacunes en couche interne, mais l'intensité ne doit pas être trop élevée afin de ne pas ioniser tous les électrons de la couche supérieure par suppression de barrière, sans quoi il n'y a pas d'émission X.

Leurs calculs montrent également l'existence d'une taille critique d'agrégats pour une émission X optimale. Ce modèle est valide pour des petits agrégats allant jusqu'à 1000 atomes. Par la suite, il a été généralisé par K. Boyer *et al.*. Ils ont considéré un mouvement cohérent des électrons (Coherent Electron Motion: CEM) dans le champ laser en vue d'expliquer les expériences ayant montré un couplage multiphotonique plus fort que celui estimé précédemment [6]. Dans le modèle CEMM, l'ensemble des électrons est vu comme une quasi-particule de masse $N \times m_e$ et de charge $N \times e$, avec N le nombre d'électrons libres. Cette considération permet l'augmentation de la probabilité d'ionisation par l'augmentation de la section efficace. L'ionisation des électrons des couches internes des ions est alors amplifiée et peut ainsi conduire à des états de charge plus élevés. De plus, le champ laser crée plusieurs oscillations du nuage d'électrons libres augmentant ainsi la probabilité d'ionisation. Parallèlement, le modèle proposé par A. McPherson *et al.* montre une durée d'émission X aussi courte que la durée de l'impulsion laser.

C'est le premier modèle proposé pour répondre aux observations expérimentales de l'interaction laser-agrégats. Il répondait déjà à l'existence d'une taille critique d'agrégat pour une émission de rayonnement maximale. Ce modèle présente comme principal défaut d'être limité aux calculs de l'interaction avec des agrégats de petite dimension.

Modèle d'ionisation classique (Ionization Ignition Model)

Un modèle d'ionisation de l'interaction laser-agrégats appelé (Ionisation Ignition Model) a été développé par Rose-Petruck *et al.* [8]. Ce modèle intègre l'ensemble des trajectoires classiques électroniques et ioniques sur toute la durée de l'impulsion laser. Cette approche suppose l'arrachage par le champ laser des premiers électrons des atomes par suppression de la barrière de potentiel. Le modèle ne prend pas en compte les mécanismes d'ionisation tunnel et d'ionisation résonante (comme proposé dans d'autres modèles [7]). Le champ électrique qui règne dans l'agrégat (lié à la densité et au champ laser) écrante le potentiel d'ionisation des ions. Ceci conduit à une ionisation plus rapide et à des états de charge plus élevés comme observé expérimentalement [41], [42]. Les électrons ayant une

énergie suffisante créent alors des lacunes en couches K et L des ions. Il s'en suit l'émission de rayonnement X. L'agrégat se détend sous l'effet de la répulsion coulombienne.

Les simulations conduites par Rose-Petruck sont limitées à des agrégats de petite taille (Ne_{25} , Ne_{55} et Ar_{25}). Les résultats obtenus avec une impulsion de 15 fs de durée centrée à 800 nm avec une puissance crête de 5×10^{15} à $5 \times 10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$ montrent qu'une durée d'impulsion plus grande diminue l'ionisation moyenne issue du chauffage des électrons par le champ laser.

Ce modèle donne de bons résultats pour ce qui concerne les états de charge obtenus (pour la couche M de l'Argon) et les énergies cinétiques moyennes des ions calculées sont comparables aux résultats des expériences de Purnell *et al.* [42]. L'absence de considération de l'ionisation tunnel, la limite de taille des agrégats et la réponse du modèle à une impulsion plus longue sont autant de facteurs limitatifs quant à l'aspect réaliste de ce modèle.

Modèle nanoplasma

Ce modèle a été proposé par T. Ditmire pour interpréter les expériences menées par son équipe à Livermore [7]. Comme son nom l'indique, il traite l'agrégat comme une bille de plasma de taille nanométrique ($R_{ag} \sim qqs \text{ nm}$). Basé sur le modèle de Drude considérant une constante diélectrique pour une sphère uniformément chargée, il contient un ensemble de mécanismes d'ionisation des atomes, de chauffage et d'expansion de l'agrégat afin de décrire l'évolution temporelle de l'interaction. Les hypothèses de ce modèle sont :

- absence de gradients thermiques (densité uniforme),
- distribution maxwellienne des vitesses électroniques, ce qui suppose une thermalisation "instantanée" des électrons plus rapide que la durée de l'impulsion (fréquence de collision élevée : $\nu_{ee} \simeq 1ps^{-1}$),
- rayon de l'agrégat très grand devant la longueur de Debye.

Dans ce modèle, le chauffage de l'agrégats intervient sous forme d'une résonance entre le champs laser environnant l'agrégat et la fréquence propre d'oscillation collective des électrons libre au sein du nanoplasma (l'agrégat ionisé).

Dans un premier temps, les atomes de l'agrégat sont ionisés par le champ laser via les mécanismes classiques d'ionisation tunnel et multiphotonique intégrés sur un cycle optique (voir section 1.1.3). Les électrons des couches externes sont arrachés et par collisions avec les ions acquièrent de l'énergie thermique (Bremsstrahlung inverse). Ils vont à leur tour exciter et ioniser par collisions successives les ions du nano-plasma ainsi constitué. Certains électrons ayant acquis une énergie suffisante vont pouvoir quitter l'agrégat. Sous l'effet de la charge d'espace et de la pression cinétique, l'agrégat va exploser. Le modèle considère l'agrégat comme une sphère parfaite ayant toute sa charge en surface. Le mode de chauffage de l'agrégat est principalement collisionnel dû à la forte densité du milieu. Le

facteur physique permettant de contenir l'effet violent de la résonance est la fréquence de collision. Cette dernière est limitée à une fréquence maximale ν_{max} telle que $1/\nu_{max}$ soit égal au temps de parcours d'un électron entre deux ions successifs.

Le rayon de l'agrégat ($\sim 250 \text{ \AA}$) étant très inférieur à la longueur d'onde du laser ($\sim 800 \text{ nm}$), du moins au début de l'interaction, on assimile le champ à l'intérieur de la sphère au champ régnant dans une sphère diélectrique plongée dans un champ constant E_0 [7]. L'évolution du champ E à l'intérieur de l'agrégat en fonction du champ laser E_0 est donnée par :

$$E = \frac{3}{|\varepsilon + 2|} E_0 \quad (1.2)$$

où ε est la permittivité diélectrique du milieu qui dépend de la densité au sein de l'agrégat telle que donnée par le modèle de Drude :

$$\varepsilon = 1 - \frac{n_e}{n_c} \frac{1}{\left(1 + i \frac{\nu_{ei}}{\omega}\right)} \quad (1.3)$$

où ω est la pulsation du laser, ν_{ei} la fréquence de collision électrons-ions et n_e la densité électronique dans l'agrégat. n_c est la densité critique (fonction de la longueur d'onde du laser) définie par :

$$n_c = \frac{m_e \varepsilon_0 \omega^2}{e^2} \quad (1.4)$$

avec m_e et e , respectivement la masse et la charge de l'électron et ε_0 , la permittivité du vide.

L'absorption de l'énergie laser par les électrons libres est supposée se faire via le mécanisme d'absorption collisionnelle. Elle est liée à la valeur de la constante diélectrique ε par :

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \frac{9\varepsilon_0 \omega}{2} \frac{Im(\varepsilon)}{|\varepsilon + 2|^2} |E_0|^2 \quad (1.5)$$

On peut noter que lorsque le rapport n_e/n_c est égal à 3, la valeur de $|\varepsilon + 2|$ passe par un minimum. Le taux de chauffage est alors fortement amplifié voire "résonnant". Le chauffage sera donc très efficace une première fois lorsque au début de l'impulsion la densité électronique augmente sous l'effet de l'ionisation et atteint 3 fois la valeur de la densité critique, et une seconde fois, lors de la détente de l'agrégat, quand la densité électronique décroît et passe de nouveau par cette valeur.

L'expansion de l'agrégat est ensuite traitée via le modèle d'expansion auto-semblable de Haught et Polk décrit au paragraphe 1.1.3 dans lequel deux forces de pression (pressions hydrodynamique et coulombienne) contribuent à l'expansion du milieu.

Les hypothèses du modèle (densité uniforme, distribution maxwellienne) sont un peu brutales aux échelles de temps et de taille considérées, mais ce modèle présente l'intérêt

de bien décrire les résultats expérimentaux comme l'existence d'une taille d'agrégat optimale pour un ensemble de paramètres laser donné [13], [43], [30]. Springate *et al.* ont depuis inclus au code initial la possibilité d'irradier l'agrégat par deux impulsions laser de fréquences différentes [44]. Ils ont également pris en compte l'ionisation instantanée plutôt que moyennée sur un cycle optique. Plus récemment, Mendham a introduit dans le code la possibilité de considérer un profil d'impulsion "chirpé" (dont la dérive de fréquence peut être contrôlée) [33].

Le temps durant lequel la densité est égale à $3 n_c$ peut s'estimer simplement en considérant que l'expansion de l'agrégat se fait à la vitesse acoustique ionique C_s . Elle s'exprime par :

$$C_s = \sqrt{\frac{Z k_B T_e}{m_i}} \quad (1.6)$$

où Z est l'état de charge des ions, k_B la constante de Boltzmann, T_e la température électronique et m_i la masse des ions.

Ainsi, à partir des équations 1.3 et 4.1, on estime ce temps de "résonance" δt_{res} :

$$\delta t_{res} = \frac{2}{3} \frac{\nu_{ei}}{\omega} \left(\frac{n_{e0}}{3n_c} \right)^{1/3} \frac{R_0}{C_s}. \quad (1.7)$$

Dans cette expression, n_{e0} est la densité électronique initiale du plasma et R_0 le rayon initial de l'agrégat. Pour un agrégat de 250 Å de rayon initial, une température électronique de 1500 eV, un rapport ν/ω estimé à 0,03 [9] à 800 nm, ce temps de résonance est estimé à ~ 10 fs.

Parallèlement, on peut estimer le temps d'expansion caractéristique d'un agrégat en considérant son expansion à la vitesse acoustique ionique. Le temps nécessaire pour passer de la densité initiale n_{e0} à la densité du jet environnant n_e est donné par [7] :

$$\tau_{exp} = \frac{R_0}{C_s} \left(\frac{n_{e0}}{n_e} \right)^{1/3} \quad (1.8)$$

En considérant une densité initiale de $2,65 \times 10^{23} e^- .cm^{-3}$, on détermine un temps caractéristique d'expansion d'environ 4 ps. Ceci signifie que des durées d'impulsions de 4 ps et moins vont interagir avec l'agrégat sur la majeure partie de l'impulsion. On peut donc en déduire que le temps de résonance est très court devant le temps d'expansion de l'agrégat. Ce temps est même *a priori* trop faible pour permettre une réelle thermalisation des électrons.

Sur la figure 1.4, on montre les résultats de calculs théoriques issus du modèle nanoplasma pour des agrégats de Xénon de 30 Å de rayon irradiés par une impulsion laser de 140 fs et de $2 \times 10^{16} W.cm^{-2}$ d'intensité maximale [43]. On peut voir sur les graphes l'évolution de l'intensité du laser, du rayon de l'agrégat, de la densité électronique normalisée à

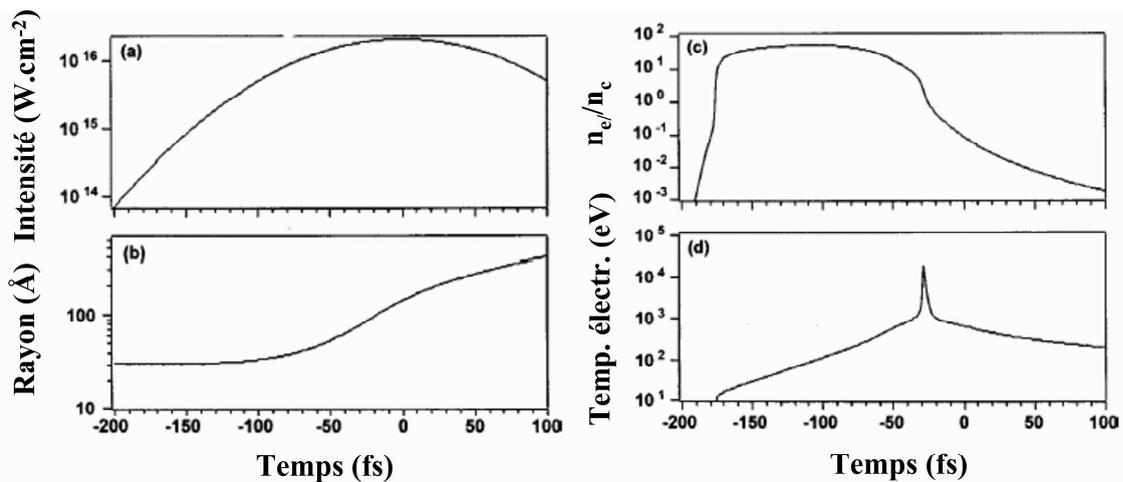


Fig. 1.4: *Calculs théoriques issus du modèle nanoplasma pour des agrégats de Xénon de 30 Å irradiés par une impulsion laser de 140 fs et une intensité de $2 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$. Evolution temporelle de : a) Impulsion laser, b) rayon de l'agrégat, c) densité électronique n_e normalisée à la densité critique n_c et d) température électronique.*

la densité critique et de la température électronique. On constate sur la figure 1.4d que la température électronique est fortement augmentée lorsque la densité normalisée atteint la valeur 3. Cette “résonance” est très brutale et très rapide. L’augmentation de température excède un ordre de grandeur en à peine $\sim 10 \text{ fs}$. Comme tout phénomène de résonance, il possède un mécanisme d’amortissement. Ici, ce sont les collisions qui jouent ce rôle.

Le modèle nanoplasma a inspiré d’autres modèles basés sur les mêmes hypothèses. Notamment, Liu et *al.* [45] ont considéré un modèle modifié dans lequel la permittivité diélectrique de Drude est remplacée par la constante diélectrique effective d’un plasma $\varepsilon_{eff} = \varepsilon + i\varepsilon'/\omega$ où ε est la constante diélectrique utilisée par Ditmire et *al.*. Le terme supplémentaire $i\varepsilon'/\omega$ représente un terme d’amortissement qui permet de limiter les effets de la résonance. Cette nouvelle forme est, selon les auteurs, mieux adaptée au changement brutal des propriétés de l’agrégat (saut de densité, élévation brutale de la température) auxquelles le modèle de Drude ne peut s’appliquer au voisinage de la résonance. Les simulations faites sur des agrégats de Krypton donnent des résultats similaires au modèle nanoplasma. La dépendance avec la longueur d’onde montre une vitesse d’expansion, une ionisation et un chauffage plus forts dans le cas des faibles longueurs d’onde. Les énergies moyennes des ions calculées sont du même ordre de grandeur que celles mesurées par Springate et *al.* [46].

Plus récemment, les travaux de recherche d’une équipe toulousaine de l’Université Paul Sabatier du Laboratoire de Physique Quantique ont montré l’importance des effets

d'amortissement de la résonance [47]. Ils ont repris un calcul basé sur le modèle nanoplasma en incluant une méthode à pas adaptatif (plus réaliste au voisinage de la résonance) ainsi qu'une correction liée aux collisions de surface (amortissement Landau de la résonance plasmon de surface) permettant de limiter la résonance dans l'agrégat.

Un code mono-dimensionnel simulant l'interaction laser-agrégat a été développé par Milchberg *et al.* [9]. Ce modèle prend en compte les mécanismes d'ionisation par le champ, d'ionisation collisionnelle et de conduction thermique. Il contient un modèle radiativo-collisionnel dépendant du temps et ne prend pas en compte les électrons chauds qui sont découplés de la distribution thermique. Dans ce modèle, la résonance en densité apparaît principalement à la densité critique, comme c'est le cas pour les cibles solides (modèle 1D). Cette résonance persiste tout au long du passage de l'impulsion laser, apparaissant dès lors qu'une couche de densité critique s'est formée. Il montre également, un pic de résonance 100 fois plus faible que le modèle nanoplasma de Ditmire mais la durée pendant laquelle l'agrégat absorbe l'énergie laser est 50 fois plus longue. Ce modèle 1D prévoit un optimum de chauffage de l'agrégat de taille donnée pour une impulsion laser donnée. Ainsi, pour des agrégats de 60 nm, le meilleur chauffage est obtenu avec une impulsion de 300 fs. Les résultats de ces simulations sont en très bon accord avec les observations expérimentales de Parra *et al.* montrant un optimum d'émission XUV avec une impulsion laser de ~ 300 fs dans les mêmes conditions d'agrégats [31].

Ce dernier modèle plus réaliste que le modèle nanoplasma original de Ditmire ne donne toutefois pas l'ordre de grandeur des énergies moyennes des électrons et des ions. Il ne renseigne pas non plus sur l'influence de la dimension des agrégats sur le chauffage du milieu ni des états de charge obtenus.

Autres modèles

Des simulations de l'explosion coulombienne d'agrégats de Xe_n et d' $HI Ar_n$ avec $n < 60$ basées sur des calculs de dynamique moléculaire ont été menées par Last et Jortner [48]. Ils ont étudié l'ionisation multiphotonique des atomes et ont observé la vitesse finale des ions. Les états de charges maximaux obtenus par le calcul sont 8+ pour l'Iode et 6+ pour l'Argon. Ces états de charge sont proportionnels à la taille des agrégats et, pour une dimension fixée, sont proportionnels à la charge de l'ion. Les résultats sont en désaccord avec les expériences de Purnell *et al.* qui ont observé la formation d'ions I^{17+} dans des agrégats $(HI)_n$ ainsi que des ions I^{6+} et Ar^{7+} dans le cas d'agrégats $HI Ar_n$ [42]. Ce modèle a ensuite été étendu à des agrégats plus gros de Xe_{1000} avec une approche mono-dimensionnelle [49]. Cette extension a montré que les électrons ne passaient qu'une à deux fois dans l'agrégat avant d'être arrachés par le champ laser, et ce nombre de passages augmente avec la charge de l'agrégat. Une extension de ce modèle à 3 dimensions a permis de prendre en compte le mouvement des électrons et des ions [50]. Les résultats de

simulations sur des agrégats de Xe_{55} à Xe_{1061} montrent une quasi-résonance des électrons libres qui oscillent avec une fréquence proche de celle du laser (*i.e.* à la densité critique n_c). Ceci conduit à des énergies électroniques et ioniques plus grandes. L'éjection des électrons de l'agrégat se fait principalement au cours de l'explosion coulombienne. Dernièrement, Last et Jortner [51], [52] ont proposé une nouvelle étude de la dynamique d'agrégats de Xe_n , de $(\text{D}_2)_n$ et de $(\text{CD}_4)_n$ ($n=55-1061$). Ils ont étudié en profondeur les phénomènes d'ionisation et plus particulièrement la dynamique des électrons, et l'influence de la forme temporelle de l'impulsion sur cette dynamique.

Krainov et Roshchupkin ont de leur côté simulé l'explosion coulombienne d'agrégats de Xe_{1000} irradiés par une impulsion laser de 100 *fs* et de $10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ [53]. L'expansion de l'agrégat est décrite pas à pas. L'ionisation simple des ions par le champ laser est suivie de l'éjection de quelques électrons libres et de la répulsion des ions entre eux sous l'effet de la charge d'espace. Il s'en suit une ionisation complémentaire par le champ. Le maximum d'énergie atteint par les ions est en bon accord avec les résultats expérimentaux fournis par Springate [44].

Sakabe *et al.* ont simulé récemment l'explosion d'agrégats d'hydrogène de 4 à 8 *nm* de rayon irradiés par une impulsion de $10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ [54]. Les résultats ont montré l'émission de protons jusqu'à 8 *keV* d'énergies variant avec l'intensité laser et le rayon moyen des agrégats. Ces résultats sont en bon accord avec ceux obtenus expérimentalement par Zweiback *et al.* et Mendham *et al.* [40], [33].

D'autres modèles ont été élaborés dans le but de comprendre l'interaction laser-agrégats notamment par Kostyukov [55] qui a étudié l'absorption des agrégats par Bremsstrahlung inverse ou encore Grigorenko [56] qui a comparé l'effet de l'explosion coulombienne par rapport à l'explosion hydrodynamique de l'agrégat. Ces modèles ont été peu développés.

Des simulations à partir de codes particuliers (codes PIC : Particle In Cell) ont vu le jour. Ditmire a notamment réalisé des simulations avec des agrégats de petite taille (55 atomes/agrégat) [57]. Ces simulations tiennent compte de l'évolution des ions et des électrons au cours de l'expansion et des effets de l'ionisation par impact d'électrons. L'importance du confinement des électrons par la charge d'espace est souligné par les simulations, les états de charge obtenus sont comparables à ceux mesurés par Purnell *et al.*[42].

Eloy *et al.* ont aussi mené des simulations en code PIC sur des agrégats d'hydrogène de 500 *nm* de rayon irradiés par une impulsion de 20 *fs* à 10^{17} - $10^{20} \text{ W.cm}^{-2}$ [58]. Des énergies cinétiques ioniques proportionnelles à $I^{1/2}$ allant jusqu'à 3 *MeV* ont été obtenues. Aucune expérience n'existe dans cette gamme de taille d'agrégat et d'énergie laser pour comparaison à ce jour. Sakabe *et al.* ont également mené des simulations similaires en code PIC [54]. Ces modèles sont limités en taille d'agrégats par le coût en temps de calcul.

D'autres modèles basés sur le modèle de Thomas-Fermi ont aussi été développés pour simuler l'interaction laser-agrégats avec notamment des codes basés sur la théorie de la

fonctionnelle de la densité dépendante du temps (TDFDT : Time Dependant Functional Density Theory) [59], [60]. Ces modèles sont uniquement qualitatifs et ne rendent pas compte des résultats expérimentaux.

Actuellement, le laboratoire CELIA développe parallèlement aux expériences un code visant à interpréter les résultats de manière aussi complète que possible. Ce code est basé sur le modèle nanoplasma et vise à décrire l'interaction depuis les premiers mécanismes d'ionisation de l'agrégat jusqu'à l'interprétation des spectres émis par les atomes. Il doit répondre dans un premier temps aux états de charge très élevés observés expérimentalement en tentant notamment d'expliquer les effets d'écrantage du champ laser dans l'agrégat. Il n'a pas fait pour l'heure l'objet de publications.

Comme nous venons de le voir, il existe un nombre important de codes et de modèles dédiés à la description de l'interaction laser-agrégats. Malheureusement, aucun de ces modèles ne permet de rendre compte de toutes les constatations expérimentales en même temps. Par exemple, les états de charge accessibles expérimentalement ne sont pas bien reproduits par les calculs. Les mécanismes invoqués pour expliquer le couplage très fort entre le champ laser et les agrégats diffèrent suivant les modèles. Les modèles sont parfois contradictoires entre eux quant aux prédictions. Nous allons à présent décrire les mécanismes de l'interaction laser-agrégats, plus particulièrement ceux invoqués par le modèle nanoplasma qui semble, pour l'heure, le plus à même de répondre à l'expérience.

1.1.3 Mécanismes “nano-plasma”

Dans cette partie, nous exposons les différents mécanismes pouvant intervenir lors de l'interaction d'un laser avec la matière. Plus particulièrement, nous allons voir comment les propriétés des agrégats jouent un rôle dans ces mécanismes. Notamment, nous étudierons les effets de l'ionisation du milieu par le champ laser et par les collisions. Après avoir défini les paramètres fondamentaux des plasmas, nous aborderons aussi les différents modes d'absorption de l'énergie laser et de chauffage d'un plasma en évoquant l'interaction d'un laser avec une cible solide. Puis, nous traiterons les effets des forces de pression responsables de l'expansion de l'agrégat. Étant donné que le modèle nanoplasma répond relativement bien aux résultats expérimentaux, certaines descriptions des mécanismes présentés ici sont basées sur les hypothèses de ce modèle.

Ionisation par le champ laser

L'interaction d'un champ intense avec la matière est étudiée depuis longtemps déjà [61]. Cette interaction conduit à une excitation ou une ionisation des niveaux atomiques. Suivant l'intensité du champ, les électrons vont osciller dans ce champ jusqu'à pouvoir être arrachés des atomes. On distingue deux régimes d'interaction responsable de l'ionisation de

la matière par un champ laser : **l'ionisation multiphotonique** et **l'ionisation tunnel**.

- L'ionisation multiphotonique est un processus par lequel un niveau atomique est ionisé par absorption de N photons du laser [62], [63].
- L'ionisation par effet tunnel est un processus au cours duquel l'électron pourra être éjecté de son atome du fait de l'abaissement de la barrière de potentiel. Cette barrière est en fait la somme du potentiel coulombien et du terme d'interaction dipolaire électrique lié au champ laser environnant [64]. Cet effet peut alors se produire pour des impulsions dont l'intensité laser est supérieure au "seuil" d'ionisation de l'électron considéré (par exemple, on peut noter que la première ionisation de l'Argon apparaît pour des intensités laser supérieures à $\sim 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$).

Le paramètre adiabatique de Keldysh γ_K permet de d'étudier l'importance relative de ces deux mécanismes d'ionisation :

$$\gamma_K = 2.315 \times 10^6 \sqrt{\frac{U_i(\text{eV})}{I(\text{W/cm}^2)\lambda_0^2(\mu\text{m})}} \quad (1.9)$$

avec U_i le potentiel d'ionisation, I l'intensité du laser et λ_0 la longueur d'onde laser.

Si $\gamma_K < 1$, le régime d'ionisation tunnel est dominant et dans le cas où $\gamma_K > 1$, c'est le régime d'ionisation multiphotonique qui domine. La frontière entre ces deux régimes ($\gamma_K \simeq 1$) est étudiée dans les travaux de thèse de E. Mevel [65].

Pour un éclairage crête de $10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$ et une longueur d'onde de 800 nm , on obtient une valeur de $\gamma_K \simeq 0,45$ pour l'ionisation de $Ar \text{ XVII}$. Nous sommes donc alors dans un régime où l'ionisation est dominée par l'effet tunnel.

Le taux d'ionisation tunnel W_{tun} peut s'estimer en moyennant sur un cycle optique. L'expression donnée par Ammosov, Delone et Krainov s'écrit [64] :

$$W_{tun}(F) = \left(\frac{3}{2\pi}\right)^{3/2} \frac{Z^2}{3n^{*3}} \left(\frac{4e^2}{n^{*2} - l^2}\right)^{n^*} \times \left(\frac{2Z^3}{n^{*3}F}\right)^{2n-|m|-3/2} f(l, m) \times e^{\left(\frac{-2Z^3}{3n^{*3}F}\right)} \quad (1.10)$$

expression dans laquelle $F_0 = (2E_i)^{3/2}$, n^* est le nombre quantique effectif, l et m les nombres quantiques orbital et magnétique respectivement, E_i l'énergie de liaison de l'électron, Z la charge de l'ion et F l'amplitude du champ externe.

La fonction $f(l, m)$ est définie par :

$$f(l, m) = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}(|m|)!(l-|m|)!}$$

Ces mécanismes d'ionisation sont dominants dans les premiers instants de l'interaction et permettent l'éjection d'électrons des couches externes des atomes très tôt dans le front de montée de l'impulsion laser.

Propriétés du plasma

La matière ainsi ionisée va présenter des propriétés particulières. Les mécanismes d'ionisation sont le point de départ de la formation du **plasma**. Ce plasma est un mélange d'électrons et d'ions qui possèdent des propriétés collectives. On peut le caractériser par les grandeurs physiques que sont la température et la densité électroniques mais aussi la température et la densité ioniques si on suppose un équilibre thermique (pas forcément le cas au tout début de l'interaction). Généralement, on exprime les températures en eV ($1 eV = 11604 K$). La température exprime la largeur d'une distribution de vitesse d'un ensemble de particules à l'équilibre thermodynamique (distribution maxwellienne des vitesses). Dans notre cas, les échelles de temps ($\sim qqs$ $100 fs$) ne permettent pas forcément l'établissement d'une distribution maxwellienne ni d'un équilibre. Celui-ci peut dépendre des collisions et peut nécessiter quelques ps . Parler de température peut alors sembler un peu abusif. Conscient de cela, nous appellerons température, l'énergie "moyenne" \bar{E} des particules ($\bar{E} = \frac{3}{2}k_B T_e$).

Une des propriétés du plasma est la neutralité à l'échelle macroscopique ($\bar{Z}n_i = n_e$ avec \bar{Z} : charge moyenne des ions, n_i : densité ionique et n_e : densité électronique). A l'échelle microscopique dans le plasma, on définit une grandeur appelée **longueur de Debye** (λ_D) qui représente la longueur au-delà de laquelle le champ électrique d'une particule est écranté par le champ des particules environnantes. Elle traduit l'échelle dans laquelle la neutralité n'est pas assurée. Cette grandeur dépend de la densité électronique n_e et s'exprime par :

$$\lambda_D = \left(\frac{\varepsilon_0 k_B T_e}{n_e e^2} \right)^{1/2} \quad (1.11)$$

où k_B est la constante de Boltzmann, T_e la température électronique, ε_0 la permittivité du vide, e la charge de l'électron.

Lorsqu'un plasma est soumis à une perturbation, les électrons sont écartés de leur position d'équilibre et la quasi-neutralité du plasma est rompue. Afin de rétablir la neutralité à l'échelle macroscopique, le plasma exerce une force de rappel sur les électrons. Cette force entraîne une oscillation des électrons autour de leur position d'équilibre avec une pulsation ω_{pe} : **pulsation plasma électronique** telle que :

$$\omega_{pe} = \left(\frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 m_e} \right)^{1/2} \quad (1.12)$$

avec m_e la masse de l'électron.

Cette fréquence dépend de la densité d'électrons libres dans le plasma et varie donc avec l'ionisation moyenne du milieu. Pour une densité dite "critique", cette fréquence peut être égale à la fréquence du laser (voir définition donnée par l'expression 1.4). Pour une longueur d'onde laser de $\lambda = 800 nm$, la densité critique correspond à $\sim 1,75 \times 10^{21} cm^{-3}$.

Dans le cas de l'interaction laser avec une cible solide, si la densité électronique du plasma est supérieure à n_c , l'onde laser incidente ne peut plus se propager dans le milieu ; elle est réfléchiée à la surface critique du plasma $n_e = n_c$ (voir figure 1.5). La pénétration de l'onde laser dans le milieu se limite alors à l'épaisseur de peau δ_s . Cette épaisseur est égale à :

$$\delta_s(\text{cm}) = \frac{c}{\omega_{pe}} \simeq 5,32 \times n_e^{1/2}(\text{cm}^{-3}) \quad (1.13)$$

avec c la célérité de la lumière dans le vide.

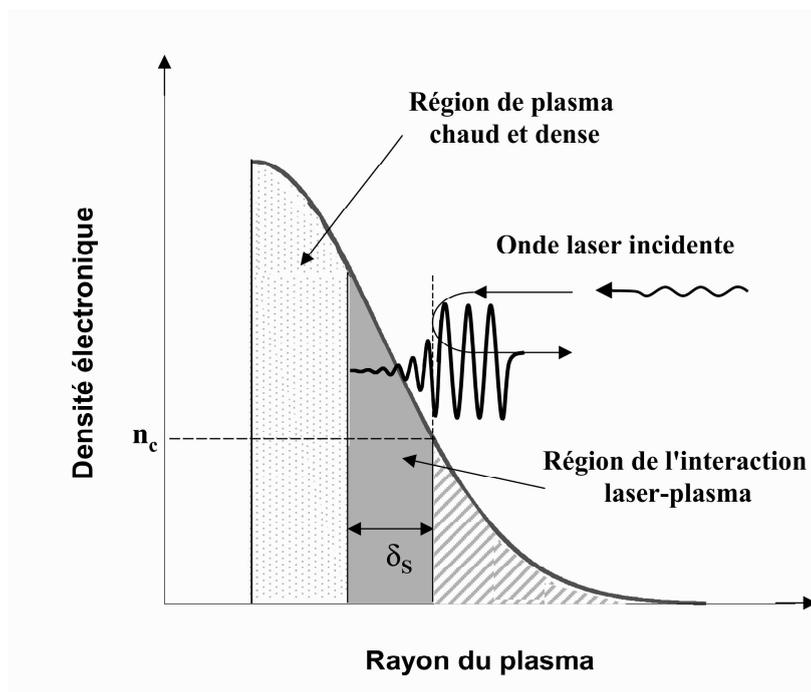


Fig. 1.5: Schéma de la région d'absorption de l'énergie laser par un plasma sur-critique ($n_e > n_c$) d'une cible solide. Le transport thermique de l'énergie au-delà de la couche critique conduit au chauffage de la région des fortes densités. L'onde laser est réfléchiée à la densité critique.

En considérant un agrégat de rayon $R_0 = 250 \text{ \AA} \ll \lambda$, de densité ionique $\sim 10^{22} \text{ at.cm}^{-3}$ plongé dans le champ laser et une ionisation moyenne $Z^* \sim 10$, la densité électronique est alors de $\sim 10^{23} \text{ e}^-.\text{cm}^{-3}$. La fréquence de plasma correspondante est d'environ $\omega_{pe} \sim 2 \times 10^{16} \text{ rad.s}^{-1} > \omega_{laser} = 2,35 \times 10^{15} \text{ rad.s}^{-1}$. L'estimation de la longueur de Debye d'un tel plasma constitué par un agrégat, donne : $\lambda_D \sim 6 \text{ \AA} \ll R_0$ pour une température $T_e = 1000 \text{ eV}$. On peut donc considérer qu'un plasma produit par l'interaction laser-agrégats est globalement électriquement neutre à l'échelle nanométrique. Toute perturbation du plasma entraînera une réponse collective des électrons libres de l'agrégat

afin de rétablir la neutralité électrique. L'épaisseur de peau associée à cette échelle est de $\sim 150 \text{ \AA}$. Cette épaisseur étant de l'ordre de grandeur du rayon de l'agrégat, on s'attend à l'établissement de gradients thermiques au sein des gros agrégats. Dans ce cas, les hypothèses du modèle nanoplasma (densité uniforme, absence de gradient thermiques) sont discutables.

Chauffage du plasma

Les électrons libérés par l'ionisation tunnel oscillent dans le champ laser. Au cours de cette oscillation, ils explorent l'ensemble du plasma et peuvent entrer en collision avec les ions du milieu. Au voisinage d'un ion, un électron peut absorber un photon du laser et ainsi augmenter son énergie cinétique : c'est le phénomène de **Bremsstrahlung inverse** ou d'absorption collisionnelle. C'est un processus à trois corps responsable du chauffage du milieu par transfert de l'énergie du laser aux électrons. Ce phénomène dépend fortement de la fréquence de collision ν_{ei} entre les électrons et les ions. Elle a été décrite par Braginskii par la formule suivante [66] :

$$\nu_{ei} = \frac{4(2\pi)^{1/2}}{3} n_i \left(\frac{Z^* e^2}{4\pi\epsilon_0 k_B T_e} \right)^2 \left(\frac{k_B T_e}{m_e} \right)^{1/2} \ln \Lambda \quad (1.14)$$

où $\ln \Lambda$ est le logarithme coulombien classique défini par [67] :

$$\ln \Lambda = \min \left[\ln \left(2.58 \times 10^9 \frac{T_e^{3/2}}{Z^* n_e^{1/2}} \right); \ln \left(2.83 \times 10^{10} \frac{T_e}{n_e^{1/2}} \right) \right] \quad (1.15)$$

avec T_e la température électronique en eV , n_e la densité électronique en cm^{-3} et Z^* l'état d'ionisation.

Λ est en fait le rapport (b_{max}/b_{min}) du paramètre d'impact correspondant à la longueur de Debye (b_{max}) au-delà de laquelle le champ d'un ion est écranté et de la distance classique la plus proche sans capture (b_{min}). Cette dernière longueur est déterminée par l'égalité de l'énergie du champ coulombien de l'approche minimale $e^2 Z/4\pi\epsilon_0 b_{min}$ avec l'énergie thermique moyenne $\frac{3}{2} k_B T_e$.

L'expression précédente de la fréquence de collision est valable lorsque la vitesse d'oscillation de l'électron dans le champ laser, v_{osc} , est faible devant la vitesse thermique électronique ($v_e = \sqrt{\frac{3k_B T_e}{m_e}}$). En champ fort, la fréquence de collision et le logarithme coulombien doivent être corrigés.

L'expression proposée par Djaoui *et al.* s'écrit [68] :

$$\nu_{ei} = \frac{1}{2} \frac{Z^2 n_i e^4 \ln \Lambda_1}{(\pi\epsilon_0 m_e)^2 (v_{k_B T_e}^2 + v_{osc}^2)^{3/2}} \quad (1.16)$$

avec

$$\ln \Lambda_1 = \begin{cases} \frac{1}{4} \ln^2 \left(1 + \frac{m_e v_{osc}^2}{\hbar \omega} \right) & \text{si } \hbar \omega \gg k_B T_e \\ \frac{1}{4} \ln^2 \left(1 + \frac{v_{osc}^2}{v_{k_B T_e}^2} \right) + \ln \left(\frac{v_{osc}^2}{v_{k_B T_e}^2} + e^{\frac{1}{3} \sqrt{\pi/2}} \right) & \times \ln \Lambda \text{ si } \hbar \omega \ll k_B T_e \end{cases}$$

Jusqu'ici, nous nous sommes placés dans les conditions des plasmas formés par interaction laser/cible solide pour lesquels la physique est assez bien connue. Les remarques précédentes s'appliquent également au cas d'un agrégat ionisé assimilé à une sphère de plasma comme le considère le modèle nanoplasma. Pour calculer dans ce cadre le taux de chauffage collisionnel, on assimile l'agrégat à une sphère diélectrique de constante diélectrique ε . On exprime l'énergie déposée dans la sphère par [69] :

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \varepsilon_0 \vec{E} \cdot \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \quad (1.17)$$

où \vec{D} est la densité de flux électrique, telle que $\vec{D} = \varepsilon \vec{E}$ avec \vec{E} le champ laser à l'intérieur de l'agrégat ($\vec{E} = \frac{1}{2}(E e^{i\omega t} + c.c.)\hat{x}$). Le taux de chauffage devient alors, en moyennant sur un cycle optique,

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \frac{\varepsilon_0 \omega}{2} \text{Im}(\varepsilon) |\vec{E}|^2 \quad (1.18)$$

La valeur de la permittivité diélectrique va évoluer au cours de l'interaction, notamment, en fonction des variations de la fréquence de collision électrons-ions liée à la densité électronique du milieu. Le champ à l'intérieur de l'agrégat dépendra à la fois de l'évolution du champ extérieur mais également de celle de la fonction diélectrique du milieu. Celle-ci écran plus ou moins le champ extérieur en relation avec l'équation 1.2. Suivant la densité des électrons et leur température, les collisions seront plus ou moins fréquentes au sein du plasma. Le chauffage des électrons dépend de la fréquence des collisions au sein du plasma ($\nu_{ei} \propto \frac{n_e}{T_e^{3/2}}$). L'absorption de l'énergie laser par les électrons du plasma via le **Bremsstrahlung inverse** est alors fonction de la pénétration du champ extérieur dans l'agrégat et de la densité du milieu.

Ionisation collisionnelle

Lors de l'interaction, en plus des mécanismes d'ionisation par le champ, viennent s'ajouter les mécanismes d'ionisation par impacts entre les électrons et les ions. Ce mode d'ionisation nécessite la présence d'électrons libres dans le milieu et intervient plus tard au cours de l'interaction, après que les premiers électrons aient été arrachés par le champ laser. Ces électrons ont acquis une certaine énergie par chauffage collisionnel (comme décrit précédemment). Suivant leurs énergies, les collisions peuvent conduire à l'excitation du cortège électronique de l'ion cible mais également accroître l'état d'ionisation de l'ion cible. L'ionisation collisionnelle dépend une fois de plus de la fréquence de collision électron-ion ν_{ei} (c'est-à-dire de la densité électronique et de l'énergie cinétique des électrons).

Le taux d'ionisation collisionnelle W_{KT} peut être estimé à partir de la formule empirique de Lotz décrivant les collisions inélastiques par ion. Celle-ci est moyennée sur une distribution Maxwellienne en énergie des électrons, ce qui conduit à [70] :

$$W_{KT} = n_e \frac{a_i q_i}{I_p \sqrt{k_B T_e}} \int_{I_p/k_B T_e}^{\infty} \frac{e^{-x}}{x} dx \quad (1.19)$$

avec n_e la densité électronique en cm^{-3} , I_p le potentiel d'ionisation en eV, k_B la constante de Boltzmann, T_e la température électronique en degré K, a_i une constante empirique égale à $4, 5 \times 10^{-14} eV^2.cm^{-3}$ dans le cas de l'Argon [70] et q_i le nombre d'électrons optiques.

Forces de pression

Durant tout le temps de la présence du champ laser, les collisions permettent un chauffage très efficace de la matière. L'interaction étant restreinte à un petit volume, on peut considérer qu'il n'y a pas de dissipation d'énergie par conduction thermique vers la matière froide environnante comme c'est le cas avec les cibles solides. L'énergie absorbée par l'agrégat reste confinée à son volume, initialement en majeure partie sous forme d'agitation thermique des électrons. Sous l'effet du chauffage ce volume est ensuite soumis à des forces de pression entre particules. Dans le cadre du modèle nanoplasma [7], deux forces de pression contribuent :

- la force de **pression cinétique** associée à l'énergie cinétique des électrons et des ions qui s'entrechoquent. Cette pression s'exprime par :

$$P_{hyd} = n_e k_B T_e + n_i k_B T_i \quad (1.20)$$

avec n_e et T_e la densité et la température électronique, n_i et T_i la densité et la température ionique et k_B la constante de Boltzmann. Généralement, on considère $T_i \ll T_e$ pour des temps d'interaction très courts ($\ll 100 fs$) devant le temps d'établissement de l'équilibre thermodynamique pour lequel $T_i = T_e$. Le transfert de l'énergie des électrons vers les ions se fait par collisions électron-ion. Ce processus d'équilibre thermique s'écrit [71] :

$$\frac{\partial T_i}{\partial t} = \nu_{ei} (T_e - T_i) \quad (1.21)$$

où T_e et T_i sont respectivement les températures électroniques et ioniques et ν_{ei} la fréquence de collision électron-ion. Typiquement, ce mécanisme nécessite environ $100 fs$ pour une densité de $\sim 10^{22} e^{-}.cm^{-3}$ et une température électronique de $200 eV$.

- la force de **pression coulombienne** associée à la répulsion électrostatique des ions entre eux. Cette pression est liée à l'augmentation de la charge d'espace au sein

de l'agrégat. Certains électrons ayant acquis une énergie suffisante ont pu quitter l'agrégat et vaincre la force de rappel du plasma. Ceci crée une accumulation de charges coulombiennes en surface qui induit la répulsion électrostatique des charges entre elles. La pression coulombienne se calcule en faisant le rapport de l'énergie accumulée en surface du conducteur par le volume de l'agrégat et s'écrit :

$$P_{cb}(R) = \frac{1}{2} \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Q^2}{R} \times \frac{1}{V_{ag}} \quad (1.22)$$

$$= \frac{3Q^2}{2(4\pi)^2\epsilon_0 R^4} \quad (1.23)$$

où V_{ag} et R sont le volume et le rayon de l'agrégat et Q la charge accumulée en surface de l'agrégat.

Afin d'étudier la contribution de la force coulombienne, il faut calculer le taux d'électrons quittant l'agrégat au cours du temps. Ce dernier dépend de la forme et de la taille de l'agrégat. Dans le modèle nanoplasma, ce taux est calculé en considérant la géométrie de l'agrégat et l'amplitude du libre parcours moyen λ_e des électrons dans le plasma. Pour tenir compte des effets collisionnels du plasma, on doit admettre que, pour quitter l'agrégat, un électron doit être à une distance inférieure à λ_e de la surface de la sphère. Il doit également posséder une énergie cinétique supérieure à l'énergie potentielle coulombienne à la surface de l'agrégat (force de rappel).

Le taux d'électrons quittant l'agrégat W_{esc} est :

$$W_{esc} = \int_A \int_{E_{min}}^{E_{max}} v f(v) dv dA \quad (1.24)$$

expression dans laquelle $f(v)$ constitue la distribution maxwellienne des vitesses v des électrons, E_{min} est la vitesse minimale d'un électron quittant l'agrégat, E_{max} la vitesse maximale des électrons et A est le volume contenant les électrons susceptibles de quitter la sphère. Ces électrons font partie de l'extrémité chaude de la queue de la distribution. Leur thermalisation nécessitant un temps non nul, l'hypothèse maxwellienne peut surestimer le taux d'électrons quittant le milieu.

L'expression de $f(v)$ est donnée par :

$$f(v) = 4\pi n_e \left(\frac{m_e}{2\pi k_B T_e} \right)^{3/2} v^2 e^{-\frac{m_e v^2}{2k_B T_e}} \quad (1.25)$$

avec, k_B la constante de Boltzmann, T_e la température électronique, m_e la masse des électrons, v leur vitesse et n_e la densité électronique.

Pour simplifier le calcul, Ditmire *et al.* ne considèrent que les électrons contenus dans la portion de sphère d'épaisseur inférieure à λ_e et d'énergie suffisante pour vaincre la force

de rappel. Le calcul du libre parcours moyen s'effectue à partir de la formule de Spitzer [72] :

$$\lambda_e = \frac{(k_B T_e)^2}{4\pi n_e e^4 (Z+1) \ln \Lambda} \quad (1.26)$$

L'énergie potentielle coulombienne à la surface de la sphère s'écrit :

$$E_{cb} = \frac{(Q+1)e^2}{R} \quad (1.27)$$

Au final, le taux d'électrons quittant l'agrégat devient :

$$W_{esc}(s^{-1}) = n_e \frac{2\sqrt{2\pi}}{\sqrt{m_e k_B T_e}} (E_{cb} + k_B T_e) e^{-\left(\frac{E_{cb}}{k_B T_e}\right)} \times \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4r} (12R - \lambda_e^2) & \text{si } \lambda_e < 2R \\ 4R^2 & \text{si } \lambda_e > 2R \end{cases} \quad (1.28)$$

La force coulombienne peut jouer un rôle important dans l'expansion de l'agrégat (principalement pour les agrégats de rayon $R < 50 \text{ \AA}$ [7]). Mais, dès le début de l'expansion, la force hydrodynamique va dominer très vite, c'est une force en r^{-3} par rapport à la force coulombienne qui varie en r^{-4} .

Expansion du plasma

On peut ensuite calculer le taux d'expansion de l'agrégat en considérant la conservation de l'énergie déposée dans une sphère en expansion, de densité uniforme et décroissante :

$$P \times 4\pi r^2 \frac{\partial r}{\partial t} = \frac{\partial E_{cin}}{\partial t} \quad (1.29)$$

avec P la pression résultante issue de la somme des pressions hydrodynamique et coulombienne agissant à la surface de l'agrégat et E_{cin} l'énergie cinétique des particules liée à l'expansion.

Il s'agit ici d'un modèle d'expansion auto-semblable développé par **Haught et Polk** décrivant l'expansion d'un plasma homogène de symétrie sphérique [73]. Les grandeurs dépendent explicitement du temps et après intégration et en remplaçant P par $P_{hyd} + P_{cb}$, on obtient :

$$\frac{\partial^2 r}{\partial t^2} = 5 \frac{P_{hyd} + P_{cb}}{n_i m_i} \frac{1}{r} \quad (1.30)$$

avec m_i la masse des ions.

L'expansion adiabatique de l'agrégat donne lieu à une diminution de la température électronique. En d'autres termes, une augmentation du volume dV de l'agrégat se traduit par une diminution dT_e de la température électronique. La conservation de l'énergie contenue dans le plasma donne :

$$\frac{3}{2}Vn_e dT_e = -PdV \quad (1.31)$$

On considère ici la loi des gaz parfaits avec uniquement la pression cinétique des électrons comme force agissante. Soit $V = (4/3)\pi R^3$ le volume de l'agrégat de rayon R , dans le cas où les collisions électron-électron sont suffisamment fréquentes devant la vitesse d'expansion pour permettre la thermalisation, on peut alors écrire l'équation d'évolution de la température électronique par rapport à la variation du rayon de l'agrégat :

$$\frac{\partial T_e}{\partial t} = -2T_e \frac{1}{R} \frac{\partial R}{\partial t} \quad (1.32)$$

En intégrant cette expression, on obtient la relation entre la température électronique $T_e(t)$ et le rayon $R(t)$ de l'agrégat à l'instant t . En fonction du rayon initial de l'agrégat R_0 , de la température initiale juste après le chauffage de l'agrégat par le champ laser T_{e0} et des collisions, l'expression de la température est :

$$T_e(t) = T_{e0} \left(\frac{R_0}{R(t)} \right)^2 \quad (1.33)$$

La vitesse d'expansion de l'agrégat dépend de son chauffage. Elle peut être estimée à partir de la vitesse acoustique ionique C_s liée à l'énergie cinétique des électrons mais limitée par l'inertie des ions au travers de leur masse. On peut estimer à partir de cette vitesse, le temps nécessaire à l'agrégat pour atteindre une certaine densité.

$$t_{exp} \simeq \frac{R_0}{C_s} \left(\frac{n_0}{n_{fin}} \right)^{1/3} \quad (1.34)$$

avec R_0 et n_0 le rayon et la densité atomique initiaux de l'agrégat et n_{fin} la densité ionique du plasma visée par t_{exp} . En considérant le rayon initial d'un agrégat d'argon de $R_0 = 250 \text{ \AA}$, une densité électronique de $\sim 10^{22} \text{ e}^- . \text{cm}^{-3}$, une ionisation moyenne $Z^* \sim 10$ et une température électronique de 1000 eV , on obtient un temps caractéristique de $\sim 3 \text{ ps}$ pour atteindre une densité finale proche de celle du gaz environnant $\sim 10^{18} \text{ at} . \text{cm}^{-3}$. Ce temps très court implique que la densité reste élevée durant un temps également très court avant l'explosion finale de l'agrégat. Le temps d'interaction du laser avec l'agrégat doit être inférieur au temps caractéristique si l'on veut optimiser l'absorption de l'énergie laser et ainsi chauffer de manière efficace l'agrégat. Pour des raisons équivalentes, l'émission de rayonnement X étant liée à la densité du milieu et à la température, la durée de l'émission doit également être très courte, de l'ordre de grandeur du temps caractéristique t_{exp} .

Les hypothèses intrinsèques du modèle nanoplasma supposent une densité uniforme de l'agrégat. Il faut tout de même souligner qu'au début de l'interaction, le plasma devient très vite sur-critique ($n_e > n_c$) sous l'effet des mécanismes d'ionisation. La pénétration de l'onde laser se limite donc à l'épaisseur de peau δ_s de la même façon que le chauffage

par Bremsstrahlung inverse. Ceci suppose l'existence de gradients thermiques au sein de l'agrégat qui ne sont pas pris en compte par le modèle. Par la suite, l'expansion de l'agrégat conduit à une diminution de la densité électronique liée à l'augmentation de son volume jusqu'à passer en dessous de la densité critique. Dès lors, l'onde laser peut pénétrer uniformément dans tout le plasma et poursuivre l'ionisation et le chauffage du coeur de l'agrégat qui continue son expansion.

La considération des gradients thermiques au sein de l'agrégat constitue une partie des hypothèses formulées par Milchberg *et al.* [9] dans des calculs 1D. Nous verrons plus loin que ces hypothèses conduisent à des temps de chauffage plus longs qui semblent mieux correspondre aux résultats expérimentaux pour lesquels le modèle nanoplasma n'est pas tout à fait fidèle.

1.2 Objectifs et méthode de l'étude

L'objectif principal des travaux de recherche dans lesquels s'inscrit cette thèse est le développement de nouvelles sources de rayonnement X ultra-bref et de haute cadence. L'étude de l'émission X issue d'agrégats de gaz rares formés dans des jets supersoniques très denses présuppose la génération d'une source intéressante en terme de rendement de conversion entre l'énergie du laser et les photons X émis (cf. section 1.1.1) et en terme de durée d'émission de ce rayonnement (cf. section 1.1.3). Notre démarche expérimentale a donc été orientée vers l'analyse et la caractérisation (spectrale et temporelle) du rayonnement X émis par la source en vue d'applications éventuelles dans le domaine de l'ultra-bref, mais également, la compréhension de l'interaction dans le but d'une optimisation éventuelle. Sur un plan plus fondamental, la description du scénario de l'interaction constitue un moteur de cette démarche.

1.2.1 Les sources X laser-agrégats

Comme on vient de le voir précédemment, il existe un grand nombre de modèles plus ou moins élaborés visant à décrire l'interaction laser-agrégats. Le régime intermédiaire entre les cibles solides et gazeuses de cette interaction est encore mal décrit par ces modèles et toutes les observations expérimentales ne sont pas complètement reproduites. Par ailleurs, on a vu au début de ce chapitre (section 1.1.1) que certaines données expérimentales étaient encore contradictoires (influence de la polarisation du laser, dépendance avec l'énergie du laser...). Il en va de même pour les interprétations théoriques (énergie des ions, effet de la polarisation, états de charges, etc...).

Plus particulièrement, dans le domaine des rayonnements X qui nous intéresse (autour de 3 keV), on peut dresser un bilan rapide des principaux résultats. Ainsi, ce rayonnement semble présenter une émission isotrope augmentant en loi de puissance avec l'énergie

contenue dans l'impulsion laser. Le rendement par rapport à cette énergie apparaît être de l'ordre du % par stéradian. L'émission du rayonnement est issue d'ions possédant des états de charge très élevés (jusqu'à de l'Ar¹⁶⁺ dans des agrégats d'Argon). Il semble qu'il y ait un optimum de cette émission avec la durée de l'impulsion laser et que celui-ci dépende de la taille des agrégats.

Sur le plan de la modélisation, les codes visant à interpréter les mécanismes de l'interaction ne sont pas encore rendus au stade de la simulation de spectres puisqu'ils ne parviennent pas, pour l'heure, à expliquer les états de charge observés. Pourtant, l'un d'entre eux (le modèle nanoplasma) répond assez bien à la dynamique de l'interaction. Notamment, il est à même de reproduire l'existence d'un maximum dans l'absorption d'énergie par l'agrégat (celui-ci étant corrélé avec l'émission dans le domaine des X) et de sa dépendance avec le rayon moyen des agrégats en considérant une résonance en densité électronique au sein de l'agrégat, lorsque celle-ci atteint 3 fois la densité critique.

Néanmoins, il reste certaines questions ouvertes concernant l'émission X :

- la durée du rayonnement n'est pas encore bien définie,
- la dépendance de l'émission avec l'énergie du laser reste à préciser,
- l'effet de la polarisation de l'impulsion sur l'émission n'est pas tout à fait clair.

Le travail présenté ici se propose donc de répondre à certaines de ces questions et ce par l'analyse du rayonnement X émis.

1.2.2 Le rayonnement X : un témoin de l'interaction

Le rayonnement X est couramment utilisé dans les applications comme sonde de la matière :

- la gamme de longueur d'onde de ce rayonnement permet une bonne pénétration des photons dans les milieux denses,
- l'absorption des rayons X par le milieu peut donner lieu à la connaissance de sa composition chimique,
- la diffraction des photons X permet la caractérisation structurale de la matière.

Mais également, l'étude de l'émission de rayonnement X par un milieu dense et chaud renseigne à la fois sur la nature du milieu émetteur et sur les paramètres fondamentaux (T_e , n_e) au moment de l'émission. Par rapport aux particules éventuellement émises par le milieu, comme les ions ou les électrons, les photons ne subissent pas d'altération de leur propriétés initiales liés à leur temps de vol avant détection. C'est donc un témoin des conditions dans lesquelles était plongé la particule lors de l'émission du rayonnement ; l'analyse des photons X émis au cours du temps renseigne ainsi directement sur la dynamique de l'interaction.

Les transitions électroniques

Le rayonnement X provient de l'émission de photons lors de la désexcitation d'un niveau atomique vers un niveau d'énergie moindre. Lors de ce processus, le cortège électronique se réorganise d'un niveau d'énergie donnée à un niveau d'énergie plus faible. Cette transition en énergie peut s'accompagner de l'émission de rayonnement. On distingue différents types de transitions en fonction des états initiaux et finaux :

- les transitions entre états **lié-lié** (figure 1.6a), processus au cours duquel un atome possédant une lacune en couche interne (couche K par exemple) émet un photon par désexcitation radiative depuis un niveau d'énergie supérieure.
- les transitions entre états **libre-lié** (figure 1.6b), processus de capture d'un électron au voisinage d'un ion ; lors de la recombinaison sur un état lié de l'ion, l'énergie cinétique de l'électron est convertie en photon d'énergie égale à la différence d'énergie entre le niveau de l'état libre et le niveau de l'état lié.
- les transitions entre états **libre-libre** (figure 1.6c), au voisinage d'un ion l'électron est dévié par le champ créé par la charge ; il s'en suit l'émission d'un rayonnement associé au ralentissement de l'électron dans ce champ : c'est le Bremsstrahlung ou rayonnement de freinage.

Dans le premier cas, ce type de transition est en compétition avec un autre processus, l'effet Auger pour lequel, l'électron cède toute son énergie à un électron voisin du cortège qui est alors éjecté.

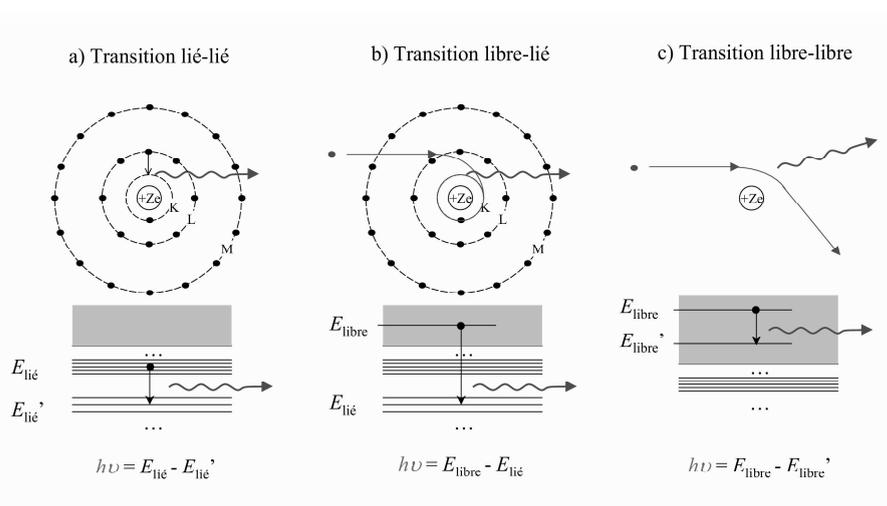


Fig. 1.6: Représentation schématique des différents types de transitions donnant lieu à l'émission de rayonnement X. L'énergie des photons $h\nu$ est égale à la différence des énergies entre les niveaux initiaux et finaux.

Les spectres de photons associés

Pour chaque type de transitions étudiées précédemment on a émission de photons. L'énergie des photons émis est fonction des niveaux atomiques initiaux et finaux de la transition. La forme des spectres en énergie de ces photons est associée à la structure des états électroniques. Le spectre émis est caractéristique du type de transition.

Dans le cas des transitions libre-libre, les états initiaux et finaux appartiennent au continuum d'énergie, le rayonnement X correspondant ne présente pas de structure particulière. Il s'agit d'un spectre continu en énergie, d'intensité linéairement décroissante en échelle logarithmique. La pente du spectre est dans ce cas liée à l'énergie moyenne des électrons.

Dans les transitions de type libre-lié, l'état final de la transition appartient à une couche du cortège d'un ion. Comme précédemment, l'état de départ appartient au continuum d'énergie. Les photons X associés ont alors un spectre présentant des discontinuités en énergie appelées "flancs". Ces flancs raides sont la conséquence de la différence d'énergie de liaison d'un électron en fonction de la couche à laquelle il appartient.

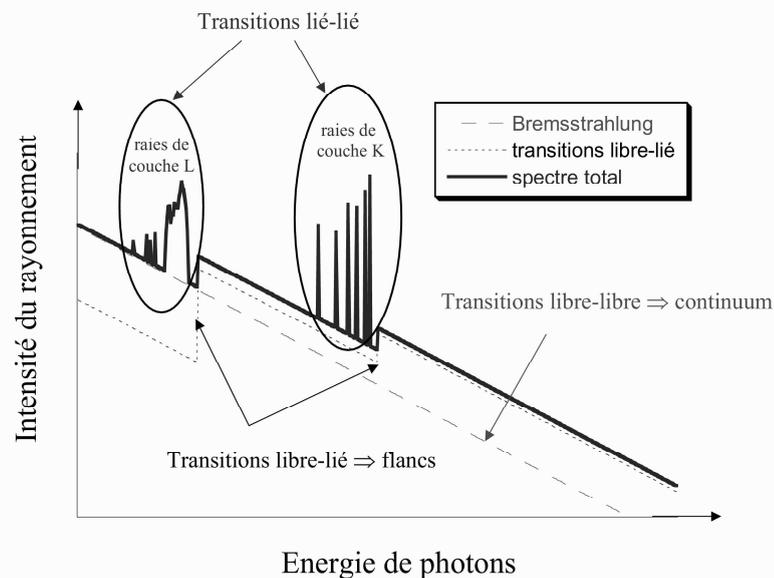


Fig. 1.7: Allure de spectre de rayonnement X (en échelle logarithmique) associé au différents types de transitions. Le spectre total (en traits pleins) est la superposition des photons issus des transitions libre-libre (continuum en tirets), libre-lié (spectre de flancs en points), lié-lié (raies verticales).

Pour les transitions dites lié-lié, les états initiaux et finaux appartiennent aux couches électroniques d'un même ion. Les niveaux d'énergie de l'ion étant discrétisés, le spectre sera

un spectre discret de raies. Ces raies sont caractéristiques de l'ion parent (en particulier de son état d'ionisation) et des conditions dans lesquelles se trouve cet ion (champ électrique environnant, vitesse de l'ion...).

Le spectre final résulte de l'addition du rayonnement issu des différents types de transition (voir figure 1.7).

Au sein du plasma, ces différentes transitions ont lieu durant l'interaction du laser avec le milieu ainsi que durant la relaxation et l'expansion du plasma. Le spectre final (intensités relatives, largeurs de raies, rayonnement de freinage, ...) peut renseigner sur les différents paramètres de la population électronique dans le milieu, des états de charge des ions présents et éventuellement de leur température. L'ensemble de la structure du spectre constitué des raies et des flancs dépend du numéro atomique de l'ion de recombinaison. L'allure générale du spectre est la même avec des positions relatives des flancs et des raies qui varient avec Z .

Le rayonnement X constitue une source très intéressante d'informations en provenance du coeur même du plasma. C'est une sonde non intrusive in situ du milieu. La résolution temporelle du spectre de rayonnement X apporterait une connaissance cruciale sur l'évolution des paramètres fondamentaux d'un plasma (densités, températures et populations des ions).

Intérêt pour l'étude de la dynamique de l'interaction

Notre intérêt pour le rayonnement X est double : d'une part pour le développement de nouvelles sources ultra-brèves et de haute cadence basées sur les rayons X et d'autre part pour l'étude des mécanismes fondamentaux de l'interaction laser-agrégats.

Si l'on veut étudier l'évolution du plasma et de ses paramètres afin de mieux comprendre les mécanismes mis en jeu lors de l'interaction, il faut pouvoir observer ces paramètres par une mesure directe. Une technique permettant la mesure des paramètres du plasma consiste à enregistrer au moyen d'un spectromètre à temps de vol l'énergie des électrons ou des ions issus du plasma. Par l'adjonction d'un potentiel retardateur variable sur les électrodes du temps de vol, on peut discriminer l'énergie et la nature des particules chargées émises. Cette mesure indirecte est limitée par le temps de vol des particules au cours duquel ces dernières ont pu subir des recombinaisons (pour les ions par exemple).

Pour le rayonnement X, la densité de coupure n_c est très élevée, bien supérieure à celles rencontrées dans nos conditions. Le spectre de rayons X collecté est donc issu de tout le plasma et notamment du coeur, où la densité électronique est la plus importante. En outre, l'émission de rayonnement X se fait principalement lorsque la densité du milieu est suffisamment élevée. Aux premiers instants de l'interaction, lorsque le champ laser est présent, l'agrégat est suffisamment dense pour absorber efficacement l'énergie laser et pour permettre la création de lacunes en couches internes avant l'explosion. On s'attend à ce

que la durée d'un tel rayonnement soit relativement courte, de l'ordre du temps caractéristique d'expansion de l'agrégat ($\sim 1 - 2 ps$). Ce type de rayonnement apporte donc des informations directes sur la dynamique de l'interaction aux tous premiers instants. C'est pourquoi, on s'attache à caractériser ce rayonnement qui constitue pour nous le témoin des conditions régnant au coeur du plasma.

1.2.3 Nécessité d'approfondir les connaissances

L'approfondissement des connaissances expérimentales de la réponse d'un jet dense d'agrégats à l'excitation d'une impulsion laser ultra-intense permettrait de valider les résultats expérimentaux déjà obtenus par le passé et de confirmer ou d'infirmer les prédictions des modèles développés. La détermination complète des paramètres de l'interaction constitue pour les théoriciens un support à la valeur des paramètres d'entrée des simulations futures.

Caractérisation du milieu

Un critère très important pour l'interprétation des résultats expérimentaux est la bonne connaissance de la taille, la distribution et la densité des agrégats utilisés dans les expériences. Suivant la géométrie des expériences (présence ou absence d'écorceurs, dimensionnement du jet de gaz et de la buse), la réponse du milieu à une impulsion laser peut être affectée. En l'absence d'écorceurs, on est en présence d'un jet très dense. L'impulsion laser interagit alors avec l'ensemble des particules présentes dans le jet (à l'état gazeux et agrégé). Dans ce cas, la propagation du faisceau peut éventuellement être altérée.

Dans une géométrie avec écorceurs, une portion du jet de gaz est prélevée de manière à réduire la densité de gaz et le nombre d'agrégats présents au foyer de l'impulsion. Si le diamètre de l'écorceur est suffisamment faible, la statistique peut entraîner la présence d'un seul agrégat au foyer laser pendant l'interaction. Ces deux schémas d'interaction utilisés dans les expériences nécessitent une caractérisation complète du milieu en terme de densité, taille et distribution des agrégats afin d'étudier l'influence éventuelle de ces paramètres sur la propagation de l'impulsion laser.

Questions ouvertes

L'ensemble des expériences et des simulations menées par le passé ne permet pas, pour l'heure, de définir avec exactitude le comportement d'un agrégat dans un champ laser ultra-bref et ultra-intense. Nombre de questions sont encore ouvertes. L'influence de la polarisation du laser sur l'émission du rayonnement dans la gamme des X ou des XUV n'est, par exemple, pas encore bien définie. L'interprétation théorique de ce comportement ne peut donc être validée dans ce cas, en particulier sur les mécanismes d'ionisation. S'il

s'agit plutôt d'une ionisation par le champ laser comme le présuppose le modèle CEMM, on aura *a priori* une dépendance avec la polarisation du laser (ces mécanismes dépendent de l'état de polarisation de l'onde). A l'inverse, s'il s'agit principalement d'une ionisation collisionnelle comme dans le modèle nanoplasma, on aura pas ou peu de dépendance avec la polarisation mais dans ce cas on a alors un effet lié à la géométrie de l'agrégat. En outre, les idées invoquées pour interpréter l'obtention d'un maximum de rayonnement X pour une durée laser donnée divergent quant à la nature de la résonance ayant lieu dans l'agrégat (résonance à $3 n_c$ ou à n_c suivant les modèles). Ainsi, le modèle nanoplasma ne reproduit pas bien l'intervalle de temps pendant lequel on obtient une émission maximale de rayonnement. La différence est attribuée à une indétermination de la distribution en taille des agrégats dans le jet [30]. Le rôle exact joué par ce paramètre reste à confirmer.

Également, il est important de connaître la dynamique de l'agrégat : l'expansion est-elle dominée par l'explosion coulombienne ou bien par la pression hydrodynamique, ou les deux ? A quel instant a lieu l'émission du rayonnement X et quelle est sa durée ?

Afin de se placer dans les conditions pouvant être simulées par les supports numériques, il convient de déterminer la réponse d'un seul agrégat à une impulsion laser. Une telle étude nécessite de découpler les mesures expérimentales de l'intégration spatiale sur tout le volume d'interaction. Il faut pour cela posséder, d'une part, une bonne connaissance du milieu et, d'autre part, s'affranchir des effets liés à la variation de l'intensité au sein du volume d'interaction.

En vue d'une modélisation complète de l'interaction laser-agrégats, il s'avère important d'étudier expérimentalement l'influence des paramètres fondamentaux sur le couplage d'un laser avec un agrégat donné. Il faut pour cela définir une méthode d'investigation capable d'apporter des éclaircissements sur les résultats déjà obtenus et éventuellement permettant de fournir de nouvelles informations sur la dynamique de l'interaction.

1.2.4 Méthode

Dans ce travail de thèse, nous avons travaillé à partir d'agrégats d'Argon. Nous avons opté pour ce gaz rare car il possède premièrement de bonnes propriétés d'agrégation. Deuxièmement, son faible numéro atomique permet d'obtenir une émission du rayonnement de couche K (autour de 3 keV) pour laquelle les spectres de raies sont bien définis et plus lisibles que ceux des couches plus élevées (voir figure 1.7). Les spectres sont alors plus facilement exploitables si l'on veut retirer des informations (T_e , n_e , etc...). Troisièmement, l'interaction laser-agrégats d'Argon a déjà été étudiée ce qui constitue pour nous une base de comparaisons possibles.

Le rayonnement X émis peut aussi être comparé avec les résultats obtenus avec des cibles solides dans lesquels la gamme de longueurs d'ondes étudiées est voisine. Ainsi,

l'équipe de A. Rousse *et al.* a étudié l'émission de type K_α d'une cible d'Aluminium dont le rayonnement se situe autour de $1,5 \text{ keV}$ [1]. Ils ont obtenu $2,5 \times 10^7 \text{ photons/sr/tir}$ émis par la raie K_α en irradiant la cible avec des impulsions de 100 fs de durée à mi-hauteur et une intensité crête de $3 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$. L'interaction avec des cibles d'Aluminium, de fer ($\sim 6,4 \text{ keV}$) ou de silicium ($\sim 1,7 \text{ keV}$) a été observée par Bastiani *et al.* [74]. Ils ont analysé les mécanismes d'absorption de l'énergie laser lors de l'interaction d'un laser sub-picoseconde avec une cible solide.

Ce travail vise à répondre aux questions soulevées précédemment. Dans ce but et afin d'étudier et de caractériser le rayonnement X émis par la source, nous avons disposé un ensemble de diagnostics (spectromètres, imageries, ...) autour du jet d'agrégats irradiés par des impulsions laser.

Les paramètres du jet (densité totale d'atomes, densité et taille moyenne des agrégats) ont fait l'objet d'une étude approfondie.

Puis, nous avons étudié le comportement de l'émission de rayons X avec les différents paramètres du jet (pression, distance de focalisation dans le jet). Nous avons alors constaté qu'il pouvait exister d'éventuels problèmes de propagation liés à la forte densité du jet (défocalisation liée au gradient radial de densité électronique), phénomène déjà observé dans des jets de gaz [75]. Ensuite, nous nous sommes attachés à déterminer la réponse des agrégats (toujours en terme d'émission X) en fonction des paramètres de l'impulsion laser (durée, énergie, contraste). Nous avons pu ainsi reproduire un certain nombre de résultats expérimentaux. Nous sommes également parvenu à déterminer le seuil en intensité de destruction des agrégats. Nous avons ensuite réalisé des expériences visant plus particulièrement à sonder la dynamique de l'absorption de l'énergie laser par les agrégats. L'étude de l'énergie laser déposée dans les agrégats nous a permis de reconstruire les spectres au moyen de simulations de la dynamique du dépôt. Nous avons enfin défini un axe d'étude visant à compléter les connaissances acquises et les observations faites en vue de l'optimisation de la source en terme d'intensité et de durée d'émission.

Tout ceci a pour but de vérifier la validité des modèles proposés et de déterminer des paramètres d'entrée pour la simulation de la réponse d'un agrégat unique. Cette étude constitue un point de départ dans l'élaboration de codes visant à simuler l'interaction sur le plan fondamental.

Caractérisation des agrégats

Chapitre 2

Caractérisation des agrégats

La compréhension des phénomènes impliqués dans l'interaction laser-agrégats passe par la connaissance de la nature de la cible. Les agrégats utilisés dans nos expériences sont produits au cours de la détente d'un gaz au travers d'une tuyère. Les jets d'agrégats de gaz rares sont étudiés depuis de nombreuses années déjà [76]. Leur étude a suscité un intérêt plus particulier en chimie pour la compréhension de la dynamique moléculaire et des effets collectifs dans les systèmes à basse température. De nombreuses techniques ont été expérimentées afin de les caractériser comme :

1. l'ionisation par impact d'électrons [77],
2. la détection de fragments excités par laser au moyen d'un spectromètre à temps de vol [78],
3. la diffraction d'atomes d'hélium [79]

Plus récemment, T. Ditmire *et al.* ont utilisé une technique de diffusion Rayleigh pour étudier l'influence des différents paramètres du jet sur la génération des agrégats [80], [81]. Plusieurs études ont également été menées par O. F. Hagenau sur la formation des agrégats dans les jets supersoniques [19], [82], [83]. Elles ont permis d'extraire des lois empiriques sur la formation des agrégats.

Au cours de notre étude, nous disposons de deux types de buses différentes (buse de Laval et buse conique). On a vu au chapitre 1 que la plupart des expériences en interaction laser-agrégats ont été réalisées avec des écrémeurs. Dans notre cas, nous avons choisi de nous placer dans une géométrie où l'on focalise le laser directement à la sortie du jet, où la densité d'agrégats est *a priori* la plus élevée. Mais afin de mieux contrôler les effets liés aux paramètres importants de la cible que sont la taille des agrégats, leur densité ainsi que leur distribution spatiale dans la cible, il est important de caractériser ces différents paramètres pour chacune des buses utilisées. Nous avons pour cela apporté un soin tout particulier à l'étude des phénomènes d'agrégation dans le jet de gaz. Dans ce chapitre, nous allons tout d'abord présenter les techniques mises au point dans le but de caractériser

la cible d'agrégats. Nous analyserons ensuite les simulations à une et deux dimensions de la condensation des agrégats dans le jet de gaz. Puis, nous commenterons les différents résultats obtenus par les mesures et par simulations. Nous discuterons enfin des paramètres expérimentaux retenus pour notre étude de l'interaction laser-agrégats.

2.1 Production des agrégats

Les agrégats étudiés sont des agrégats de Van der Waals constitués d'atomes d'argon. Ils sont produits au cours de la détente adiabatique d'un gaz d'argon à haute pression à travers une tuyère supersonique. Une électrovanne pulsée permet de contrôler l'ouverture et la fermeture du jet de gaz. La pression en amont est mesurée par une jauge de précision (de type baratron) et peut être ajustée au moyen d'un détendeur entre 5 et 70 *bars*. L'ensemble du système (buse-électrovanne) est placé au centre de l'enceinte expérimentale à la température ambiante ($T_0 = 293\text{ K}$) sur un support motorisé permettant un déplacement du jet dans les 3 axes de l'espace. Les deux types de buses utilisées (Laval et conique) peuvent être assimilées à des tuyères constituées d'une première partie où la section diminue et dans laquelle la vitesse augmente jusqu'à atteindre la vitesse sonore (le convergent) et d'une seconde partie où la section augmente et dans laquelle la vitesse devient supersonique (le divergent). Dans le cas de la buse de Laval, le convergent est de forme conique avec une section diminuant régulièrement jusqu'au col où le diamètre est $\Phi_w = 820 \pm 20\ \mu\text{m}$ (figure 2.1). Le divergent est de profil parabolique et la section en sortie de la buse est $\Phi_{out} = 2,40 \pm 0,05\ \text{mm}$ située à une distance $L = 13,0 \pm 0,1\ \text{mm}$ du col. La buse conique est constituée pour sa part d'un convergent et d'un divergent coniques avec un diamètre minimal au col $\Phi_w = 620 \pm 20\ \mu\text{m}$ (figure 2.1). La section de sortie est $\Phi_{out} = 3,80 \pm 0,05\ \text{mm}$ à une distance de $L = 20,2 \pm 0,1\ \text{mm}$ du col. Ces deux buses sont de symétrie axiale. On s'attend donc à ce que le jet de gaz présente une symétrie de révolution autour de l'axe de la buse. Le temps d'établissement de la pression en sortie de la buse est d'environ 2 *ms* liés au temps d'ouverture de l'électrovanne ($\simeq 500\ \mu\text{s}$), au temps d'établissement du régime stationnaire dans le jet ($\simeq 600\ \mu\text{s}$) et au temps de parcours nécessaire au gaz pour atteindre la sortie de la buse ($\simeq 500\ \mu\text{s}$ à la température ambiante pour une buse de Laval).

Les rayons X qui nous intéressent sont de faible énergie (couche K de l'argon autour de 3 *keV*), ils sont absorbés sur une faible distance parcourue dans l'air ($\sim 8\ \text{cm}$). De plus, la propagation du faisceau laser est altérée par la présence de l'air ambiant avant d'atteindre son foyer. C'est pourquoi l'enceinte expérimentale est placée sous vide. Toutefois, le jet de gaz permettant la production d'agrégats propulse une quantité importante de matière dans l'enceinte expérimentale. Le débit du pompage de l'enceinte ne suffit pas à palier à la remontée en pression dans l'enceinte si l'électrovanne est constamment ouverte. Le temps

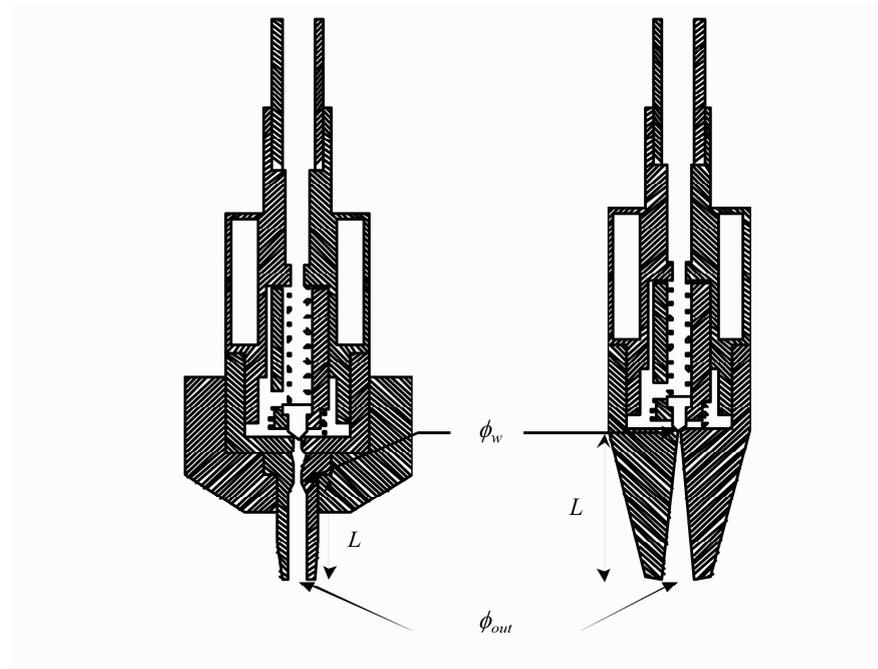


Fig. 2.1: *Vue en coupe des deux types de buses étudiés : Buse de Laval à gauche et buse conique à droite*

d'ouverture du jet ne peut être supérieure à 50 *ms* chaque seconde avec une pression en amont de la buse de 40 *bars* si l'on veut pouvoir maintenir un vide suffisant dans l'enceinte. Nous avons réalisé toutes nos expériences avec une durée d'ouverture de 20 *ms* toutes les secondes afin de conserver une marge de sécurité sur le pompage. Ceci nous donne pour une pression en amont de 60 *bars*, une pression moyenne dans l'enceinte de quelques 10^{-2} *mbars*. L'interaction est contrôlée par le temps d'ouverture du jet. Ceci laisse une plage de 20 tirs laser pouvant interagir avec le jet durant le temps d'ouverture de l'électrovanne chaque seconde. La fréquence de répétition de l'interaction est donc limitée dans ce cas à 20 *Hz*.

2.2 Caractérisation d'agrégats de gaz rares

Les agrégats de gaz rares sont constitués par l'assemblage d'atomes liés entre eux par des forces de faible intensité : les forces de Van der Waals. A température ambiante, ces agrégats sont détruits par la simple énergie d'agitation thermique. Ils présentent une structure cubique face centrée dès lors que le nombre d'atomes les constituant est supérieur à 1000. Dans ce cas, le paramètre de maille est de $a = 5,34 \pm 0,01$ Å [76].

Le rayon R_{ag} (Å) d'un agrégat peut s'exprimer en fonction du nombre $N_{at/ag}$ d'atomes le constituant. Et dans le cas de l'Argon, on obtient :

$$R_{ag}(\text{\AA}) \simeq \sqrt[3]{9N_{at/ag}} \Leftrightarrow N_{at/ag}(R_{ag}) \simeq \frac{R_{ag}^3}{9} \quad (2.1)$$

Avant le franchissement du col de la buse, les atomes ne sont pas agrégés. Lors de la détente dans le divergent, les atomes du jet subissent un refroidissement. Sous l'effet de l'abaissement de la température (conversion de l'énergie d'agitation thermique en énergie cinétique dirigée), les atomes ou les molécules se condensent de façon progressive et partielle entre eux pour former des agrégats. Cette agrégation a lieu pendant l'écoulement et ne se fait pas de façon instantanée *a priori*. Dans le jet peuvent coexister à la fois des atomes non agrégés et des agrégats d'atomes avec des proportions variables suivant la distance au col de la buse et la distance à l'axe de symétrie du jet. On se propose au cours de ce chapitre, de déterminer les différentes grandeurs permettant de caractériser notre jet.

On décrit le mélange par un système stationnaire à deux états. Il peut être défini en chaque point de l'espace (repéré par le vecteur \vec{r}) par les paramètres suivants :

- la densité atomique totale $n_{tot}(\vec{r})$ (comprenant tous les atomes à la fois à l'état gazeux et à l'état agrégé),
- le taux de condensation $\eta(\vec{r})$ (fraction d'atomes à l'état condensé),
- la fonction de distribution $f(R_{ag}, \vec{r})$ des agrégats par rapport à leurs rayons respectifs R_{ag} ,
- la densité totale d'agrégats dans le jet $n_{ag}(\vec{r})$,
- le nombre moyen d'atomes par agrégat $N_{at/ag}$.

Le phénomène de formation des agrégats peut être décrit par une approche simple en considérant un modèle basé sur la méthode des moments. Dans ce modèle, la fonction de distribution des agrégats $f(R_{ag}, \vec{r}, t)$ est représentée par ses moments Ω_n :

$$\rho\Omega_n = \int_0^\infty f(R_{ag}, \vec{r}, t) R_{ag}^n dR_{ag}, n = 0, 1, 2, \dots \quad (2.2)$$

où ρ est la densité du gaz. Ω_0 constitue l'intensité de la distribution, Ω_1 représente l'espérance mathématique (la valeur moyenne), Ω_2 correspond à la variance (largeur de la distribution en taille des agrégats), etc...

On peut relier la densité totale d'atomes $n_{tot}(\vec{r})$ à la densité d'atome agrégés $n_{ag}(\vec{r}) \times N_{at/ag}$ par le taux de condensation :

$$\eta(\vec{r}) = \frac{n_{ag}(\vec{r}) \times N_{at/ag}}{n_{tot}(\vec{r})} \quad (2.3)$$

La définition du jet nécessite la connaissance des quatre paramètres : $N_{at/ag}$, R_{ag} , $n_{tot}(\vec{r})$ et $\eta(\vec{r})$. Toutefois, la mesure de seulement trois d'entre eux suffit à décrire le système entièrement. En effet, $N_{at/ag}$ et R_{ag} sont liés par l'équation 2.1. Dans ces conditions, le jet

peut être défini par un ensemble de 3 paramètres : $n_{tot}(\vec{r})$, $\eta(\vec{r})$ et $N_{at/ag}$ ou $n_{tot}(\vec{r})$, R_{ag} et $\eta(\vec{r})$.

Définissons les axes de référence : \mathbf{h} est la hauteur par rapport à la sortie de la buse, \mathbf{z} la distance sur l'axe de propagation laser par rapport à l'axe de symétrie du jet et \mathbf{x} la distance sur le rayon du jet (voir figure 2.2).

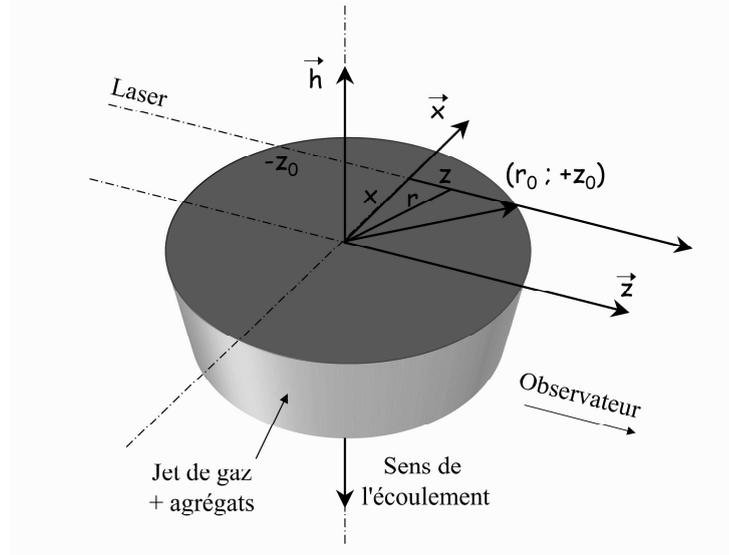


Fig. 2.2: Définition des axes du jet : \mathbf{h} est la hauteur par rapport à la sortie de la buse, \mathbf{z} la distance sur l'axe de propagation laser par rapport à l'axe de symétrie du jet et \mathbf{x} la distance sur le rayon du jet.

L'étude des jets supersoniques par O. Hagena a permis de dégager un paramètre empirique appelé paramètre d'Hagena Γ^* dans le but d'estimer directement la taille des agrégats [19], [82], [83]. Ce paramètre s'estime à partir de la pression p_0 (en *mbars*) et de la température T (en *K*) en amont de la buse, de l'angle α du divergent et du diamètre au col d (en μm) de la buse et d'une constante k dépendant de l'espèce atomique ou moléculaire constituant les agrégats ($k = 1660$ pour l'Argon) de sorte que :

$$\Gamma^* = k \frac{\left(\frac{0.74d}{\tan \alpha}\right)^{0.85} \times p_0}{T^{2.29}} \quad (2.4)$$

Les études ont montrées que la condensation débute quand ce paramètre est supérieur à 1000 et que les gros agrégats ($\geq 10^4$ atomes par agrégat) sont majoritaires lorsque $\Gamma^* > 5 \times 10^4$. Dans le cas des atomes de gaz rare de Z élevé, le paramètre k est d'autant plus grand que Z est grand. Cette formule empirique initialement établie par des mesures avec spectromètre de masse, a été ensuite confirmée par d'autres techniques telles que la diffraction d'électrons [76] ou encore la diffusion d'atomes d'hélium [84]. Le nombre moyen d'atomes par agrégat $N_{at/ag}$ est alors donné par :

$$N_{at/ag} = 33 \times \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{2.35} \quad (2.5)$$

Cette formule a été validée expérimentalement pour des valeurs de $350 \leq \Gamma^* \leq 10^4$. Ceci correspond à des tailles moyennes d'agrégats contenant 10^4 atomes, soit un rayon maximal de $\sim 50 \text{ \AA}$.

Dans leurs expériences avec des jets d'agrégats, O. Hagena *et al.* ont employé une géométrie particulière nécessitant l'ajout d'écorseurs (skimmers) placés loin du jet afin de limiter la densité de particules présentes dans la zone d'étude (voir figure 1.3). Des résultats similaires ont été obtenus avec des jets plus denses ne présentant pas d'écorseurs [80].

Cette méthode empirique de calcul est très pratique et très rapide. Toutefois, elle ne semble pas être adaptée à la dimension des agrégats présents dans notre jet. Si l'on estime dans notre cas le paramètre Γ^* , on obtient la valeur de 2×10^5 pour la buse conique (pour une pression en amont de 40 *bars* à 300 *K*) ce qui tend à montrer que nos agrégats possèdent des rayons supérieurs à 100 \AA , dans ce cas l'équation 2.5 sort de son domaine de validité. De plus ce calcul ne renseigne pas non plus sur la répartition spatiale des agrégats dans le jet. Aucune information sur leur densité et leur distribution en taille n'est accessible par ce biais. Il s'avère nécessaire dans notre géométrie d'interaction de déterminer dans un premier temps le profil de la densité d'atome dans le jet de gaz.

2.3 Mesures par interférométrie Mach-Zehnder

Pour mesurer la densité d'atomes neutres $n_{tot}(\vec{r})$ contenus dans le jet de gaz, nous avons mis en place un diagnostic d'interférométrie Mach-Zehnder. Il s'agit d'une technique basée sur une mesure optique utilisant les propriétés de variation de l'indice de réfraction d'un jet de gaz avec la densité de particules. Les mesures de densité de gaz ont été effectuées dans la salle d'expérience du laboratoire LULI (Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses de l'École Polytechnique) dédiée à la caractérisation des jets de gaz.

2.3.1 Description de la méthode

Suivant le schéma de la figure 2.3, dans l'interféromètre de Mach-Zehnder, le faisceau sonde est de longueur d'onde $\lambda_0 = 532,5 \text{ nm}$ et provient d'un laser vert continu à He-Ne dont le diamètre a été agrandi à 1 *cm*. Une lame semi-réfléchissante sépare en deux bras le faisceau laser incident. L'un des deux bras traverse le jet de gaz perpendiculairement à son axe de symétrie, l'autre servant de référence se propage parallèlement dans le vide. Une seconde lame permet de recombinaison des deux faisceaux et de les faire interférer. Une lentille image le plan du jet de gaz sur le capteur d'une caméra CCD qui collecte l'interférogramme.

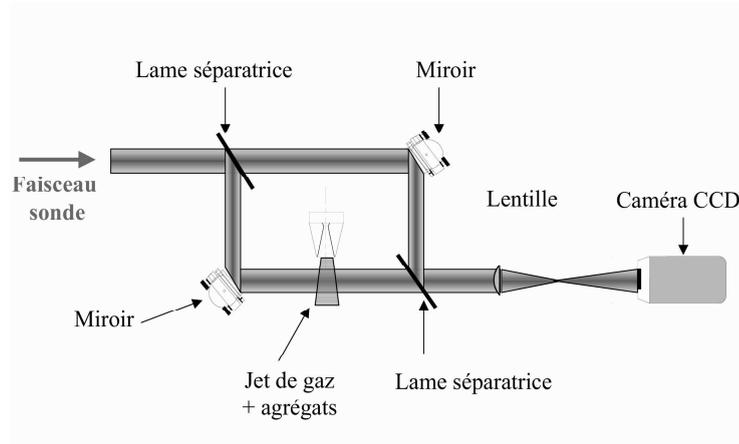


Fig. 2.3: Schéma de principe de la mesure par interférométrie Mach-Zehnder

Lors de la traversée du jet de gaz, le faisceau laser subit un déphasage proportionnel à l'intégrale de l'indice optique le long du chemin optique. La variation du déphasage induit par le gaz le long de l'axe de propagation du faisceau \vec{z} en un point x sur l'axe \vec{x} par rapport au centre du jet (voir figure 2.2) s'écrit :

$$\delta\varphi(x) = \frac{2\pi}{\lambda_0} \int_{-z_0}^{z_0} (n_{opt}(r) - n_0) dz \quad (2.6)$$

où, $n_{opt}(r)$ est l'indice du gaz au rayon r par rapport à l'axe de symétrie du jet et n_0 l'indice du milieu environnant le jet. Ici, le jet est placé dans une enceinte à vide et $n_0 \equiv 1$. En coordonnées cylindriques, on peut écrire $r = \sqrt{x^2 + z^2}$ et l'expression du déphasage devient :

$$\delta\varphi(x) = \frac{4\pi}{\lambda_0} \int_0^{r_0} \frac{(n_{opt}(r) - 1)}{(r^2 - x^2)^{1/2}} r dr \quad (2.7)$$

Au moyen de la transformation d'Abel [85] et du fait de la symétrie axiale du jet, on relie la distribution d'indice intégrée suivant l'axe x à la distribution radiale suivant la coordonnée r :

$$\frac{4\pi(n_{opt}(r) - 1)}{\lambda_0} = -\frac{1}{\pi} \int_r^{r_0} \frac{\delta\varphi(x)}{(x^2 - r^2)^{1/2}} dx \quad (2.8)$$

A partir de la valeur discrétisée de la phase $\delta\varphi_k$ le long de l'axe x et obtenue sur l'image collectée par la CCD pour n valeurs équidistantes $x_k = kr_0/n$ ($k = 0, n-1$, n pouvant correspondre aux pixels de la CCD par exemple), on en déduit la valeur de l'indice de réfraction correspondant aux rayons $r_j = jr_0/n$ ($j=0,1,\dots,n-1$) dans le jet par :

$$n_j - 1 = \frac{\lambda_0}{2\pi r_0} \sum_k a_{jk} \varphi_k \quad (2.9)$$

où a_{jk} sont des coefficients tabulés [85].

Étant donné que la longueur d'onde du laser He-Ne est suffisamment éloignée d'une résonance associée à la structure de l'agrégat, on peut considérer que l'indice optique du jet de gaz $n_{opt}(\vec{r})$ est simplement relié à la polarisabilité totale des atomes d'Argon qu'ils soient sous forme agrégée ou non. Finalement, la densité totale d'atomes neutres n_{tot} contenus dans le jet de gaz est donnée par la relation :

$$n_{opt}^2 - 1 = \beta n_{tot} \quad (2.10)$$

où $\beta = 2.10 \times 10^{-23} \text{ cm}^{-3}$ est la constante de Gladstone-Dale de l'argon [86], reliée à la polarisabilité atomique de l'Argon.

La figure 2.4 représente un exemple de résultats (interférogramme et profil de densité associé) obtenus avec l'interféromètre de Mach-Zehnder en sortie de buse pour une pression en amont du jet de 60 bars.

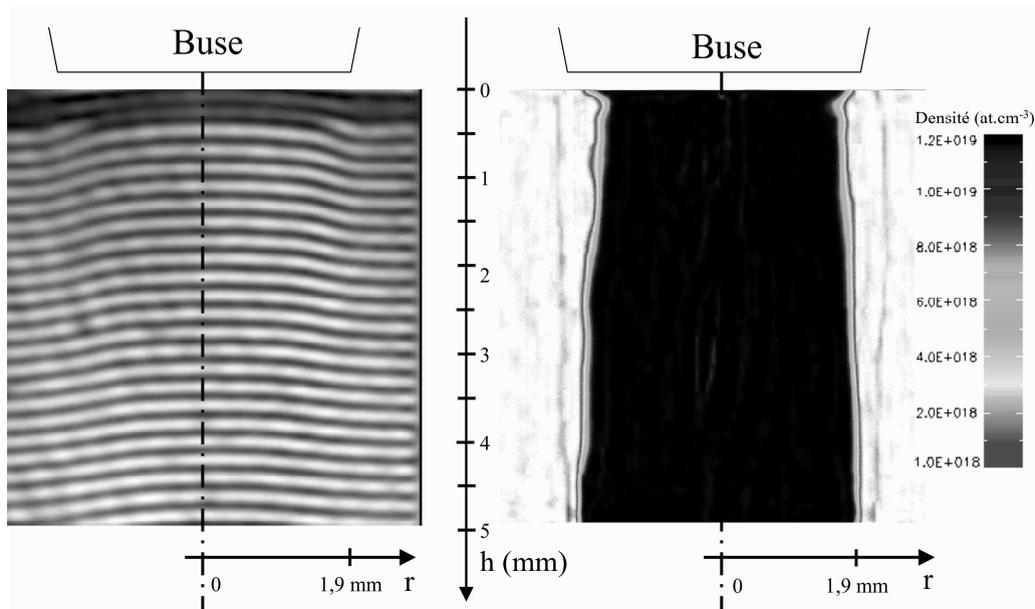


Fig. 2.4: Exemple d'images obtenues par interférométrie Mach-Zehnder dans le cas de la buse conique pour une pression de 60 bars. A gauche, l'interférogramme avant déconvolution par la transformée d'Abel et à droite, la densité du jet après déconvolution.

La résolution spatiale du système était de $15 \mu\text{m}$ limitée par la dimension des pixels de la caméra. Le profil de densité électronique est obtenu par un programme d'analyse des interférogrammes développé au laboratoire LULI. Ce programme effectue une interpolation polynomiale du profil d'intensité sur l'échantillonnage transversal donné par les pixels de la CCD. Le déphasage est calculé en mesurant le contraste et la distance séparant deux

franges successives en présence et en l'absence de jet de gaz. Le programme réalise ensuite l'inversion d'Abel conduisant à une résolution numérique de l'intégrale 2.9.

Toutefois, cette technique est limitée à des densités de quelques $10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$ pour lesquelles on peut mesurer le déphasage.

Le diagnostic d'interférométrie Mach-Zehnder nous permet de mesurer la densité totale d'atomes $n_{tot}(\vec{r})$ contenus dans le jet de gaz. Mais cette mesure ne suffit pas à elle seule à connaître les trois paramètres nécessaires à la description complète du jet. On possède la densité totale d'atomes dans le jet, il nous faut à présent déterminer le taux de condensation $\eta(\vec{r})$ et la densité d'agrégats $n_{ag}(\vec{r})$ ou le rayon moyen des agrégats $R_{ag}(\vec{r})$. C'est ce que l'on se propose de déterminer à l'aide de mesures par diffusion Rayleigh.

2.4 Mesures par diffusion Rayleigh

Lorsqu'un atome est plongé dans un champ électrique, le nuage électronique se polarise sous l'effet du champ. S'il s'agit d'un champ variable au cours du temps, un champ laser par exemple, le nuage électronique va osciller autour de son point d'équilibre en réponse à l'excitation. Le dipole oscillant rayonne dans toutes les directions de l'espace : c'est le phénomène de diffusion Rayleigh. Chaque atome, qu'il soit ou non sous forme agrégée va constituer un dipole susceptible de rayonner sous l'effet d'un champ électrique oscillant. Dans le cas d'un agrégat, les atomes rayonnent en phase. L'intensité du signal émis par le jet d'agrégats lorsqu'il est éclairé par un faisceau laser dépend alors fortement du nombre d'atome par agrégat $N_{at/ag}$.

2.4.1 Description de la méthode

La technique que l'on se propose d'utiliser consiste à éclairer le jet de gaz au moyen d'un laser He-Ne à $632,8 \text{ nm}$ focalisé (figure 2.5) dans le jet d'agrégats. Le faisceau est polarisé linéairement. Une lentille est placée à 90° de l'axe de propagation du laser et de l'axe de symétrie du jet. On collecte ainsi la lumière diffusée dans le jet de gaz par tous les atomes du jet sur une caméra CCD. On obtient une résolution spatiale du jet en faisant varier la position relative du foyer du faisceau laser par rapport au jet.

On réalise l'étalonnage de l'appareillage au moyen de mesures statiques au cours desquelles on remplit l'enceinte de gaz à différentes pressions. Le rapport de l'intensité diffusée par un dipole I_{at} et de l'intensité du laser incidente I_0 est relié à la polarisabilité d'un atome α_{at} par un coefficient C qui contient aussi l'angle solide, l'efficacité de détection, ... En effectuant le rapport entre le signal obtenu avec et sans condensation on peut alors écrire :

$$\frac{I_{at}}{I_0} = C\alpha_{at}^2 \quad (2.11)$$

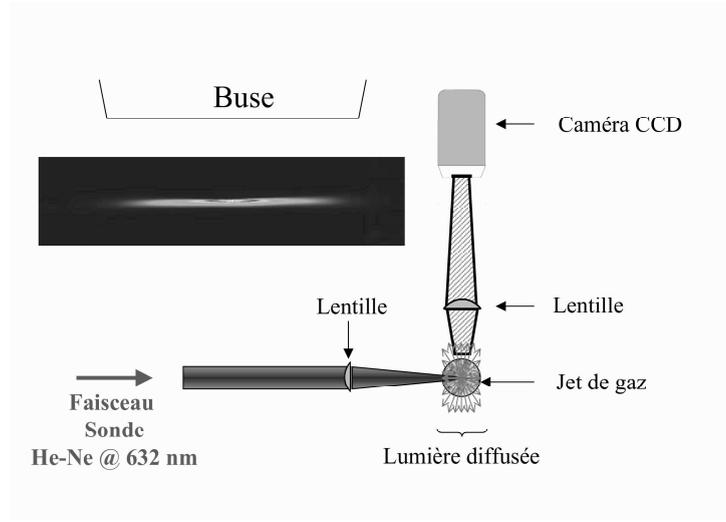


Fig. 2.5: Schéma de principe de la mesure par diffusion Rayleigh. En haut à gauche, exemple d'image enregistrée sur la CCD pour une pression de 60 bars avec la buse conique.

La phase du champ rayonné est contrôlée par la phase du champ laser. Pour N_{at} atomes à l'état gazeux et répartis de façon aléatoire dans le jet, l'intensité diffusée est :

$$I_{N_{at}} = N_{at} C \alpha_{at}^2 I_0 \quad (2.12)$$

Dans le cas d'un agrégat, ces mêmes N_{at} atomes sont confinés dans un petit volume. Si le rayon R_{ag} de l'agrégat est petit devant la longueur d'onde λ du laser, tous les atomes de l'agrégat vont alors contribuer en phase à l'intensité diffusée. Ainsi, on peut écrire l'intensité diffusée par un agrégat de $N_{at/ag}$ atomes :

$$I_{N_{at/ag}} = N_{at}^2 C \alpha_{at}^2 I_0 \quad (2.13)$$

Dans le régime de Mie, lorsque le rayon de l'agrégat est voisin de la longueur d'onde, il apparaît des interférences destructives en fonction de l'angle d'observation [87]. L'étude de la distribution angulaire de la diffusion pourrait permettre de déduire le rayon moyen pour des gros agrégats. Toutefois, ici notre dimension d'agrégats est de l'ordre de la centaine d'Angströms, cette technique nécessiterait l'emploi d'un faisceau ultraviolet qui serait alors fortement absorbé par les agrégats et le gaz environnant.

L'intensité diffusée localement par le jet (agrégats et atomes) est donnée par l'équation 2.14 en considérant une seule taille d'agrégats contenant chacun $N_{at/ag}$ atomes.

$$I_{tot} = (1 - \eta) N_{tot} C \alpha_{at}^2 I_0 + N_{ag} N^2 C \alpha_{at}^2 I_0 \quad (2.14)$$

Dans cette équation, η représente la proportion d'atomes à l'état agrégé. En normalisant cette intensité diffusée à l'intensité I_{gaz} obtenue par calibration statique du système

dans le cas d'un gaz seul à la densité n_{tot} mesurée par interférométrie Mach-Zehnder, on obtient alors avec $\eta = \frac{N_{at/ag} \times n_{ag}}{n_{tot}}$ en considérant que la dimension des agrégats est relativement grande dans la gamme d'agrégats étudiés ($N_{at/ag} \sim 10^5$ pour un rayon d'agrégat $R_{ag} \sim 100 \text{ \AA}$) :

$$\frac{I_{tot}}{I_{gaz}} = (1 - \eta) + \eta N_{at/ag} \approx \eta N_{at/ag} \quad (2.15)$$

La formule 2.15 vaut pour des dimensions d'agrégats de l'ordre de la dizaine voire centaine d'Angströms. En tenant compte de la distribution en rayon des agrégats, cette quantité est moyennée sur la taille des agrégats en considérant la fonction de distribution $f(r)$ des agrégats par rapport à leur rayon r :

$$\frac{I_{tot}}{I_{gas}} = (1 - \eta) + \eta \times \frac{\int_0^\infty N_{at/ag}^2(r) f(r) dr}{\int_0^\infty N_{at/ag}(r) f(r) dr} \approx \eta \frac{\langle N_{at/ag}^2 \rangle}{\langle N_{at/ag} \rangle} = \eta \tilde{N}_{at/ag}, \quad (2.16)$$

où $\tilde{N}_{at/ag}$ n'est pas rigoureusement le nombre moyen d'atomes par agrégat dans le jet mais donne tout de même une valeur très proche dans le cas d'une distribution piquée.

Cette dernière équation montre bien la dépendance du signal diffusé avec la taille moyenne des agrégats, la densité d'atomes dans le jet et le taux de condensation. D'une part, le signal diffusé est d'autant plus grand que la densité totale d'atomes dans le jet est grande et d'autre part, l'intensité diffusée est d'autant plus grande que le rayon moyen des agrégats est grand.

2.4.2 Conclusion

Dans notre montage expérimental, la résolution spatiale du système est d'environ $100 \mu m$, limitée par le rayon du faisceau laser dans la zone de diffusion. Le signal est intégré temporellement durant tout le temps d'ouverture du jet de gaz par la valve. Le signal diffusé est directement proportionnel à la grandeur $n_{tot} \tilde{N}_{at/ag} \eta$. Il est donc bien proportionnel à la taille moyenne des agrégats mais aussi au taux de condensation et à la densité totale d'atome dans le jet (précédemment mesurée par interférométrie Mach-Zehnder). La sensibilité de la diffusion Rayleigh assure un bon contraste entre le signal induit par les agrégats et la contribution du gaz résiduel présent dans l'enceinte pendant le temps de fermeture de la valve. On peut voir sur la figure 2.5 une image obtenue par diffusion Rayleigh sur le jet de gaz avec la buse conique en focalisant le laser au centre de la buse. Afin de déterminer le profil de densité des agrégats, il est nécessaire de mesurer l'intensité diffusée à différentes positions dans le jet de gaz.

Nous sommes parvenu à la détermination de la densité totale d'atomes présents dans le jet de gaz par interférométrie Mach-Zehnder. Nous avons également mesuré le produit $n_{tot} \tilde{N}_{at/ag} \eta$ de la taille moyenne des agrégats par le taux de condensation et la densité

totale d'atomes. Nous disposons de seulement deux mesures différentes pour déterminer trois paramètres libres. Malheureusement, aucune autre mesure ne nous permet, pour l'heure, d'accéder à la connaissance du taux de condensation. Pour cela, nous avons réalisé des simulations de la condensation du jet menées en collaboration avec l'institut de modélisation mathématique de Moscou (Russie).

2.5 Modélisation de la condensation

Notre jet de gaz contient des atomes à la fois sous forme agrégée n_{ag} et à l'état gazeux n_{at} . Le paramètre η reliant ces deux quantités dépend de la dynamique d'agrégation au cours de l'écoulement du jet de gaz. En étudiant l'expansion d'un gaz au travers d'une tuyère, on peut estimer la densité totale d'atomes à une dimension contenue dans le jet de gaz. Toutefois, si l'on veut rendre compte des phénomènes de nucléation, il est nécessaire de considérer la géométrie complète du système en intégrant deux dimensions dans le calcul et d'y inclure une théorie sur la formation cinétique des agrégats dans le jet de gaz.

2.5.1 Calculs 1D

On se propose ici de calculer analytiquement la densité du gaz suivant une dimension, le long de l'axe \mathbf{h} de symétrie du jet. La mécanique des fluides permet de calculer l'expansion d'un gaz au travers d'une tuyère depuis de nombreuses années. Dans ce cas, on ne prend pas en compte la condensation du gaz, les effets de la viscosité du gaz ou la formation d'ondes de choc dans la buse. Un tel calcul n'est pas adéquat pour décrire la distribution spatiale de la densité atomique dans le jet à la sortie de la buse. Cette méthode offre tout de même l'avantage d'estimer facilement la densité en chaque point de l'axe du jet. On obtient des informations uniquement dans la dimension correspondant à l'écoulement du jet et principalement dans la tuyère. Le calcul s'effectue à partir des paramètres tels que la pression P dans le jet, la densité ρ du gaz, la température du gaz T et la vitesse du gaz v . Les équations générales de la dynamique des fluides reliant ces différents paramètres en considérant l'expansion adiabatique d'un gaz parfait s'écrivent :

$$P = \frac{\rho k_B T}{m} \quad (2.17)$$

$$P\rho^{-\gamma} = cte \quad (2.18)$$

$$Sv\rho = cte \quad (2.19)$$

$$\int \frac{dP}{\rho} + \frac{v^2}{2} = cte \quad (2.20)$$

avec m la masse atomique, k_B la constante de Boltzmann, S la section de la buse et γ le rapport des capacités calorifiques thermiques du gaz considéré ($\gamma = \frac{5}{3}$ pour un gaz mo-

noatomique tel que l'argon, $\gamma = \frac{7}{5}$ pour un gaz diatomique). Dans le système d'équations précédent, l'équation 2.17 représente l'équation d'état d'un gaz parfait. L'équation 2.18 traduit l'équation de Laplace (valable pour la détente adiabatique d'un gaz parfait) et la conservation du débit au cours de la propagation dans la tuyère est donnée par l'équation 2.19. L'équation 2.20 est l'équation du théorème de Bernoulli généralisé [88]. A partir de ces relations, on peut aisément déduire les paramètres du jet le long de l'axe de symétrie en fonction des valeurs des paramètres initiaux P_0 , ρ_0 et T_0 (en considérant la vitesse initiale du jet $v_0 = 0$).

Dans le cas de la buse de Laval et de la buse conique, pour les gammes de pression utilisées, la vitesse du gaz v_{col} au col est égale à la vitesse du son c_{col} :

$$v_{col} = c_{col} = \left(\frac{dP}{d\rho} \right)_{col}^{1/2} = \left(\frac{\gamma k_B T_{col}}{m} \right)^{1/2} = \left(\frac{2}{\gamma + 1} \right)^{1/2} c_0 \quad (2.21)$$

où c_0 est la vitesse du son calculée pour la température initiale T_0 . La pression P_{col} , la densité massique ρ_{col} et la température T_{col} sont données par :

$$\left(\frac{P_{col}}{P_0} \right)^{(\gamma-1)/\gamma} = \left(\frac{\rho_{col}}{\rho_0} \right)^{(\gamma-1)} = \frac{T_{col}}{T_0} = \left(\frac{c_{col}}{c_0} \right)^2 = \frac{2}{\gamma + 1} \quad (2.22)$$

A la sortie du jet, on peut alors calculer les grandeurs physiques v_{out} , P_{out} , ρ_{out} et T_{out} . Sous la condition $\rho_{out} \ll \rho_0$, la vitesse du gaz est donnée par la relation suivante :

$$v_{out} = \left(\frac{2}{\gamma - 1} \right)^{1/2} c_0 \quad (2.23)$$

Par conséquent, le nombre de Mach $M_{out} = v_{out}/c_{out}$ à la sortie de la buse s'écrit :

$$M_{out} = \left[\left(\frac{\gamma + 1}{\gamma - 1} \right)^{(\gamma+1)/2} \right]^{1/2} \left(\frac{S_{out}}{S_{col}} \right)^{(\gamma-1)/2} \quad (2.24)$$

Les autres paramètres du gaz sont simplement obtenus en fonction du rapport des sections de sortie et au col de la buse, S_{out}/S_{col} :

$$\left(\frac{P_{out}}{P_0} \right)^{(\gamma-1)/\gamma} = \left(\frac{\rho_{out}}{\rho_0} \right)^{\gamma-1} = \frac{T_{out}}{T_0} = \left(\frac{c_{out}}{c_0} \right)^2 = \left(\frac{2}{\gamma - 1} \right) \frac{1}{M^2} = 2 \left[\frac{(\gamma - 1)^{\gamma-1}}{(\gamma + 1)^{\gamma+1}} \right]^{1/2} \left(\frac{S_{col}}{S_{out}} \right)^{\gamma-1} \quad (2.25)$$

On peut noter au passage que la condition $\rho_{out} \ll \rho_0$ revient à considérer $S_{out}/S_{col} \ll 1$. Dans le cas d'un jet de gaz non agrégé, ce modèle simple donne une bonne estimation de la densité de gaz en sortie. Nous verrons plus loin que ce modèle peut également donner une bonne estimation de la densité atomique totale d'un jet d'agrégat. Pour un jet pulsé, le régime stationnaire est atteint après le temps nécessaire à l'ouverture de la valve et le temps mis par le gaz pour atteindre la sortie de la buse $\sim L/c_0$ (avec L la longueur de la tuyère après le col). Dans notre cas, le temps d'établissement du jet est de l'ordre

de 500 μs , pour la buse de Laval à la température ambiante. La transition liquide-gaz n'est pas prise en compte dans ce modèle. Néanmoins, ce phénomène peut intervenir si la température calculée à la sortie de la buse est inférieure à la température de saturation. Ce calcul donne un moyen rapide d'estimer si le jet expérimental permet la production d'agrégats. Il faut tout de même garder à l'esprit que les phénomènes d'ondes de choc ne sont pas pris en compte. Ils peuvent notamment diminuer le nombre de Mach accessible en sortie de buse, affectant ainsi la génération d'agrégats. Afin de décrire correctement la production d'agrégats lors de l'expansion du jet de gaz, il est nécessaire d'employer un modèle intégrant une description à deux dimensions des paramètres du jet avec un calcul numérique approprié incluant les effets de condensation des atomes entre eux.

2.5.2 Calculs 2D

Nous allons à présent considérer la condensation des atomes au travers de calculs à deux dimensions (suivant l'axe \mathbf{h} et l'axe \mathbf{x}). Les calculs présentés ici ont été réalisés en collaboration avec une équipe de l'institut de modélisation mathématique de Moscou (Russie) et ont fait l'objet de publications [89], [90].

Écrivons les équations gouvernant le système composé du gaz et des agrégats dans une représentation basée sur la méthode des moments (description statistique de la distribution d'agrégats). Le système d'équations est le suivant :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v}) = 0 \quad (2.26)$$

$$\frac{\partial \rho \vec{v}}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v} \otimes \vec{v}) = -\vec{\nabla} P \quad (2.27)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\rho \varepsilon + \rho \frac{\vec{v}^2}{2} \right) + \vec{\nabla} \cdot \left[\rho \vec{v} \left(\varepsilon + \frac{\vec{v}^2}{2} \right) \right] = -\vec{\nabla} \cdot (P \vec{v}) \quad (2.28)$$

$$\frac{\partial \rho \Omega_0}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v} \Omega_0) = I \quad (2.29)$$

$$\frac{\partial \rho \Omega_n}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v} \Omega_n) = I R_*^n + n \dot{R} \rho \Omega_{n-1} \quad (n = 1, 2) \quad (2.30)$$

$$\frac{\partial \rho \beta}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v} \beta) = -\frac{4}{3} \pi \rho_l R_*^3 I - 4 \pi \rho \rho_l \dot{R} \Omega_2 \quad (2.31)$$

ρ , \vec{v} , ε et P sont respectivement la densité globale, la vitesse, l'énergie interne et la pression du système. $\beta = 1 - \eta$ est le degré de dessèchement (en anglais : dryness), à savoir, la proportion de masse à l'état gazeux et ρ_l est la densité à l'état liquide.

La valeur des moments en chaque point \vec{r} s'obtient depuis le système des équations 2.26 - 2.31, conduisant aux différents paramètres de l'agrégat. Par exemple, la densité d'agrégats n_{ag} est donnée par :

$$n_{ag} = \rho\Omega_0, \quad (2.32)$$

le rayon moyen R_{ag} par :

$$R_{ag} = \frac{\Omega_1}{\Omega_0}, \text{ etc...} \quad (2.33)$$

La cinétique de la formation des agrégats peut être décrite par les termes \dot{R} , R_* et I qui sont respectivement le taux d'accroissement de l'agrégat, le rayon critique et le taux de nucléation dans les équations 2.29 - 2.31 et s'expriment par :

$$\dot{R} = \frac{P}{\rho_l \sqrt{2\pi R_g T}} \left[1 - \left(\frac{T}{T_S(P)} \right)^{1/2} \right] \quad (2.34)$$

$$R_* = \frac{2\sigma}{\rho_l R_g T \ln(P/P_S)} \quad (2.35)$$

$$I = \frac{l}{\rho_l} \left(\frac{2\sigma\mu}{\pi N_A} \right)^{1/2} \left(\frac{P}{k_B T} \right)^2 \exp \left(- \frac{4\pi\sigma R_*^2}{3k_B T} \right) \quad (2.36)$$

où $R_g = R_0/\mu$ est la constante du gaz, T est la température, $T_S(P)$ est la température de saturation à la pression P , $P_S(T)$ est la pression de saturation, σ est le coefficient de tension de surface, μ est la masse molaire et N_A est le nombre d'Avogadro.

Les expressions de I et R_* sont données par la théorie classique des fluctuations de mélanges de phases présenté par Frenkel [91]. Cette théorie est basée sur le fait qu'une petite goutte de liquide peut être en équilibre dans un gaz très froid, tant que la tension de surface fournit une barrière de potentiel supplémentaire permettant à une molécule de se poser sur la gouttelette. Ceci conduit à une valeur finie du rayon critique R_* (à l'équilibre) dépendant des paramètres du gaz. L'expression 2.35 pour R_* est appelée formule de Thomson. Elle peut s'obtenir par un calcul détaillé du nombre de molécules quittant ou entrant dans la gouttelette ou par l'analyse des potentiels chimiques. L'équilibre de cette gouttelette devient instable lorsque le rayon de celle-ci est plus petit que le rayon critique. Elle s'évapore alors qu'une gouttelette de rayon supérieur à R_* ne peut que grossir.

Par conséquent, si un agrégat de rayon critique se forme de façon occasionnelle (due à des fluctuations moléculaire), ce dernier peut grossir. Dans le but d'évaluer la fréquence de tels événements, on prend en compte la dynamique des agrégats sub-critiques en incluant la théorie classique de nucléation. Dans ce cas, la distribution de tels agrégats sub-critiques est supposée stationnaire, et donne l'expression 2.36 pour I (formule de Frenkel-Zeldovich). La validation expérimentale du modèle s'avère nécessaire étant donné

qu'il subsiste quelques doutes concernant la validité des hypothèses principales de la théorie classique (approche macroscopique de tous les agrégats pris en compte, distribution stationnaire des agrégats sub-critiques).

Pour déterminer les paramètres du jet de gaz, on résout le système formé par les équations 2.26 - 2.31 dans la région constituée par la tuyère de la buse et une partie de l'espace ouvert à la sortie de la buse, complété des équations 2.34 - 2.36. Les conditions aux limites correspondant aux paramètres initiaux du gaz sont celles du vide. On effectue ensuite le calcul jusqu'à atteindre le régime stationnaire. On réalise l'ensemble de la simulation dans une géométrie à deux dimensions avec une symétrie cylindrique, donnant la distribution à deux dimensions des grandeurs auxquelles on s'intéresse. Des simulations mono-dimensionnelles peuvent également être effectuées. Elles permettent d'évaluer rapidement les valeurs caractéristiques des paramètres à la sortie de la buse, et ce avec un temps de calcul très réduit à comparer avec une simulation à deux dimensions.

2.6 Résultats

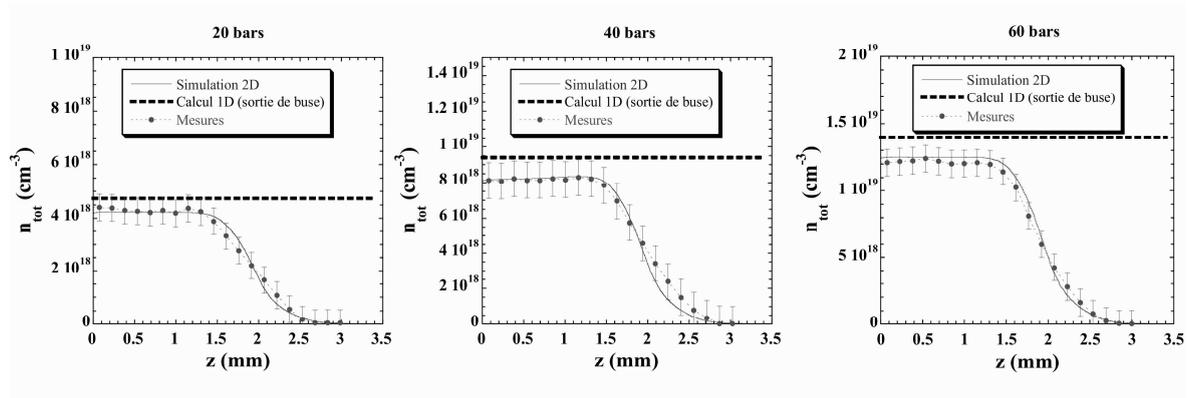


Fig. 2.6: Profil de la densité atomique totale à 1,5mm de la sortie de la buse conique pour les 3 pressions utilisées. De gauche à droite : a) 20bars, b) 40bars, c) 60bars. Les traits pleins représentent les résultats de la simulation 2D, les pointillés les mesures obtenues par interférométrie Mach-Zehnder et les tirets le calcul mono-dimensionnel

Les profils de densité atomique totale n_{tot} ont été obtenus par interférométrie Mach-Zehnder avec les deux types de buses décrites au chapitre précédent pour des pressions de 20, 40 et 60 bars en amont de la buse. Les simulations ont été effectuées pour des conditions de pression identiques et pour ces deux géométries de buses, Laval et conique. Les profils de densité obtenus sont présentés en figure 2.6 en fonction de la distance z par rapport au centre du jet dans le cas de la buse conique. Les barres d'erreurs sont

plus grandes au centre en raison de la transformation d'Abel. On peut constater que l'on obtient un très bon accord entre les simulations et les mesures effectuées. Les formes des différents profils expérimentaux sont très bien reproduites et les valeurs absolues sont les mêmes à 10 % près. On peut noter au passage la valeur de la densité totale obtenue par le calcul analytique 1D du paragraphe 2.5.1 qui est également en bon accord avec l'expérience à 20 % près. Dans le cas de la buse conique, le diamètre du jet mesuré à 1,5 mm de l'extrémité de la buse, et défini à 10 % de la densité maximale, suit l'extension spatiale liée à l'angle d'ouverture de la buse.

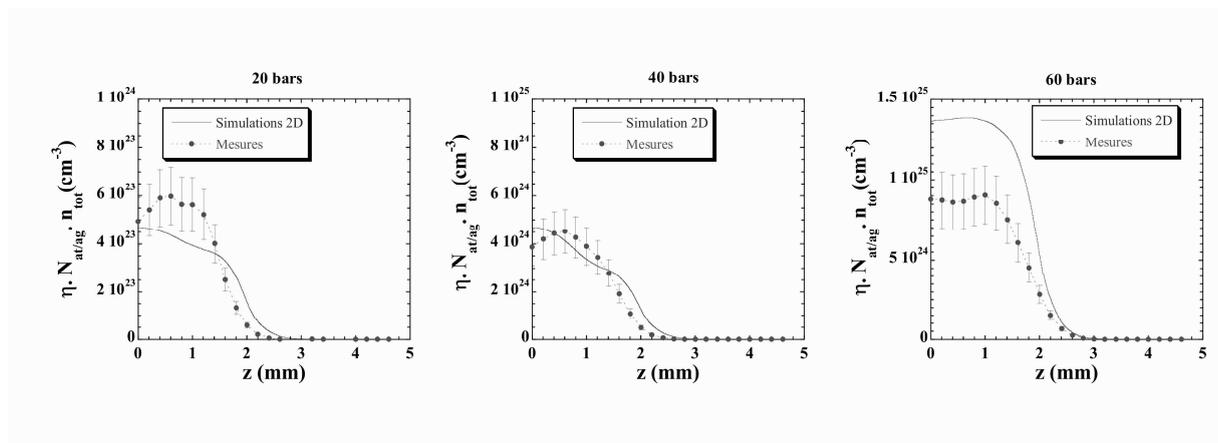


Fig. 2.7: Comparaison du profil de diffusion Rayleigh (pointillés) et du produit du taux de condensation par la densité totale et le nombre d'atomes par agrégat (trait plein) obtenus dans le cas de la buse conique à 1,5 mm de la sortie

Les profils obtenus en diffusion Rayleigh ont aussi été comparés aux résultats numériques pour les mêmes pressions à la même distance de 1,5 mm de la sortie de la buse. Dans la figure 2.7, la quantité mesurée $n_{tot} \tilde{N}_{at/ag} \eta$ (définie en section 2.4) est représentée avec la valeur calculée pour $\eta N_{at/ag} n_{tot}$, pour les différentes pressions 20, 40 et 60 bars en amont de la buse. On retrouve le même comportement radial, homogène au centre avec un rayon d'extension reproduit fidèlement avec des barres d'erreurs d'amplitude $\pm 30\%$.

Dans le cas de la buse de Laval, on peut voir sur la figure 2.8 que la distribution radiale des agrégats présente un profil annulaire, dans le cas expérimental comme dans le cas de la simulation. Toutefois, le calcul surestime de près de 60 % le rayon moyen de cet anneau par rapport à l'expérience. Le calcul a montré l'existence d'ondes de choc dans le jet formées au début de l'expansion du gaz dans la tuyère, liées à l'augmentation rapide de la section parabolique juste après le col de la buse [81]. Ces ondes de chocs convergent sur l'axe et sont responsables de la diminution du nombre de Mach et donc le refroidissement, ce qui affecte la formation des agrégats le long de l'axe de la tuyère. Cela se traduit par un profil annulaire, comme observé expérimentalement [92].

De ce fait, la buse de Laval présente des profils transverses de densité et de rayon moyen des agrégats très inhomogènes. Ce type de profil n'est pas adapté à l'étude que nous souhaitons mener ici. Néanmoins, cette buse permet d'atteindre des densités atomiques plus grandes que dans le cas de la buse conique. La buse de Laval peut s'avérer intéressante dans le cas d'expériences d'interaction avec des cibles d'agrégats plus denses. Les calculs effectués par exemple à 40 bars, à 1,5 mm de la sortie de la buse et à 1,5 mm de l'axe du jet donnent un taux de condensation η de 10 % et un nombre $N_{at/ag}$ d'atomes par agrégat de l'ordre de 5×10^4 , ce qui correspond à un rayon moyen $R \sim 80 \text{ \AA}$ et une densité d'agrégats $N_{ag} \sim 5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-3}$.

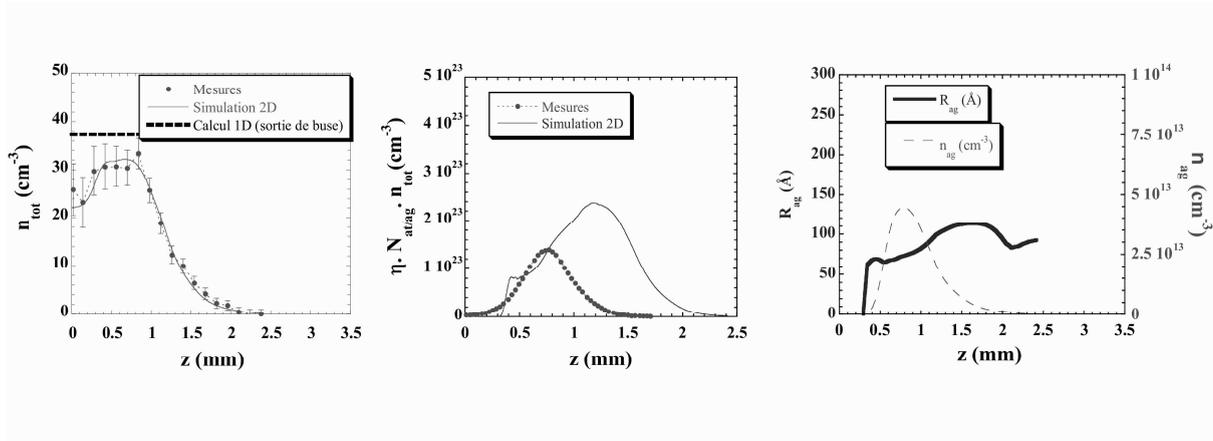


Fig. 2.8: Profils calculés et mesurés à 1,5 mm de la sortie de la buse de Laval pour une pression de 40 bars. De gauche à droite : a) densité atomique totale, b) profil de diffusion Rayleigh mesuré et calculé, c) densité et taille moyenne calculées des agrégats.

Dans le cas de la buse conique, la comparaison des résultats expérimentaux avec le calcul à 1,5 mm de l'extrémité de la buse montre un bon accord. Les profils obtenus ne révèlent pas l'existence d'ondes de choc pour les trois pressions testées (profil de sortie moins raide après le col). Ce type de buse présente un profil de densité et de rayon relativement homogène sur toute la largeur du jet, bien adapté aux expériences que nous souhaitons mener. Notre choix s'est donc naturellement orienté vers la géométrie de buse conique pour l'étude de l'interaction laser-agrégats.

Par ailleurs, les calculs effectués avec une pression $P_0 = 40 \text{ bars}$ à 1,5 mm de l'extrémité de la buse conique ont montré que celle-ci permettait d'atteindre un taux de condensation plus grand ($\eta \sim 25 \%$) et des tailles d'agrégats également supérieures ($N \sim 2 \times 10^6$) à celles accessibles avec la buse de Laval pour des pressions identiques.

En figure 2.9, on peut voir les profils de densité et de rayon moyen en fonction de la distance z par rapport à l'axe de symétrie h du jet. La largeur δR de la distribution

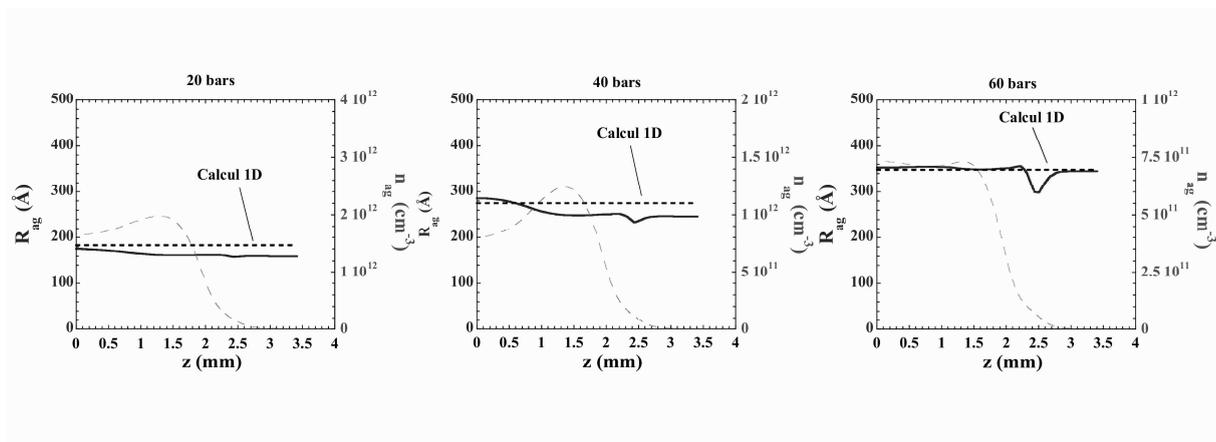


Fig. 2.9: Profil de la densité et du rayon moyen des agrégats suivant l'axe z référencé par rapport à l'axe de symétrie du jet, pour la buse conique et calculé à 20, 40 et 60 bars de pression en amont de la buse, 1,5 mm en dessous de la sortie de la buse. Traits pleins : rayon moyen R_{ag} des agrégats. Pointillés : densité d'agrégats n_{ag} . Pointillés serrés : rayon moyen estimé à la sortie de la buse avec une simulation 1D.

en taille des agrégats (relative au moment d'ordre 2 : Ω_2) calculée par le système des équations 2.26 - 2.31 donne un rapport $\delta R/R \sim 12\%$ à 40 bars.

Des simulations 1D ont également été menées sur la base du modèle présenté en section 2.5.1 et sont tracées en figure 2.9 avec les résultats des simulations 2D. On peut voir que les résultats obtenus dans ce cas sont en bon accord avec les simulations à deux dimensions (*i.e.*, dans la largeur de distribution $\delta R/R$). Ces calculs constituent un gain de temps non négligeable dans l'estimation du rayon moyen par rapport à une simulation complète à deux dimensions.

Les agrégats sont répartis de façon statistique en taille. Dans la gamme de notre étude, une largeur maximale de la distribution $\delta R/R \sim 15\%$ a été déduite du calcul sur le moment d'ordre 2 (Ω_2) du système d'équation 2.26 - 2.31. Cette valeur est assez faible comparée aux différentes estimations théoriques [93], mais comparable aux mesures de diffusion de Mie faites sur de très gros agrégats [94]. Le rapport $\tilde{N}_{at/ag}/N_{at/ag}$ dépend de la distribution statistique en rayon des agrégats. Si à présent, on considère une distribution gaussienne $\delta R/R \sim 15\%$, alors $\tilde{N}_{at/ag}/N_{at/ag} \sim 1.2$, c'est-à-dire une surestimation de seulement 20% de $\tilde{N}_{at/ag}$ par $N_{at/ag}$ ce qui est de l'ordre de grandeur de la barre d'erreur expérimentale. Comme $N_{at/ag}$ est proportionnelle à R_{ag}^3 , il en résulte une surestimation de seulement 7% sur le rayon attendu, ce qui est relativement faible devant la largeur de la distribution.

La taille moyenne des agrégats déterminée par cette étude ($\sim 10^6$ atomes par agrégat) est nettement supérieure aux valeurs mesurées par les expériences empiriques menées par

O. Hagena il y a quelques années. Nous ne sommes plus dans ce cas dans le domaine de validité du paramètre empirique Γ^* introduit par O. Hagena [83]. Afin de vérifier si ce paramètre constitue encore un moyen d'estimer la taille moyenne des agrégats, nous avons représenté les valeurs de $N_{at/ag}$ obtenues à partir des calculs sur la buse conique et confirmées par l'expérience en fonction de ce paramètre (voir figure 2.10). Ces valeurs sont moyennées sur la section du jet, à 1,5 mm de la sortie du jet et pour des pressions en amont du jet $P_0 = 20, 40$ et 60 bars. La formule empirique d'Hagena (équation 2.5) est également représentée.

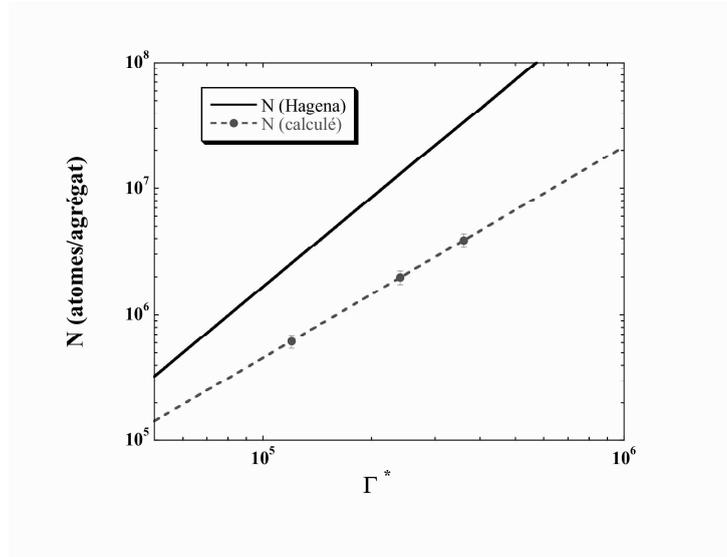


Fig. 2.10: Nombre moyen d'atomes par agrégat en fonction du paramètre empirique Γ^* . En trait plein : à partir de la formule d'Hagena. En points : à partir des valeurs obtenues par les simulations 2D. En pointillé : courbe d'ajustement en loi de puissance depuis les valeurs expérimentales confirmées par les simulations.

Les valeurs calculées suivent une loi en puissance semblable à celle d'Hagena mais avec des paramètres différents :

$$N_{at/ag} = 100 \times \left(\frac{\Gamma^*}{1000} \right)^{1.8} \quad (2.37)$$

Il s'en suit que Γ^* demeure un paramètre pertinent de l'estimation du nombre moyen $N_{at/ag}$ d'atomes par agrégat. Toutefois, il s'avère que le facteur de puissance doit être diminué par rapport à celui d'Hagena. Il est intéressant de noter que ces deux lois se recoupent pour $\Gamma^* \sim 10^4$. Cette valeur constitue une limite haute de Γ^* pour laquelle la formule d'Hagena a fait l'objet de vérifications expérimentales [83], [95]. Ces résultats suggèrent que la formule empirique d'Hagena (équation : 2.5) soit étendue par l'équation 2.37 dans la gamme des Γ^* allant de 10^4 à 10^6 .

2.7 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons caractérisé le jet d'agrégats en densité, en taille moyenne d'agrégats et le taux de condensation du milieu. Pour cela, nous avons réalisé différentes mesures (interférométrie Mach-Zehnder et diffusion Rayleigh) qui nous ont renseigné sur la structure du jet. Dans le cas de la buse de Laval, la mesure du profil de densité du jet a révélé une structure annulaire. Le caractère inhomogène du profil est inadapté au travail de physique fondamentale que l'on souhaite effectuer. Dans le cas de la buse conique, le profil de densité des agrégats est un profil plus homogène.

Afin de déconvoluer la mesure par diffusion Rayleigh du taux de condensation et déterminer ainsi la taille moyenne des agrégats, des mesures et des simulations ont également été effectuées pour les deux types de buse à l'étude (Laval et conique). La répartition annulaire des agrégats est notamment reproduite dans le cas de la buse de Laval. Les valeurs mesurées de la densité atomique totale et du produit (nombre d'atomes par agrégat \times taux de condensation) sont reproduites par le calcul dans le cas de la buse conique.

Le tableau 2.1 rassemble l'ensemble des paramètres concernant les dimensions des agrégats, obtenus par simulation 1D dans le cas de la buse conique. On a vu précédemment que ces calculs donnent une bonne estimation des paramètres du jet d'agrégats.

P_0 (bars)	η (%)	R_{ag} (Å)	$\delta R/R$ (%)	$N_{at/ag}$	$n_{ag}(cm^{-3})$
20	20.7	183	14	6.14×10^5	1.60×10^{12}
40	23.5	275	12	1.97×10^6	1.12×10^{12}
60	25.3	348	11	3.87×10^6	9.20×10^{11}

Tab. 2.1: Paramètres des agrégats, à 1,5 mm sous la buse, calculés par simulation 1D pour différentes pressions P_0 allant de 20 à 60 bars. η est le taux de condensation, R_{ag} est le rayon moyen des agrégats, $\delta R/R$ est la largeur relative de la distribution statistique en taille des agrégats, $N_{at/ag}$ est le nombre moyen d'atomes par agrégat et n_{ag} est la densité d'agrégats.

Étant donné que la buse conique présente un profil de densité plus homogène que la buse de Laval, par la suite, toutes nos expériences seront réalisées avec la buse conique. On se placera maintenant dans les conditions pour lesquelles le jet a été caractérisé, c'est-à-dire 1,5 mm sous la sortie de la buse et pour des pressions de 20, 40 et 60 bars. Les valeurs du tableau ci-dessus (Tab. 2.1) constitueront les valeurs de référence utilisées dans ce manuscrit.

Dispositif expérimental

Chapitre 3

Dispositif expérimental

3.1 Le laser

Avec l'apparition dans les années 80 de la technique d'amplification à dérive de fréquence (Chirp Pulse Amplification : CPA) [96], des impulsions de très haute intensité associée à des durées très courtes, pouvant atteindre des dizaines de femtosecondes ($10^{-15}s$), ont pu être produites. Cette technique consiste à étirer temporellement l'impulsion laser afin de réduire les effets non-linéaires induits par la traversée des éléments solides de la chaîne d'amplification. Ces effets non-linéaires peuvent conduire à une filamentation du faisceau laser qui se traduit généralement par un endommagement des optiques. L'impulsion est ensuite re-comprimée en fin de chaîne laser au moyen d'un compresseur à réseaux.

3.1.1 Description

La source laser utilisée au sein du laboratoire CELIA est un laser kHz de type Titane-saphire $Ti^{3+} : Al_2O_3$. La chaîne laser est composée d'un oscillateur, d'un amplificateur régénératif et de trois étages d'amplification de puissance (voir figure 3.1). Elle est basée sur le principe de l'amplification CPA. La réalisation de cette chaîne a fait l'objet de la thèse de V. Bagnoud [97].

Les étages amplificateurs sont pompés à 527 nm par des lasers kHz de type YLF délivrant 20 W . La production d'impulsions femtoseconde est assurée par un oscillateur fonctionnant sur le principe du blocage de mode par lentille de Kerr. Cet oscillateur est pompé par un laser à diodes continu à 532 nm de type Nd : YAG. Il délivre des impulsions à 80 MHz de 10 nJ d'une durée de 15 à 20 fs . Les impulsions issues de l'oscillateur sont étirées temporellement jusqu'à environ 200 ps dans un étireur de Öffner grâce à la dispersion en longueur d'onde de l'impulsion laser par un réseau de diffraction. Afin d'adapter la récurrence d'amplification de 1 kHz au train de sortie de l'étireur de 80 MHz , une

porte optique constituée d'une cellule de Pockels placée entre deux polariseurs croisés est utilisée avant toute amplification. Les impulsions étirées à 200 ps sont ensuite injectées dans une cavité régénératrice au moyen d'une cellule de Pockels intracavité. Au sein de cette cavité, l'impulsion effectue plusieurs passages (environ 25) dans le cristal amplificateur. Ces allers et retours ont pour but d'amplifier d'un facteur 5×10^5 l'énergie des impulsions. Au bout d'un certain temps, la cellule de Pockels s'ouvre à nouveau laissant ressortir cette impulsion à un niveau d'énergie proche de 700 μJ . La fréquence de répétition du laser est alors celle d'ouverture de la cellule de Pockels soit d'un kHz (limitée par la fréquence de pompage du milieu amplificateur par les lasers YLF). Les impulsions ainsi amplifiées passent ensuite dans une autre porte optique afin d'améliorer le contraste temporel à l'échelle nanoseconde (élimination des fuites optiques du polariseur de la cavité régénératrice). L'amplification des impulsions à un niveau d'énergie de plusieurs mJ est obtenu par l'utilisation d'amplificateurs multi-passages que nous allons succinctement décrire.

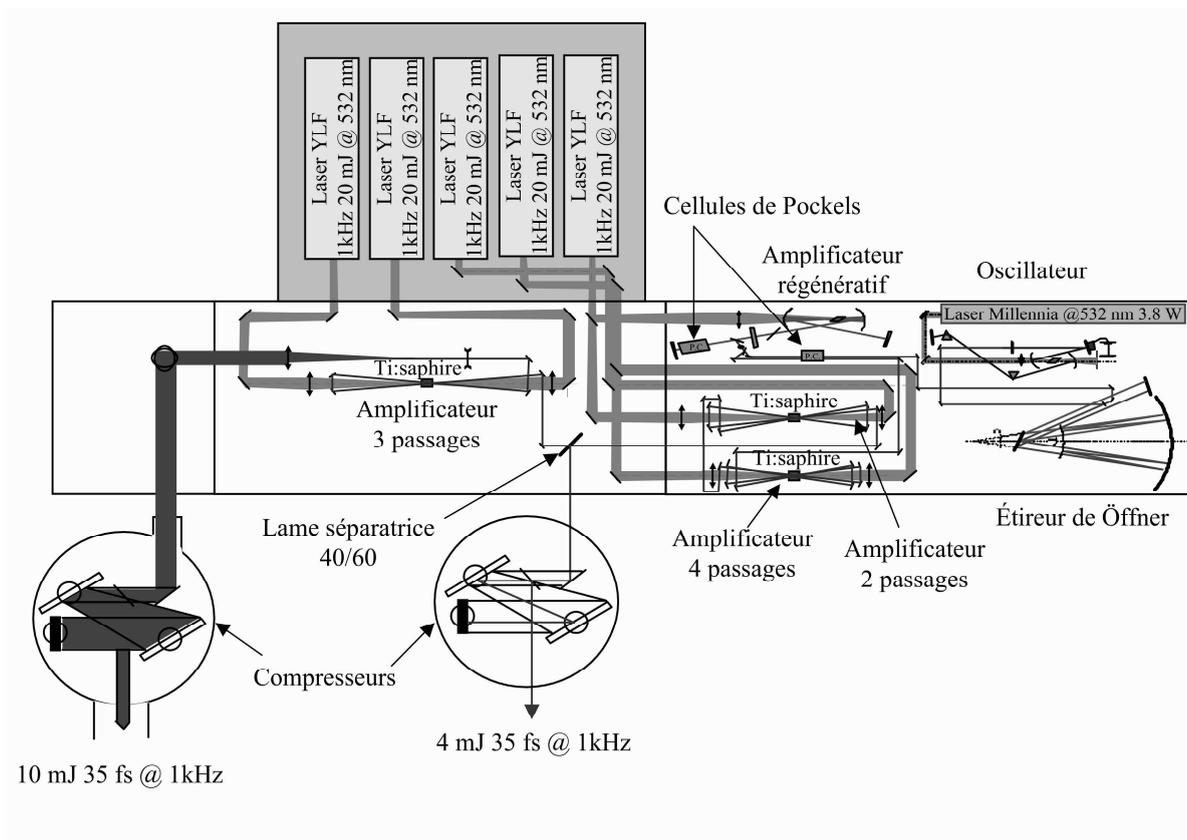


Fig. 3.1: Schéma du laser.

Dans le cas des amplificateurs de puissance, le principe du multi-passage permet d'extraire une partie de l'énergie de pompe déposée dans le cristal (dans le cas du Ti : Saphire

30 % de l'énergie est généralement extraite du cristal). Le premier étage est un étage à 4 passages et permet d'atteindre une énergie par impulsion de 3 *mJ*. On injecte ensuite le faisceau dans un second étage à 2 passages pour récupérer alors 7 *mJ* par impulsion laser. Le faisceau est à ce moment divisé en deux bras constituant deux lignes de lumières distinctes au moyen d'une lame séparatrice de 40/60 %. Celle de 40% est injectée dans le 3^{ème} étage d'amplification pour délivrer des impulsions de 11 *mJ* et constitue la ligne dite de "haute énergie". L'autre, dite "voie de basse énergie" délivre des impulsions de 4 à 5 *mJ*. Les deux bras du lasers sont re-comprimés chacun au moyen d'un compresseur à réseaux de diffraction. La dérive de fréquence introduite initialement par l'étireur est compensée par celle du compresseur. L'un de ces deux compresseurs est placé dans une chambre sous vide pour la ligne haute énergie. Pour les mêmes raisons, cette ligne de lumière se propagera sous vide par la suite.

La durée des impulsions laser en sortie du compresseur est mesurée. Elle peut être modifiée simplement au moyen de l'espacement entre les réseaux du compresseur.

3.1.2 Caractérisation temporelle des impulsions laser

La caractérisation des impulsions laser constitue une étape importante vers la connaissance des paramètres de l'interaction laser-agrégats. La durée de l'impulsion laser est mesurée au moyen d'un auto-corrélateur 2ω . Le contraste temporel de l'impulsion à l'échelle picoseconde (jusqu'à 100 *ps*) et sub-picoseconde est mesuré quant à lui par un auto-corrélateur 3ω .

Mesure de la durée des impulsions

L'optimisation de la durée de l'impulsion laser se fait au moyen du spectre et des paramètres de réglage du compresseur à réseaux (angle d'incidence, écartement entre les deux réseaux). La durée minimale accessible de l'impulsion laser dépend de la phase spectrale de l'impulsion. Cette phase est liée expérimentalement à la dispersion des réseaux et du parallélisme entre les réseaux. La phase est modifiée dans le compresseur de telle sorte qu'en sortie elle dépende linéairement de la longueur d'onde. La durée des impulsions est caractérisée au moyen d'un auto-corrélateur à 2ω dont le principe est décrit plus loin.

Suivant le schéma de la figure 3.2, le faisceau laser est dispersé par le premier réseau A dans le plan incident et est intercepté par le second réseau B parallèle au premier. La compression de l'impulsion repose sur la différence de marche vue par les différentes longueurs d'onde dans le spectre de l'impulsion.

La durée des impulsions laser possède une limite physique (limite de Fourier). Ainsi, pour une impulsion gaussienne, ce principe s'écrit :

$$\Delta\omega \times \Delta t \geq 4 \ln 2 \text{ et } \Delta\omega = \frac{2\pi c \times \Delta\lambda}{\lambda^2} \quad (3.1)$$

où λ est la longueur d'onde centrale du laser, c la célérité de la lumière dans le vide, $\Delta\lambda$ la largeur spectrale à mi-hauteur de l'impulsion et Δt la durée à mi-hauteur correspondante de l'impulsion laser.

En pratique, pour une impulsion gaussienne dont le spectre est centré à 800 nm , cette expression devient :

$$\Delta\lambda(\text{nm}) \times \Delta t_{\min}(\text{fs}) \geq 965 \text{ nm.fs} \quad (3.2)$$

L'espacement entre les réseaux permet de varier le facteur de compression (rapport entre la durée de l'impulsion avant compression et la durée après compression). Nous pouvons par ce moyen relativement simple modifier la durée de l'impulsion laser en faisant varier la distance séparant les deux réseaux A et B du compresseur (voir figure 3.2). L'expression de la durée de l'impulsion autour de la solution idéale (durée minimale accessible) en fonction de l'espacement des réseaux s'écrit au premier ordre :

$$\Delta t_{\text{laser}} = \Delta t_{\min} \times \sqrt{1 + \left(\frac{x - x_0}{\Delta t_{\min}} \times \text{pente} \right)^2} \quad (3.3)$$

où, Δt_{laser} est la durée à mi-hauteur de l'impulsion (en fs), Δt_{\min} la durée minimale accessible (en fs), x l'espacement des réseaux (en mm), x_0 la distance (en mm) entre les réseaux à la durée minimale et la *pente* (en fs/mm) traduit le comportement asymptotique du compresseur. Cette dernière dépend de plusieurs paramètres comme le pas des réseaux, l'angle d'incidence, le spectre de l'impulsion. Dans notre cas particulier ($\lambda_0 = 800 \text{ nm}$), elle s'écrit :

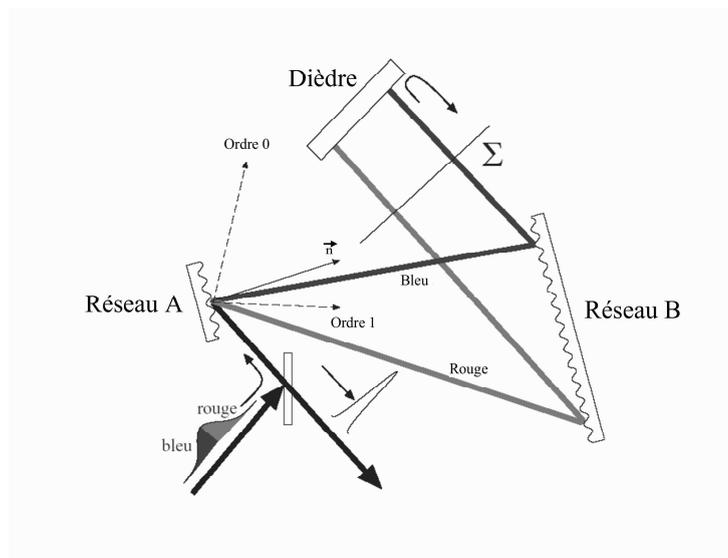


Fig. 3.2: Schéma de principe du compresseur à réseaux.

$$pente \text{ (fs/mm)} = 15 \times \Delta\lambda \text{ (nm)}, \quad (3.4)$$

avec $\Delta\lambda$ la largeur spectrale à mi-hauteur.

Le schéma de principe de l'auto-corrélation 2ω est basé sur un Michelson dont l'un des deux bras est muni d'un délai variable (cf. fig.3.3). Les deux impulsions ainsi formées sont réfléchies par un coin de cube sur chaque bras avant d'être focalisées dans un cristal doubleur de KDP (Potassium Dihydrogen Phosphate) de type I. L'émission de signal à la fréquence 2ω se fait dans l'axe de propagation suivant l'axe extraordinaire du cristal lorsque les deux impulsions arrivent en même temps sur le cristal, colinéairement à l'axe ordinaire. Le signal à 2ω est alors enregistré en fonction du délai entre les deux impulsions. La trace d'auto-corrélation ainsi obtenue permet de déterminer la durée à mi-hauteur de l'impulsion laser.

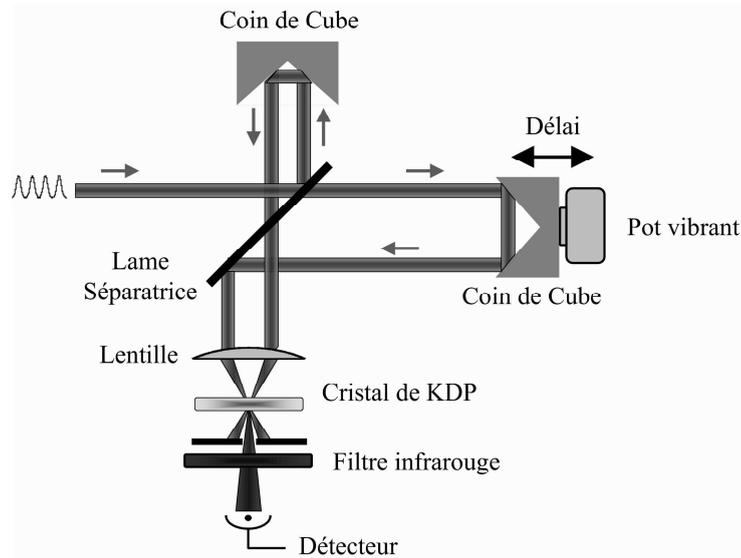


Fig. 3.3: Schéma de principe d'un auto-corrélateur à 2ω .

Le résultat de la figure 3.4 montre une trace d'auto-corrélation d'une largeur de $\sim (60 \pm 5) \text{ fs}$ à mi-hauteur après compression pour un spectre de $\sim (27 \pm 1) \text{ nm}$ à mi-hauteur. La durée de l'impulsion laser correspondante, déconvoluée du facteur d'auto-corrélation ($\sqrt{2}$ pour une impulsion gaussienne), est de $\simeq (42 \pm 5) \text{ fs}$ à mi-hauteur. D'après l'équation 3.2, on peut estimer la limite de Fourier d'une telle impulsion centrée à 810 nm à $\sim 36 \text{ fs}$. On ne parvient pas à atteindre expérimentalement la limite de Fourier principalement à cause des défauts de phase spectrale (forme du spectre non parfaitement gaussienne).

Nous avons aussi mesuré au moyen de l'auto-corrélateur l'évolution de la durée de l'impulsion laser en fonction de l'écartement des réseaux du compresseur (dans la limite

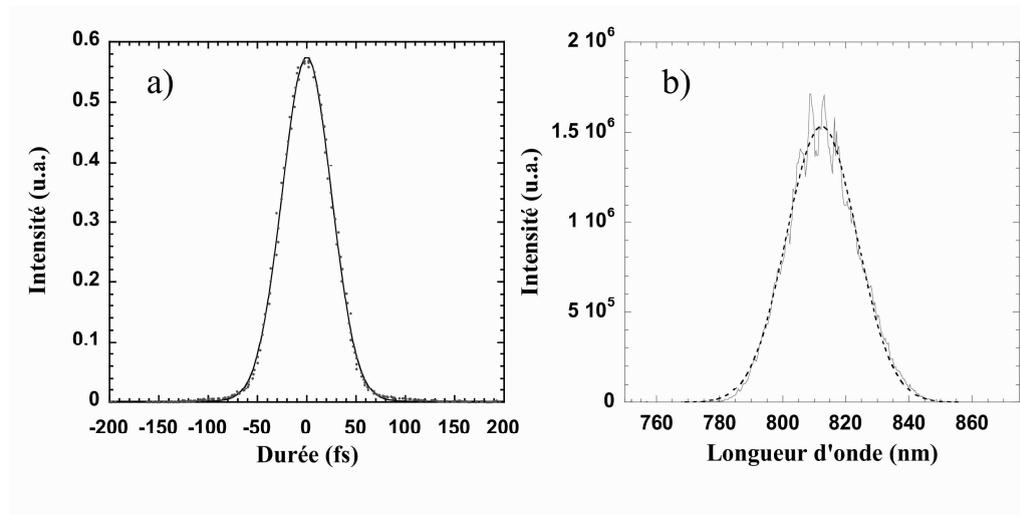


Fig. 3.4: Trace d'auto-corrélation à 2ω de l'impulsion laser (a) et spectre en longueur d'onde associé (b).

de résolution du système). On peut voir sur la figure 3.5 que le comportement de la durée peut être ajusté par une loi du type de celle de l'expression 3.3. La pente sur les ailes de la courbe nous donne une valeur d'environ 400 fs/mm , ce qui est relativement proche de la valeur calculée 405 fs/mm à partir de l'expression 3.4 avec une largeur de spectre de 27 nm à mi-hauteur.

La mise en place de la mesure par auto-corrélation n'étant pas très rapide (installée de manière mobile sur la chaîne laser), nous déterminerons par la suite la durée de l'impulsion en se basant sur l'expression 3.3. L'écartement des réseaux est contrôlé par une platine de précision motorisée sous vide.

Une fois la compression et la caractérisation temporelle de ces impulsions effectuées, il convient de s'assurer du rapport d'intensité accessible entre l'impulsion considérée et le piédestal mais, aussi, de la présence d'éventuelles pré-impulsions parasites.

Contraste de l'impulsion

Dans le cadre de l'interaction d'un laser avec une cible solide, le contraste de l'impulsion laser (rapport de l'intensité de la pré-impulsion avec l'intensité maximale de l'impulsion) influence de façon importante le couplage entre la matière et l'énergie laser. On veut s'assurer que la cible n'a pas subi d'échauffements ou d'altérations liés à l'énergie contenue dans une éventuelle pré-impulsion ou piédestal de l'impulsion principale.

Les agrégats de type Van der Waals sont liés par des forces de faible intensité et se détruisent à la température ambiante. Il suffit donc *a priori* de peu d'énergie dans une pré-impulsion pour initier la destruction d'un agrégat et modifier ainsi les propriétés de

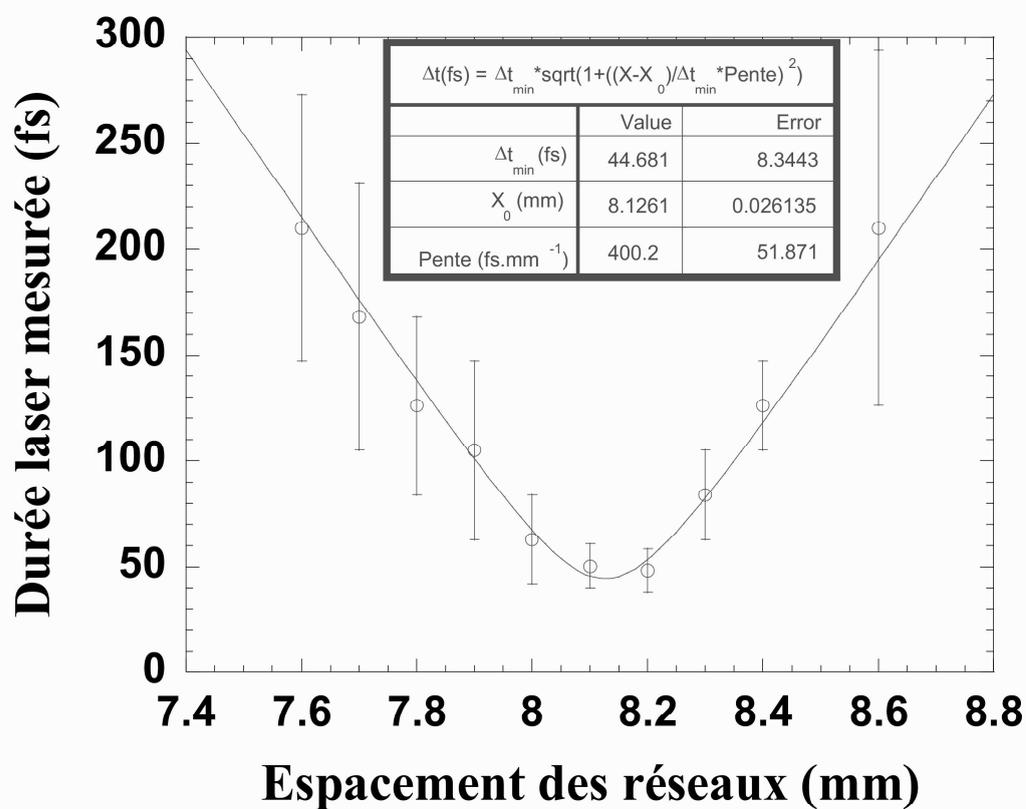


Fig. 3.5: Evolution de la durée à mi-hauteur de l'impulsion laser en fonction de l'espacement des réseaux du compresseur.

la cible avec laquelle nous travaillons (voire de la détruire).

Au cours de campagnes expérimentales précédentes, nous avons constaté sur la chaîne laser la présence d'une pré-impulsion à 4 ns avant l'arrivée de l'impulsion principale. Cette pré-impulsion provient des impulsions parasites qui peuvent entrer dans la cavité régénératrice au moment de l'ouverture de la porte optique, du fait du taux d'extinction des polariseurs et du mode de fonctionnement de la porte optique, pour y être amplifiée. Étant donné que la période du train d'impulsions de l'oscillateur est de 13 ns, que le temps d'aller et retour dans la cavité est de 9 ns, une impulsion parasite ressortira 4 ns avant l'impulsion principale.

Une seconde cellule de Pockels a été installée en sortie de la cavité régénératrice. Disposée sur le parcours du faisceau elle a pour but d'augmenter le contraste ns lié à ces impulsions parasites en générant une seconde porte optique entre l'impulsion principale et la pré-impulsion. Ce contraste est mesuré au moyen d'une diode rapide et d'un oscilloscope de type Lecroy possédant une vitesse d'échantillonnage suffisante pour observer ces pré-impulsions. Le contraste ainsi mesuré (correspondant au rapport entre la pré-impulsion à 4 ns et l'impulsion principale) atteint moins de 10^{-4} , limité par le seuil de détection.

Associé à l'impulsion principale, un pedestal peut être présent. Il provient de l'amplification dans les étages de l'émission spontanée (Amplified Spontaneous Emission : ASE) issue de la cavité régénératrice et des différents étages d'amplification. Cette émission est amplifiée dans tous les étages de puissance et peut être importante étant donné que les pieds de l'impulsion de faible signal voient une valeur de gain très forte dans les cristaux alors que l'impulsion qui sature le gain est proportionnellement moins amplifiée. La durée de cette émission est liée principalement dans le cas de la chaîne laser kHz utilisée au CELIA au temps d'aller-retour dans la cavité régénératrice, soit 9 ns.

La mesure de ce contraste s'est faite au moyen d'un auto-corrélateur 3ω qui fonctionne sur le même principe de base que l'auto-corrélateur 2ω , à ceci près que la recombinaison des deux impulsions se fait après doublage en fréquence de l'une des deux impulsions issues du Michelson. Lorsque les deux impulsions arrivent en corrélation dans un cristal de KDP, il y a génération d'un signal de 3^{ème} harmonique à 266 nm. Cette méthode de très grande dynamique ne permet cependant pas de mesurer avec précision la durée de l'impulsion compte tenu de la précision de la translation utilisée pour le balayage temporel. On peut voir sur la figure 3.6 une trace d'auto-corrélation à 3ω . Le contraste à l'échelle picoseconde est de l'ordre de quelques 10^{-7} . Lorsque l'on coupe le faisceau laser en amont de l'impulsion principale, le signal diminue jusqu'au seuil de détection ($< 10^{-7}$). Le signal mesuré dans les pieds de l'impulsion est donc bien le fait du laser et provient principalement de l'ASE. On peut dire qu'il y a absence de pré-impulsion sur l'ensemble de la gamme temporelle explorée (100 ps) à l'aide de l'auto-corrélateur 3ω .

Ayant caractérisé temporellement l'impulsion laser, nous allons maintenant présenter

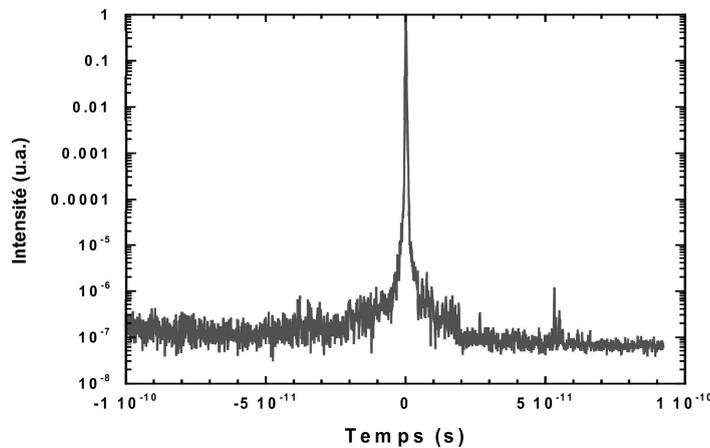


Fig. 3.6: Trace d'auto-corrélation de l'impulsion laser à 3ω .

la méthodologie utilisée pour déterminer l'intensité laser sur cible.

3.1.3 Optiques de focalisation

Lors de l'interaction entre un faisceau laser et une cible, un paramètre important est l'intensité laser accessible (exprimée en $W.cm^{-2}$). Afin d'augmenter considérablement l'intensité du faisceau laser, on focalise celui-ci au moyen d'optiques en réflexion (miroir parabolique hors-axe) ou en transmission (lentille). Au cours des expériences menées au laboratoire CELIA, différentes optiques de focalisation ont été utilisées. Ainsi, une lentille de distance focale de 200 mm ($f_{\#} = 4$) et une parabole hors-axe en or de distance focale de 100 mm ($f_{\#} = 2$) ont permis de concentrer le faisceau laser sur la cible d'interaction avec des paramètres différents. L'intensité laser accessible dépend entre autres du rayon au foyer de l'optique de focalisation. Le rayon ω_0 en $1/e$ du champ électrique (aussi appelé "waist") correspondant à la limite de diffraction d'un faisceau gaussien focalisé à l'aide d'une lentille de focale f est donné par [98] :

$$\omega_0 = \frac{f\lambda}{\pi\omega}, \quad (3.5)$$

avec λ la longueur d'onde, ω le rayon du champ électrique sur l'optique de focalisation (en $1/e$ du champ).

Toutefois, l'utilisation de lentilles induit des aberrations de type sphérique dans la focalisation d'un faisceau. L'utilisation d'optiques réfléchives telles qu'une parabole hors-axe permet de limiter les déformations du profil spatio-temporel de l'impulsion laser. Elle élimine les effets non-linéaires qui sont induits par la traversée d'une impulsion intense

dans un solide tel qu'une lentille (accroissement de "l'intégrale B").

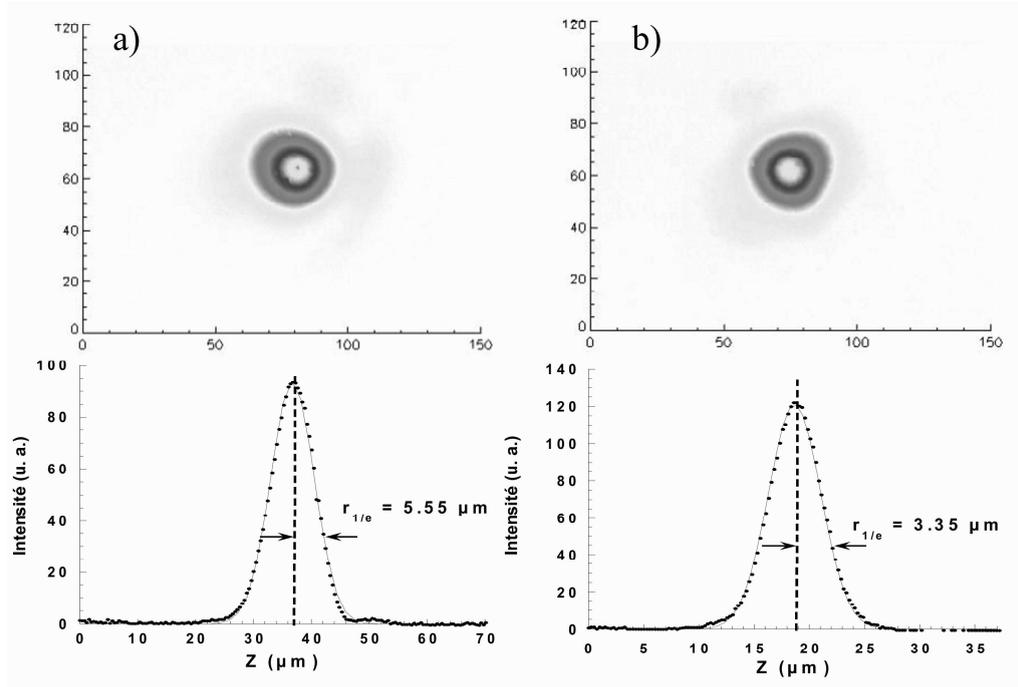


Fig. 3.7: Images et profils des taches focales obtenues pour a) la lentille $f = 200$ mm et b) la parabole hors-axe. Les échelles liées au grandissement de l'imagerie sont différentes suivant le montage étudié. Le pourcentage de l'énergie contenue dans le pic gaussien par rapport aux ailes est de 45 % pour la parabole et de 40 % pour la lentille.

Afin de connaître l'intensité laser maximale accessible, nous avons effectué des mesures du profil du faisceau laser au foyer des deux optiques utilisées. On peut voir sur la figure 3.7 le profil du faisceau obtenu par reprise d'image au moyen d'un objectif de microscope associé à une camera CCD (Charged Coupled Device : caméra à transfert de charges). La figure 3.8 présente l'évolution de la taille du faisceau au cours de sa propagation au voisinage du foyer de la parabole. A partir de ces mesures, nous déterminons la longueur de Rayleigh qui dans ce cas est de $(70 \pm 8) \mu\text{m}$. Une mesure identique renseigne sur la dimension de la zone de Rayleigh de la lentille et donne une longueur de $(190 \pm 10) \mu\text{m}$.

Pour une impulsion laser gaussienne, l'intensité laser maximale accessible I_{max} (W.cm^{-2}) au foyer de l'optique de focalisation est alors donnée par l'expression :

$$I_{max} = \frac{E}{(\pi)^{3/2} \tau \sigma_0^2} \times \kappa, \quad (3.6)$$

avec, E l'énergie contenue dans l'impulsion (J), τ la demi-durée de l'impulsion en I_{max}/e (s), σ_0 le rayon à I_{max}/e (cm), κ la proportion de l'énergie totale contenue dans le pic gaussien.

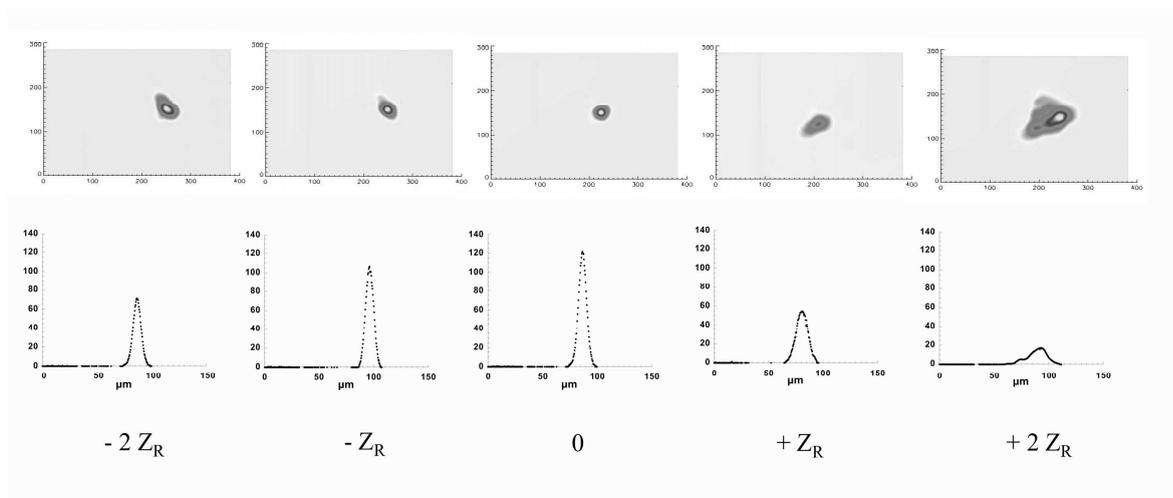


Fig. 3.8: Imagerie du faisceau le long de l'axe de propagation au voisinage du plan de focalisation de la parabole. Après le foyer ($z > 0$), le faisceau diverge rapidement.

Pour la parabole, le rayon minimal du faisceau est de $(3, 3 \pm 0, 3) \mu\text{m}$ en $1/e$ de l'intensité, ce qui permet d'atteindre une intensité maximale de $(8, 9 \pm 1, 3) \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ pour une impulsion de $(42 \pm 5) \text{ fs}$ et contenant 3 mJ avant focalisation. Pour la lentille, les conditions sont légèrement différentes, le rayon au foyer est de $(5, 5 \pm 0, 8) \mu\text{m}$, ce qui donne une intensité maximale de $(2, 8 \pm 0, 9) \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$. Au regard des paramètres de focalisation, on peut penser qu'*a priori*, le volume focal est légèrement différent entre la parabole et la lentille, et donc que les conditions d'interaction sont différentes, mais ceci fera l'objet d'une discussion ultérieure présentée dans les perspectives de ce manuscrit.

3.2 Les diagnostics expérimentaux

En vue des applications liées à l'utilisation des rayonnements X ultra-brefs, nous cherchons à caractériser la source mise en place au laboratoire. Pour cela, nous étudions les spectres X de couche K de l'argon autour de 3 keV , l'extension spatiale de la source et le nombre total de photons émis par celle-ci.

Nous avons travaillé dans une géométrie où tous les diagnostics sont placés dans l'enceinte expérimentale, sous vide (voir figure 3.9). Celle-ci contient également le jet constitué de l'électrovanne et de la buse conique montés sur un support de translations 3 axes, l'optique de focalisation (lentille ou parabole hors axe). Nous avons développé un diagnostic d'imagerie sténopée placé à 45° de l'axe de propagation du faisceau permettant d'étudier la zone émettrice. Un spectromètre X de type Johann (à cristal de Mica sphérique) équipé d'une caméra CCD permet d'enregistrer les spectres émis par la source autour de 3 keV . Celui-ci est placé à 270° de l'axe de propagation du faisceau. Nous avons installé une

sphère diffusante en face arrière du jet d'agrégats afin de mesurer l'absorption de l'énergie laser dans le jet. Un faisceau sonde à 2ω éclaire le jet à 90° de l'axe du laser avec un délai variable. Nous avons disposé un système de reprise d'image dans l'axe de propagation du faisceau sonde qui permet d'observer le plan contenant l'axe de symétrie du jet. On réalise ainsi l'ombroscopie du plasma.

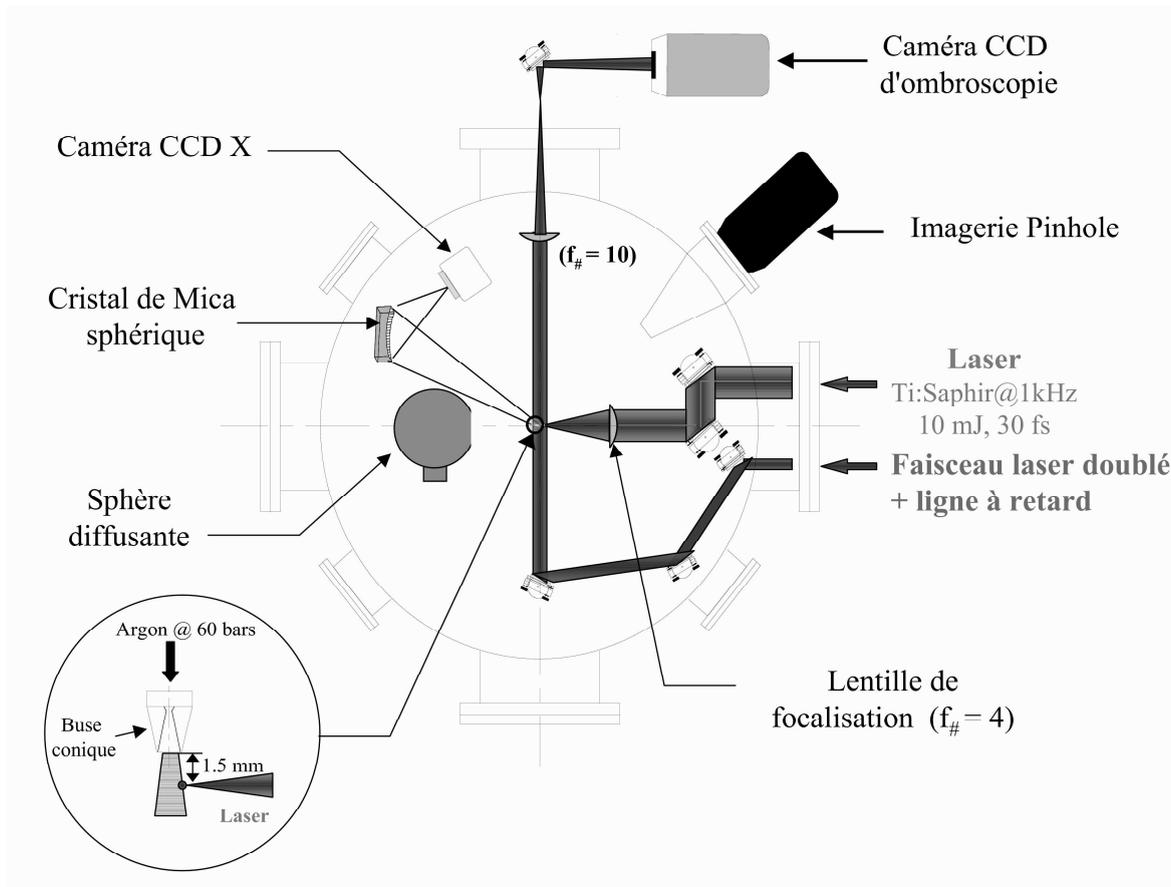


Fig. 3.9: Schéma de l'enceinte expérimentale lorsque la focalisation du faisceau laser est assurée par une lentille.

Les différents diagnostics utilisés au cours de nos expériences sont placés sous vide et disposent pour certains de systèmes de refroidissement de type Pelletier, ceci afin de refroidir l'électronique pour évacuer la chaleur et ainsi limiter le bruit thermique produit par les effets de température dans les matrices de pixels des caméras.

Nous allons à présent décrire les différents montages installés dans cette enceinte et préciser leur fonctionnement.

3.2.1 Spectromètre X et imagerie sténopée

Spectromètre à rayons X

Nous disposons pour étudier et caractériser l'émission X des agrégats irradiés d'un spectromètre à rayons X de type Johann constitué d'un cristal de Mica sphérique couplé à une caméra CCD 16 bits sensible aux photons ayant une énergie dans le domaine du keV . Ce système permet d'obtenir facilement et rapidement des spectres du fait de son excellente dynamique. Le spectromètre FSSR-2D, pour "Focusing Spectrometer with Spatial Resolution", développé par A. Faenov et T. Pikuz du Centre de Données Spectroscopiques d'Ions Multichargés du VNIIFTRI près de Moscou (Russie), a fait l'objet d'un article [99]. Le cristal est un cristal de muscovite (Mica) contraint et collé sur une matrice d'aluminium de rayon de courbure $R = 100\text{ mm}$. La géométrie du cristal procure au spectromètre une résolution dans deux dimensions, spatiale et spectrale, en re-focalisant sur le détecteur les photons collectés sur toute la surface du cristal. La géométrie du dispositif est représentée sur la figure 3.10.

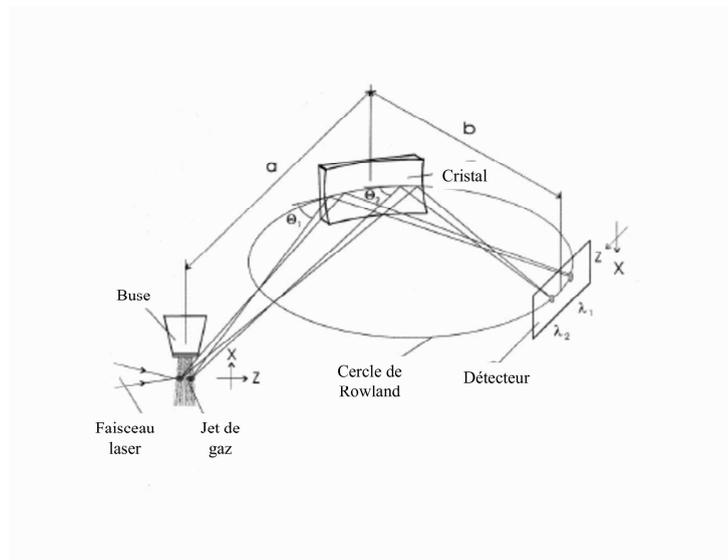


Fig. 3.10: Schéma de principe du spectromètre à rayons X.

Ce type de cristal possède, à l'inverse des cristaux plans, une très bonne résolution spectrale dans les ordres élevés ($\lambda/\Delta\lambda \approx 10^4$ pour une source quasi-punctuelle). Le réglage du spectromètre est réalisé au moyen d'un logiciel de simulation de propagation des rayons X sur les plans réticulaires du cristal de Mica. Étant donnée la distance cristal-source de $a = 25\text{ mm}$ (voir figure 3.10), la longueur d'onde choisie ($\simeq 0,41\text{ nm}$) et la gamme spectrale souhaitée, il existe une géométrie figée du système pour laquelle on peut observer le spectre depuis la raie K_α ($\simeq 0,42\text{ nm}$) jusqu'à la raie H_α ($\simeq 0,37\text{ nm}$) de l'argon. Le logiciel détermine donc la distance cristal-détecteur (longueur b sur la figure 3.10) et les

angles entre l'axe cristal-détecteur et le détecteur d'une part et entre l'axe source-cristal et le cristal d'autre part. Il optimise ces grandeurs de manière à placer le détecteur sur les points de focalisation des rayons réfléchis par le cristal, c'est-à-dire sur le cercle de Rowland dont le rayon est égal au rayon de courbure du cristal. Il calcule également l'angle de Bragg relatif à la longueur d'onde centrale de telle sorte que l'on vérifie la loi de Bragg : $2d \cdot \sin\theta_B = n \cdot \lambda$ où θ_B est l'angle de Bragg, $2d$ est la distance inter-réticulaire du Mica, λ la longueur d'onde considérée et n l'ordre de diffraction. L'ensemble cristal-détecteur est monté sur un système de berceaux goniométriques permettant un réglage précis du dispositif.

Afin de calibrer le spectromètre, nous avons dans un premier temps estimé la réflectivité du cristal en se basant sur une étude menée par G. Hölzer *et al.* [100]. Celle-ci présente une comparaison de la réflectivité de différents cristaux de Mica sphériques et plan en fonction de l'angle de Bragg et des ordres de diffraction. Nous avons également pris en compte l'efficacité de détection quantique de la caméra ainsi que l'angle solide de collection du cristal. Par ailleurs, nous avons placé un filtre de beryllium devant le capteur de la CCD afin de couper tous les rayonnements d'énergie inférieure à 1 keV , et plus particulièrement le rayonnement diffusé du laser. L'estimation de l'efficacité du spectromètre intègre aussi la transmission théorique des filtres à la longueur d'onde centrale considérée. Dans notre cas, nous travaillons à l'ordre 4 de diffraction, l'angle de Bragg correspondant est d'environ 56° . La référence [100] ne présentant pas une étude systématique en angle et en ordre, il nous a fallu extrapoler notre valeur en fonction des résultats présentés dans l'article. Suivant les conclusions de G. Hölzer, la différence de réflectivité entre un cristal plan et un cristal sphérique n'est pas très sensible, sauf peut-être dans les ordres de diffraction élevés (> 8). Tenant compte de cette constatation et de l'ordre auquel nous travaillons, nous considérerons les valeurs données pour un cristal plan en fonction de l'ordre de diffraction.

Ainsi, on a la réflectivité intégrée en fonction de l'ordre de diffraction (figure 3.11). On peut voir que, pour l'ordre 4, celle-ci est d'environ $30 \mu\text{rad}$.

La réflectivité intégrée (R_{int}) prend en compte la zone de tolérance angulaire autour de l'angle de Bragg : appelée *rocking curve* (cf. fig. 3.12). Celle-ci constitue la probabilité de réfléchir un rayonnement X de longueur d'onde donnée arrivant sur le cristal avec un angle d'incidence proche ou égal à l'angle de Bragg.

Soit la réflectivité R :

$$R = \frac{I(\theta)}{I_0} \quad (3.7)$$

où $I(\theta)$ est l'intensité de rayonnement X réfléchi par le cristal à l'angle θ , I_0 est l'intensité totale incidente sur le cristal.

La réflectivité intégrée R_{int} s'obtient alors en intégrant sur toute la surface du cristal :

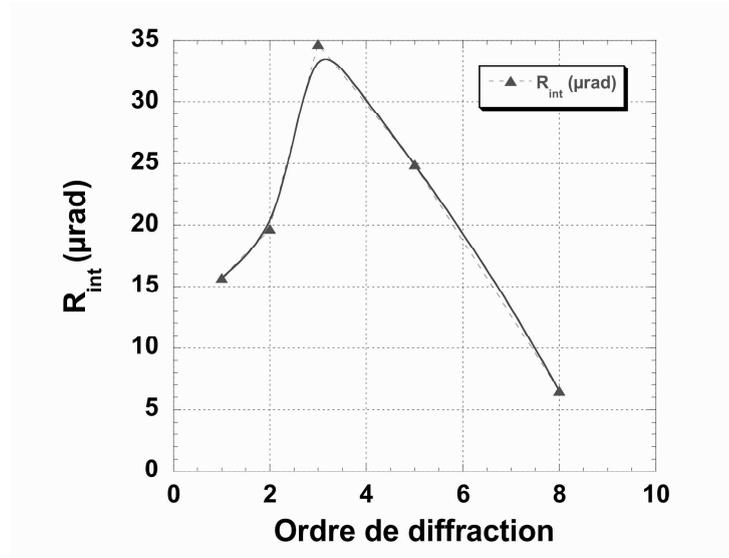


Fig. 3.11: Evolution de la réflectivité intégrée pour un cristal de muscovite plan (taillé suivant le plan 001) en fonction de l'ordre de diffraction pour un angle de Bragg $\theta_B = 53.6^\circ$.

$$R_{int} = \frac{1}{I_0} \times \int_{\theta_B - \Delta\theta}^{\theta_B + \Delta\theta} I(\theta) d\theta = \int_0^{\pi/2} R(\theta) d\theta \sim R(\theta_B) \times 2\Delta\theta \quad (3.8)$$

où $\Delta\theta$ est la demi largeur à mi-hauteur de la rocking curve, θ_B est l'angle de Bragg et θ est l'angle d'incidence considéré.

La réflectivité intégrée ainsi calculée prend en compte une partie de l'angle solide. En effet, si on est à une distance D du cristal, la rocking curve se traduit par une certaine largeur sur le cristal où le signal peut être réfléchi. Si on augmente cette distance, la largeur efficace augmente mais l'angle de collection dans la dimension spectrale reste inchangé tant que la zone utile et illuminée du cristal reste inférieure aux dimensions du cristal.

Pour un cristal de longueur L , de largeur l , placé à une distance D de la source, l'angle solide Ω de collection du cristal s'écrit alors :

$$\Omega = \frac{l \times L \times \cos \theta}{D^2} = \frac{l}{D} \times R_{int} \quad (3.9)$$

Et finalement, l'efficacité du spectromètre (rapport du signal observé sur le détecteur par rapport au nombre total de photons émis par la source dans tout l'angle solide, en supposant celle-ci isotrope) est donnée par :

$$\epsilon = \frac{l}{D} \times R_{int} \times T_{filtre} \times Qde \times \eta_{conversion} \quad (3.10)$$

où T_{filtre} est la transmission du filtre de Beryllium, Qde est l'efficacité de détection quantique de la caméra et $\eta_{conversion}$ est le rendement de conversion de la caméra (nombre

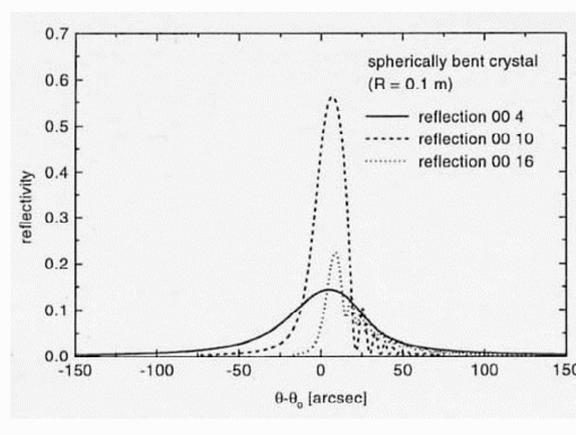


Fig. 3.12: Courbe de réflectivité calculée pour un cristal sphérique de muscovite (de rayon $R=100$ mm, réflexions 004, 0010 et 0016, respectivement ordre de diffraction 2, 5 et 8).

de paires électron-trou créées dans le détecteur en fonction de l'énergie d'un photon). Typiquement, autour de 3 keV l'efficacité du spectromètre vaut environ $1,7 \times 10^{-4}$.

Dans le but de valider le calcul précédent, le spectromètre a fait l'objet d'une calibration absolue dans le cadre d'une collaboration avec le Groupe de Physique des Solides (GPS) de l'université de Jussieu. La calibration a été réalisée par comparaison du nombre de photons mesuré par notre spectromètre par rapport à celui mesuré en absolu par un détecteur à semi-conducteurs Si(Li) [101]. Les deux diagnostics étaient installés autour de la même source pulsée d'agrégats d'Argon irradiés par une impulsion laser intense fournie par l'installation LUCA du laboratoire DRECAM de Saclay. Lors de cette campagne expérimentale, la calibration théorique s'est avérée être en bon accord avec les résultats obtenus expérimentalement.

La calibration du spectromètre réalisée, il reste à l'étalonner spectralement. L'étalonnage du spectromètre est réalisé au moyen de l'identification des raies observées sur le cristal dans la gamme spectrale étudiée.

3.2.2 Calibration spectrale

La calibration spectrale du spectromètre a été réalisée à partir de l'identification des raies d'émission de couche K de l'Argon. Plus particulièrement, l'analyse d'un spectre typique émis par le plasma dans la gamme de $2,9$ à $3,2$ keV (voir figure 3.13), pour une pression de 60 bars en amont de la buse ($R_{ag} \sim 250$ Å), a révélé la présence d'ions multi-chargés allant jusqu'à de l' Ar^{16+} . Ce spectre a été obtenu dans des conditions optimales d'émission, pour une durée laser de 500 fs à mi-hauteur et une impulsion contenant 3 mJ d'énergie.

Nous avons utilisé des raies du spectre de l'Argon qui sont tabulées dans une base de données ¹ afin de déduire la courbe d'étalonnage du spectromètre.

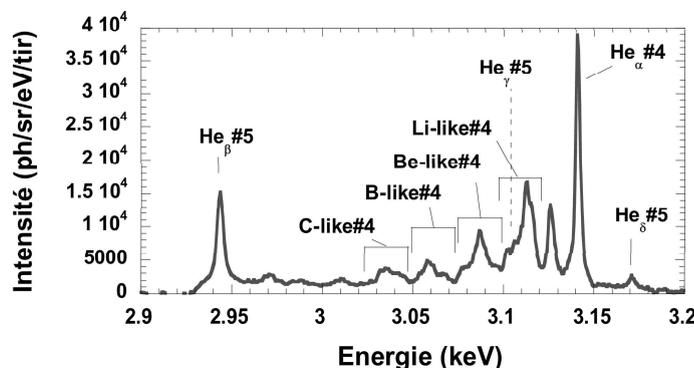


Fig. 3.13: Spectre mesuré à 60 bars pour une impulsion de 500 fs de durée à mi-hauteur et de 3 mJ d'énergie. On observe des raies issues d'ions multi-chargés dans l'ordre 4 de diffraction du cristal de Mica. La raie Hélioïde α_1 est la raie de transition $1s2p(^1P_1) \rightarrow 1s^2(^1S_0)$ de l'ion Ar^{16+} . Des raies d'ordre 5 sont également visibles par recouvrement des ordres de dispersion.

On peut voir sur le spectre de la figure 3.13 la présence de raies d'ordre 4 de diffraction du cristal de Mica. La raie la plus intense à droite du spectre correspond à l'émission de photons X par un ions d'Argon 16 fois ionisé. Il s'agit de la transition Hélioïde α_1 entre l'état singulet $1s2p(^1P_1)$ et l'état fondamental $1s^2(^1S_0)$ (aussi notée w en notation de Gabriel). La raie légèrement plus à gauche est appelée raie Hélioïde α_2 qui correspond à la transition entre l'état triplet $1s2p(^3P_1)$ et l'état fondamental $1s^2(^1S_0)$ aussi appelée raie d'intercombinaison (aussi notée y en notation de Gabriel). En allant un peu plus bas en énergie dans le spectre, on aperçoit un paquet de raies composé de 5 raies de transition (satellites k, j, q, r et $a - d$ en notation de Gabriel). Ces raies sont issues d'ions Ar^{15+} Lithiumoïdes. Dans ce cas, on observe toujours la transition d'un électron de la couche L vers la couche K mais le cortège électronique possède un électron "spectateur" dont la présence décale les niveaux en énergie. Plus à gauche encore, on trouve des raies d'émission provenant d'ions Ar^{14+} Berylliumoïdes (transition toujours identique avec un électron spectateur supplémentaire). En continuant vers les énergies décroissantes, on retrouve des raies d'émission d'ions Ar^{13+} et Ar^{12+} . On aperçoit enfin une raie bien marquée notée He_β qui est en fait une raie de l'ordre 5 de diffraction du cristal de Mica issues de la transition entre l'état $1s3p(^1P_1)$ et l'état fondamental $1s^2(^1S_0)$. Cette raie apparaît sur le spectre à un niveau d'énergie inférieur à sa valeur réelle (d'un facteur 4/5), l'échelle des

¹<http://cfa-www.harvard.edu/amdata/ampdata/kelly/kelly.html>

énergies étant représentée pour l'ordre 4 de diffraction du cristal. On peut voir que cette raie est également accompagnée d'un ensemble de raies d'ordre 5 que sont la raie He_γ et la raie He_δ associées respectivement aux transitions des niveaux $1s4p(^1P_1)$ et $1s5p(^1P_1)$ vers l'état fondamental. L'intensité relative de ces raies décroît avec la diminution de la probabilité d'occurrence de ces transitions liée à l'augmentation de l'énergie de l'état de départ. La calibration a été réalisée à partir de la position obtenue des différentes raies sur la caméra CCD. Nous avons utilisé la raie He_α et la raie d'intercombinaison d'ordre 4 d'une part, ainsi que les raies He_β et He_δ d'ordre 5 d'autre part (*cf.* figure A.1).

Dans le but maintenant d'améliorer notre connaissance de la source, nous avons placé un autre type de diagnostic visant à nous renseigner sur la position et l'extension spatiale à deux dimensions du plasma : l'imagerie sténopée.

3.2.3 Imagerie sténopée

Pour obtenir une information spatiale sur le plasma émetteur, nous avons placé un système d'imagerie sténopée (aussi appelé imagerie pinhole) dont le principe est rappelé en figure 3.14. La lumière émise par la source en direction du système d'imagerie passant dans le trou, éclaire la surface du capteur d'une caméra CCD. Cette lumière forme l'image de la source avec un grandissement γ fonction des distances entre source-trou (a) et trou-détecteur (b) : $\gamma = -b/a$. Ce type de diagnostic permet d'étudier la dimension de la source ainsi que son éventuel déplacement. La résolution sur la mesure de la taille du plasma est liée au rayon du trou placé devant la caméra.

Dans notre cas, il s'agit d'un trou de $23 \mu\text{m}$ de diamètre pratiqué au laser dans une feuille d'inox de $150 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Ce travail a été réalisé à la PALA (Plate-forme d'Application des Lasers en Aquitaine) au moyen d'un laser femtoseconde ($\lambda = 780 \text{ nm}$, $f = 1 \text{ kHz}$ et $P_{\text{moyenne}} = 500 \text{ mW}$) dédié au micro-usinage. Cette feuille est placée au sommet d'un cône de plomb de 270 mm de hauteur ayant pour but de stopper tous les rayonnements X ne passant pas par le trou. L'épaisseur de la feuille nous permet de considérer que les rayonnements d'énergie inférieure à 8 keV ne traversent pas la feuille d'inox. Par ailleurs, l'épaisseur de la feuille est limitée par la technique employée pour la réalisation du trou. Celui-ci constitue un cylindre très fin légèrement conique créé par l'ablation successive par les impulsions laser de couches de matière. Une épaisseur plus grande induit un diamètre de perçage plus grand qui altérerait la résolution. Nous avons utilisé un filtre en mylar de $6 \mu\text{m}$ d'épaisseur aluminisé sur chacune de ses faces par $0,148 \mu\text{m}$ d'aluminium dans le but de stopper les rayonnements éventuels d'énergie inférieure à 800 eV issus de la source, dont le rayonnement diffusé du laser. Ce filtre est placé devant le capteur de la CCD.

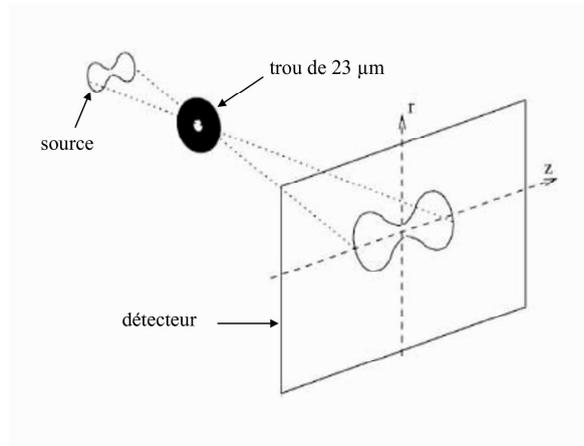


Fig. 3.14: Schéma de principe de l'imagerie sténopée.

3.2.4 Ombroscopie et mesure d'absorption

Ombroscopie

Afin d'observer l'évolution du diamètre du plasma et les éventuels effets liés à la réfraction du faisceau laser dans le jet de gaz, nous avons mis en place un diagnostic d'ombroscopie. Proposée en 1880 par Dvorak [102], cette méthode repose sur la déviation des faisceaux lumineux par un milieu présentant un gradient d'indice lorsque l'on éclaire ce milieu en lumière parallèle. Dans notre cas, on utilise un faisceau sonde doublé en fréquence qui éclaire le plasma transversalement à l'axe de propagation du faisceau principal.

L'indice optique d'un plasma η_{opt} dépend de la densité électronique n_e . Elle est plus grande au centre que sur les bords du plasma (suit à peu près le profil d'intensité laser) $\eta_{opt} = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c}}$ où n_c est la densité électronique critique à la pulsation ω du laser (voir équation 1.4). La déviation des rayons lumineux par le plasma à sa périphérie est issue de cette variation de l'indice optique du milieu (voir figure 3.15). La technique d'ombroscopie consiste à former l'image du plan contenant le plasma sur une caméra CCD au moyen d'une lentille. Les faisceaux collectés par la lentille ayant subi une réfraction par le gradient d'indice sont déviés et ne se focalisent plus au foyer de la lentille. Les faisceaux non déviés se propagent normalement jusqu'à la lentille et sont focalisés normalement. L'image formée a pour particularité de présenter des variations de luminosité liées aux variations d'indice du plasma. Les plus fortes déviations induisent un déficit de lumière en certains points formant une ombre dessinant les contours de l'objet.

On peut exprimer l'angle de déviation d'un faisceau lumineux par rapport à l'axe de propagation Z ayant traversé le milieu de longueur L en fonction de son indice η_{opt} [103].

$$\alpha(x, y) = \int_0^L \frac{1}{\eta_{opt}} \frac{d\eta_{opt}}{dy} dz \quad (3.11)$$

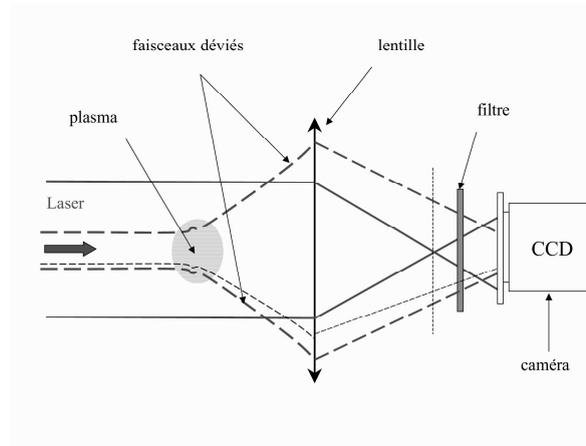


Fig. 3.15: Principe de la technique d'ombroscopie.

Étant donné que l'indice du milieu varie suivant l'axe y , on aura une variation $d\alpha$ de l'angle α telle que $d\alpha = \Delta y \partial\alpha / \partial y$. La variation d'intensité lumineuse sur la caméra se traduira alors par :

$$\frac{\Delta I}{I} = L \left(\frac{1}{\Delta y} \frac{\partial \alpha}{\partial y} \right) \Delta y \quad (3.12)$$

On peut alors écrire l'expression de cette variation en considérant l'équation 3.11 et ainsi :

$$\frac{\Delta I}{I} = L \times \int_0^l \frac{1}{\eta_{opt}} \left(\frac{\partial^2 \eta_{opt}}{\partial y^2} \right) dz \quad (3.13)$$

Sur la figure 3.16, on peut voir l'allure du profil d'intensité attendu par rapport à la densité électronique d'un plasma. D'après l'équation 3.13, l'ombroscopie est sensible à la dérivée seconde de l'indice du milieu. Le profil résultant est formé de deux pics associés à une sur-intensité et de deux dépletions causées par la déviation des rayons lumineux de part et d'autre du gradient de densité électronique. Le diamètre à mi-hauteur du plasma est alors donné par la distance séparant les deux points de passage à la valeur zéro de la dérivée seconde.

A l'aide de la seconde voie de basse énergie du laser, on éclaire le plasma en lumière parallèle à 90° par rapport à l'axe de propagation du faisceau principal. Afin de pouvoir trier le signal d'ombroscopie de celui du laser, et de mieux se propager à travers le plasma, on double la fréquence du faisceau sonde au moyen d'un cristal de BBO de type I. La conversion de fréquence étant très sensible à l'intensité d'éclairement, on place le cristal à la proximité du foyer d'un système focal composé de deux lentilles convergentes sans toutefois se rapprocher trop du foyer pour ne pas endommager le cristal. On récupère le signal issu du plasma au moyen d'une lentille de distance focale de 500 mm ($f_{\#} = 10$) que

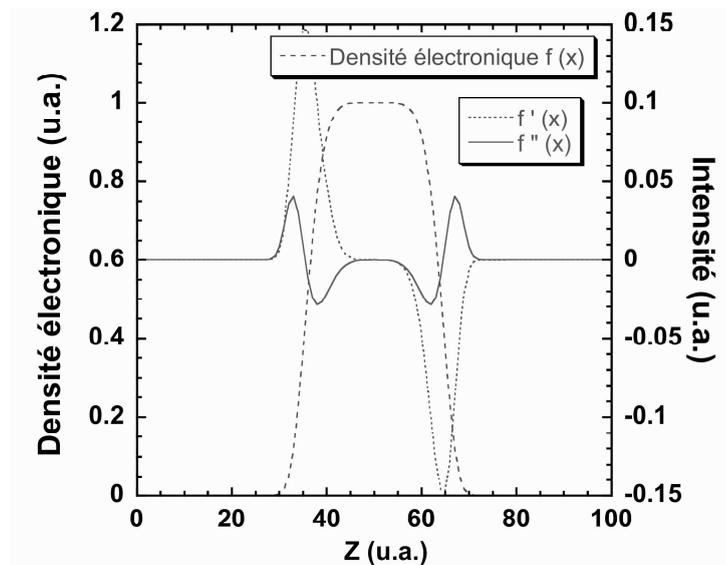


Fig. 3.16: Profil d'intensité ($f''(x)$), attendu par ombroscopie de la densité électronique, d'un plasma.

l'on image sur une camera CCD 16 bits. Un coin de cube motorisé permet de faire varier le délai entre le faisceau principal et le faisceau doublé en fréquence de l'ombroscopie. On peut ainsi sonder le profil du plasma à différents instants par rapport au passage du pulse laser. On place un filtre interférentiel devant la caméra afin de se prémunir de la diffusion à 90° du faisceau principal sur les agrégats. La résolution du système est de $11 \mu m$ par pixel de la CCD.

Cette technique de mesure nous permet de déterminer l'emplacement des bords du plasma et son évolution au cours du temps. On a une résolution à deux dimensions de la forme du plasma ; on peut ainsi étudier le rayon r du plasma à différentes positions le long de l'axe z de propagation du laser.

Mesure d'absorption

Une des propriétés énoncées dans le chapitre 1 sur les agrégats est leur capacité à absorber efficacement l'énergie laser du fait de leur densité. A ce sujet, nous nous sommes intéressé à l'étude de cette absorption en fonction des différents paramètres accessibles.

Nous avons donc développé une méthode de mesure d'absorption de l'énergie laser au moyen d'une sphère diffusante (aussi appelée sphère d'Ulbrich) réalisée par nos soins. Placée le long de l'axe de propagation du laser, juste derrière le jet de gaz, cette sphère a pour but d'intégrer le signal transmis par diffusions successives des photons sur ses parois internes. Celles-ci sont traitées de manière à réfléchir la lumière (revêtement réfléchissant) et, en même temps, la disperser dans toute la sphère (état de surface présentant une rugosité à l'échelle de la longueur d'onde). Un trou est pratiqué à 90° de la face d'entrée,

sur la sphère. Une photodiode permet de mesurer le signal diffusé ayant subi de multiples réflexions sur les parois de la sphère. Par comparaison du signal obtenu en présence de jet de gaz et en son absence, on peut déduire l'énergie absorbée lors de l'interaction avec le jet d'agrégats. La divergence du faisceau après focalisation et traversée du jet peut limiter le signal collecté par rapport au trou pratiqué sur la face d'entrée de la sphère. Afin d'augmenter au maximum l'angle solide de collection, nous avons placé la sphère le plus près possible du jet et nous avons agrandi le diamètre du trou d'entrée de la sphère. Nous avons aussi placé d'autres photodiodes à différents angles de la sphère et comparé les variations du signal diffusé par rapport aux variations enregistrées par la photodiode, placée à 90° . Nous n'avons pas constaté de différence notable en fonction de l'angle. Nous avons également regardé au moyen d'une autre photodiode placée devant le jet, le signal diffusé par le jet ou émis par le plasma. Des mesures préliminaires faites par J. Zweiback *et al.* [30] ont montré que l'intensité diffusée par le plasma était bien inférieure à celle absorbée par celui-ci. La différence de signal mesurée par la photodiode sera donc bien issue de l'absorption par le jet d'agrégat de l'énergie laser.

3.3 Conclusion

Optique de focalisation	Lentille ($f_{\ddagger} = 4$)	Parabole hors-axe ($f_{\ddagger} = 2$)
Énergie	$\simeq 3 \text{ mJ}$	$\simeq 3 \text{ mJ}$
Durée minimale	$50 \pm 10 \text{ fs}$	$42 \pm 5 \text{ fs}$
Intensité maximale (W.cm^{-2})	$(2.8 \pm 0.9) \times 10^{16}$	$(8.9 \pm 1.3) \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$
Taux de répétition	kHz	kHz
Largeur spectrale	20 à 30 nm	20 à 30 nm
Longueur d'onde centrale	(800-810) nm	(800-810) nm
Rayon de la tache focale (I_{max}/e)	$(5.5 \pm 0.8) \mu\text{m}$	$(3.3 \pm 0.3) \mu\text{m}$
Niveau de prépulse à 4 ns	$< 10^{-4}$	$< 10^{-4}$
Niveau ASE	$\sim 10^{-6}$	$\sim 10^{-6}$

Tab. 3.1: Caractéristiques optimales de l'impulsion laser au foyer des différentes optiques de focalisation utilisées.

Au cours de ce chapitre, nous avons décrit les outils expérimentaux mis en place et développés dans le but d'étudier l'interaction d'une impulsion laser avec le jet d'agrégats. Nous avons une bonne connaissance des paramètres de l'impulsion laser (durée, intensités accessibles et contraste). L'ensemble des diagnostics doit permettre une mesure complète de l'évolution du plasma au cours de l'interaction. La vitesse d'expansion peut ainsi être

mesurée par ombroscopie, l'absorption d'énergie au moyen de la sphère diffusante, les températures atteintes, la densité du milieu et les états de charge présents peuvent éventuellement être déterminés à l'aide de l'analyse des spectres X et les dimensions de la zone émettrice peuvent être étudiées par l'imagerie sténopée. Avec la bonne connaissance des conditions expérimentales (nature de l'impulsion et focalisation) et la bonne caractérisation du jet, nous pouvons à présent étudier l'interaction du jet d'agrégats avec l'impulsion laser.

Etude du rayonnement X émis par des agrégats irradiés

Chapitre 4

Etude du rayonnement X émis par des agrégats irradiés

Nous possédons désormais une très bonne connaissance de notre jet d'agrégats. L'impulsion laser intense a également fait l'objet d'une bonne caractérisation. Afin de retirer des informations essentielles sur les propriétés émissives de la source dans le domaine des rayonnements X, nous avons développé un ensemble de diagnostics. Ceux-ci nous ont permis de dégager un certain nombre d'informations concernant la source. Notamment, nous avons pu observer l'influence des paramètres du jet d'agrégats sur l'émission du rayonnement multi-keV. Également, nous avons observé la dépendance de la dynamique de l'interaction avec les paramètres de l'impulsion laser.

Nous présenterons dans ce chapitre les différents résultats obtenus à partir de la source d'agrégats. L'étude de la propagation de l'impulsion laser dans le jet de gaz a fait l'objet d'un travail complet. Nous avons aussi regardé la réponse du milieu aux différents paramètres de l'impulsion laser. Nous allons à présent décrire les propriétés du rayonnement X observé avec ces paramètres que nous venons d'évoquer.

4.1 Propriétés du rayonnement X

Les propriétés d'émissivité (spectrale et temporelle) de la source sont importantes en vue de la définition des applications possibles de celle-ci. Nous avons vu au chapitre 3 l'allure d'un spectre typique (figure 3.13) obtenu dans des conditions permettant une émission de rayonnement X optimale. Nous allons à présent regarder les différents résultats expérimentaux obtenus avec le spectromètre X et les différents diagnostics d'imagerie. Plus particulièrement, nous analyserons les conditions optimales d'émission X. Nous commenterons ensuite l'influence des différents paramètres du laser et du jet d'agrégats sur l'émission du rayonnement X en observant l'évolution de l'intensité de rayonnement de la raie héliumoïde α_1 .

4.1.1 Résultats généraux

L'ensemble des acquisitions réalisées ont été effectuées pendant plusieurs campagnes expérimentales étalées dans le temps. Les systèmes de mesure employés possèdent une très bonne dynamique dans la gamme spectrale étudiée. Ils nous ont ainsi permis d'obtenir un très grand nombre de données au cours de ces travaux de thèse.

La fréquence de tir, bien que limitée à 20 Hz par le pompage, permet tout de même une acquisition rapide du signal à partir du spectromètre X. Le temps d'accumulation est relativement court : on peut obtenir un spectre en seulement 1 minute soit 1200 tirs laser. On accumule pendant plusieurs minutes ($\sim 5 \text{ min}$) le signal reçu sur la caméra CCD du spectromètre et de l'imagerie sténopée. On normalise ensuite le spectre mesuré au nombre de tirs laser. Le laser présente également une dérive de l'énergie disponible dans l'impulsion au cours de la journée associée à l'élévation de la température ambiante. Cette variation est de l'ordre de 10 % de l'énergie. Ceci induit une diminution de près de 40 % de la quantité de photons émis dans le domaine multi-keV au cours d'une journée.

Durant les différentes expériences que nous avons menées, nous avons placé le spectromètre à différents angles (90, 135, 270 et 315°) par rapport à l'axe de propagation du faisceau laser. Nous n'avons pas observé de variation significative du signal enregistré en fonction des différents angles d'observation. Nous en avons déduit que l'émission de la source est isotrope. La densité moyenne du jet étant celle du gaz environnant ($qq_s 10^{19} \text{ at.cm}^{-3}$), il n'y a pas ou peu de ré-absorption de l'émission X dans le jet qui entoure le plasma.

Ces différentes campagnes nous ont aussi permis de constater la fiabilité de la source. Celle-ci était relativement bonne et permet de retrouver aisément la même quantité de signal d'une série à l'autre avec des conditions expérimentales optimales voisines. Par ce biais, il est possible de s'assurer que les conditions de l'expérience sont inchangées. On a pu ainsi rapidement se rendre compte d'éventuels défailances de la chaîne laser ou de l'électrovanne du jet pendant nos séries de mesures.

4.1.2 Effet de la polarisation du laser

L'effet de la polarisation de l'onde laser sur l'émission de rayonnement peut jouer un rôle important dans la considération des mécanismes de chauffage invoqués par les différents modèles. En effet, certains mécanismes de chauffage par le champ, comme le chauffage ATI, sont sensibles à l'état de polarisation de l'onde laser. En revanche, les mécanismes de chauffage collisionnels, comme le Bremsstrahlung inverse sont insensibles à la polarisation. L'énergie des électrons acquise lors de la collision est égale à l'énergie d'un photon, valeur qui n'est pas modifiée par l'état de polarisation. L'étude de la réponse du milieu à la variation de la polarisation de l'onde peut donc nous renseigner sur le "poids" de chacun de ces mécanismes l'un par rapport à l'autre. Nous avons vu au Chapitre 1.1.1 que les résultats présentés se contredisent parfois.

Afin de s'assurer de l'influence de la polarisation sur l'émission du rayonnement X, nous avons disposé sur le parcours de l'impulsion, avant la lentille de focalisation, une lame biréfringente quart d'onde ($\lambda/4$). Celle-ci nous permet de contrôler la polarisation de l'onde incidente en faisant varier l'angle entre les axes principaux de la lame et l'axe de polarisation de l'onde laser incidente. Suivant l'orientation de la lame, la polarisation de l'impulsion après la lame pourra varier, allant d'une polarisation linéaire à une polarisation circulaire en passant par une polarisation elliptique. Nous nous intéresserons uniquement à l'étude des cas où la polarisation est soit linéaire dans le plan de propagation du faisceau, soit circulaire. Les effets de dispersion associés à la traversée de la lame sont *a priori* minimales (du fait de la faible épaisseur de la lame $\sim 1 - 2 \text{ mm}$) et peuvent être pré-compensés dans le compresseur. La valeur de la durée mesurée et la durée minimale accessible restent donc valables.

Nous n'avons pas observé d'effet de la polarisation du laser sur l'émission de rayonnement X (même nombre de photons et allure de spectre inchangée) dans la gamme de longueurs d'ondes considérée pour des agrégats de $\sim 250 \text{ \AA}$ de rayon moyen. Nous avons constaté que le nombre de photons X obtenu en polarisation circulaire (*i.e.* lorsque les axes de la lame sont à 45° par rapport à la polarisation de l'onde incidente) est identique à celui obtenu en polarisation linéaire. Par ailleurs, l'observation des spectres n'a révélé aucun changement entre une impulsion polarisée linéairement et une impulsion polarisée circulairement. Les états de charges observés sont les mêmes que sur la figure 3.13. Les rapports de raies ne varient pas entre les deux états de polarisation du laser.

Ce résultat peut sembler *a priori* étonnant au regard des processus d'ionisation en champ fort qui initient l'ionisation des atomes de l'agrégat. L'ionisation tunnel étant fortement affectée par la polarisation du laser, on s'attend à une modification de l'état de charge moyen des atomes. Les mécanismes d'ionisation des atomes constituant le milieu et le chauffage des électrons par le champ semblent basés sur les mécanismes collisionnels comme invoqué par Ditmire *et al.* [7]. Cette constatation remet en cause les hypothèses du modèle CEMM proposé par McPherson *et al.* qui considère principalement les mécanismes d'ionisation par le champ pour expliquer les états de charge anormalement élevés produits dans des agrégats.

4.1.3 Analyse des spectres

On a pu constater précédemment sur un spectre type (figure 4.1) que les états de charge obtenus sont très élevés, jusqu'à de l'Ar¹⁶⁺. Ces états de charge sont obtenus avec des intensités laser de quelques $10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$. Un atome seul plongé dans le champ laser ne peut être ionisé suffisamment par les mécanismes d'ionisation classiques. Un tel état de charge ne peut être atteint qu'à partir d'une intensité laser de $10^{19} \text{ W.cm}^{-2}$ en considérant ces mécanismes. D'autre part, l'énergie d'oscillation d'un électron libre dans un champ

laser à $10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ est de l'ordre de la centaine d'eV et ne peut suffire à former des lacunes en couche K par simple collision. La production de ces états de charge nécessite des températures électroniques de plusieurs centaines d'eV. L'émission de rayonnement X de couche K n'aura lieu que si le milieu présente un nombre significatif d'électrons possédant des énergies de l'ordre de quelques keV . Le mécanisme de couplage entre l'onde laser et l'agrégat est donc très efficace pour permettre un chauffage aussi important des électrons du milieu.

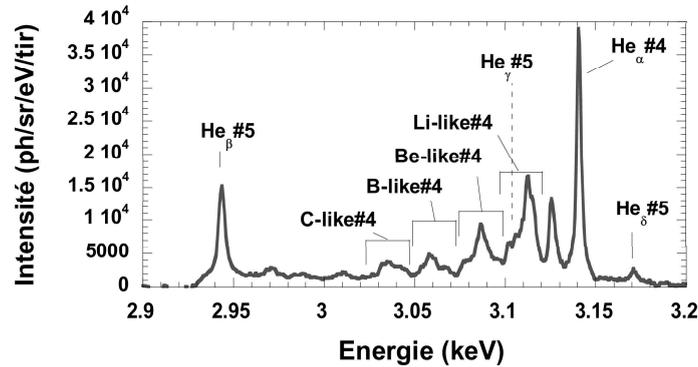


Fig. 4.1: Spectre mesuré à 60 bars pour une impulsion de 500 fs de durée à mi-hauteur et de 3 mJ d'énergie. On observe des raies issues d'ions multi-chargés dans l'ordre 4 de diffraction du cristal de Mica. La raie Héliumoïde α_1 est la raie de transition $1s2p(^1P_1) \rightarrow 1s^2(^1S_0)$ de l'ion Ar^{16+} . Des raies d'ordre 5 sont également visibles par recouvrement des ordres de dispersion.

Notons au passage que nous observons un nombre très varié d'états multi-chargés de l'Argon sans observer d'émission de raie K_α dite "froide" autour de $2,96 \text{ keV}$ provenant de transitions de la couche L vers la couche K. Ceci traduit bien la forte excitation du plasma émetteur dont tous les atomes ou presque ont été ionisés. La forte densité locale des agrégats permet une multitude de collisions électrons-ions pendant la durée de l'impulsion laser. Par chauffage collisionnel du plasma, les électrons acquièrent une énergie suffisante pour ioniser fortement les ions et y induire des lacunes en couche interne. L'absence de raie K_α provient également du fait que les électrons arrachés aux agrégats et qui parviennent à s'en extraire ne rencontrent pas ou peu de matière froide environnante. La densité du jet de gaz étant voisine de celle d'un gaz, la probabilité de collision avec un atome froid du jet reste trop faible pour permettre la création de lacunes en couche K suivie de l'émission de raie K_α "froide".

Le barycentre des raies d'émission de couche K du spectre (moyenne pondérée des intensités relatives de chaque raie) se situe autour de $3,1 \text{ keV}$. Cette énergie correspond à

peu près à l'ensemble des raies émises par des ions Ar^{15+} . Mais aussi, elle tend vers l'énergie de la raie He_α à $3,1425 \text{ keV}$. Le seuil d'ionisation nécessaire pour passer de l'Argon 16 fois ionisé à l'Argon 17 fois ionisé est beaucoup plus élevé que celui requis pour former de l'Argon 16 fois ionisé à partir d'argon 15 fois ionisé. Comme nous n'avons pas observé d'émission d'ions Ar^{17+} , on en déduit que l'état de charge correspondant à l' Ar^{16+} est proche de la saturation qui intervient, pour cet état, lorsque tous les ions sont ionisés au moins 16 fois.

Afin de rendre compte de l'évolution de l'émission X avec les différents paramètres de l'interaction, nous référencerons, dans toute la suite du manuscrit, l'intensité du rayonnement X émis à l'intensité de la raie Hélioïde α_1 . Ceci a pour but de faciliter la lisibilité des variations lors de l'optimisation des différents paramètres de l'interaction, dans les cas où la distribution des états de charge reste quasi-identique. Nous préciserons les variations de l'allure du spectre le cas échéant.

4.1.4 Nombre de photons

A partir de la bonne connaissance de la densité du jet, du positionnement de la source par rapport au jet, de la mesure de son extension par l'imagerie sténopée et du nombre de photons enregistré par le spectromètre, nous avons déterminé le nombre total de photons émis par la source, en intégrant spectralement le signal mesuré dans des conditions optimales ($P_0 = 40 \text{ bars}$, $\Delta t_{\text{laser}} = 500 \text{ fs}$, $E_{\text{laser}} = 3 \text{ mJ}$, focalisation en bord de jet) :

- on pose les bornes de cette intégrale en considérant l'émission de couche K de $2,98 \text{ keV}$ à $3,15 \text{ keV}$, soit un nombre total de photons émis en couche K dans tout l'angle solide de $2,9 \times 10^7 \text{ photons/tir}$.
 - on considère que le volume émetteur s'étend sur un cylindre de $(500 \pm 100) \mu\text{m}$ à mi-hauteur de longueur (dans le cas de la lentille, mesuré sur l'imagerie sténopée) et sur environ $(30 \pm 10) \mu\text{m}$ à mi-hauteur de rayon (mesuré par ombroscopie juste après le passage de l'impulsion), ce qui correspond à $\sim 1.4 \times 10^{-6} \text{ cm}^3$. Rigoureusement, ce volume ne correspond pas à un cylindre (effets de propagation et d'absorption). La figure obtenue sur l'imagerie sténopée semble indiquer que la forme la plus adaptée serait un ballon de rugby.
 - la densité moyenne d'agrégats à la position du plasma, c'est-à-dire en bord du jet ($z = 2,2 \text{ mm}$) est de $10^{11} \text{ agr.cm}^{-3}$.
- ⇒ Le nombre moyen d'agrégats contenus dans le volume émetteur est d'environ $1,4 \times 10^5 \text{ agrégats}$ et le nombre de photons X émis par agrégat de 250 \AA est alors de $\sim 200 \text{ photons}$.
- ⇒ On a donc environ 10^{-4} photon de couche K en moyenne par atome agrégé. Toutes les désexcitations des atomes ne se font pas forcément de façon radiative. Si l'on tient

compte du taux de fluorescence pour l'Argon (dépend de l'état de charge considéré), on peut estimer que l'on a créé des lacunes en couche K dans environ 0,02 % des atomes initialement agrégés.

⇒ L'énergie totale émise sous forme de photons de 3 keV est alors de 12 nJ par tir laser.

⇒ Le rendement de conversion de l'énergie laser en photons est de 4×10^{-6} soit une valeur 5 ordres de grandeurs supérieure aux résultats obtenus par Dobosz *et al.* qui ont obtenu un rendement de $1,7 \times 10^{-11}$ dans des jets de faible densité [27].

La densité d'agrégats présente dans le jet semble avoir largement permis d'augmenter le rendement de conversion de l'énergie du laser en énergie de rayonnement X. Toutefois, ces résultats optimaux sont obtenus en focalisant le faisceau en bord du jet de gaz où la densité d'agrégats n'est pas la plus élevée. Nous allons à présent voir pourquoi on ne parvient pas à obtenir un rendement plus grand lorsque l'on focalise au centre de notre jet dense.

4.2 Phénomènes de propagation du laser dans le jet

Un des paramètres qu'il a fallu optimiser pour obtenir une émission X maximale est la focalisation du faisceau laser dans le profil de densité du jet d'agrégats. Dans le chapitre 2, nous avons mesuré ce profil. Il est uniforme au centre du jet (pour notre buse conique), autour de l'axe de symétrie et décroît à mesure que l'on s'éloigne du centre du jet (voir figure 2.6). Afin d'atteindre le maximum de rayonnement X à partir du volume focal, il semble être nécessaire de focaliser l'impulsion laser au centre du jet de gaz où la densité d'agrégats est maximale. Nous avons fait varier la position du jet par rapport au plan du foyer sous vide de la lentille ou de la parabole. Le support de la buse est placé sur des platines motorisées qui permettent un déplacement sur trois axes de celle-ci. L'évolution de l'intensité du rayonnement X obtenue est représentée en figure 4.2 en fonction de la distance entre l'axe de symétrie du jet et le plan de focalisation du laser. On constate sur le graphe que l'émission augmente à mesure que l'on rapproche le jet du plan de focalisation du laser, c'est-à-dire, à mesure que la densité de gaz et donc d'agrégats augmente au foyer du laser. L'émission atteint un maximum en bord du jet d'agrégats avant de diminuer ensuite à mesure que l'on essaie de focaliser de plus en plus profondément dans le jet.

Le profil de densité des agrégats étant uniforme dans tout le jet, on ne peut expliquer la variation d'intensité X par une variation du nombre d'émetteurs au sein du volume focal. Nous en avons déduit qu'il y avait un problème de propagation du laser dans le jet lié à la forte densité de celui-ci. Étant donné que tous les atomes du jet ne sont pas à l'état agrégé, il reste une densité de gaz résiduel importante qui peut déformer la caustique

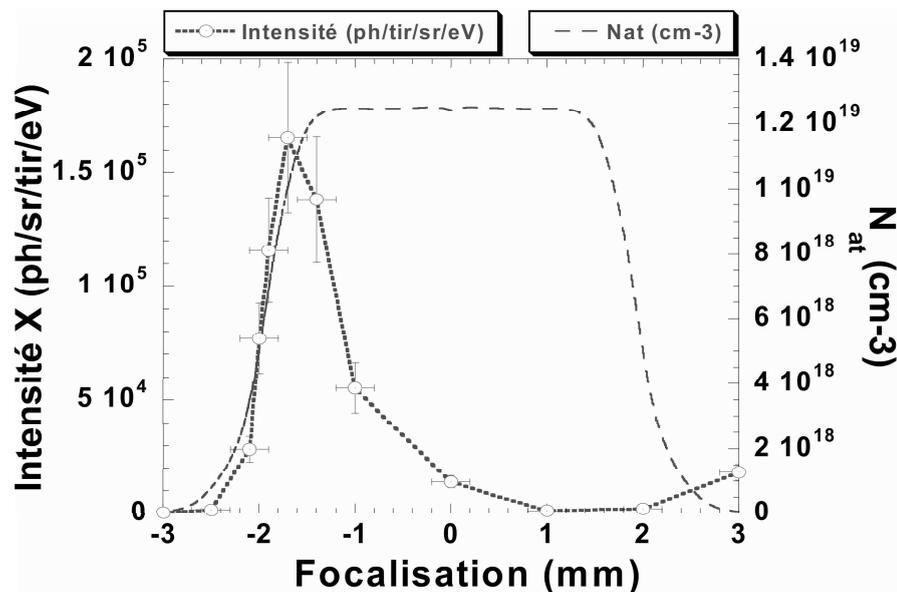


Fig. 4.2: Evolution de l'émission X (raie He_{α}) en fonction de la profondeur de focalisation pour une pression de 60 bars en amont du jet et une durée laser de 350 ± 30 fs et une énergie laser de 4 mJ.

du faisceau laser. Il s'en suit une diminution de l'intensité laser accessible au foyer et le chauffage des agrégats peut alors être moins efficace.

Afin de quantifier ce problème, nous avons réalisé une étude de la propagation de l'impulsion laser dans le jet contenant à la fois des atomes agrégés et non agrégés. Nous avons calculé analytiquement et numériquement l'effet de la défocalisation dans le jet.

4.2.1 Problématique

L'étude de l'interaction d'une impulsion laser intense avec un jet de gaz a été étudiée depuis de nombreuses années déjà [104], [105]. Les effets de la réfraction de l'impulsion laser liée à la densité du jet ont été mesurés expérimentalement [106], [107], [108], [75], et, depuis lors, reproduits de façon théorique par des codes [109], [110]. Suivant le régime d'interaction, il existe plusieurs phénomènes pouvant agir sur la propagation du faisceau. Ainsi, dans le cas des impulsions laser de fortes intensités ($I_{laser} > 10^{18} - 10^{19} W.cm^{-2}$), on assiste à des phénomènes d'auto-focalisation relativiste [111], [112], [113]. Pour des intensités plus modestes ($I_{laser} < 10^{18} W.cm^{-2}$), la réfraction (défocalisation du faisceau laser) altère la propagation de l'impulsion. Sous l'effet de l'intensité laser, l'ionisation des atomes du gaz conduit à la constitution d'un plasma (d'indice optique au centre $n_{opt} < 1$ et d'indice aux bords ≥ 1) qui agit comme une lentille divergente sur la propagation du faisceau. Ceci a pour effet de décaler en amont sur l'axe de propagation du laser l'emplacement de la focalisation du faisceau et le waist accessible devient plus grand.

L'intensité maximale au foyer est alors diminuée. La réfraction est d'autant plus grande que la densité d'électrons libres est grande.

Afin de déterminer l'effet lié à la présence d'agrégats dans le jet sur la propagation de l'impulsion, une étude théorique a été menée pour évaluer la contribution à l'indice de réfraction du milieu [114]. Les propriétés optiques d'un plasma d'agrégats y sont étudiées afin d'estimer la valeur de l'indice de réfraction statique (sans considérer l'expansion des agrégats) du milieu constitué du mélange gaz-agrégats. D'autres études ont montré de manière théorique la possibilité de guider une impulsion laser sur plusieurs fois la longueur de Rayleigh en ionisant partiellement un milieu contenant des agrégats [115]. De son côté, J. W. Tisch a calculé la dépendance temporelle de la dispersion de vitesse de groupe (GVD : Group Velocity Dispersion) liée à un milieu entièrement agrégé interagissant avec une impulsion laser intense femtoseconde [39]. Il a considéré l'influence de l'explosion des agrégats sur l'indice optique du milieu et déterminé les conditions d'accord de phase dans le milieu pour l'optimisation de la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

Des mesures faites par interférométrie présentent l'évolution du déphasage d'une impulsion sonde dans le milieu ionisé [116]. Le déphasage ainsi que l'absorption sont étudiés en fonction de différents rayons d'agrégats autour de 250 Å. Cette mesure est résolue temporellement et présente un optimum d'absorption ainsi qu'une variation de la phase avec la taille des agrégats. Ces résultats sont comparés aux résultats du code de H. Milchberg *et al.* et semblent en bon accord [9].

Plus récemment, les observations faites par I. Alexeev *et al.* montrent un effet d'auto-focalisation d'une impulsion laser intense ($I_{max} = 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ et $\Delta t = 100 \text{ fs}$) qui se propage dans un jet d'agrégats [117]. Les travaux menés par A. Gupta *et al.* ont depuis permis de confirmer de manière théorique cet effet d'auto-focalisation de l'impulsion laser dans un milieu entièrement agrégé [118]. N. Zhavorova *et al.* ont de leur côté simulé la propagation de l'onde laser dans un gaz contenant des agrégats [119]. Ces simulations montrent un phénomène d'auto-focalisation dès lors que la puissance de l'impulsion laser excède la puissance critique P_c d'auto-focalisation qui apparaît quelle que soit l'homogénéité du milieu (quelle que soit la valeur du taux de condensation η).

Les travaux menés concernant les effets de propagation dans un jet d'agrégats semblent donc indiquer que la contribution à l'indice du milieu constitué par le mélange entre le gaz et les agrégats diffère suivant les propriétés optiques du milieu macroscopique constitué par les seuls agrégats (qui a tendance à focaliser l'impulsion) ou du gaz (qui favorise la réfraction du faisceau). Étant donné que seulement 1/4 des atomes de notre jet de gaz sont à l'état agrégé (taux de condensation $\eta = 0,25$), la majeure partie du jet est constituée de gaz. L'ionisation du milieu, constitué à la fois de gaz et d'agrégats, par l'impulsion laser va, *a priori*, influencer la propagation du faisceau dans le jet. On se propose d'étudier à présent cette influence et d'estimer la contribution de chacune des deux phases (gaz et agrégats) sur l'indice optique du milieu. Nous analyserons les conséquences de la propagation sur la

source d'émission X des agrégats et les effets sur les conditions de l'interaction.

4.2.2 Etude préliminaire

Le foyer d'un faisceau laser est déterminé par le lieu où les surfaces d'onde sont planes, c'est-à-dire lorsque la différence de phase entre le centre du faisceau et le rayon en $1/e$ est nulle. On se propose dans cette partie de réaliser l'étude de l'influence de l'ionisation du milieu constitué d'atomes agrégés et d'atomes résiduels à l'état gazeux sur la propagation de l'onde. On se place pour ce calcul dans le système CGS.

Afin de déterminer l'influence de la traversée d'un milieu sur la propagation d'un faisceau laser, il convient de connaître l'équation de dispersion de ce milieu donnant la dépendance de l'indice de réfraction avec la fréquence de l'onde.

L'indice optique est relié à la racine carrée de la constante diélectrique du milieu (*i.e.* $n_{opt-tot}^2 = \varepsilon$). Dans le cas d'un plasma, cette constante s'exprime en fonction des densités électronique n_e et critique n_c tel que :

$$\varepsilon = 1 - \frac{n_e}{n_c} \frac{1}{\left(1 + i \frac{\nu_{ei}}{\omega}\right)} \quad (4.1)$$

Dans un plasma sous-critique, $n_e \ll n_c$ par définition, $\nu_{ei} \ll \omega$ et, en l'absence d'absorption, on a alors :

$$\varepsilon \simeq \varepsilon_r \simeq 1 - \frac{n_e}{n_c} \quad (4.2)$$

On peut aussi écrire la constante diélectrique en fonction de la susceptibilité χ du milieu [87] :

$$\varepsilon = 1 + 4\pi\chi \quad (4.3)$$

Pour un plasma gazeux, la susceptibilité est alors donnée par :

$$\chi_{gaz} = -\frac{1}{4\pi} \frac{n_e}{n_c} \quad (4.4)$$

Plaçons-nous à présent dans le cas d'un agrégat ionisé. Si la densité d'électrons par agrégat $n_{e/ag}$ est telle que $n_{e/ag} \gg n_c$, alors la constante diélectrique devient :

$$\varepsilon_{ag} = 1 - \frac{n_{e/ag}}{n_c} \ll 0 \quad (4.5)$$

Le champ à l'intérieur de l'agrégat \vec{E}_{int} est donné par la relation 1.2. Cette expression peut également s'écrire en fonction des densités et donne :

$$\vec{E}_{int} = \frac{3n_c}{3n_c - n_{e/ag}} \vec{E}_{ext} \quad (4.6)$$

La susceptibilité au sein de l'agrégat ionisé s'écrit :

$$\chi_{ag} = -\frac{1}{4\pi} \frac{n_{e/ag}}{n_c} \quad (4.7)$$

Le moment dipolaire total d'un agrégat s'écrit :

$$\vec{P}_{ag} = \chi_{ag} \cdot V_{ag} \cdot \vec{E}_{int} \quad (4.8)$$

où V_{ag} est le volume de l'agrégat, soit :

$$\vec{P}_{ag} = -R_{ag}^3 \times \frac{n_{e/ag}}{3n_c - n_{e/ag}} \vec{E}_{ext} \quad (4.9)$$

avec R_{ag} le rayon de l'agrégat.

En identifiant avec $\vec{P} = \alpha \vec{E}_{ext}$, on obtient la polarisabilité d'un agrégat α_{ag} :

$$\alpha_{ag} = Z_{ag}^* N_{at/ag} \frac{1}{n_{e/ag} - 3n_c} \frac{3}{4\pi} \quad (4.10)$$

où Z_{ag}^* est l'ionisation moyenne de l'agrégat et $N_{at/ag}$, le nombre d'atomes par agrégat.

La susceptibilité totale d'un ensemble macroscopique d'agrégats ionisés, au tout début de l'interaction, est alors égale à (voir calcul détaillé en annexe B) :

$$\chi_{gaz-ag} = \frac{n_{ag} \times \alpha_{ag}}{1 - \frac{4\pi}{3} n_{ag} \alpha_{ag}}, \quad (4.11)$$

avec n_{ag} la densité d'agrégats.

Et pour un mélange constitué d'agrégats et de gaz, la susceptibilité totale $\chi_{tot} = \chi_{gaz} + \chi_{gaz-ag}$ s'écrit :

$$\chi_{tot} = -\frac{1}{4\pi} \frac{n_e}{n_c} + \frac{3}{4\pi} Z_{ag}^* \times \frac{\eta n_{tot}}{n_{e/ag}}, \quad (4.12)$$

Cette expression est une approximation et considère qu'au début de l'interaction, $\frac{N_{tot}}{n_{e/ag} - 3n_c} \ll 1$. Le calcul complet est donné en annexe B. En considérant à présent que la densité électronique n_e peut s'exprimer par $n_e = Z_{gaz}^* (1 - \eta) n_{tot}$, on peut écrire l'expression 4.12 sous la forme :

$$\chi_{tot} = \frac{n_{tot}}{4\pi} \left[\frac{-Z_{gaz}^* (1 - \eta)}{n_c} + \frac{3Z_{ag}^* \eta}{n_{e/ag}} \right], \quad (4.13)$$

On peut voir dans l'équation précédente que la partie droite de l'équation est la composante liée aux agrégats ionisés et contribue de façon positive (*i.e.* de manière focalisante), alors que l'autre partie, à gauche, correspondant à la phase gazeuse ionisée, contribue

de façon négative (*i.e.* de manière défocalisante) en ce qui concerne la propagation du faisceau.

Tout ceci donne pour l'indice de réfraction du milieu, en considérant la quantité $2\pi\chi_{tot} \ll 1$, en associant les expressions 4.3 et 4.13 :

$$\begin{aligned} n_{opt-tot} - 1 &\simeq \frac{1}{2}(n_{opt-tot}^2 - 1) = \frac{1}{2}(\varepsilon - 1) = 2\pi\chi_{tot} \\ &= \frac{n_{tot}}{2} \left[\frac{-Z_{gaz}^*(1-\eta)}{n_c} + \frac{3Z_{ag}^*\eta}{n_{e/ag}} \right] \end{aligned} \quad (4.14)$$

En remplaçant à présent $n_{e/ag}/Z_{ag}^*$ par n_{ag} , on obtient finalement :

$$n_{opt-tot} - 1 \simeq -\frac{n_{tot}}{2} \frac{Z_{gaz}^*}{n_c} \left[(1-\eta) - \frac{3\eta n_c}{n_{ag} Z_{gaz}^*} \right] \quad (4.15)$$

Lorsque l'on étudie la propagation d'une onde laser dans un gaz ionisé, en présence d'un fort gradient radial de densité électronique (au sein du plasma), les rayons lumineux sont défléchis vers les zones de fort indice, c'est-à-dire vers l'extérieur du plasma (dans le cas d'un profil de densité électronique du plasma plus grand au centre). Ce gradient induit un déphasage $\delta\varphi_e$ entre le centre (où le milieu est ionisé) et les bords du faisceau (où aucune densité électronique n'est présente) en plus du déphasage naturel $\delta\varphi_n$ provenant de la focalisation d'un faisceau gaussien. Le déphasage total $\Delta\varphi_{tot}$ entre les bords du faisceau et le centre du faisceau est donné par la somme des termes $\delta\varphi_e + \delta\varphi_n$.

Le déphasage $\delta\varphi_e(z)$ intégré sur une longueur δz introduit par la présence du jet et du plasma formé est alors :

$$\delta\varphi_e(z) = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta n \cdot \delta z, \quad (4.16)$$

où λ est la longueur d'onde, $\Delta n \simeq 1 - \sqrt{1 - \frac{n_c}{n_e}}$ le gradient d'indice associé au gradient de densité radial entre l'axe et le bord du plasma (où $n_{opt} = 1$) et δz la longueur sur laquelle ce déphasage est intégré.

Le déphasage lié à la propagation dans le plasma étant proportionnel à l'indice de réfraction, ce dernier sera positif si et seulement si la quantité entre crochets dans l'expression 4.15 est négative.

Par la suite, le déphasage total $\Delta\varphi_{tot}$ étant la somme des termes $\delta\varphi_e$ et $\delta\varphi_n$, suivant le signe et la valeur de $\delta\varphi_e$, on aura une défocalisation (*i.e.* $n_{opt-tot} < 1$) et au contraire, une re-focalisation de l'onde si $n_{opt-tot} > 1$.

Dans notre jet, on a $\eta = 0,25$, $n_c \simeq 1,75 \times 10^{21} \text{ e}^- \cdot \text{cm}^{-3}$, on estime $Z_{gaz}^* \simeq 8$ et $Z_{ag}^* \simeq 10 - 12$ et pour des agrégats de 250 \AA , la densité d'atome dans l'agrégat est $n_{ag} \simeq 3 \times 10^{22} \text{ at} \cdot \text{cm}^{-3}$. Les quantités de gauche et de droite entre crochet dans l'expression (4.15) ont alors initialement pour valeur respectives $0,75$ et -5×10^{-3} . On peut

ainsi voir que la contribution de la partie agrégats du jet est négligeable sur l'indice de réfraction. Le déphasage sera alors fortement positif et la réfraction du faisceau liée à l'ionisation du gaz résiduel très importante dans notre cas, du moins tout au début de l'interaction avant l'explosion des agrégats.

L'interaction du faisceau laser semble donc conduire à une réfraction du faisceau sous l'effet de l'ionisation du gaz résiduel dans notre jet. Cet effet sera d'autant plus important que l'on focalise dans le jet (où la densité est plus grande de même que la distance parcourue dans le jet). La génération de rayonnement X semble donc être plus favorable en bord du jet à cause de cette réfraction liée à la forte densité de gaz ionisé présente dans cette géométrie de jet d'agrégats. Il faut noter que tous ces résultats supposent que le milieu constitué d'agrégats et d'atomes à l'état gazeux vient d'être ionisé par le passage du champ laser et reste très dense. A ce stade, on considère que l'expansion des agrégats n'est pas encore initiée. Une étude rapide de l'évolution de la susceptibilité totale en fonction de la densité au sein des agrégats est présentée en annexe B. Ce modèle considère également que la résonance a lieu autour de $3n_c$. De plus, un taux de condensation plus grand peut conduire à des variations de la susceptibilité et donc du déphasage. Dans ce cas, à la résonance, on peut éventuellement rencontrer des phénomènes de re-focalisation du faisceau comme observé expérimentalement par I. Alexeev *et al.* [117].

4.2.3 Effets de la profondeur de focalisation

Nous avons réalisé une série de mesures en faisant varier la position relative du jet de gaz par rapport au plan de focalisation du faisceau sous vide (figure 4.3). Nous avons mesuré son influence sur les spectres de couche K, sur l'absorption de l'énergie laser et sur l'imagerie pinhole à différentes pressions (20, 40 et 60 *bars*) en amont de la buse.

Sur l'émission X

En observant l'intensité du rayonnement X en fonction de la distance de focalisation du laser par rapport à l'axe de symétrie du jet, nous avons constaté que l'émission était optimale en focalisant en bord du jet (voir figure : 4.2). Cet optimum évolue avec la pression du jet et se déplace vers l'extérieur du jet lorsque l'on augmente la pression en amont de la buse (voir figure 4.4). Ce phénomène a déjà été observé dans des jets d'Argon irradiés par une impulsion laser femtoseconde intense [120].

On constate qu'avec une pression de 20 *bars* en amont du jet, la diminution de l'intensité rayonnée à mesure que l'on pénètre plus en avant dans le jet est moindre par rapport aux pressions plus élevées de 40 et 60 *bars*. L'intensité du rayonnement émis en bord du jet augmente avec la pression du jet.

L'effet de la réfraction de l'impulsion laser par la densité de gaz résiduel ionisé semble

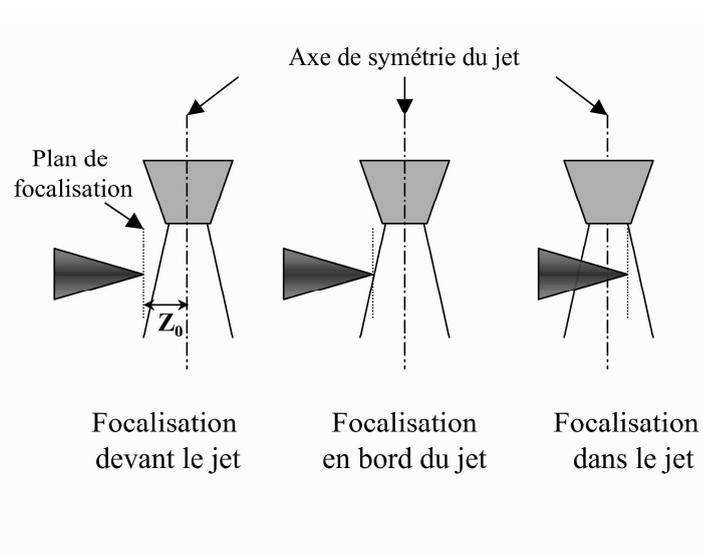


Fig. 4.3: Schémas de principe de l'expérience de variation de la profondeur de focalisation. Z_0 représente la distance entre le foyer théorique sous vide et l'axe de symétrie du jet.

influencer la production de rayons X. Plus on focalise le faisceau loin dans le jet, plus la densité d'agrégats augmente, plus la densité de gaz non agrégé augmente et plus la longueur de propagation dans le plasma jusqu'au foyer augmente. Les simulations indiquent que la proportion d'atomes non agrégés reste homogène dans tout le jet ($\eta = 25\%$). Le rapport des contributions à l'indice optique de la phase gazeuse et de la phase agrégat restent donc les mêmes (cf. expression 4.15). Finalement, plus on focalise loin dans le jet et plus la réfraction de l'impulsion laser sera grande.

En outre, plus la réfraction est importante, plus le rayon minimal accessible augmente, et plus l'intensité laser diminue au foyer. A ce stade, deux effets peuvent entrer en compétition pour l'émission de rayonnement X. D'une part, le volume focal peut augmenter sous l'effet de la réfraction et contribue à l'augmentation du nombre de rayons X émis (par l'augmentation du nombre d'émetteurs) et, d'autre part, la diminution de l'intensité laser accessible diminue le nombre de rayons X par la limitation de l'intensité laser accessible et du volume où cette intensité est supérieure au seuil d'émission (on suppose ici qu'il existe un seuil en intensité en deçà duquel on ne crée plus de lacunes en couche interne).

Tant que la réfraction n'est pas trop importante, on a une augmentation de l'émission X avec la profondeur de focalisation dans le jet par accroissement de la densité d'agrégats dans le volume focal. A partir d'un certain point, la réfraction devient trop importante et l'intensité laser accessible au foyer devient trop faible pour permettre la génération de rayonnement X. Cette limite dépend de la densité de gaz vue par l'impulsion et dépend donc de la pression en amont du jet.

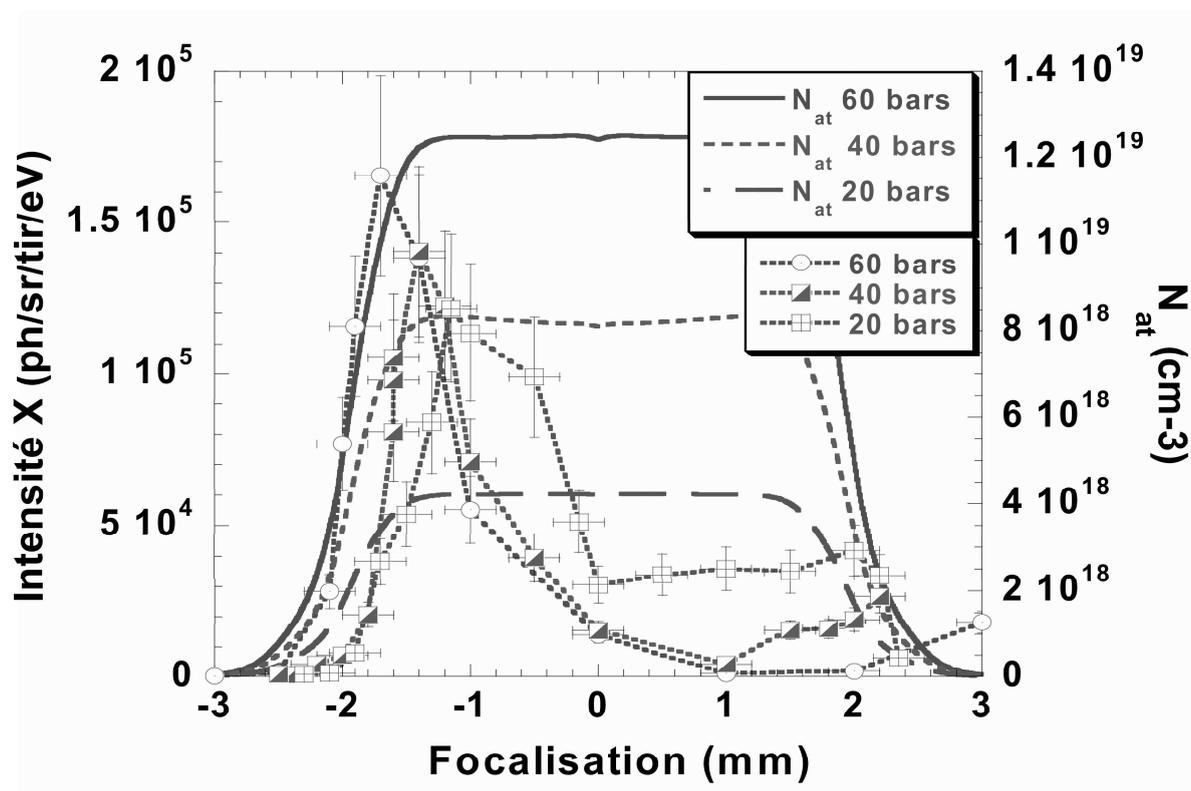


Fig. 4.4: Influence de la profondeur de focalisation par rapport à l'axe du jet de gaz sur l'émission du rayonnement X pour 20, 40 et 60 bars de pression en amont de la buse. La durée de l'impulsion laser est de 350 ± 50 fs et une énergie laser de 4 mJ.

Des résultats similaires ont également été observés par Zweiback *et al.* [40] dans l'émission de neutrons sur des jets denses d'agrégats de deutérium cryogénés. Ils ont observé une émission optimale de neutrons en focalisant l'impulsion laser en bord du jet d'agrégats de deutérium. L'émission de neutrons augmentait avec la pression du jet et la position du maximum s'écartait du centre du jet à mesure que la pression augmentait. La réfraction est également invoquée comme éventuellement responsable de ces observations.

Nous venons de voir les limites de la focalisation sur l'émission du rayonnement X. Quels sont à présent les effets de la focalisation sur l'absorption de l'énergie du laser ?

Sur l'absorption de l'énergie laser

En observant l'énergie laser absorbée par le jet d'agrégats (au moyen de la sphère intégrante) en fonction de la position du foyer laser par rapport à l'axe du faisceau (figure 4.5), on constate que cette absorption est très faible ($\sim 20\%$) lorsque l'on focalise le faisceau en dehors du jet de gaz. À mesure que l'on pénètre dans le jet, l'absorption diminue jusqu'à s'annuler puis augmente fortement avec la densité totale jusqu'à atteindre environ 90% de l'énergie laser disponible dans l'impulsion. Nous n'avons pas pour l'heure d'interprétation pouvant expliquer la diminution de l'absorption en bord du jet. Cette diminution peut éventuellement être associée à un effet de l'angle de collection de la sphère de Ulbrich. Celle-ci ne collecte peut-être pas tout le signal lorsqu'elle est trop éloignée du foyer laser et la présence du jet augmente la réfraction du faisceau.

L'évolution de l'absorption avec la focalisation reste identique avec la variation de la pression en amont de la buse. L'exploration en profondeur dans le jet est limitée par le débattement de la translation mécanique permettant le déplacement du jet de gaz par rapport au foyer laser (encombrement de la sphère diffusante).

On peut supposer qu'une part importante de l'énergie laser est diffusée dans le jet par les agrégats. Afin de vérifier cette éventualité, nous avons placé une photodiode à 90° de l'axe de propagation du faisceau laser. Nous n'avons pas constaté de variations notables du signal diffusé par rapport à la profondeur de focalisation dans le jet.

La comparaison des mesures en émission X (figure 4.4) et en absorption (figure 4.5) permet de dire qu'il y a une position pour laquelle, le rendement de conversion entre l'énergie laser absorbée par le jet d'agrégats et le nombre de photons de rayonnement X émis est optimal. La réfraction de l'impulsion par le jet de gaz permet certes d'expliquer la diminution de l'émissivité du plasma autour de 3 keV mais cette hypothèse ne permet pas d'interpréter le fait que l'absorption de l'énergie laser reste très élevée même pour de grandes profondeurs de focalisation.

Une interprétation possible pour expliquer la diminution de l'émission X lorsque l'on focalise plus loin dans le jet consiste à considérer que la réfraction implique un éclatement de la caustique du faisceau laser. Ceci se traduit par une augmentation du volume dans

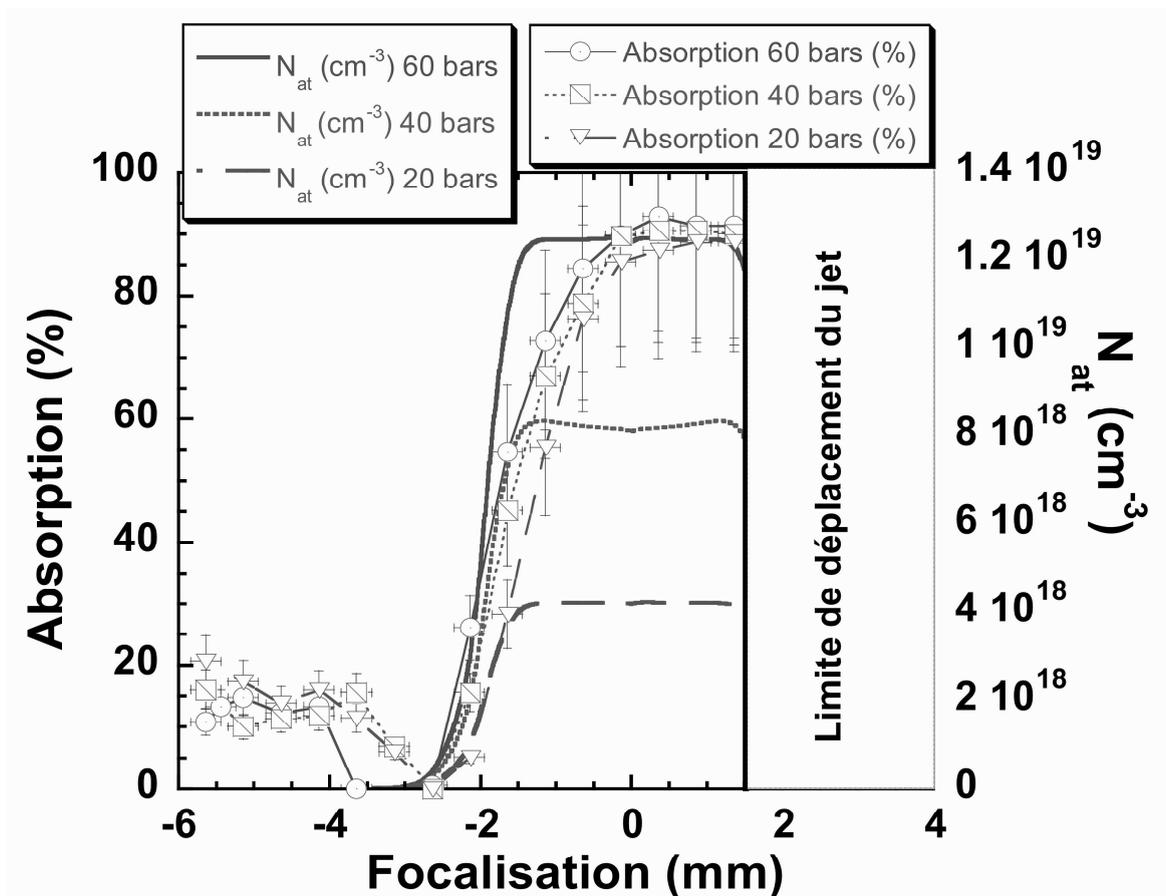


Fig. 4.5: Evolution de l'absorption de l'énergie laser dans le jet d'agrégats avec la profondeur de focalisation par rapport à l'axe du jet comparé au profil de densité total. Pour les différentes pressions (20, 40 et 60 bars), la durée de l'impulsion laser est de 600 ± 50 fs et l'énergie laser totale est ici de 2,6 mJ.

lequel on dépose l'énergie laser. Mais elle a aussi pour effet de diminuer l'intensité laser accessible dans le volume focal. Ainsi, on a une absorption moyenne par agrégat localement plus faible mais un nombre d'agrégats impliqué beaucoup plus grand, ce qui se entraîne une absorption de l'énergie encore élevée. D'un point de vue des rayons X, la diminution de l'énergie déposée dans les agrégats diminue l'énergie acquise par les électrons et par la même, la probabilité de créer des lacunes en couche K. On observe alors une diminution du nombre de rayons X émis.

Sur l'imagerie pinhole

Le diagnostic d'imagerie pinhole permet d'observer spatialement la zone d'émission X du plasma avec une bonne résolution (égale au diamètre du trou situé au sommet du cône de plomb $\simeq 20 \mu m$). Nous avons enregistré l'évolution du plasma dans le domaine des X (autour de $3 keV$) afin de retirer une information sur la tendance du déplacement de la zone émettrice par rapport à la focalisation du laser.

Initialement, l'imagerie pinhole ne permet pas de repérer en absolu la position du plasma par rapport au jet de gaz. Ce système d'imagerie n'étant sensible que dans le domaine des rayons X (à cause du filtre placé devant la caméra CCD), on n'enregistre que l'émission du plasma et le repérage absolu de la buse n'est, de ce fait, pas possible. A l'aide de la connaissance des grandissements respectifs de l'imagerie pinhole et de l'ombroscopie (diagnostic permettant de visualiser la buse), nous avons superposé les images de chacun des diagnostics afin de repérer en absolu l'imagerie sténopée par rapport au profil du jet. La figure 4.6 présente la comparaison des profils de chaque système. On peut voir que le plasma obtenu par ombroscopie est plus étendu que celui obtenu par la caméra pinhole. Cette différence provient du seuil en intensité de chacun des phénomènes observé par les diagnostics qui ne mesurent pas directement les deux mêmes phénomènes. L'ombroscopie est sensible à la densité électronique du milieu ionisé et donc l'ombre s'étend sur des dimensions correspondant au seuil de première ionisation de l'Argon. L'imagerie pinhole détecte l'émission de photons X. La création de lacunes en couches internes des atomes d'Argon requiert une intensité plus grande; elle est *a priori* plus élevée que l'intensité permettant la première ionisation de l'Argon.

Nous sommes parvenus à déduire en absolu, avec une incertitude relativement correcte ($\simeq \pm 100 \mu m$), la position du plasma mesurée par l'imagerie sténopée. On peut maintenant observer l'évolution de ce plasma par rapport au jet en fonction de la focalisation.

La figure 4.7 montre l'évolution du profil du plasma intégré (suivant l'axe vertical) avec la position du foyer laser sous vide relative à l'axe jet de gaz pour une pression de $60 bars$ en amont de la buse. La durée laser de $420 fs$ est quasi-optimale. La focalisation est obtenue au moyen de la lentille de distance focale $f = 200 mm$. On observe sur cette figure un déplacement de la zone émettrice avec l'avancée du plan de focalisation dans le

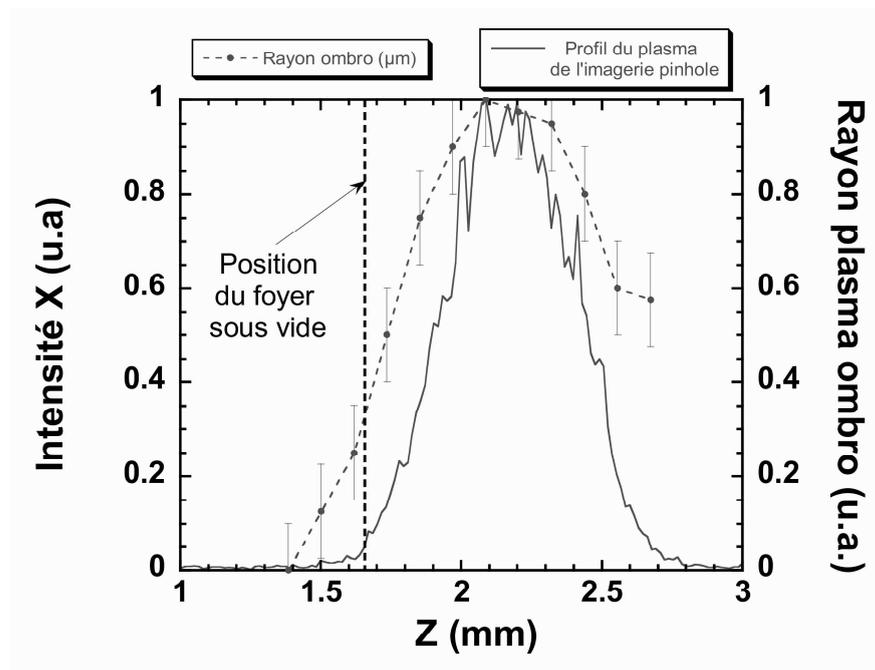


Fig. 4.6: Profil d'émission X obtenu par mesure pinhole et par ombroscopie. La pression en amont de la buse est de 60 bars et la durée laser de 420 fs. L'énergie laser contenue dans l'impulsion est de 2,75 mJ.

jet. L'intensité émise évolue avec une même tendance que celle du spectromètre X (section 4.2.3) : on a une émission maximale en focalisant en bord du jet. Malgré, l'intégration sur la hauteur du plasma, le rapport signal sur bruit reste relativement faible. On observe également que les différentes positions du foyer sous vide ($Z_0 = 2,24$ mm, $Z_0 = 1,94$ mm, $Z_0 = 1,74$ mm, etc...) sont différentes des positions centrales de la zone émettrice. Dans chaque cas, celle-ci est placée en amont du foyer sous vide, principalement en bord du jet. On peut supposer qu'il s'agit ici d'un effet de la réfraction. Celle-ci a tendance, sous l'effet de l'ionisation de la densité de gaz résiduel, à déplacer le foyer et la zone où l'intensité laser est maximale en amont du faisceau (vers le bord du jet dans le cas présent).

A partir de ces profils, on peut tracer ce déplacement en fonction de la focalisation dans le jet. On observe sur la figure 4.8 le déplacement du profil de la zone émettrice (distance entre le centre du plasma et le plan de focalisation du laser sous vide) en fonction de la distance Z_0 entre le foyer théorique sous vide et le centre du jet pour une pression de 20 bars. On peut voir qu'initialement, lorsque l'on focalise en amont du jet, le plasma se forme après le foyer laser, sur le bord du jet, dans une zone où il y a une densité de particules et une fluence suffisantes pour former un plasma. A mesure que l'on avance le jet vers le plan de focalisation du faisceau, la position du plasma évolue peu. Puis, si l'on focalise plus loin dans le jet, la position du plasma évolue jusqu'à se rapprocher du centre du jet.

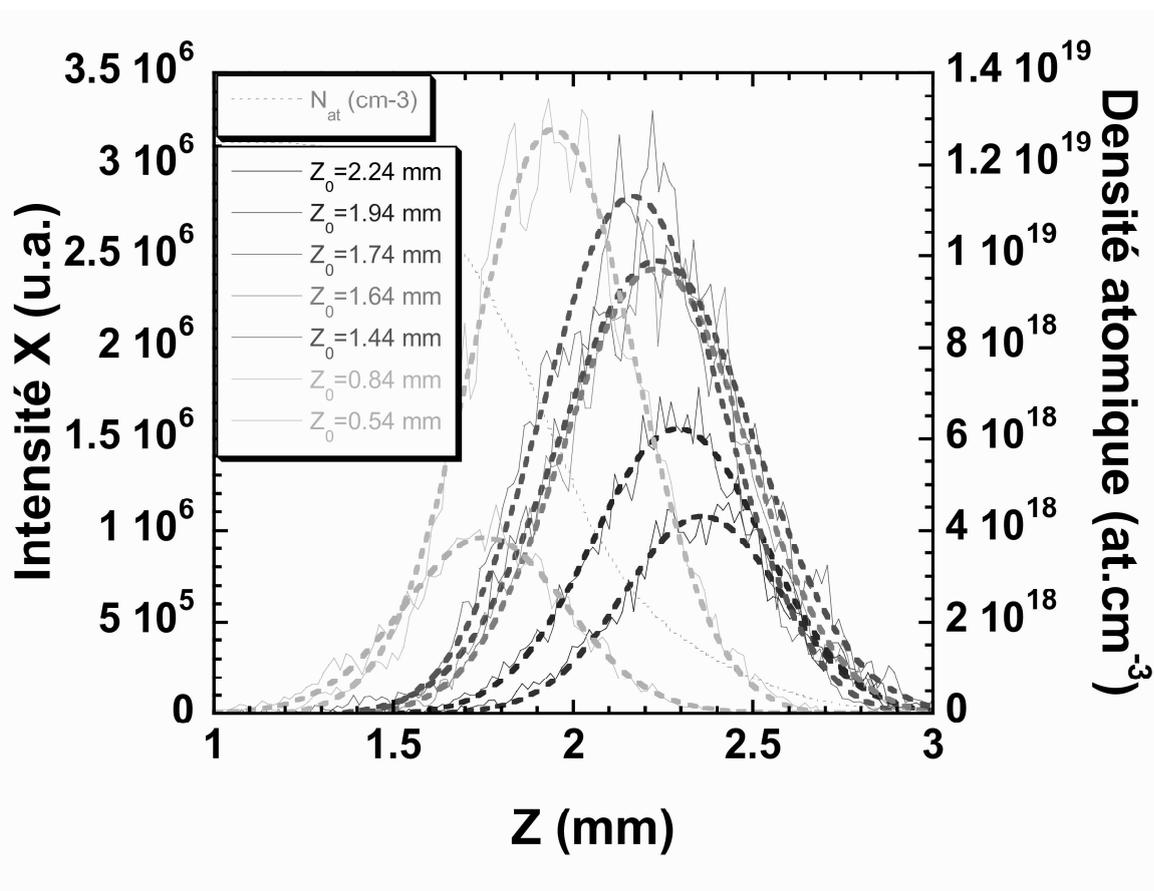


Fig. 4.7: Evolution du profil intégré de l'émission X mesuré par l'imagerie pinhole pour une pression de 60 bars en amont du jet et une durée laser de 420 fs à différentes positions de focalisation Z_0 par rapport au centre du jet. L'optique de focalisation est ici la lentille de focale 200 mm et l'énergie contenue dans l'impulsion est de 2,75 mJ.

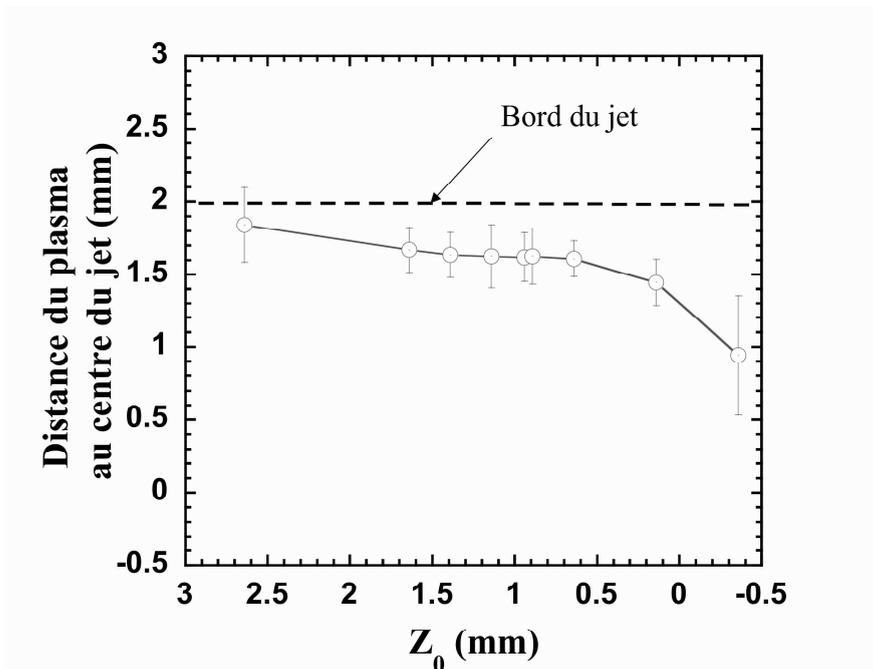


Fig. 4.8: Evolution de la position de la zone émettrice du plasma obtenue par mesures pinhole à 20 bars en fonction de la position Z_0 du plan de focalisation dans le jet.

Nous avons en fait observé que **le plasma reste principalement en bord du jet**. Puis, celui-ci avance dans le jet à partir d'un certain point mais, dans ce cas, l'intensité du rayonnement X est alors faible, proche de la limite de détection de l'imagerie.

La réfraction semble donc agir sur la position du plasma. Elle **limite cette position au bord du jet d'agrégats**. Cet effet empêche le faisceau d'interagir avec une densité maximale d'agrégats et altère probablement l'intensité laser accessible.

Par ailleurs, nous avons observé que le nombre intégré de photons obtenus avec la caméra pinhole ne coïncidait pas avec celui obtenu par le spectromètre X de près de deux ordres de grandeur. On a mesuré un total de $1,2 \times 10^8$ photons/tir/sr avec une pression de 40 bars en amont du jet et une durée laser de 420 fs contre $1,8 \times 10^6$ photons/tir/sr incidents sur le spectromètre dans les mêmes conditions. Cet écart est trop important pour être assimilé à un problème de calibration de l'un ou l'autre des appareils. L'hypothèse d'une émission très intense du plasma dans le domaine XUV (couche L de l'Argon) pourrait expliquer cette tendance, étant donné que les filtres en Mylar aluminisé placés devant la caméra CCD de l'imagerie pinhole possèdent une fenêtre de transmission relative dans cette gamme de longueurs d'onde, autour de 250 eV.

Afin de s'assurer de l'importance de ce problème, nous avons effectué des mesures en ajoutant un filtre identique à celui placé devant la caméra CCD (voir figure 4.9). Il s'est avéré que le signal obtenu sur la caméra CCD diminuait avec une loi différente de

celle attendue dans le cas d'une émission uniquement située autour de 3 keV . Nous avons obtenu un nombre de photons total intégré de $6,8 \times 10^7 \text{ photons/tir/sr}$ en ajoutant un filtre supplémentaire contre $1,2 \times 10^8 \text{ photons/tir/sr}$ sans cet ajout. Si l'on considère une transmission du filtre de 85 % autour de 3 keV , on s'attend plutôt à une valeur de $10^8 \text{ photons/tir/sr}$. La fenêtre de transmission des filtres en Mylar aluminisé, bien que plusieurs ordres de grandeurs en dessous de la transmission nominale du filtre, suffit à laisser passer assez de photons pour altérer, d'une part, la forme du plasma et, d'autre part, la quantité de photons reçus sur la caméra. De plus, on distingue sur la figure 4.9, que l'émission XUV se fait principalement vers l'arrière du plasma, où l'intensité laser est normalement la plus faible, après la position du foyer. En considérant que la transmission du filtre autour de 250 eV est de 0,004 %, on estime à partir des mesures précédentes que l'émission de photons dans cette gamme est d'environ $10^{10} \text{ photons/tir/sr}$.

On constate tout de même que l'allure du profil enregistré avec un filtre supplémentaire ne modifie pas ou peu l'allure du profil intégré en hauteur. Cette explication ne suffit pas non plus à rendre totalement compte de la différence importante du nombre de photon enregistré entre les deux diagnostics.

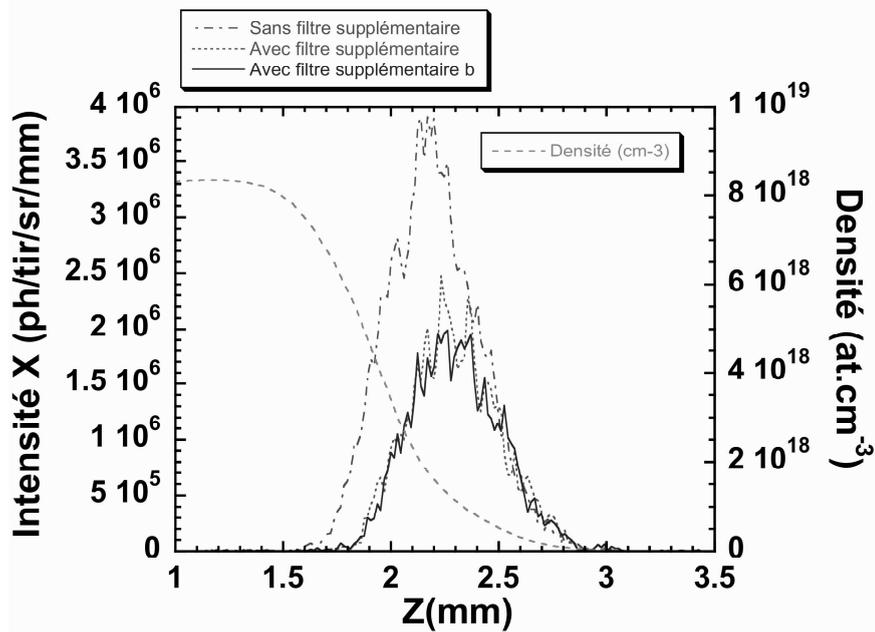


Fig. 4.9: Effet de l'ajout d'un filtre supplémentaire en Mylar aluminisé devant l'imagerie sténopéée.

Les photons émis autour de 250 eV induisent donc la perte de l'information sur le profil du plasma enregistré avec l'imagerie sténopéée. L'utilisation d'un filtre en Béryllium (tel que celui utilisé sur le spectromètre de Johann) permet de prévenir de la contribution du

rayonnement XUV sur le profil du plasma et ainsi d'espérer pouvoir utiliser ce diagnostic comme vérification de la loi de puissance avec l'intensité laser. Ceci impose également de se prémunir des effets de la réfraction dans une analyse future.

Forts de ces observations, nous avons cherché à confirmer nos hypothèses concernant la réfraction au moyen de calculs réalisés avec le code WAKE mis à notre disposition par P. MORA du CPHT (Centre de PHysique Théorique) de l'École Polytechnique. Nous avons mené une série de calculs de la propagation d'une impulsion laser intense dans un jet de gaz non agrégé.

4.2.4 Simulations du code WAKE

Pour rendre compte, de manière théorique, de nos observations expérimentales, nous avons effectué des simulations de la propagation d'une impulsion laser dans un jet de gaz au moyen d'un code dédié à ce type d'étude : le code WAKE. Ce code relativiste a été initialement développé par P. Mora et T. Antonsen [121], [109]. C'est un code 2D à symétrie cylindrique. Il simule l'évolution d'un plasma sous-dense sous l'action d'une impulsion laser de très haute intensité et décrit la propagation de celle-ci. Le code WAKE part d'un modèle cinétique pour le plasma. Le code est capable de simuler l'ionisation d'un milieu gazeux à partir des taux d'ionisation tunnel ADK (Ammosov, Delone, Krainov [64]) et calcule de manière auto-consistante l'amplitude du champ et la densité électronique. Il décrit principalement l'impulsion électromagnétique et simule son évolution et celle du plasma dans lequel elle se propage. Il permet de résoudre radialement l'évolution temporelle du champ et de visualiser les modifications de l'impulsion induites par l'ionisation. Le code ne considère qu'une "boîte", ayant l'un de ses côtés parallèle à la direction de propagation de longueur multiple de la longueur temporelle de l'impulsion, et l'autre côté de la boîte, dans la direction transverse, de largeur multiple du rayon caractéristique du faisceau.

La simulation a lieu en deux temps : on commence par faire évoluer les électrons en supposant l'impulsion "figée" et on fait ensuite avancer la boîte de simulation dans le sens de propagation, puis on calcule la déformation de l'impulsion dans la nouvelle configuration du plasma que l'on vient de déterminer. Cette séparation du calcul revient à faire l'approximation quasi-statique, qui suppose le temps de transit des électrons dans l'impulsion petit devant le temps caractéristique d'évolution de celle-ci.

Les grandeurs sont normalisées dans le code de façon à être sans dimension. Le code est à symétrie cylindrique autour de l'axe de propagation afin de limiter le temps de calcul. Il possède un grand nombre de sorties : partie réelle du champ, partie imaginaire du champ, carré du module du champ, ionisation moyenne, etc...

Le code WAKE simule uniquement l'ionisation et la propagation dans un milieu gazeux et ne peut en aucun cas rendre compte des phénomènes associés aux agrégats présents dans

notre jet. Nous faisons ici l'hypothèse que la contribution du gaz à l'indice optique n_{opt} dans notre jet est prépondérante aux premiers instants de l'interaction avant l'expansion des agrégats, comme calculé en section 4.2.2.

On s'intéressera, pour ce qui nous concerne, au module du champ et à la densité électronique du milieu, le tout en 2D pour étudier la réfraction de l'impulsion.

Nous avons effectué des calculs à l'aide du code WAKE en y insérant les données correspondant à la densité totale de notre jet et son extension. Le jet est simulé par un profil trapézoïdal de densité que l'on déplace par rapport au plan théorique de focalisation du faisceau. La figure 4.10 représente l'évolution du champ laser en fonction de la profondeur de focalisation par rapport au jet pour une pression de 60 *bars* en amont de la buse ($n_e = 2,2 \times 10^{20} e^- .cm^{-3}$). La focalisation du faisceau est considérée en prenant la valeur de l'ouverture de l'optique expérimentale. La durée de l'impulsion laser est de 400 *fs* à mi-hauteur et son énergie de 3 *mJ*. Le champ laser est reconstitué à partir de l'intégration temporelle de l'impulsion à différents plans de la propagation. Sur cette figure on peut voir l'état du profil du champ en 2D tout d'abord en l'absence de jet puis à différentes positions du jet par rapport au plan de focalisation théorique qui se situe en $Z/Z_R = 0$. On observe sur les différentes images une déformation du profil d'intensité avec une diminution progressive de l'intensité laser au foyer à mesure que l'on focalise de plus en plus dans le jet. On observe aussi un élargissement du rayon minimal accessible. De même, la position du waist du faisceau initialement positionné en $Z/Z_R = 0$ recule sur l'axe de propagation z à mesure que la focalisation se fait de plus en plus près de l'axe de symétrie du jet. Lorsque l'on regarde l'intensité maximale accessible pour une position dite optimale d'émission X à 60 *bars* (vers $Z_0 = 1,64$ *mm*), on se rend compte que l'intensité laser n'excède pas $10^{15} W.cm^{-2}$ alors que l'intensité laser maximale accessible sous vide en l'absence de jet est de $1,2 \times 10^{16} W.cm^{-2}$. Il semble donc que, même lorsque l'émission du rayonnement est maximale, on rencontre déjà des problèmes liés à la réfraction. On ne peut donc être certain de l'intensité laser accessible dans ce cas.

Le code nous renseigne également sur l'ionisation du milieu. Cette ionisation donne la forme à deux dimensions du plasma créé. A l'aide de cette donnée, nous avons représenté en figure 4.11 l'évolution de la position du plasma par rapport au foyer théorique du faisceau en fonction des différentes distances étudiées expérimentalement ($Z_0 = 2,24$ *mm*, $Z_0 = 1,94$ *mm*, $Z_0 = 1,74$ *mm*, etc..) séparant l'axe de symétrie du jet et l'emplacement théorique du foyer sous vide. On peut faire sur ce graphe les mêmes observations que celles faites sur la figure 4.8. On constate qu'initialement, le plasma se forme en bord du jet lorsqu'on focalise en amont du jet. Ensuite, plus on avance le jet, plus la position du plasma s'écarte de l'emplacement du foyer théorique sous vide, comme observé précédemment avec l'imagerie sténopée. On s'aperçoit qu'après une certaine distance le plasma finit par

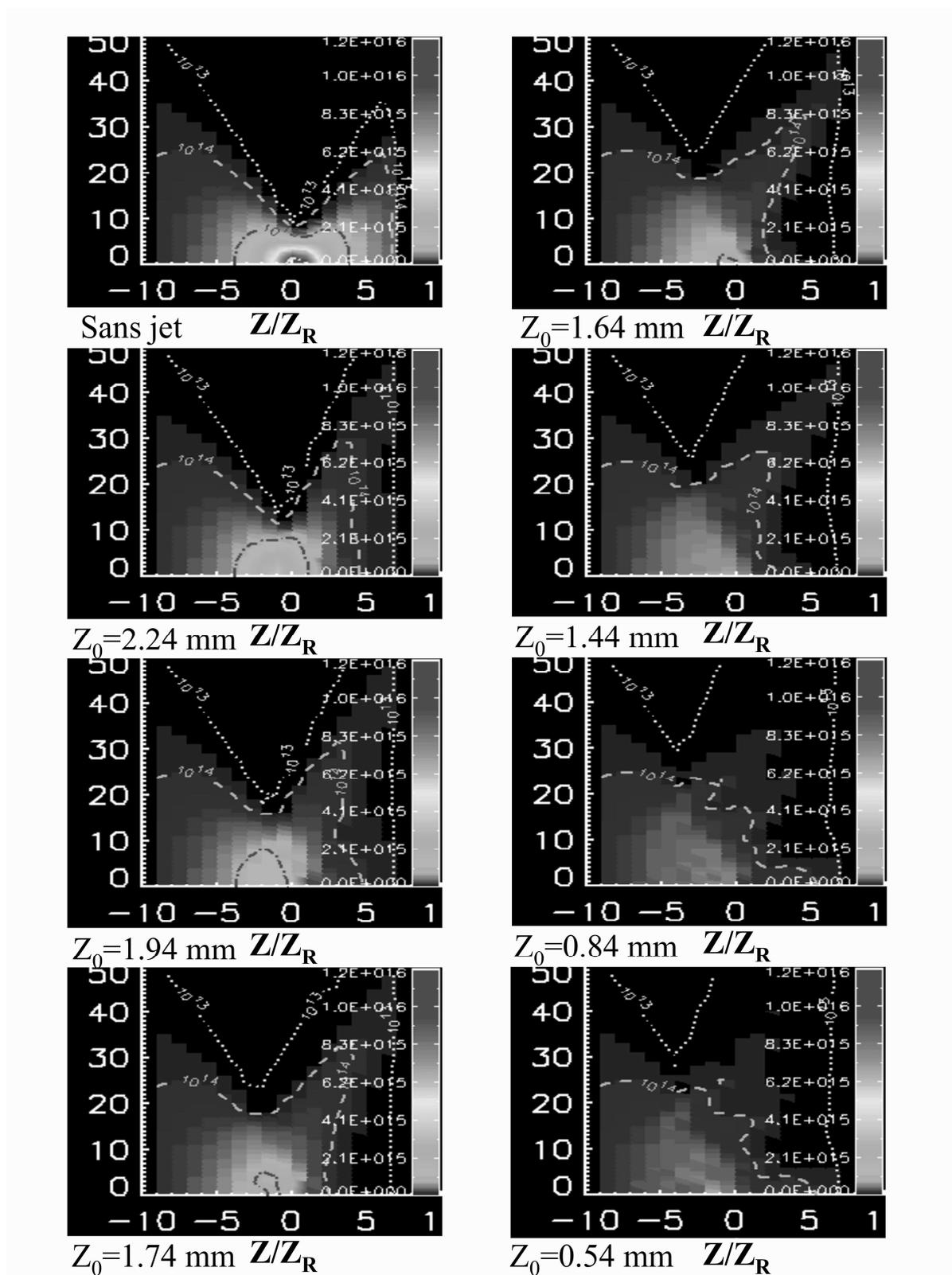


Fig. 4.10: Evolution du faisceau avec la focalisation dans le jet Z_0 pour une pression de 60 bars et une durée laser de 400 fs dans le cas de la parabole hors-axe. L'énergie laser est de 3 mJ.

progresser dans le jet (vers 0,5 mm du centre du jet). Le calcul semble confirmer les observations expérimentales et semble montrer que la réfraction a tendance à maintenir le plasma sur le bord du jet. Cet effet semble d'autant plus prononcé que la pression est grande.

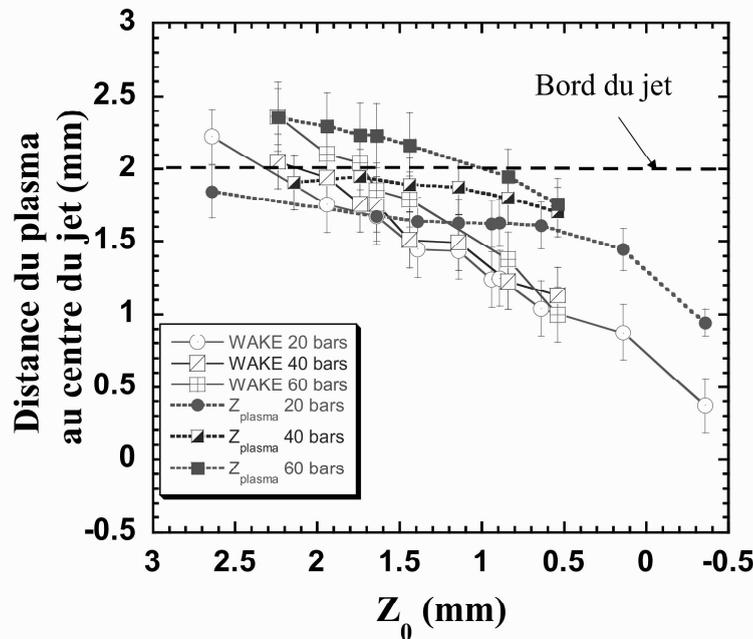


Fig. 4.11: Comparaison de la position de la zone émettrice du plasma obtenue par mesures pinhole et par calculs WAKE à 20, 40 et 60 bars en fonction de la position du plan de focalisation Z_0 dans le jet.

Néanmoins, dans le cas de l'imagerie pinhole, on observe un plus grand déplacement, notamment pour des positions de focalisation extrêmes par rapport au bord du jet. La réfraction semble avoir un effet plus important que celui estimé par le code WAKE. Il est possible que le degré d'ionisation du milieu soit en fait plus grand que celui calculé par le code. En effet, le code considère uniquement les phénomènes d'ionisation du gaz. On a vu par l'analyse des spectres que les agrégats sont très fortement ionisés. La présence d'agrégats peut augmenter le degré d'ionisation moyenne du milieu qui est estimé à $Z^* = 10$ [7] alors que le calcul WAKE donne une ionisation maximale du gaz de $Z^* = 6$.

Nous avons analysé également l'évolution de la position du plasma mesurée en ombroscopie (10 ps après le passage de l'impulsion principale) en fonction de la focalisation. La figure 4.12 montre une comparaison de l'image du plasma obtenue en ombroscopie et par imagerie sténopée à différentes distances Z_0 entre le plan de focalisation du laser sous vide et le centre de symétrie du jet. On aperçoit sur ces images que le plasma est en bord du jet tant que la focalisation se fait à l'extérieur du jet, pour les positions $Z_0 = 2,14$

et, $Z_0 = 1,85 \text{ mm}$. Dès lors que l'on focalise plus en profondeur dans le jet, le plasma est maintenu en bord du jet par la réfraction, pour les positions $Z_0 = 1,64$, $Z_0 = 1,39$ et $Z_0 = 1,14 \text{ mm}$. Après, lorsque l'on poursuit l'avancée du jet par rapport au foyer sous vide, le plasma progresse alors dans le jet, pour les positions $Z_0 = 0,64$, $Z_0 = 0,14$ et $Z_0 = -1,36 \text{ mm}$. On constate aussi à partir de cet instant, sur les images d'ombroscopie, un allongement important du plasma formé. Ces images semblent confirmer la tendance décrite par les modélisations du code WAKE, à savoir la formation d'un plasma en bord de jet tant que l'effet de la réfraction par la densité de gaz résiduel ionisé n'est pas trop importante.

La réfraction du faisceau par le jet est donc confirmée à la fois expérimentalement par plusieurs diagnostics et de manière théorique par nos différents calculs et simulations. Il est donc important de contrôler cet effet si l'on veut se prémunir d'une trop forte diminution de l'intensité laser accessible pouvant entraîner une altération des propriétés émissives de notre source.

4.2.5 Conclusion

La cible étudiée est constituée à la fois d'agrégats et de gaz (à hauteur de 75 %). L'ionisation des agrégats par le champ laser a tendance à contribuer de manière focalisante à la propagation du faisceau dans le jet. En revanche, le gaz résiduel agit comme une lentille divergente sous l'effet de l'ionisation par l'impulsion laser. Dans notre jet, la contribution du gaz semble l'emporter sur celle des agrégats. Lorsque le gradient radial de densité électronique est trop grand, le faisceau laser est alors réfracté. Le volume focal pourra alors être fortement perturbé. Cet effet a pour conséquence principale de limiter l'intensité laser accessible et donc d'altérer l'efficacité de l'émission.

Nous avons mis en évidence expérimentalement et par le calcul l'importance du contrôle de la position de focalisation par rapport au jet de gaz. La présence de gaz non agrégé semble être responsable de l'altération de la propagation du faisceau et nous restreindre à focaliser l'impulsion laser en bord de jet où la densité d'agrégats reste relativement faible.

Comme nous venons de le voir dans cette partie, les phénomènes de propagation dans le jet et notamment la réfraction peuvent jouer un rôle important même lorsque l'émission X de la source est maximale. L'idée d'un nouveau système de buse possédant des paramètres de taux de condensation suffisamment grand pour compenser l'effet de la réfraction par le gaz résiduel est envisagée. Ceci nécessite la conception d'un nouveau type de jet avec une nouvelle caractérisation des propriétés de densité et de taille des agrégats.

Les mesures effectuées par la suite seront faites pour une position de focalisation optimale par rapport au jet de gaz pour chacune des pressions étudiées par la suite, à savoir 20, 40 et 60 bars.

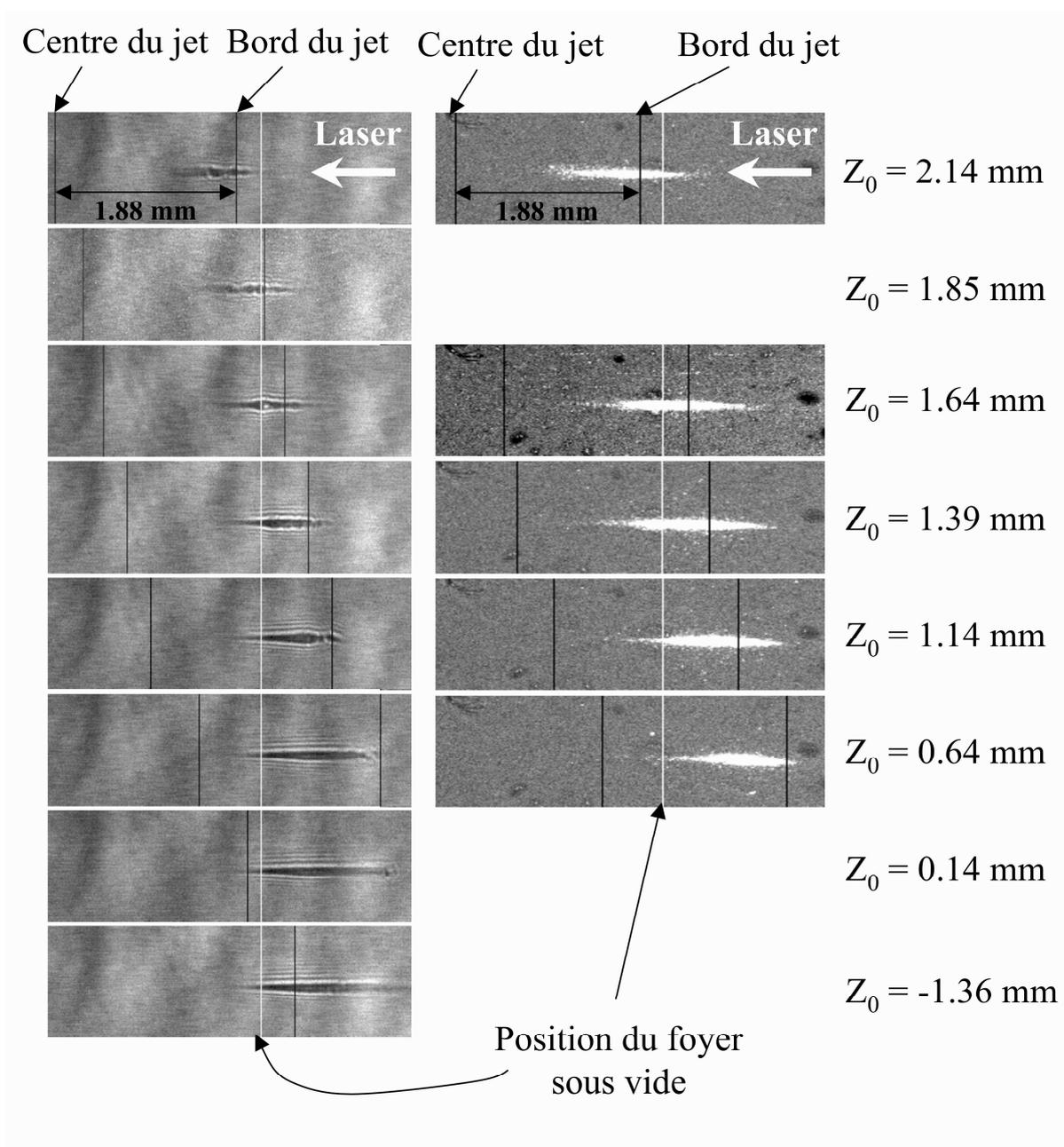


Fig. 4.12: Images en ombroscopie (à gauche) et en imagerie sténopée (à droite) en fonction de la distance Z_0 séparant le plan de focalisation “théorique” sous vide par rapport au centre du jet. L’image d’ombroscopie est obtenue 10 ps après le passage de l’impulsion principale pour une pression en amont du jet de 20 bars. La durée de l’impulsion laser est de 420 fs et l’énergie qu’elle contient est de 3 mJ.

4.3 Etude de la dynamique du chauffage

On a vu au chapitre 1 que les scénarii visant à décrire l'interaction d'un laser avec un agrégat sont assez nombreux. Parmi ceux-ci, le modèle nano-plasma semble le plus complet. Malgré tout, cela ne suffit pas à rendre compte de tous les effets observés expérimentalement. L'étude de la dynamique de l'interaction laser-agrégats peut permettre d'améliorer la compréhension des mécanismes mis en jeu dans l'interaction.

Cette partie a pour objet l'étude de la dynamique de l'interaction laser-agrégats. Nous allons pour cela interpréter les différents résultats obtenus aux différentes échelles de temps accessibles expérimentalement. Nous avons observé l'évolution de l'émission du rayonnement X et de l'absorption de l'énergie laser en fonction du contraste de l'impulsion à l'échelle ns et de la durée de l'impulsion laser à l'échelle fs et ps puis au moyen d'expériences à deux impulsions de délai variable.

4.3.1 Effet du contraste ns

Comme nous l'avons vu au chapitre 3, les impulsions délivrées par les chaînes laser présentent un contraste limité par l'existence de l'ASE (Amplified Spontaneous Emission) et de pré-impulsions issues de la cavité régénérative. En ce qui concerne l'interaction avec des cibles solides, le seuil d'ionisation étant faible ($\sim qqs 10^{12}$ voire $\sim qqs 10^{11} W.cm^{-2}$ sur les métaux conducteurs), ce contraste influence fortement l'état de la cible très tôt dans le front de montée de l'impulsion laser. Les gaz rares, et notamment l'Argon, présentent un seuil d'ionisation plus élevé ($\sim qqs 10^{14} W.cm^{-2}$). Si le contraste de la chaîne laser n'est pas suffisamment élevé, les agrégats peuvent être altérés avant l'arrivée de l'impulsion principale. L'ionisation de quelques atomes de l'agrégat peut suffire à créer une charge d'espace entre les ions et initier la destruction de l'agrégat par simple répulsion coulombienne. Sur la chaîne laser du CELIA, le contraste peut être contrôlé à l'échelle ns au moyen du réglage du délai entre l'ouverture et la fermeture de la cellule de Pockels de la cavité régénérative d'une part, et par le réglage de l'instant de commutation de la cellule de Pockels en sortie de cavité (pulse cleaner) d'autre part. Nous avons utilisé ce paramètre afin d'étudier le seuil de destruction des agrégats. Par ce moyen, nous sommes parvenus à faire varier le contraste de la pré-impulsion située $4 ns$ avant l'arrivée de l'impulsion principale de 1 à 10^{-5} . Ce contraste est défini comme le rapport de l'intensité maximale du pré-pulse sur l'intensité maximale de l'impulsion principale : $C_{4ns} = \frac{I_{prepulse}}{I_{mainpulse}}$.

Nous avons étudié l'évolution de l'émission X de la raie He_{α} en fonction de ce contraste. La figure 4.13 représente l'évolution du signal obtenu en fonction de l'intensité laser de la pré-impulsion. La focalisation est en bord de jet afin de limiter les effets de la réfraction. Le signal mesuré est à peu près constant jusqu'à une intensité voisine de $10^{14} W.cm^{-2}$ avant d'amorcer une diminution au-delà de cette valeur. On définit un seuil en intensité

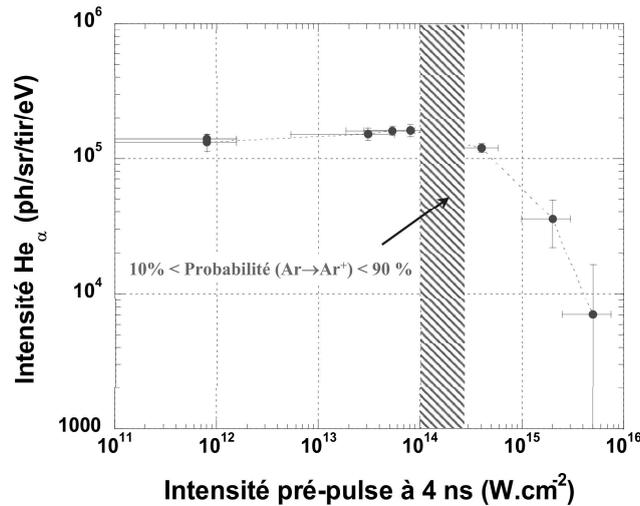


Fig. 4.13: Evolution de l'intensité X émise en fonction de l'intensité de la pré-impulsion située 4 ns avant l'impulsion principale. La pression en amont de la buse est de 40 bars d'Argon. La durée de l'impulsion laser principale est de 250 ± 50 fs et l'intensité maximale est de $4 \times 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$.

de la pré-impulsion au-delà duquel le rayonnement X semble être affecté par la destruction prématurée des agrégats. Ce seuil se situe autour de $qqs 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$.

Des calculs ADK (Ammosov, Delone, Krainov [64]) ont permis de confirmer que ce seuil correspond au seuil de première ionisation des atomes d'Argon par la pré-impulsion. Dès qu'il est atteint, la simple répulsion coulombienne créée par la charge d'espace peut suffire à initier la destruction de l'agrégat. Au bout de quelques nanosecondes, lors de l'arrivée de l'impulsion principale, le volume focal n'est plus constitué que du gaz résiduel. L'absorption de l'énergie laser se réduit alors à celle d'un plasma dilué et dont la production de rayonnement X est faible. Il s'ensuit une diminution importante de l'émission X par destruction des agrégats. En outre, la chute du signal n'est pas très brutale. Ceci peut éventuellement être lié à un effet de volume. Les agrégats les plus proches du foyer du faisceau (où l'intensité est maximale) sont détruits en premier. Puis, lorsque l'impulsion principale arrive, seul un petit volume présente des agrégats détruits. L'impulsion interagit alors avec un nombre d'agrégats encore suffisamment grand. Mais dès que l'intensité de la pré-impulsion augmente, le volume dans lequel les agrégats sont détruits augmente. Et ainsi de suite, le signal de rayons X diminue progressivement avec la diminution du nombre d'agrégats dans le volume d'interaction.

Il faut préciser que l'intensité de la pré-impulsion ne souffre pas *a priori* de la réfraction tant que celle-ci n'atteint pas le seuil d'ionisation des atomes d'Argon. Si la pré-impulsion n'est pas suffisamment intense, l'ionisation des atomes du gaz résiduel n'a pas lieu et donc

l'effet de la réfraction reste faible. La valeur de l'intensité estimée de la pré-impulsion est alors dans ce cas toujours valable. Le seuil défini en intensité autour de $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ reste donc valable en considérant la réfraction.

Des résultats similaires ont été obtenus expérimentalement par le groupe de T. Ditmire. En observant l'évolution de l'émission de la raie Lyman $_{\alpha}$ produite par un mélange gazeux d'Helium et d'Argon, il ont observé un seuil autour de $4.10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ d'intensité de la pré-impulsion au delà duquel le signal enregistré chute rapidement [7].

Le contrôle du contraste de l'impulsion s'avère donc très important en vue de l'optimisation de la source de rayonnement X. Cette expérience nous a permis de définir deux choses :

- Il existe un seuil de dommage pour les agrégats et celui-ci se situe autour du seuil d'ionisation des atomes d'Argon soit $(2 \pm 1) \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$. Ceci nous renseigne également sur les premiers pas de l'interaction en accord avec les modèles qui considèrent l'ionisation ADK comme déclencheur de l'ionisation au sein de l'agrégat [10].
- L'ordre de grandeur du temps caractéristique de la dynamique d'un agrégat dès le seuil de dommage est inférieur à la nanoseconde.

A l'avenir, nous prendrons donc un soin particulier à vérifier régulièrement la valeur du contraste par rapport aux mesures effectuées.

Il est à noter que le seuil de dommage obtenu pour les agrégats (environ $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$) est bien plus élevé que celui observé dans l'interaction avec des cibles solides (de l'ordre de $10^{10} - 10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$). Les cibles d'agrégats seront donc moins sensibles que des cibles solides au contraste des pré-impulsions et au niveau de l'ASE du laser.

La dynamique du chauffage de l'agrégat peut dépendre de plusieurs paramètres : l'énergie déposée, l'échelle de temps pendant laquelle cette énergie est déposée et le mécanisme de ce dépôt. On se propose à présent d'étudier cette échelle de temps en faisant varier la durée de l'impulsion laser.

4.3.2 Effet de la durée de l'impulsion laser

Nous venons de voir que la durée de vie des agrégats semble inférieure à l'échelle nanoseconde. On peut estimer ce temps de vie en considérant l'expansion des agrégats. Si on suppose que la détente de l'agrégat se fait à la vitesse C_s (donnée par l'expression 1.6), le temps τ_{exp} nécessaire pour passer de la densité du solide n_0 de l'agrégat à la densité électronique moyenne du gaz environnant n_e , est donné par [7] :

$$\tau_{exp} = \frac{R_0}{C_s} \left(\frac{n_0}{n_e} \right)^{(1/3)}, \quad (4.17)$$

avec R_0 le rayon initial de l'agrégat.

La densité électronique initiale d'agrégats de 250 Å de rayon est de $2.65 \times 10^{23} \text{ e}^{-} . \text{cm}^{-3}$ avec un degré d'ionisation moyenne de 10 dans l'agrégat. On considère une densité élec-

tronique finale $n_e \sim 8 \times 10^{19} \text{ e}^- . \text{cm}^{-3}$. Dans ces conditions, on obtient un temps caractéristique d'expansion de 3 ps en prenant pour valeur de la température électronique $T_e = 600 \text{ eV}$. Cela signifie que des impulsions laser d'une durée inférieure à ce temps caractéristique pourront interagir efficacement avec les agrégats du milieu avant leur destruction.

Parmi les modèles proposés pour rendre compte de cette dynamique de l'interaction laser-agrégats, le modèle nano-plasma semble le plus complet. Ce modèle à densité uniforme suppose l'existence d'une résonance en densité au sein de l'agrégat à la densité de $3n_c$. Cette résonance implique la présence d'un maximum de chauffage des électrons libres de l'agrégat lorsque la densité de l'agrégat en expansion atteint cette densité. Autrement dit, en faisant varier la durée de l'impulsion laser, on peut s'arranger pour faire coïncider le passage de la densité de l'agrégat à 3 fois la valeur de la densité critique avec le maximum de l'impulsion laser. On atteindra alors un chauffage efficace du milieu. Expérimentalement, l'étude de l'influence de la durée laser sur l'émission de rayons XUV a déjà fait l'objet de mesures précédentes par J. Zweiback *et al.* qui ont observé un optimum d'absorption de l'énergie laser corrélé avec un optimum d'émission de rayonnement XUV (autour de 50 eV) pour une durée laser et une taille d'agrégats donnés [122]. Il ont également observé que cet optimum dépendait de la pression du jet de gaz et donc de la taille moyenne des agrégats contenus dans le jet.

Nous nous proposons dans cette partie de vérifier ces observations dans le domaine des rayons X multi-keV, en faisant varier la durée de l'impulsion laser au moyen du compresseur à réseaux. Nous regarderons également l'influence de ce paramètre sur l'absorption de l'énergie laser dans notre jet dense.

Sur l'émission de rayonnement X

Nous avons observé l'évolution de l'intensité du rayonnement X émis par les agrégats en fonction de la durée de l'impulsion laser. En agissant sur l'écartement des réseaux du compresseur, comme décrit au paragraphe 3.1.2, nous avons fait varier la durée de l'impulsion laser à énergie constante. Nous avons estimé la durée laser au moyen de la formule 3.3, pour laquelle la pente reste valable sur une plage importante d'espacement des réseaux [97].

La figure 4.14 représente la variation du nombre de photons dans la raie héliumoïde α_1 par tir et par stéradian en fonction de la durée de l'impulsion laser contenant $2,6 \text{ mJ}$ d'énergie et pour une pression de 60 bars en amont de la buse. L'énergie de l'impulsion est constante durant toute l'expérience. Le faisceau laser est focalisé en bord du jet de gaz afin de limiter les effets de la réfraction et d'optimiser l'émission de rayons X. Sur ce graphe, le nombre de photons croît rapidement avec la durée laser. Il passe ensuite par un maximum autour de $(500 \pm 100) \text{ fs}$ et puis il diminue lorsque l'on continue d'augmenter

la durée laser jusqu'à plusieurs picosecondes. Ce graphique montre une augmentation d'un facteur environ 30 du signal émis pour une durée laser d'environ (500 ± 50) fs par rapport à une durée laser minimale de 45 fs. On a aussi tracé sur ce graphe l'évolution de l'intensité X enregistrée lorsque le chirp de l'impulsion laser est inversé, c'est-à-dire lorsque l'on change l'ordre temporel des longueurs d'onde dans l'impulsion. Quel que soit le chirp de l'impulsion laser (sens de l'étalement temporel du spectre de l'impulsion), l'intensité relative dans chacune des raies est sensiblement la même. Il n'y a donc, semble-t-il, aucun effet de chirp sur l'émission du rayonnement X.

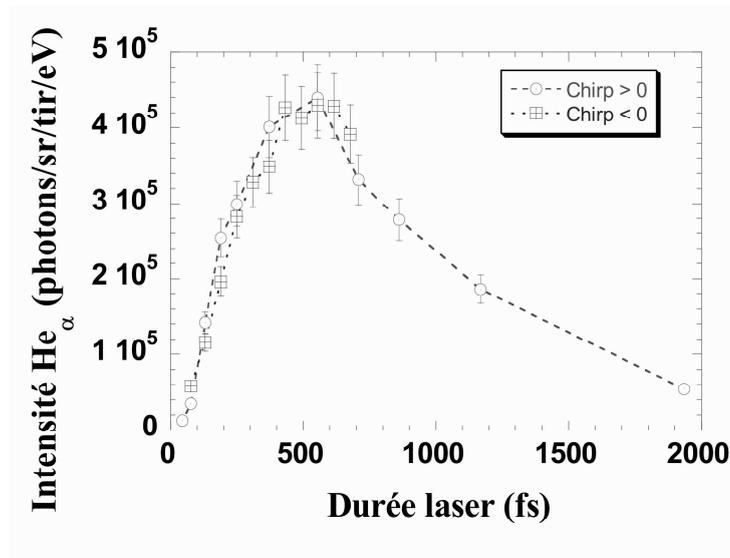


Fig. 4.14: Influence de la durée à mi-hauteur de l'impulsion laser sur l'intensité du rayonnement X émis à 60 bars de pression en amont de la buse. L'énergie laser est constante et égale à 2,6 mJ. Le laser est focalisé en bord du jet de gaz.

Nous avons ensuite étudié la variation de l'émission X avec des tailles moyennes d'agrégats différentes, à d'autres pressions en amont de la buse (20, 40 et 60 bars). Les résultats obtenus sont reportés en figure 4.15 pour une impulsion laser identique à celle utilisée précédemment. On constate sur ce graphe qu'il y a toujours existence d'un optimum de l'émission X en fonction de la durée à mi-hauteur de l'impulsion. Mais cette durée laser optimale semble varier avec la pression du jet de gaz et donc avec la taille moyenne des agrégats. Ainsi, elle est d'environ (400 ± 70) fs pour des agrégats de 275 Å de rayons (à 40 bars) et de (250 ± 50) fs pour des agrégats de 180 Å (à 20 bars). Ces résultats sont similaires à ceux de J. Zweiback *et al.* [122] qui ont étudié à la fois en émission et en absorption l'influence de la durée laser.

Nous avons enregistré des spectres d'émission pour des conditions de jet d'agrégats et une énergie laser identique à celle de la figure 3.13 ($\Delta t_{laser} = 500$ fs et $E_{laser} = 3$ mJ), mais avec des durées d'impulsions différentes, à 45 et 1900 fs. Les spectres obtenus

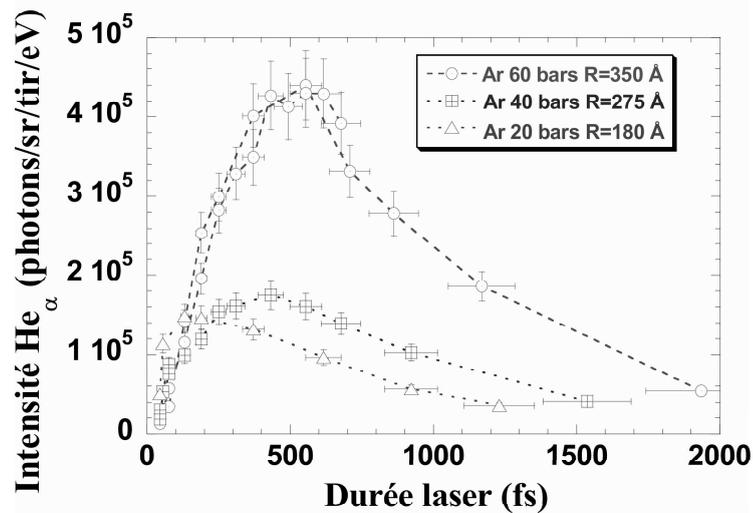


Fig. 4.15: Influence de la durée à mi-hauteur de l'impulsion laser sur l'intensité du rayonnement X émis en fonction de la pression en amont du jet d'agrégats. L'énergie laser est constante et égale à 2,6 mJ. Le laser est focalisé en bord du jet de gaz.

(figures 4.16) présentent des raies d'émission issues d'ions fortement chargés comme dans le cas d'une durée d'impulsion optimale (~ 500 fs) mais avec des intensités beaucoup plus faibles. On constate que, dans le cas d'une impulsion très courte (45 fs), la distribution des états de charges est plus large que pour les autres durées. Ainsi, on observe l'émission de raies allant de l'Ar¹⁶⁺ à l'Ar¹⁰⁺, toujours en l'absence d'émission de type K_α . Ceci montre un état d'excitation du milieu plus faible que dans le cas d'une impulsion plus longue.

La distribution en énergie cinétique de la population d'électrons présente probablement une énergie moyenne plus faible lorsque la durée laser n'est plus optimale.

Pour une durée d'impulsion plus longue, on enregistre un spectre d'allure intermédiaire entre les deux précédents (pour 45 et 500 fs). Dans ce cas, les états de charges observés sont les mêmes que pour une impulsion de 500 fs mais avec des rapports de raies différents. Notamment, la raie Hélioïde α_1 est d'intensité voisine de celle des raies de type Lithiumoïde. On en déduit que la distribution des états de charges au sein du milieu émetteur est quelque peu modifiée par rapport au cas d'une impulsion de 500 fs. L'état de charge des atomes du milieu étant principalement le fruit des collisions successives entre les électrons et les ions, le spectre enregistré reflète d'une part les états de charge présents au sein du plasma et d'autre part, la distribution en énergie des électrons. A première vue, les spectres émis de la figure 4.16, présentent une population d'électrons plus énergétique dans le cas d'une impulsion de 1900 fs que dans le cas d'une impulsion de 45 fs mais relativement moins énergétique encore que la population formée par une impulsion de

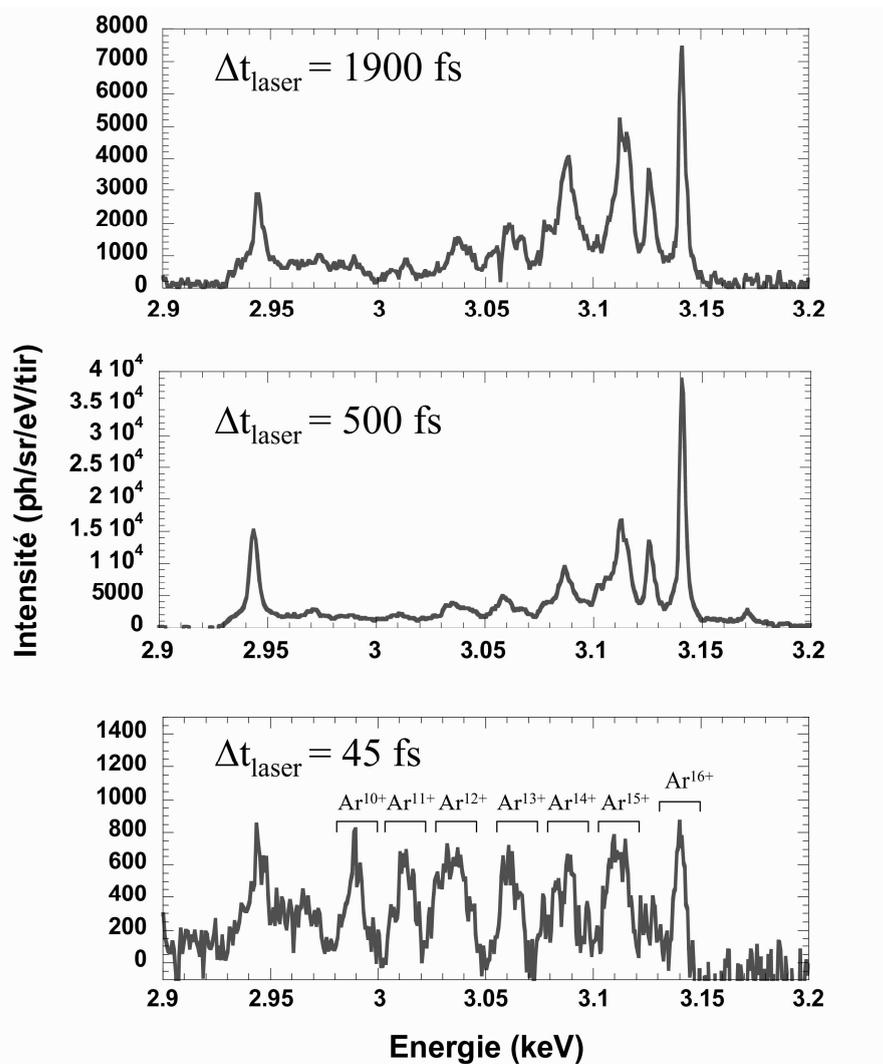


Fig. 4.16: Evolution du spectre enregistré dans la gamme de 2,9 à 3,2 keV pour des durées laser de 45, 500 et 1900 fs dans le cas de la lentille. L'énergie laser contenue par impulsion est de 3 mJ et la pression en amont de la buse est de 60 bars.

500 *fs*. Une mesure de l'énergie des électrons en fonction de la durée de l'impulsion laser a été réalisée par E. Springate *et al.* [15]. L'évolution de l'énergie moyenne des électrons en fonction de la durée laser présente également un optimum de 6 *keV* dans des agrégats de Xénon ($2,4 \times 10^6$ atomes par agrégat) pour une durée laser d'environ 500 *fs*.

Ces différentes observations vont dans le sens des prédictions du modèle nanoplasma. Il semble donc qu'il y ait un effet d'optimum en densité de l'agrégat avec la durée de l'impulsion laser.

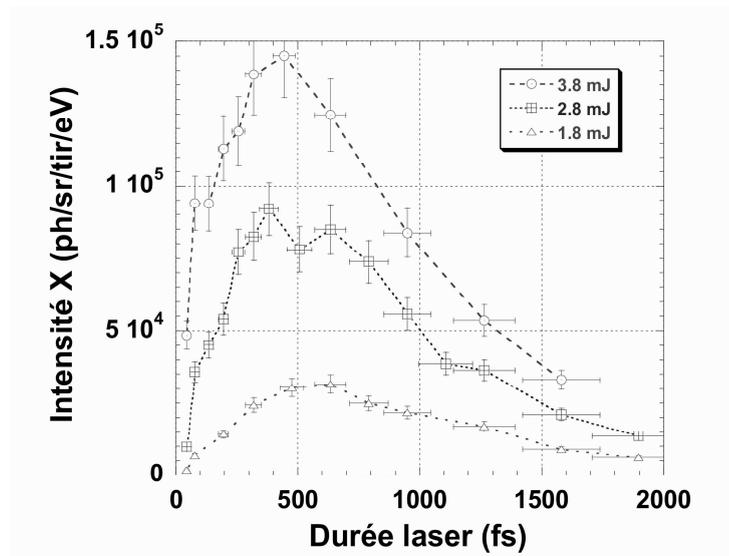


Fig. 4.17: Evolution de l'intensité du rayonnement X émis en fonction de la durée laser à 40 bars pour des énergies de 1.8, 2.8 et 3.8 mJ par impulsion. Le laser est focalisé en bord du jet de gaz.

Toutefois, en rapport avec les observations déjà faites concernant le contraste *ns*, on peut supposer que la diminution du signal émis vers les faibles durées laser est lié à l'augmentation de l'intensité dans la pré-impulsion qui peut alors détruire les agrégats et expliquer cette diminution. Mais la figure 4.17 semble montrer que non, puisque sur ce graphe, on a représenté l'évolution de l'intensité de la raie He_α pour différentes énergies de l'impulsion laser. On peut voir que l'effet de la diminution de l'énergie laser est de globalement diminuer le signal émis. Mais cette diminution accentue le creux dans l'émission aux faibles durées laser. Si réellement on avait eu un effet lié au contraste *ns*, la diminution de l'énergie aurait dû limiter cet effet, ce qui ne semble pas être le cas.

On peut aussi évoquer la possibilité d'un effet lié à la réfraction pour interpréter cette diminution du signal. Lorsqu'on diminue la durée de l'impulsion laser à énergie constante, on augmente l'intensité laser accessible au foyer. On augmente d'autant la possibilité d'ioniser les atomes du gaz résiduel et ainsi les effets de la réfraction. Mais là encore, on peut rappeler les résultats de la figure 4.17 dans lesquels la diminution de l'énergie

laser induit une diminution du signal aux faibles durées d'impulsions. Si la réfraction était responsable de cette dépletion, à plus faible énergie on devrait moins ioniser le gaz résiduel et ainsi limiter la réfraction. Le signal devrait alors remonter mais ce n'est pas le cas.

L'existence d'une résonance en densité dans l'agrégat semble donc se confirmer et jouer un rôle important dans l'émission du rayonnement X dans les agrégats. Le domaine optimal d'émission de rayons X peut donc être expliqué par un chauffage très fort du milieu par rapport à l'énergie absorbée. La création de lacunes en couche K implique des températures électroniques assez élevées. Pour cela, le couplage entre l'énergie laser absorbée et les électrons doit être efficace. Cela est possible si, au moment de cet optimum, l'énergie laser disponible, et donc l'intensité, sont suffisamment grandes. La durée de l'impulsion laser joue un rôle prépondérant. Si la durée est trop grande, l'intensité laser est trop faible au moment de la "résonance". A l'inverse, si la durée est trop courte, au moment de la "résonance", il n'y a plus ou peu d'énergie disponible dans l'impulsion. Pour les durées plus longues, le chauffage semble donc moins efficace à cause de la diminution de l'intensité à énergie constante et de la diminution de la densité de l'agrégat au cours du temps.

La dynamique du chauffage du milieu semble dépendre de la durée de l'impulsion laser. Pour étudier cette dynamique, nous avons parallèlement mesuré l'influence de la durée laser sur l'absorption de l'énergie de l'impulsion laser par le jet d'agrégats.

Sur l'absorption d'énergie laser

Au moyen de la sphère diffusante placée en face arrière du jet d'agrégats, nous avons mesuré l'absorption de l'énergie laser par le jet d'agrégats en fonction de la focalisation. Cette absorption a présenté une valeur très élevée, jusqu'à 90 % (cf. figure 4.5) lorsque l'on focalise le faisceau laser dans le jet.

Nous avons aussi regardé l'évolution de l'absorption en fonction de la durée de l'impulsion laser en faisant varier l'écartement des réseaux du compresseur. Les résultats sont reportés en figure 4.18 pour une impulsion contenant 2,6 *mJ* d'énergie et pour les 3 pressions jusqu'ici étudiées de 20, 40 et 60 *bars*. La courbe d'absorption présente une valeur minimale, voisine de 20 %, pour les durées laser les plus faibles ($\sim 45 - 100$ *fs*). Lorsque la durée laser augmente, l'absorption augmente pour atteindre un maximum de 70 à 80 % autour d'une durée d'impulsion de 1 *ps* à mi-hauteur. Au-delà de cet optimum, l'absorption diminue très lentement avec la durée laser et reste supérieure à 50 % jusqu'à des durées d'impulsion de plusieurs picosecondes. En outre, en fonction de la pression en amont du jet, on ne distingue pas de différence notable dans la valeur de l'absorption de l'énergie.

Ces résultats sont assez similaires à ceux obtenus dans le domaine des X et tendent à confirmer l'existence d'un phénomène d'optimum lié à la durée de l'impulsion laser et à

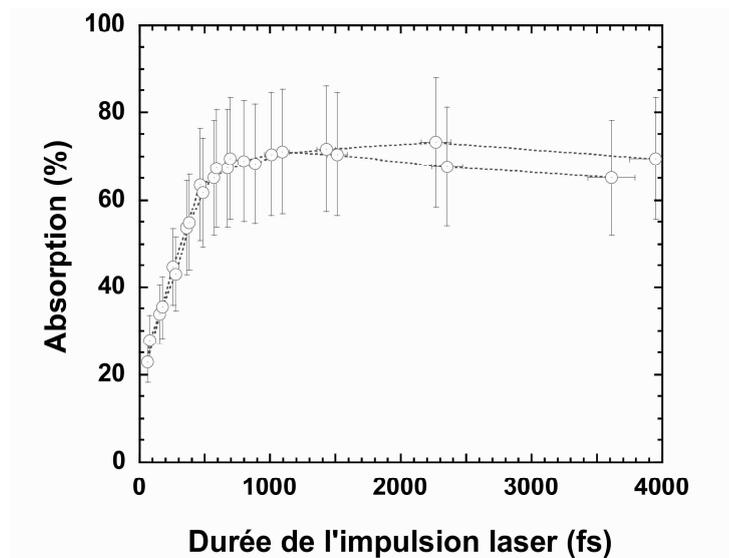


Fig. 4.18: Variation de l'absorption de l'énergie laser dans le jet d'agrégat en fonction de la durée à mi-hauteur de l'impulsion laser pour une pression de 40 bars). Le laser est focalisé en bord du jet de gaz et l'énergie laser est maintenue constante, égale à 2,6 mJ.

la vitesse d'expansion de l'agrégat. Toutefois, par rapport aux résultats précédents (figure 4.15), la durée optimale est légèrement supérieure mais surtout, l'absorption reste élevée pendant des temps très longs. Pour les durées longues, l'énergie absorbée par le jet ne contribue plus ou peu à l'émission de rayons X, mais le plasma semble émettre encore de manière très intense dans le domaine XUV autour de 18 nm de longueur d'onde, comme semble le montrer les résultats présentés par T. Ditmire *et al.* dans des agrégats d'Argon [7].

J. Zweiback *et al.* ont aussi mesuré l'absorption et l'émission de rayons X dans la gamme de 40 à 70 eV d'un jet d'agrégats de Xenon et d'Argon en fonction de la durée de l'impulsion laser [122], [30]. Les résultats montrent des tendances identiques aux nôtres (existence d'optima avec la durée laser dans l'absorption et l'émission). Ils ont tout de même constaté qu'en fonction de la taille moyenne des agrégats la largeur de la "résonance" en absorption était plus grande en augmentant la pression en amont du jet, et donc en augmentant le rayon moyen des agrégats. La comparaison de ces résultats avec le modèle nano-plasma présente d'ailleurs quelques différences. Notamment, bien que le modèle soit assez fidèle à l'existence d'un optimum en absorption, il ne parvient pas à reproduire l'intervalle de durées sur lequel l'absorption est maximale.

Plusieurs hypothèses peuvent être invoquées pour expliquer ce décalage par rapport au modèle. J. Zweiback *et al.* supposent que c'est la distribution en taille des agrégats qui

est responsable de ces différences. On peut aussi y voir là une information supplémentaire en faveur du modèle en couche de H. Milchberg *et al.* qui décrit bien des absorptions sur des échelles de temps très longues. Dans ce modèle 1D, l'agrégat passe par la densité de "résonance" à n_c de manière progressive pendant un temps beaucoup plus long. Même si le coefficient d'absorption dans ce modèle est plus faible, au final, avec un temps de résonance plus long, l'absorption totale est suffisamment grande pour reproduire les valeurs mesurées. De plus, cette idée semble plus raisonnable d'un point de vue des échelles d'intensité du champ à l'intérieur de l'agrégat. Dans le cas du modèle nanoplasma, le champ n'est limité que par la fréquence de collision ce qui a pour effet de conduire à des valeurs peu réalistes si l'on adapte une méthode de calcul suffisamment fine [47].

La complexité du problème, et la dynamique très rapide de l'interaction, rendent difficiles les interprétations des résultats expérimentaux en terme d'hypothèses pour construire un scénario. Il n'est pas facile pour les modèles théoriques de contenir tous les mécanismes gouvernant l'interaction, et ainsi de répondre à toutes les observations. Il faut pour cela poursuivre plus en avant l'analyse de la dynamique du système. En ce sens, nous avons envisagé une expérience de mesure de la dynamique du chauffage des agrégats basée sur un système à deux impulsions de délai variable. Cette expérience a pour objectif de sonder de manière plus précise l'évolution de la densité de l'agrégat au cours du temps ainsi que la dynamique du dépôt de l'énergie. A première vue, le délai pour lequel l'émission X, et donc le chauffage, sont maximum sera différent suivant que la résonance apparaît à la densité de $3n_c$ ou plutôt à n_c . Ceci peut donc éventuellement permettre de départager les deux modèles.

4.3.3 Mesures à deux impulsions

La dynamique de l'interaction entre le laser et les agrégats dépend, *a priori*, du chauffage de l'agrégat. Les résultats obtenus avec des durées d'impulsion variables (section 4.3.2) font apparaître un effet d'optimum du champ dans l'agrégat. On a vu que les durées d'impulsions les plus courtes, pour lesquelles l'intensité laser est la plus grande, ne conduisent pas à un chauffage optimal des agrégats. L'effet de résonance, s'il existe, impose un délai entre le maximum d'absorption de l'énergie laser par l'agrégat et le début de l'expansion de ce dernier sous l'effet de l'ionisation par le champ. Suivant le régime d'intensité, on s'attend à ce que l'expansion de l'agrégat soit plus ou moins rapide.

Afin de sonder plus particulièrement cet effet, nous avons envisagé une série d'expériences à deux impulsions de délai variable visant à initier le chauffage et l'expansion de l'agrégat par le biais d'une première impulsion. Une seconde impulsion arrivant avec un délai variable par rapport à la première permet alors de déposer de l'énergie à différents instants et ainsi de sonder l'absorption des agrégats par le biais de leur émission X en fonction du délai entre les deux impulsions.

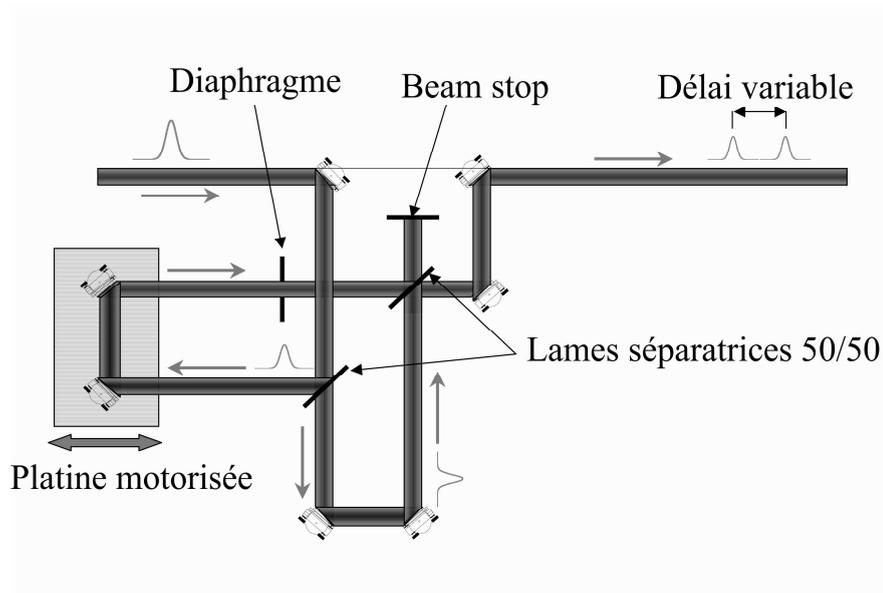


Fig. 4.19: Schéma du système permettant la génération de deux impulsions à délai variable. Le délai est ajusté au moyen de la platine motorisée qui induit un retard d'un des deux bras du Michelson par rapport à l'autre. Les deux impulsions finales contiennent chacune $1/4$ de l'énergie de l'impulsion initiale, en l'absence de diaphragme.

Le dispositif expérimental permettant la génération des deux impulsions est représenté en figure 4.19. Globalement, il s'agit d'un Michelson dans lequel on a inséré deux lames semi-réfléchissantes identiques de manière à obtenir la même traversée de matériau dispersif pour chacune des 2 impulsions utilisées. Le système est constitué d'une première lame semi-réfléchissante 50/50 séparant l'impulsion en deux impulsions de même énergie. Les deux impulsions sont alors envoyées vers une seconde lame semi-réfléchissante identique à la première par l'intermédiaire d'une ligne à retard de longueur variable. En agissant sur la longueur de ce bras, on pourra modifier le délai entre les deux impulsions. Les impulsions sont superposées spatialement au moyen de la seconde lame semi-réfléchissante. Le faisceau contenant 50 % de l'énergie totale est ensuite renvoyé vers le compresseur et la chambre d'expérimentation. L'autre partie du faisceau (contenant les 50 % restants) est bloquée au moyen d'un beam stop. Les impulsions finales comportent chacune $1/4$ de l'énergie de l'impulsion initiale.

On dispose sur le trajet de l'une des deux impulsions, sur un des bras du Michelson, un diaphragme permettant de faire varier le diamètre du faisceau et l'énergie contenue dans l'impulsion. Suivant la relation 3.5, le diamètre de la tache focale obtenue dépend du diamètre du faisceau. Plus le diamètre du faisceau est petit, plus le waist accessible au foyer est grand. Par ce biais, on peut s'assurer du recouvrement spatial entre la pompe

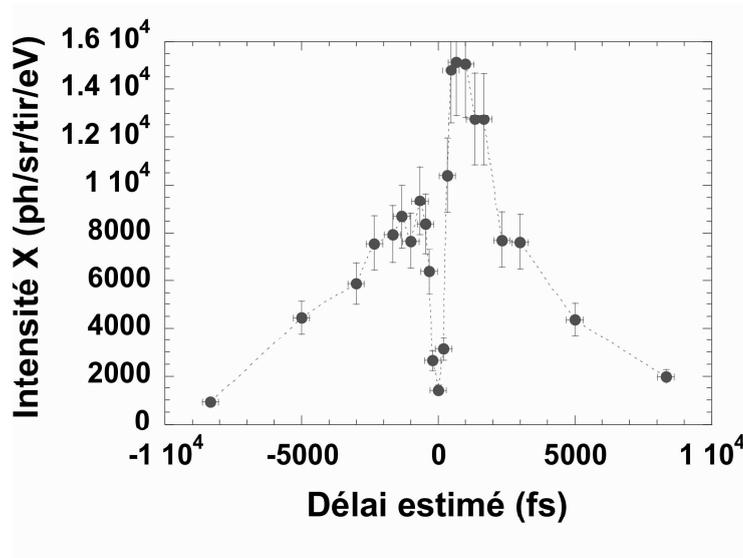


Fig. 4.20: Evolution de l'intensité de rayonnement X (raie He_{α_1}) avec le délai entre les deux impulsions de 45 fs chacune pour 60 bars de pression en amont de la buse. Les temps négatifs sont donnés par l'arrivée de l'impulsion principale avant la pré-impulsion diaphragmée par un trou de 20 mm de diamètre. La première impulsion contient 0,7 mJ et la seconde 0,9 mJ.

et la sonde, la deuxième impulsion se focalise dans un volume entièrement chauffé par l'impulsion pompe. D'autre part, le diaphragme nous permet de modifier l'intensité laser accessible dans le volume focal.

La figure 4.20 représente l'évolution de l'émission X de la raie He_{α_1} en fonction du délai entre les deux impulsions. Les délais de valeur négative correspondent au cas où la seconde impulsion arrive avant la première impulsion. Dans cette expérience, nous avons disposé un diaphragme de diamètre 20 mm sur le trajet de la première impulsion. Celle-ci ne contient alors que 0,7 mJ une fois le compresseur traversé et la seconde impulsion 0,9 mJ. Le foyer sous vide est situé sur le bord du jet afin de limiter la réfraction et d'obtenir un signal maximal. On n'attend pas à première vue de déplacement important du foyer entre la première impulsion et la seconde qui devraient se focaliser au même plan. Le graphe de la figure 4.20 en fonction du délai entre les deux impulsions montre que, quel que soit l'ordre d'arrivée des deux impulsions, le signal X émis présente un maximum pour un délai avoisinant les (800 ± 300) fs. Toutefois, ce maximum est plus marqué dans le cas où l'impulsion sonde arrive après l'impulsion pompe (*i.e.* $t > 0$). Si la sonde arrive sur le bord du jet avant la pompe, on est alors dans le cas d'une seule impulsion qui se focalise dans un petit volume, dans un jet d'agrégats froids et l'initialisation du chauffage se fait dans un petit volume (absence de diaphragme). Lorsque l'impulsion pompe arrive, une partie seulement du volume est chauffée et la réponse du milieu environnant est alors la

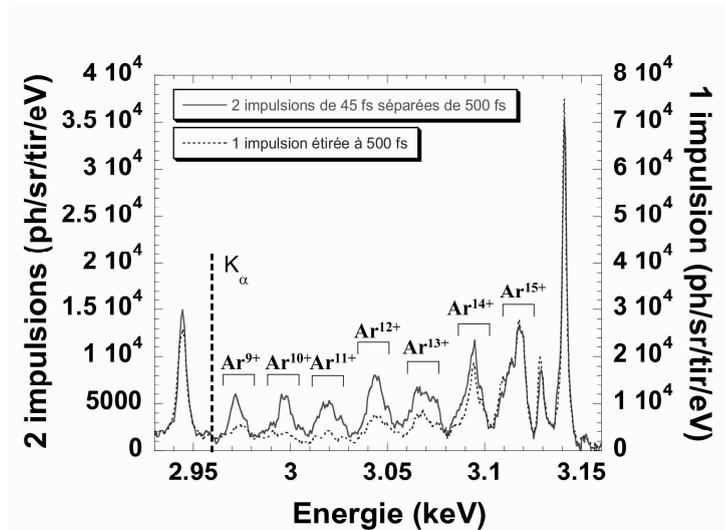


Fig. 4.21: Comparaison du spectre obtenu à l'optimum dans le cas d'une impulsion étirée ($\Delta t_{laser} \simeq 500 fs$) et dans le cas de deux impulsions de 45 fs chacune séparées d'environ 500 fs pour des agrégats de 275 Å. L'énergie par impulsion dans le premier cas est de 2,6 mJ et dans le second cas de 0,7 mJ pour la première impulsion et de 0,9 mJ pour la seconde. La focalisation est assurée par la parabole hors-axe.

même qu'en section 4.3.2, seul un petit volume d'agrégats au centre est en expansion et subit un couplage plus fort avec l'impulsion pompe. Par rapport aux résultats obtenus au paragraphe 4.3.2, on peut voir que la durée optimale correspond à un délai d'environ $+(700 \pm 200) fs$ entre les deux impulsions, ce délai est légèrement supérieur à la durée laser correspondant à un optimum d'émission X pour une même pression.

Afin de comparer le rayonnement X émis entre les configurations à une et deux impulsions, nous avons reporté sur la figure 4.21 deux spectres obtenus dans ces deux cas. Le cas avec impulsion unique est obtenu avec une impulsion de $(500 \pm 50) fs$ contenant 2,6 mJ et dans le cas de deux impulsions de $(45 \pm 5) fs$ chacune de durée à mi-hauteur contenant 0,45 mJ pour la première et 0,9 mJ pour la seconde. On observe à la lecture des spectres de la figure 4.21 que le spectre émis à l'optimum en délai avec 2 impulsions présente une plus grande variété d'états de charge que dans le cas d'une seule impulsion étirée temporellement mais de durée optimale pour l'émission X. Les populations d'ions Ar^{9+} jusqu'à Ar^{13+} émettent de manière beaucoup plus intense lorsque l'expansion du milieu est initiée par une première impulsion. En revanche, les populations des ions les plus "chauds" : Ar^{14+} , Ar^{15+} et Ar^{16+} sont dans des rapports quasi-identiques entre les deux expériences à une ou deux impulsions.

J. Zweiback *et al.* ont également sondé, au moyen de deux impulsions, leur jet d'agrég-

gats de Xenon en absorption pour différentes tailles d'agrégats [30]. Ils ont observé un optimum d'absorption dépendant de la taille des agrégats. Comme dans notre cas, cet optimum se situe pour des délais entre impulsion de pompe et impulsion de sonde plus grands que ceux obtenus dans le cas d'une seule impulsion laser. Là encore, le modèle nano-plasma est utilisé afin de rendre compte des phénomènes observés et ne rend pas bien compte de la large gamme de délais pour lesquels l'absorption reste élevée.

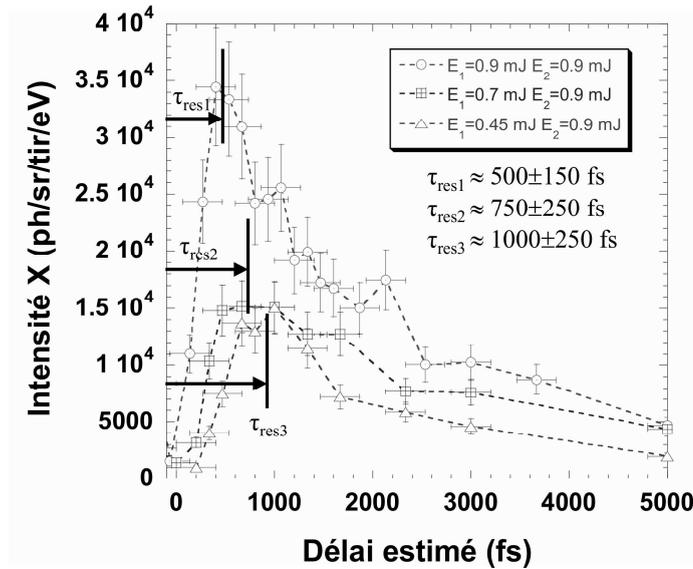


Fig. 4.22: Evolution de l'émission de la raie $He_{\alpha 1}$ en fonction du délai entre les deux impulsions pour différentes énergies contenues dans la première impulsion. Cette énergie varie de 0.45 à 0.9 mJ. L'énergie de la seconde impulsion est constante et vaut 0.9 mJ. La durée à mi-hauteur des impulsions est de $(45 \pm 5) \text{ fs}$ et la pression en amont de la buse est de 60 bars.

Nous avons également étudié, en plaçant des diaphragmes de diamètres différents sur le parcours de l'une des deux impulsions dans le Michelson, l'influence de la variation de l'énergie laser contenue dans la première impulsion sur la réponse du milieu en fonction du délai de sonde. Les résultats sont tracés sur la figure 4.22 pour des énergies de 0.45, 0.7 et 0.9 mJ contenues dans la première impulsion et pour une énergie constante dans la seconde impulsion de 0,9 mJ. Les différentes courbes représentées sur le graphique montrent un optimum dans l'émission de rayonnement X en fonction du délai entre les deux impulsions. Toutefois, il semble que le délai nécessaire pour atteindre un maximum de signal diminue avec l'énergie contenue dans la première impulsion. Il est à peu près de $(500 \pm 150) \text{ fs}$ avec 0,9 mJ dans la première impulsion, d'environ $(750 \pm 200) \text{ fs}$ avec 0,7 mJ et de $(1000 \pm 250) \text{ fs}$ avec 0,45 mJ. On retrouve une loi d'échelle similaire à celle présentée dans le chapitre 1 (expression 1.7) dans laquelle le temps nécessaire pour atteindre la résonance dépend de la vitesse d'expansion de l'agrégat et du rayon moyen

de l'agrégat. Si l'on suppose que les agrégats se détendent à la vitesse C_s décrite par l'expression 1.6, cette vitesse dépend principalement de la température électronique et donc de l'énergie déposée dans les agrégats. Si l'impulsion initiale est plus énergétique, le chauffage initial du milieu semble plus grand et la vitesse d'expansion de l'agrégat augmente alors. Le temps nécessaire à l'agrégat pour atteindre la densité de résonance devient de ce fait plus faible et le délai optimal entre l'impulsion de pompe et l'impulsion de sonde plus court.

Les mesures à deux impulsions nous ont donc permis de mettre en évidence l'existence d'une durée optimale en délai entre les deux impulsions nécessaire à l'obtention d'un maximum d'émission de rayons X dans la raie $\text{He}_{\alpha 1}$. Nous avons également vu que ce délai dépend de l'énergie contenue dans la première impulsion. Ce comportement était attendu par le modèle nanoplasma dans lequel le temps pour atteindre la résonance à $3n_c$, Δt_{res} , est proportionnel au rapport R_{ag}/C_s . Dans ce rapport, la vitesse d'expansion dépend de la température initiale des électrons T_e du milieu, et donc du chauffage de ceux-ci par la première impulsion.

En revanche, l'intervalle de temps en délai pendant lequel on a un chauffage efficace des agrégats, et donc une émission de photons X optimale, est relativement grand devant la durée de la seconde impulsion (environ 45 fs). Si, comme le suppose le modèle nanoplasma, on avait une résonance uniforme en densité dans l'agrégat, le délai optimal correspondrait alors à une valeur bien déterminée et l'émission X serait maximale sur une gamme de délai beaucoup plus marquée.

Toutefois, il y a peut-être un effet lié à la distribution en taille des agrégats. Dans notre jet, celle-ci est estimée à $\delta R/R \sim 15\%$. Cette valeur est trop faible pour expliquer une telle largeur de délai optimal. Éventuellement, la distribution en intensité dans le volume focal peut influencer ce délai. Une étude plus approfondie visant à déconvoluer de l'intégration sur le profil en intensité du laser permettrait de soulever cette indétermination.

Par ailleurs, cette large gamme de délai optimal n'est pas reproduite par le modèle nanoplasma, y compris avec la prise en compte de la distribution en taille des agrégats [30]. De ce côté, le modèle proposé par H. Milchberg *et al.* semble plus prometteur. En effet, celui-ci ne suppose pas une densité uniforme dans l'agrégat. Dans ce modèle, l'agrégat se détend par couches successives, en absorbant progressivement l'énergie laser. La résonance prédite par le modèle nanoplasma n'est plus dans ce cas une résonance au sens strict du terme, mais plutôt un intervalle de temps pendant lequel l'agrégat est susceptible d'absorber de l'énergie laser. Cette dernière hypothèse irait plutôt dans le sens de nos observations faites avec les mesures à deux impulsions.

Nous pouvons aussi discuter de l'effet de l'expansion des agrégats sur la propagation de l'impulsion. Nous avons vu précédemment (section 4.2.2) que la réfraction liée à la densité du gaz résiduel prédominait dans les tous premiers instants de l'interaction et

limitait l'intensité laser accessible. Toutefois, nous avons évoqué la possibilité d'une auto-focalisation de l'impulsion, comme observé par I. Alexeev *et al.* [117]. Dans le cas de deux impulsions, la seconde impulsion arrive dans un milieu où les agrégats ont amorcé leur expansion. L'indice de réfraction d'un tel milieu peut être positif si la contribution des agrégats est dominante (proche de la résonance dans le cas du modèle 0D décrit en annexe B). On peut supposer alors que l'optimum observé est lié à la refocalisation de la seconde impulsion dans le milieu. Malheureusement, nous n'avons pas effectué d'ombroscopie dans ces conditions afin de vérifier si le profil du plasma présentait des signes d'auto-focalisation.

4.4 Discussion

Au cours de ce chapitre, nous avons vu différents résultats obtenus concernant les propriétés émissives de la source d'agrégats dans le domaine des rayons X. La source est une source multi-keV et incohérente. Son rendement actuel d'émission autour de 3 keV est d'environ 4×10^{-6} . Nous avons mis en évidence les problèmes de propagation liés à l'ionisation par l'impulsion laser de la densité de gaz résiduel présente dans notre jet d'agrégats. Il convient pour limiter ces effets de focaliser en bord de jet. Nous avons aussi présenté des études expérimentales sur la dynamique de l'interaction laser-agrégats à différentes échelles de temps. A l'échelle *ns*, le contraste de l'impulsion laser nous a permis de montrer que la durée de vie des agrégats est inférieure à 4 *ns*. Nous avons déduit une intensité seuil de destruction des agrégats : tant que l'intensité de la pré-impulsion est inférieure à quelques $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, les agrégats ne semblent pas ou peu altérés par sa présence.

L'étude de l'influence de l'état de polarisation du laser sur l'intensité émise de rayons X (autour de 3 keV) a montré une insensibilité totale à l'état de polarisation de l'impulsion laser. Les états de charge très élevés observés ne semblent pas liés au mécanismes précurseurs de l'ionisation par le champ laser. Les mécanismes collisionnels apparaissent alors comme intervenant de manière dominante au cours de la résonance en densité et peuvent donc être responsables du déshabillage des ions.

Nous avons également mesuré le comportement de la source à d'autres échelles de temps. A l'aide de la variation de la durée de l'impulsion laser, nous avons observé l'existence d'un optimum temporel à l'échelle *fs* pouvant être associé à l'évolution de la densité de l'agrégat au cours du temps (phénomène mis en évidence pour la première fois par T. Ditmire [11]). On a également enregistré que la dynamique de cet optimum dépendait de la taille moyenne des agrégats.

Des mesures à deux impulsions nous ont permis d'étudier de manière plus précise la dynamique des agrégats contenus dans le jet. Nous avons pu ainsi voir l'existence d'une émission de rayons X maximale correspondant à une certaine gamme de délais entre les

deux impulsions. Le délai correspondant à cet optimum s'est avéré dépendre de l'énergie contenue dans la première impulsion. Cette étude semble montrer que le chauffage des agrégats se fait progressivement au cours du temps comme tend à le décrire le modèle à une dimension proposé par H. Milchberg *et al.* [9]. Le mécanisme de chauffage correspondrait peut-être plutôt à une absorption de l'énergie laser suivant des couches de densité à la densité critique comme c'est le cas dans les cibles solides. Il reste tout de même à s'assurer par ombroscopie du plasma de l'influence de la seconde impulsion sur le milieu ionisé.

Pour tenter de préciser un peu plus ces hypothèses et nos observations, nous avons développé un modèle simple de l'expansion de l'agrégat visant à reproduire nos spectres de rayons X enregistrés.

Discussion sur la dynamique de l'interaction

Chapitre 5

Discussion sur la dynamique de l'interaction

5.1 Introduction

Les spectres que nous avons enregistrés au cours des expériences présentées dans ce manuscrit ont montré plusieurs choses : d'abord, il existe au sein du plasma des ions possédant des états de charge très élevés et susceptibles de posséder des lacunes en couche K. Ensuite, les différentes populations de ces ions varient avec la durée à mi-hauteur de l'impulsion laser. Enfin, le nombre de photons émis varie avec les paramètres de l'impulsion laser. Toutefois, il s'agit là de spectres intégrés temporellement. Ils ne renseignent pas directement sur la dynamique de l'interaction. La reconstruction de l'histoire temporelle de ces spectres peut éventuellement donner des informations sur l'historique des conditions de température et de densité ayant conduit à de telles émissions. Leur modélisation pourrait alors permettre d'estimer la durée de l'émission X mais aussi contribuer à la définition d'un scénario de chauffage des agrégats.

Des simulations de nos spectres d'émission X ont été menées en collaboration avec deux groupes de spectroscopistes [123], [124], [92], [125], [126], [127]. Le système stationnaire d'équations radiativo-collisionnel pour un plasma uniforme avec différentes valeurs de paramètres du plasma (T_e, T_i, n_e, n_i) est résolu numériquement. Les états de charge de l'Ar¹⁰⁺ à l'Ar¹⁷⁺ sont pris en compte. Les sections efficaces de collisions électroniques sont calculées à partir d'une fonction de distribution électronique, non maxwellienne qui prend en compte des électrons chauds.

La reconstruction des spectres expérimentaux a nécessité la considération d'un milieu formé de deux plasmas de températures et de densités différentes. Certaines raies apparaissant dans les satellites lithumoides du spectre (satellites q, r, a-d et satellites k,j sur la figure 5.1) ne pouvaient être reproduites dans des rapports de raies identiques à l'expérience avec la seule considération d'une température et d'une densité dans le milieu.

L'ajout d'une fraction f d'électrons chauds possédant une énergie moyenne de 5 keV dans le milieu a permis d'améliorer encore l'accord entre spectres expérimentaux et simulés. Elle permet, entre autre, d'obtenir un rapport entre la raie $\text{He}_{\alpha 1}$ et les satellites lithiumoïdes très proche des spectres expérimentaux.

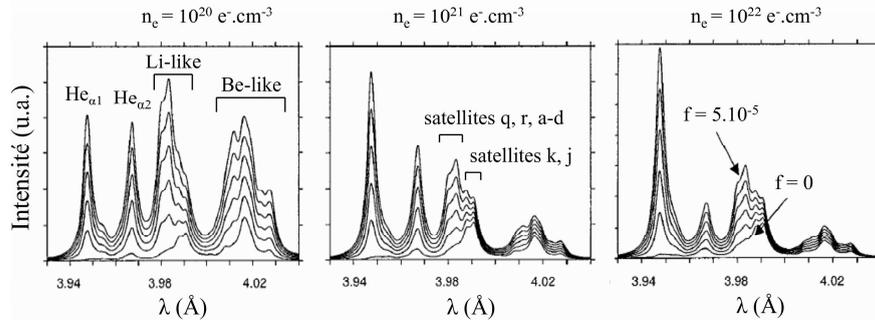


Fig. 5.1: Influence des différents paramètres de densité électronique n_e et de fraction d'électrons chauds f sur les spectres de couche K entre $3,93$ et $4,04 \text{ \AA}$. La fraction f vaut successivement 0 , 10^{-5} , $2 \cdot 10^{-5}$, $3 \cdot 10^{-5}$, $4 \cdot 10^{-5}$, and $5 \cdot 10^{-5}$. La température électronique moyenne du milieu est de 190 eV .

La figure 5.1 présente l'évolution des spectres simulés dans la gamme de $3,93$ et $4,04 \text{ \AA}$ pour différentes densités du milieu et une température électronique moyenne de 190 eV . On peut voir l'influence de la variation de la fraction f d'électrons chauds sur les divers rapports de raies. Cette variation permet d'ajuster les spectres calculés aux spectres expérimentaux intégrés en temps. Suivant les calculs, celle-ci varie de 0 à 5×10^{-5} . Mais aussi, l'ajustement est donné par la densité électronique du milieu et la température des électrons thermiques ayant une énergie de $100\text{-}200 \text{ eV}$.

Des simulations de spectres de rayons X obtenus à partir d'agrégats de gaz rare ont également été faites à partir d'autres expériences menées en collaboration avec des groupes d'expérimentateurs du DRECAM de Saclay et du JAERI de Kyoto [128], [129]. Là encore, un bon accord est obtenu avec les résultats expérimentaux. Les dernières simulations faites en collaboration avec le JAERI ont montré que les spectres calculés pouvaient également être ajustés à l'expérience en ne considérant qu'une seule population d'électrons (sans fraction d'électron chauds). Cette approche plus réaliste est basée sur un calcul dépendant du temps de la population des électrons chauds. Ils regardent la relaxation de la population d'électrons initialement chauffés à une température de 5 keV à la résonance.

Les accords obtenus entre les simulations et nos expériences sont assez bon. Toutefois, le modèle ne donne pas d'informations temporelles sur la durée de l'émission du rayonnement X. Les effets temporels de l'expansion de la matière ne sont pas inclus. Au niveau des mécanismes de création de la fraction d'électrons chauds cela peut soulever certaines interrogations. Notamment, ces mécanismes sont basés sur les hypothèses du modèle na-

noplasma dans lequel les électrons sont fortement accélérés à la résonance à la densité de $3n_c$. Ce chauffage très rapide conduit alors à la détente de l'agrégat associée à un refroidissement du système. Cette diminution de la température des électrons et de la densité du milieu n'est pas prise en compte dans les simulations des spectres.

Dans nos expériences, nous n'avons pas constaté de pré-impulsion à l'échelle picoseconde dans le pied de l'impulsion (cf. figure 3.6) comme invoqué par le modèle à la base de leurs simulations. Cette hypothèse fournit au modèle un moyen d'expliquer la formation au sein du plasma de deux populations avec des paramètres différents. L'utilisation de deux plasmas possédant des propriétés différentes pour reconstruire les spectres ne peut dans ce cas être validée. Par ailleurs, nous avons constaté que le seuil nécessaire à l'ignition de l'expansion de l'agrégat est supérieur à $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$, ce qui est une valeur supérieure à celle utilisée dans les simulations. Éventuellement, suivant les hypothèses du modèle de H. Milchberg *et al.*, l'évolution du plasma à chaque instant crée une couche de densité à la densité critique n_c qui permet la production d'électrons rapides. Ces électrons peuvent alors explorer un fond de matière plus froide qui pourrait justifier l'emploi d'un ensemble double de paramètres plasma.

Nous nous sommes proposés de considérer le problème différemment. En partant d'un point de vue expérimental, nous avons cherché à simuler qualitativement les spectres en se basant sur la dynamique de l'agrégat, sans faire appel aux électrons chauds. Nous avons pour cela effectué des calculs à l'aide d'un modèle hydrodynamique simple dans lequel l'énergie déposée est estimée à partir de la mesure du dépôt linéique d'énergie dans le plasma. Les paramètres densité électronique n_e et température électronique T_e sont fonction du temps. Les spectres sont ensuite construits grâce à un code collisionnel-radiatif, le code TRANSPEC qui permet le calcul résolu temporellement de l'émission X.

5.2 Modèle d'expansion radiale du plasma

Afin de déterminer dans notre modèle la quantité d'énergie déposée par agrégat, nous avons utilisé les résultats de mesures temporelles en ombroscopie du plasma, la bonne connaissance du profil de densité du jet d'agrégat et un modèle d'expansion radiale du plasma [130]. On étudie dans ce modèle l'évolution temporelle du rayon du plasma (supposé cylindrique) pour déterminer le dépôt initial d'énergie ayant conduit à l'expansion radiale du milieu.

Lorsque de l'énergie laser est déposée dans une région localisée d'un plasma, la pression associée à l'élévation de température du milieu peut conduire à la formation d'ondes de choc. Quand les ondes de choc évoluent sur un temps plus long que le temps de dépôt de l'énergie, et sur un volume plus grand que le volume initial, le choc décroît et

évolue alors en onde de détente (blast-wave). Lorsque les phénomènes radiatifs ne sont pas importants, c'est-à-dire quand la température du plasma derrière le choc n'est pas trop grande (inférieure à quelques dizaines d'eV à la densité de nos expériences), l'évolution de l'onde de détente sera proche de celle d'un cas auto-semblable. La trajectoire de l'onde est alors largement indépendante des conditions initiales du dépôt de l'énergie [131]. Celle-ci peut s'obtenir, en fonction du temps, à partir des relations données par les équations de Rankine-Hugoniot [16]. Pour une onde à symétrie cylindrique, le rayon de l'onde à des temps très longs évolue comme [132] :

$$r(t) \simeq f(\gamma) \left(\frac{E_l}{\rho_0} \right)^{1/4} t^{1/2} \quad (5.1)$$

où E_l est l'énergie initialement déposée dans le cylindre par unité de longueur, ρ_0 est la masse volumique initiale et $f(\gamma)$ est fonction du rapport d'adiabaticité γ (rapport des chaleurs spécifiques), $f(\gamma) = ((4/\pi)(\gamma + 1)(\gamma - 1)^2(3\gamma - 1)^{-1})^{1/4}$. Ainsi, une mesure de $r(t)$ permet de déterminer E_l si γ est connue. De plus, un test clair afin de savoir si l'onde de détente évolue comme la limite auto-semblable est la trajectoire de l'onde : celle-ci suit une loi en $t^{1/2}$.

5.2.1 Résultats d'ombroscopie

Afin d'observer l'évolution du rayon du cylindre au cours du temps, nous avons eu recours au diagnostic d'ombroscopie décrit en section 3.2.4. Les images obtenues permettent de déterminer la position du front de l'onde de détente par rapport au gradient d'indice observé avec une précision de $\pm 11 \mu\text{m}$. La figure 5.2 présente les images obtenues à différents temps : 10 ps, 1.1, 6.5 et 10 ns. Le faisceau laser arrive par la droite de l'image, la position du foyer sous vide est symbolisée par un trait blanc placé 1,85 mm avant le centre du jet ($Z_0 = -1.85 \pm 0,05 \text{ mm}$). Le faisceau est focalisé en bord de jet pour minimiser les effets de la réfraction. Le profil d'intensité (à droite des clichés d'ombroscopie sur la figure) relevé à la position du foyer sous vide présente un profil, lié à un déficit local d'éclairement (ombre) issu de la réfraction par la densité d'électrons libres.

A partir de ces images, on peut observer l'évolution du rayon du plasma au cours du temps. On constate dès les premiers instants, 10 ps après le passage de l'impulsion laser, que le rayon du plasma au foyer sous vide du laser fait déjà $30 \mu\text{m} \pm 11 \mu\text{m}$. Si l'on considère une intensité seuil de $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ pour ioniser le milieu, le rayon r_s correspondant pour une impulsion gaussienne (rayon donné par le contour d'intensité égale à l'intensité de seuil d'ionisation = $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$), en l'absence de réfraction, serait de $9 \mu\text{m}$ dans le cas présenté ici de la parabole hors-axe.

Après 1 ns, le plasma a amorcé sa détente et on aperçoit une légère sur-intensité au centre du plasma due soit à l'émission de lumière propre de plasma soit à la diffusion du

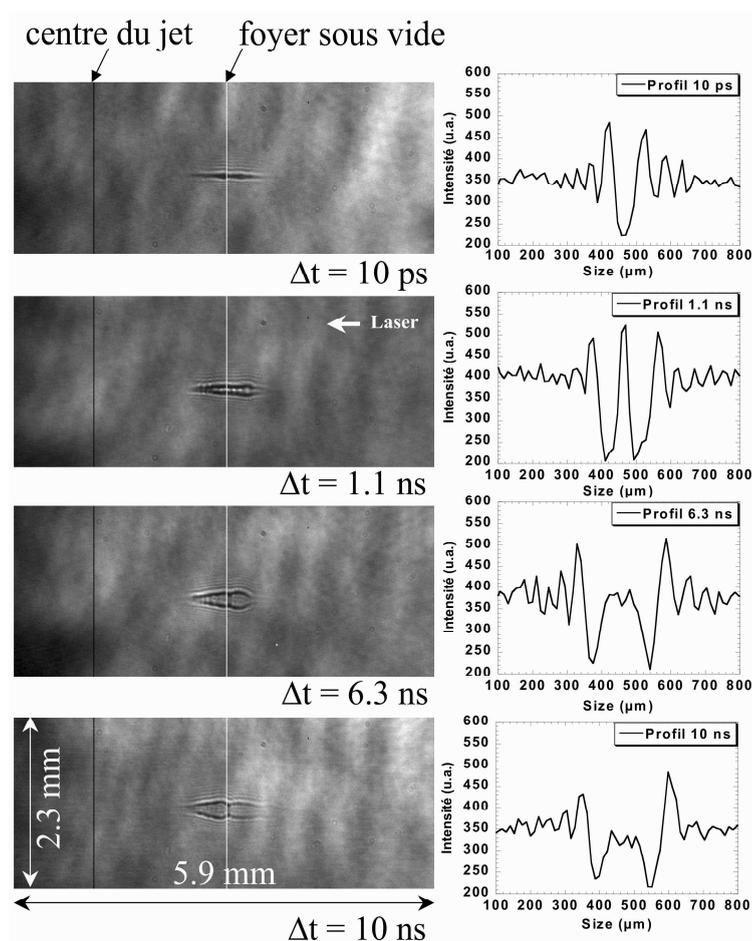


Fig. 5.2: Clichés d'ombroscopies et profils radiaux associés, mesurés au foyer obtenues pour 10 ps, 1.1, 6.3 et 10 ns de délai entre pompe et sonde. La pression du jet est de 60 bars. La durée de l'impulsion laser est de 400 ± 40 fs, focalisée au moyen de la parabole hors-axe à 1,85 mm en amont du centre du jet (position optimale de la focalisation en terme d'émission X).

rayonnement laser par le milieu. Cette émission n'est pas coupée par le filtre interférentiel à 800 nm . La parfaite connaissance de la densité de gaz (déterminée par interférométrie Mach-Zehnder) va nous permettre de remonter à l'énergie initialement déposée dans le cylindre par unité de longueur.

L'équation 5.1 étant valable seulement aux temps très longs, l'expression a été re-écrite [130] afin de prendre en compte le rayon initial r_0 du plasma :

$$r(t) = \sqrt{r_0^2 + f(\gamma)^2 \left(\frac{E_l}{\rho_0}\right)^{1/2} t} \quad (5.2)$$

Cette équation donne un ajustement de la trajectoire de l'onde de détente à partir des paramètres libres que sont r_0 et E_l . Dans notre cas, on suppose premièrement que la valeur de la constante γ est celle du gaz parfait monoatomique et deuxièmement que la présence des agrégats modifie peu sa valeur égale à $5/3$.

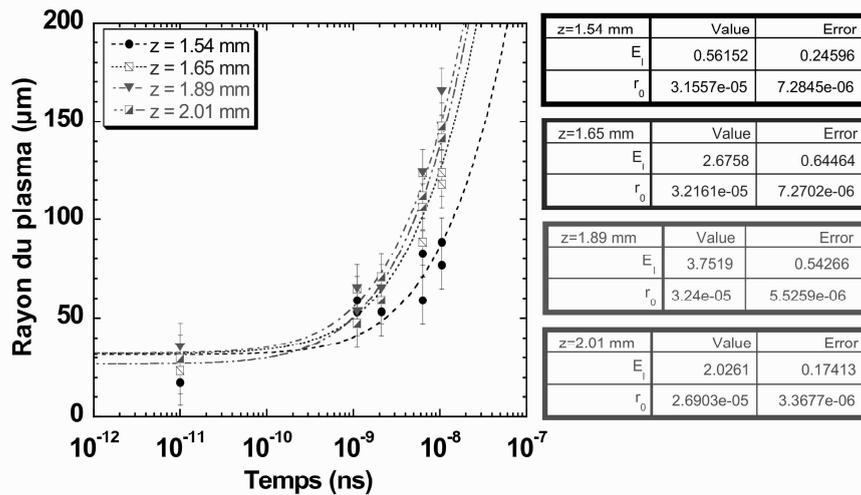


Fig. 5.3: Evolution du rayon du plasma observé par ombroscopie à différentes positions z le long de l'axe de propagation du faisceau, et valeurs des paramètres E_l et r_0 obtenues par ajustement de l'équation 5.2.

Cette équation permet de mieux déterminer l'évolution du rayon du plasma en fonction du temps dans notre cas et ainsi de déterminer avec une meilleure précision le dépôt d'énergie. Nous avons mesuré le rayon du cylindre de plasma à différents temps et à différentes positions le long du cylindre. La figure 5.3 montre cette évolution pour 4 régions du plasma situées à 1.54, 1.65, 1.89 et 2.01 mm du centre du jet. On peut voir que le front d'ionisation évolue différemment, suivant la position sur l'axe de propagation.

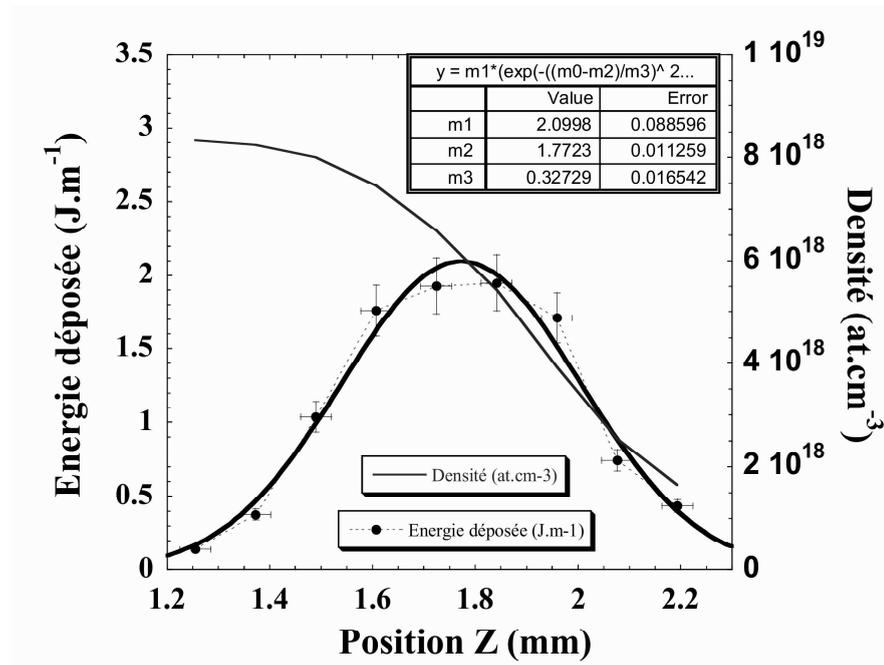


Fig. 5.4: Evolution de l'énergie moyenne déposée calculée en fonction de la position le long de l'axe de propagation. La durée de l'impulsion de pompe est de 420 fs, la pression en amont du jet de 40 bars et l'énergie totale est de 2,66 mJ.

Le dépôt d'énergie par unité de longueur dans le jet d'agrégats est représenté en figure 5.4. Le graphe présente aussi la densité totale en fonction de la position du plasma. Celui-ci est situé en bord du jet où la densité varie beaucoup. L'énergie déposée par unité de longueur varie aussi à mesure que l'on pénètre dans le jet. Tout d'abord, elle augmente avec la densité du jet puis passe par un maximum avant de diminuer au niveau de la partie arrière du plasma. Nous avons trouvé qu'environ 2 mJ par millimètre de plasma sont déposés au maximum de cette courbe. Nous avons aussi observé que le dépôt s'arrête avant que l'impulsion laser ait atteint le centre du jet (où la densité est plus élevée et où le dépôt d'énergie devrait être le plus élevé).

Sur la figure 5.5, on peut voir l'énergie déposée par unité de longueur intégrée suivant l'axe z en fonction de la position sur cet axe. La quantité d'énergie totale déposée, intégrée sur le parcours de l'onde, augmente à mesure que l'on avance dans le jet jusqu'à atteindre une saturation. On s'aperçoit sur cette courbe que toute l'énergie de l'impulsion laser (2,66 mJ) n'est pas entièrement déposée avant que cette dernière n'atteigne le centre du jet. Les mesures semblent indiquer que la saturation est proche de la limite correspondant à la valeur de l'énergie totale absorbée par le jet d'agrégats et mesurée au moyen de la sphère diffusante (environ 55 % de l'énergie totale à 40 bars et pour une durée d'impulsion de 420 fs soit $\simeq 1,46$ mJ).

Des mesures faites par Zweiback *et al.* sur un jet d'Hélium ne contenant pas d'agrégats

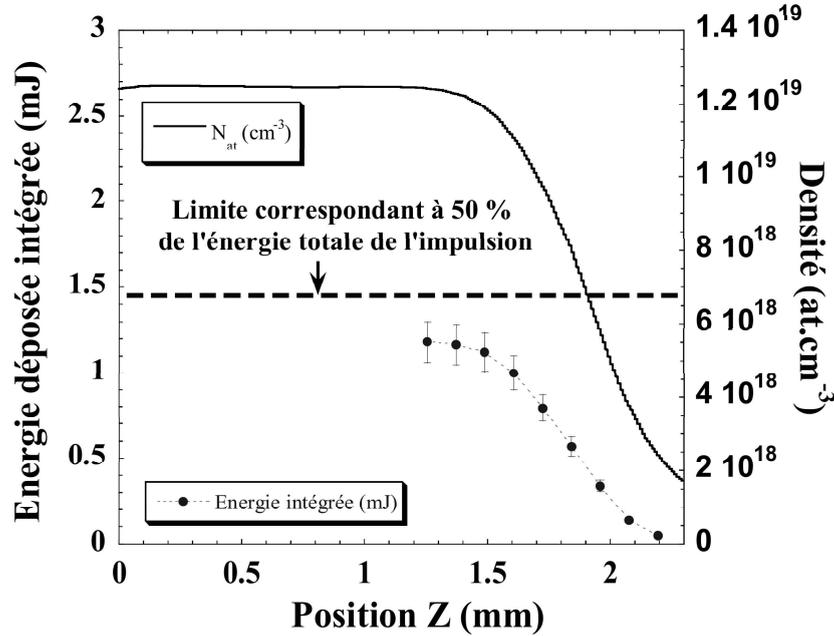


Fig. 5.5: Evolution de l'énergie totale déposée en fonction de la position le long de l'axe de propagation. La durée de l'impulsion de pompe est de 420 fs et la pression en amont du jet de 40 bars et l'énergie totale est de 2,66 mJ.

ont montré que l'énergie déposée par unité de longueur est deux ordres de grandeurs inférieure aux résultats obtenus avec un jet d'agrégats de deutérium [16]. En considérant que l'énergie est majoritairement absorbée par les agrégats, à partir des données précédentes et de la bonne connaissance de notre jet, on peut déduire l'énergie déposée par agrégat.

Ensuite, avec la connaissance du rayon moyen des agrégats et du rayon initial du plasma estimé par le code WAKE (environ $16 \pm 2 \mu\text{m}$), on peut déterminer l'énergie déposée par atome, voire par électron (si l'on suppose qu'initialement ce sont les électrons qui absorbent l'énergie par Bremsstrahlung inverse). Nous avons déterminé cette énergie pour une durée d'impulsion de $(420 \pm 40) \text{ fs}$, une énergie contenue dans cette impulsion de 2,66 mJ, une pression de 40 bars en amont de la buse et en focalisant en bord du jet. Les résultats montrent une énergie absorbée d'environ $(20 \pm 5) \text{ GeV}$ par agrégat, ce qui donne en moyenne à peu près $(1000 \pm 300) \text{ eV}$ par électron de l'agrégat en considérant un Z^* de 10.

Nous possédons maintenant une information importante, à savoir, l'énergie moyenne déposée par agrégat. On peut à présent décrire l'expansion de l'agrégat et en déduire des informations sur la population électronique à l'origine de l'émission X. Toutefois, pour remonter aux étapes de formation des lacunes en couches internes, il est nécessaire de décrire l'évolution de tous les paramètres de l'agrégat (densité, températures et vitesses). Ces paramètres constituent les grandeurs d'entrée du code TRANSPEC. C'est ce que l'on

se propose de réaliser à présent par un modèle simple de la dynamique de l'expansion de l'agrégat.

5.3 Calculs de la dynamique de l'agrégat

L'interprétation des spectres enregistrés passe par la description de la dynamique du système. Nous avons en ce sens réalisé quelques calculs simplifiés afin d'estimer, d'une part, l'évolution de l'énergie électronique moyenne au sein d'un agrégat au cours du temps et, d'autre part, la diminution de la densité de l'agrégat liée à l'expansion de ce dernier sous l'effet des forces de pression. Nous avons utilisé le modèle de Haught et Polk décrit en section 1.1.3 pour décrire l'expansion radiale et l'évolution de la densité, supposée homogène dans l'agrégat, au cours du temps. Nous avons considéré uniquement l'effet de la pression hydrodynamique sur l'expansion. Étant donné que la pression coulombienne est en $1/R^4$ et la pression hydrodynamique en $1/R^3$, cette hypothèse est valable pour les agrégats présents dans notre jet ($R > 10 \text{ nm}$) [7], [133], [93]. L'expression 1.31 s'écrit alors :

$$\frac{\partial^2 R}{\partial t^2} = 5 \frac{P_{hyd}}{n_i m_i} \frac{1}{R} \quad (5.3)$$

avec m_i la masse des ions, n_i la densité d'ions et R le rayon de l'agrégat.

On considère également que toute l'énergie est déposée initialement dans les électrons par Bremsstrahlung inverse. La pression hydrodynamique est le produit de la densité électronique n_e par l'énergie électronique $k_B T_e$, et l'expression précédente devient alors en utilisant l'expression 1.6 de la vitesse acoustique ionique C_s :

$$\frac{\partial^2 R}{\partial t^2} = \frac{3C_s^2}{R} \quad (5.4)$$

Cette équation traduit l'expansion radiale d'un agrégat de densité homogène. Afin de décrire maintenant l'évolution de l'énergie des électrons dans l'agrégat et ainsi rendre compte du chauffage du système, nous avons considéré l'équation d'évolution de la température électronique au cours du temps, en négligeant les pertes radiatives :

$$\frac{dT_e}{dt} = \frac{dW}{dt} - \frac{2}{r} \frac{dr}{dt} T_e \quad (5.5)$$

Dans cette équation, le premier terme traduit le chauffage de l'électron au travers de l'absorption collisionnelle, W étant le taux de chauffage. Le second terme provient de la diminution de température associée à l'expansion adiabatique de l'agrégat (transfert de l'énergie thermique des électrons en énergie de dérive des ions). Cette expression est valable uniquement si les collisions électrons-électrons sont très nombreuses par rapport au

temps d'expansion caractéristique de l'agrégat, c'est-à-dire si la température électronique peut s'établir à chaque instant [93].

On introduit le terme de chauffage W (supposé de forme gaussienne) en considérant que l'énergie est déposée durant un certain temps et au bout d'un certain temps : deux paramètres déduits des expériences.

- La durée du dépôt est de largeur caractéristique δt correspondante au temps de "résonance" estimé par les différents modèles de la littérature [7], [9] :

$$\delta t_{res} = \frac{2}{3} \frac{\nu}{\omega} \left(\frac{n_{e0}}{3n_c} \right)^{1/3} \frac{R_0}{C_s} \quad (5.6)$$

Dans cette expression, ν est la fréquence de collision du plasma, ω est la pulsation du laser, n_{e0} est la densité électronique initiale du plasma, n_c la densité critique, R_0 le rayon initial de l'agrégat et C_s la vitesse d'expansion de l'agrégat. Pour un agrégat de 250 Å de rayon, une température électronique de 1500 eV, un rapport ν/ω estimé à 0,03 [9] à 800 nm, ce temps de résonance est estimé à ~ 10 fs.

- L'instant du dépôt T_{chauf} est défini par rapport aux différentes mesures de la dynamique de l'agrégat : il correspond au maximum d'intensité laser pour la durée d'impulsion optimale. Ce temps est fonction de la taille de l'agrégat (déduit du chapitre 4 en section 4.3). La quantité totale d'énergie déposée est estimée par les calculs précédents issus de l'analyse du dépôt linéique d'énergie dans le plasma. Celle-ci nous a permis avec la bonne connaissance du jet de déterminer l'énergie moyenne déposée E_{dep} dans le milieu au cours de l'interaction. $W(t)$ s'exprime alors par :

$$W(t) = \frac{E_{dep}}{\pi^{1/2} \delta t} e^{-\left(\frac{t-T_{chauf}}{\delta t}\right)^2} \quad (5.7)$$

On suppose dans ce calcul que la détente de l'agrégat est initiée par l'ionisation des premiers électrons dès lors que l'intensité laser excède l'intensité de seuil décrite au paragraphe 4.3.1. On considère donc que l'instant "0" de l'expansion correspond au temps pour lequel l'intensité laser atteint $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$.

On utilise une méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 (RK4) afin d'intégrer les équations 5.4 et 5.5 et ainsi d'obtenir l'évolution temporelle du rayon de l'agrégat et de la température. Cette technique robuste d'intégration nécessite l'utilisation de variables réduites et un pas d'intégration suffisamment fin pour permettre la convergence du système. Elle permet de calculer la fonction à l'instant $t+1$ en fonction des paramètres de la fonction à l'instant t . De plus, l'erreur numérique commise lors de l'intégration évolue avec le pas d'intégration h , en $1/h^n$ où n est l'ordre de troncature du développement de Taylor de la fonction. Dans notre cas, cette erreur est relativement faible ($n=4$).

Ainsi, on définit le rayon réduit r de l'agrégat de telle sorte que $r = R/R_0$ où R_0 est le

rayon initial de l'agrégat, le temps réduit τ tel que $\tau = t/T_0$ avec T_0 le temps caractéristique d'expansion de l'agrégat ($T_0 = R_0/C_s(0)$) et la vitesse réduite $c = C_s/C_s(0)$ où $C_s(0)$ est la vitesse initiale de l'expansion $C_s(0) = \sqrt{Zk_B T_e(0)/m_i}$, avec $T_e(0)$ la température électronique initiale). L'équation 5.4 devient alors :

$$\frac{\partial^2 r}{\partial \tau^2} = \frac{3c^2}{r} \quad (5.8)$$

De plus, la méthode de Runge-Kutta fait appel à une estimation de la fonction tous les $1/2$ pas de temps $h/2$. Ceci nécessite une définition des paramètres calculés tous les demi-pas de temps et, par rapport à la fonction intégrée, à chaque pas de temps.

Le calcul s'effectue en deux fois ; dans une première, on calcule le rayon de l'agrégat à l'instant τ en fonction de la température électronique à l'aide de l'équation 5.8, dans une seconde, on déduit tous les paramètres nécessaires au calcul de la température à l'instant $\tau + 1/2$. On injecte ensuite la nouvelle valeur de la température estimée par l'équation 5.5 pour déterminer le nouveau rayon de l'agrégat, et ainsi de suite.

On estime l'énergie moyenne acquise par les électrons dans le champ laser par rapport à l'intensité laser de $10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ pour une durée de 420 fs à environ 50 eV (issue principalement du chauffage ATI (Above Threshold Ionisation) des électrons par le champs laser). Cette énergie des électrons permet d'initier la détente de l'agrégat.

Les résultats obtenus en intégrant l'équation 5.4 sont présentés en figure 5.6 pour des agrégats de $\sim 250 \text{ \AA}$ de rayon initial chauffés par une impulsion laser de 500 fs de durée à mi-hauteur et une énergie déposée dans l'agrégat de 20 GeV . On peut voir sur cette figure l'évolution du rayon et de la densité de l'agrégat au cours du temps.

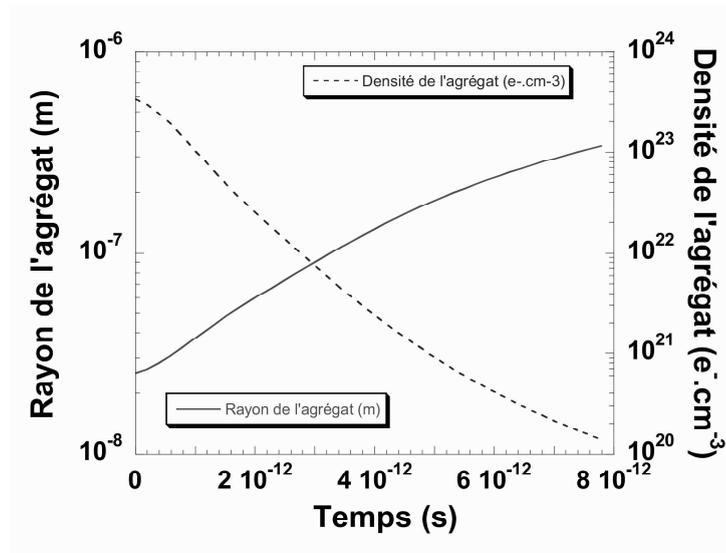


Fig. 5.6: Evolution du rayon et de la densité électronique d'un agrégat de 250 \AA de rayon initial. L'énergie déposée par agrégat est de 20 GeV durant 10 fs .

Si on considère la densité critique à 800 nm égale à $1,7 \times 10^{21} e^{-}.cm^{-3}$, le temps nécessaire à l'agrégat pour atteindre la densité de $3n_c$ à partir du chauffage considéré (voir figure 5.6) est d'environ 3,7 ps.

Le résultat de l'intégration de l'équation d'évolution de la température moyenne des électrons au cours du temps à partir de l'équation 5.5 est représenté en figure 5.7. Nous avons considéré pour cette simulation un agrégat de 250 Å de rayon initial. L'énergie déposée par agrégat est de 20 GeV. Le temps de dépôt est de 15, 100, 250 et 500 fs. On peut voir sur la figure que la température initiale décroît dès lors que l'expansion de l'agrégat a démarré. Ensuite, la température remonte brusquement jusqu'à atteindre plusieurs centaines d'eV par électron sous l'effet de l'absorption. Après, la température diminue de nouveau de façon asymptotique en puissance $t^{-5/2}$ avec le temps.

Si le mécanisme de dépôt correspond plutôt aux hypothèses du modèle nanoplasma, alors la durée du dépôt de l'énergie dans l'agrégat est très courte du fait de la résonance en densité uniforme dans tout l'agrégat. En revanche, si le mécanisme est plus proche des hypothèses formulées par H. Milchberg *et al.*, alors la durée du dépôt sera probablement plus grande. Nous discuterons donc de l'allure des spectres reproduits par TRANSPEC en fonction de leur sensibilité au temps de dépôt.

Par ailleurs, on peut voir sur le graphe 5.7 que l'instant auquel intervient le dépôt d'énergie est inférieur aux 3,7 ps nécessaires pour atteindre la valeur de $3n_c$. On en déduit donc que dans nos calculs, l'énergie sera déposée pour une densité plus élevée ($\simeq 2 \times 10^{22} e^{-}.cm^{-3}$) que celle évoquée par les différents modèles nanoplasma.

A partir de nos calculs et de nos hypothèses, nous allons maintenant simuler l'évolution temporelle de l'émission X du milieu présentant une population d'électrons dont l'énergie cinétique va évoluer en fonction de la durée du dépôt de l'énergie. C'est ce que nous avons fait au moyen d'un code dédié à l'étude de l'émission spectrale des plasmas : le code TRANSPEC.

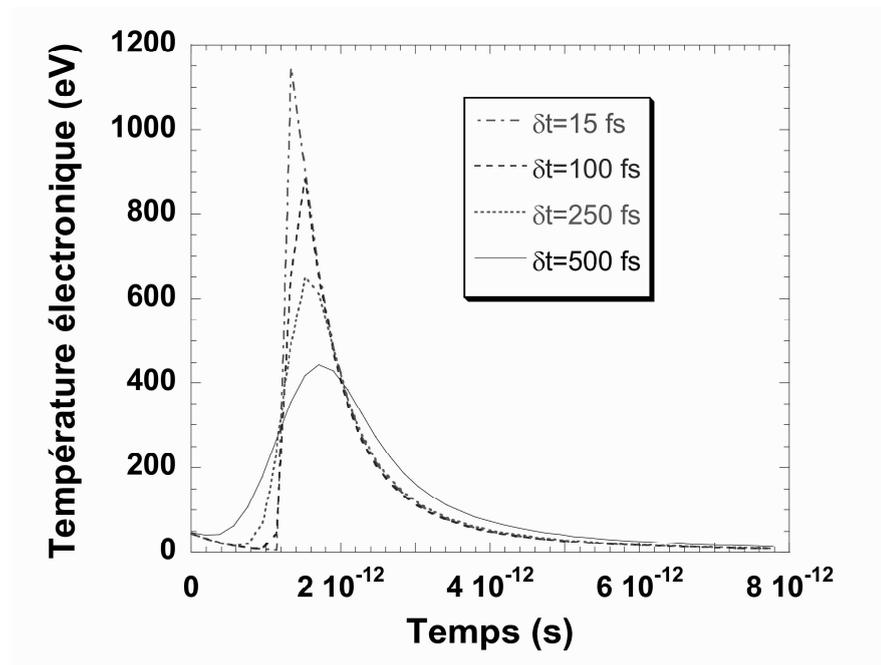


Fig. 5.7: Evolution de la température électronique au sein de l'agrégat en fonction du temps pour différentes valeurs de durée du dépôt d'énergie ($\delta t = 15, 100, 250$ et 500 fs) dans un agrégat de 250 \AA . L'énergie totale déposée par agrégat est de 30 GeV . On considère un état de charge $Z_{ag}^* = 10$.

5.4 Calculs Transpec

Le code TRANSPEC est un code non stationnaire à géométrie plane 1D ou à géométrie sphérique développé par O. Peyrusse au début des années 90 [134]. Il résout les problèmes de transfert radiatif dans les plasmas expérimentaux via un calcul itératif dépendant du temps. Ce modèle agit comme un post-processeur des simulations hydrodynamiques dans lesquels le milieu émetteur est discrétisé en une série de cellules Lagrangiennes où les paramètres hydrodynamiques (densité, température, vitesse) sont calculés en fonction du temps. La version initiale de TRANSPEC modélise ensuite les spectres d'émission X de couche K et calcule le champ rayonné par les transitions ayant lieu dans le plasma [135]. Dans une version ultérieure, le code peut aussi modéliser l'émission spectrale d'ions complexes.

Le code possède deux parties distinctes : une première qui calcule les populations atomiques et une seconde qui reconstruit les spectres émis par le plasma dans la gamme de longueur d'onde souhaitée.

La première lit sur un fichier les variables hydrodynamiques du plasma (*i.e.*, température, densité et vitesse des différentes cellules) à un instant donné. Puis, il calcule la population des niveaux de manière auto-consistante avec le rayonnement émis par les raies optiquement épaisses. Ainsi, il prend en compte le transfert radiatif possible entre les zones d'un plasma inhomogène qui sont traversées par le rayonnement émis par le plasma lui-même. La population des niveaux des différentes cellules est ensuite stockée dans un fichier de sortie. Dans un problème dépendant du temps, cette procédure est répétée pour chaque pas de temps du calcul hydrodynamique. La seconde partie lit dans le fichier de sortie les différentes populations des niveaux puis calcule un spectre d'émission du plasma dans une gamme d'énergie.

Les raies peuvent être décrites de manière détaillée pour les espèces ioniques hydrogénoïdes, héliumoïdes et lithiuoïdes pour les éléments de Z intermédiaire ($6 \leq Z \leq 26$). Les autres espèces ioniques ont une description basée sur des super-configurations électroniques (regroupement des états par ensemble de niveaux). Dans les calculs que nous avons effectué, le spectre est construit à partir du regroupement en super-configurations des niveaux afin de limiter le temps de calcul. L'effet Stark est inclus dans les profils détaillés aussi bien pour les raies de résonance que pour leurs satellites.

Dans notre cas, nous avons considéré l'agrégat comme une seule cellule de plasma où les paramètres (densité, températures et vitesse) sont homogènes en tout point du système. Nous avons donc, comme données d'entrée dans le code TRANSPEC, ces paramètres à différents instants de l'expansion de l'agrégat. On arrête le calcul dès lors que la température électronique et la densité deviennent trop faibles (≤ 10 eV) lorsque l'émission significative de raies dans la gamme étudiée devient trop faible. Cette gamme est définie

de 2,9 à 3,2 keV identique à la fenêtre spectrale du spectromètre à rayons X.

Nous avons effectué des simulations dans les conditions énoncées au paragraphe précédent (des agrégats de $R_{ag} = 250 \text{ \AA}$, une durée d'impulsion de $\Delta t_{laser} = 500 \text{ fs}$, une énergie déposée à l'optimum de 20 GeV par agrégat, sur une durée de $\delta t = 15 \text{ fs}$). Le spectre intégré temporellement ainsi obtenu est représenté en figure 5.8 où il est comparé à un spectre expérimental enregistré dans des conditions optimales pour une pression de 40 bars ($\Delta t_{laser} = (530 \pm 50) \text{ fs}$, focalisation en bord de jet : 1,74 mm par rapport à l'axe de symétrie). On observe bien les états de charge très élevés (présence d'Ar¹⁶⁺) comme expérimentalement, mais les rapports de raies ne sont pas les mêmes (notamment l'intensité des raies lithiomoïde n'est pas bien reproduite). De plus, certaines raies d'émission en provenance d'espèces ioniques moins chargées, comme les satellites Bérylliumoïdes, n'apparaissent pas ou peu. De même, la raie d'intercombinaison n'apparaît pas. Cela tient du fait que le code est utilisé dans une mode qui ne résout pas cette raie.

Le spectre expérimental ne coïncident pas parfaitement avec le spectre simulé ayant un temps de dépôt de 15 fs. Nous avons donc modifié ce paramètre d'entrée du code hydrodynamique afin de s'approcher du spectre expérimental. Nous avons ainsi simulé l'expansion de l'agrégat en supposant dans un premier temps que l'énergie laser était déposée sur un temps plus long que celui estimé par l'expression 5.6. La durée de dépôt utilisée varie de 15, 100 et 250 fs. On peut voir que l'augmentation de la durée du dépôt à énergie déposée constante modifie le spectre et notamment le rapport entre les satellites lithiomoïdes et la raie He_{a1}. Plus la durée du dépôt augmente, plus le rapport se rapproche du cas expérimental. Toutefois, on observe que les satellites bérylliumoïdes et boroïdes sont atténués par ce biais.

On a vu en section 5.2.1 que l'énergie déposée par unité de longueur de plasma dépend de la position le long du plasma. Or, les spectres enregistrés sont intégrés sur toute la longueur du plasma. Malgré la résolution spatiale du spectromètre, celle-ci n'est pas suffisante pour résoudre l'émission sur la longueur du plasma. Nous avons donc calculé des spectres en faisant varier la quantité d'énergie déposée. La figure 5.9 présente les résultats intégrés temporellement et obtenus pour une énergie moyenne déposée par électron de 500, 1000, 1500 et 2000 eV. Les spectres normalisés à l'intensité maximale présentent une évolution de leur structure avec l'énergie laser déposée dans les agrégats de 250 Å de rayon. Le temps de dépôt est ici égal à 250 fs.

On peut donc supposer que l'intégration spatiale du spectre influence les spectres enregistrés. Ceci peut éventuellement être la cause de la nécessité d'utiliser deux plasmas avec des paramètres différents dans les simulations discutées en introduction de ce chapitre.

Le code TRANSPEC permet de reconstruire l'histoire temporelle de l'émission X. C'est ce que nous avons fait à partir des spectres simulés. Nous avons pour cela intégré spectralement les résultats à chaque pas de temps du code. Nous avons tracé sur la figure 5.10 l'évolution temporelle de l'émission X intégrée en fonction du temps. Sur ce même

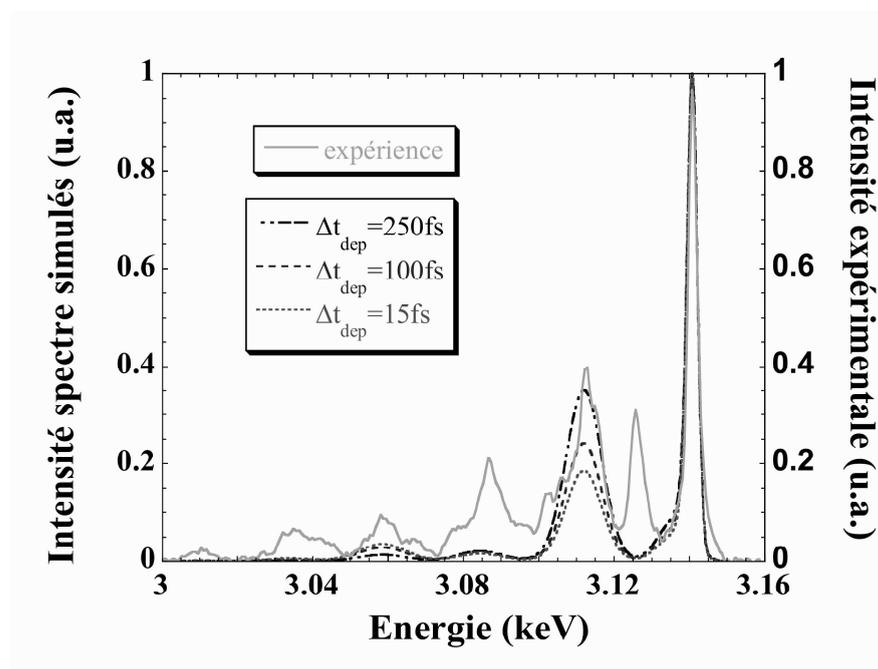


Fig. 5.8: Influence du temps de dépôt sur le spectre normalisé à la raie $He_{\alpha 1}$, calculé pour un rayon d'agrégats $R_{ag} = 250 \text{ \AA}$ et une énergie déposée à la résonance de 1500 eV par électron. Le spectre normalisé expérimental est obtenu pour une pression de 40 bars et une impulsion laser de $(500 \pm 50) \text{ fs}$ contenant 3 mJ .

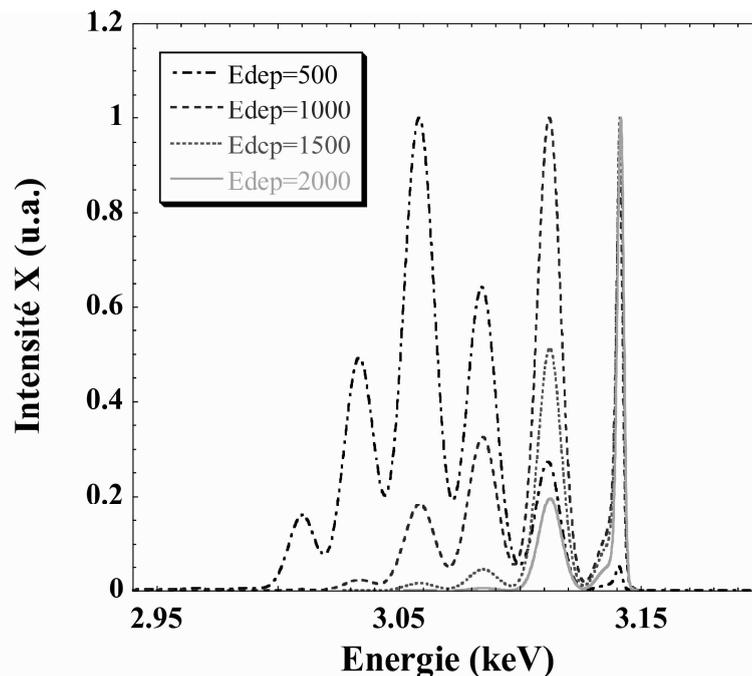


Fig. 5.9: Influence de l'énergie déposée dans les agrégats sur le spectre normalisé à la raie $He_{\alpha 1}$, calculé pour un rayon d'agrégats $R_{ag} = 250 \text{ \AA}$ et un temps de dépôt de 250 fs .

graphe, nous avons reporté une trace balayée en temps de l'émission X au-dessus de 2 keV obtenue au moyen d'une caméra à balayage de fente (caméra streak). Cet appareil permet la mesure de phénomènes ultra-rapides dans le domaine des rayons X avec une résolution temporelle de $(2, 5 \pm 0, 5) \text{ ps}$. La trace a été obtenue lors d'expériences préliminaires menées sur notre source d'agrégats dans des conditions optimales d'interaction et en accumulant plusieurs minutes le signal. Afin d'obtenir un rapport signal sur bruit suffisant, nous avons augmenté la durée d'ouverture de l'électrovanne à 40 ms .

Le signal émis présente un pic d'émission très bref suivi d'un pied temporellement plus long mais beaucoup moins intense. La durée du pic d'émission est de $\sim 500 \text{ fs}$ à mi-hauteur soit à peu près la durée de l'impulsion laser. Lorsqu'on convolue ce signal théorique de la résolution instrumentale de la caméra $(2, 5 \pm 0, 5) \text{ ps}$ et que l'on tient compte du bruit de fond, on observe que le signal intégré se superpose très bien au signal mesuré par la caméra streak. En outre, le pied de l'impulsion X est également présent dans la trace mesurée sur la caméra. En étudiant la durée d'émission par rapport à la largeur spectrale intégrée, il s'est avéré que ce pied semble provenir principalement de l'émission des raies héliumoides. Ces raies peuvent être allumées par recombinaison radiative des électrons libres sur les ions d' Ar^{16+} . Ce mécanisme peut avoir lieu pendant un temps assez long bien après le passage de l'impulsion laser, tant que la densité du milieu est suffisamment élevée.

Ces résultats montrent une durée d'émission bien inférieure à la durée limite ($\leq 10 \text{ ps}$)

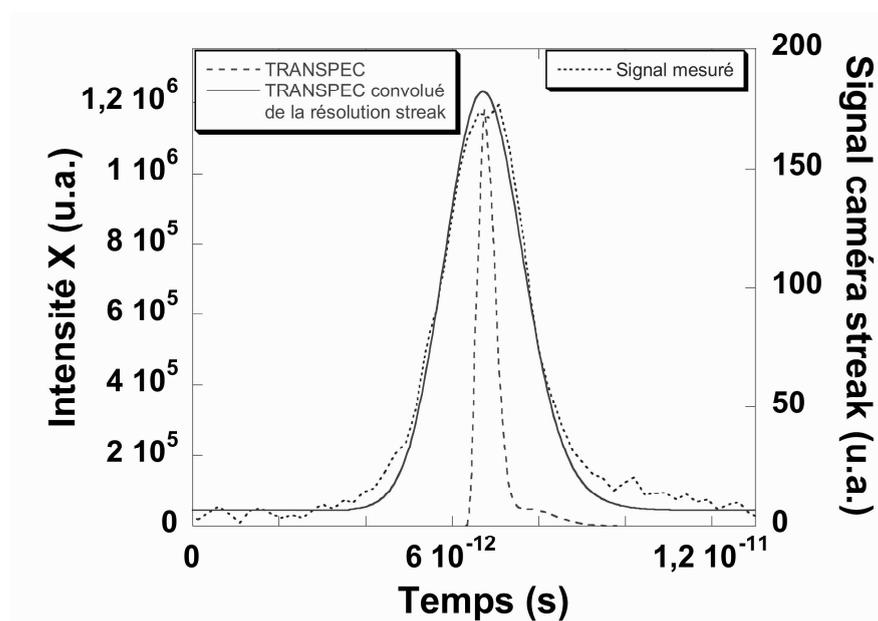


Fig. 5.10: Comparaison de la durée d'émission X calculée par le code TRANSPEC (intégré spectralement de 3,0 à 3,2 keV) avec les mesures préliminaires de durée d'émission X au-dessus de 2 keV réalisée au moyen de la caméra à balayage de fente. Le résultat du code a été convolué de la résolution temporelle de la caméra (ici de $(2,5 \pm 0,5)$ ps) et additionné d'un bruit de fond.

mesurée avec une résolution de 10 *ps* par T. Ditmire *et al.* dans le domaine XUV [11], [7]. Cette durée est également nettement inférieure aux mesures faites par J. Larsson *et al.* qui ont observé la durée d'émission de couche K dans les agrégats d'Argon. Celle-ci possédait une allure temporelle exponentielle décroissante avec une constante de temps de 3 *ns* pour la majeure partie des photons avec seulement 1 % d'émission ayant une durée inférieure à 10 *ps* [37].

La durée d'émission obtenue est très encourageante pour la suite de nos travaux de recherche et tend à montrer que cette durée est très courte. Une étude de la dynamique spectrale fait l'objet actuellement de la thèse de C. Bonté dans laquelle l'aspect temporel de la source sera approfondi.

5.5 Discussions

Nous venons de présenter dans ce chapitre divers résultats et analyses visant à donner une réponse à la question concernant le comportement d'un agrégat unique plongé dans un champ intense. Nous avons évoqué plusieurs axes de recherche explorés lors de ces travaux de thèse.

Nous sommes parvenus à déterminer une énergie moyenne de 20 *GeV* déposée par agrégat de 250 Å. Ceci a constitué pour nous un point de départ dans le but de remonter aux spectres émis par le plasma. En ce sens, nous avons simulé de manière très simpliste la détente de l'agrégat en intégrant les paramètres de mesures de l'énergie absorbée par agrégat. A partir de ces résultats, nous avons tenté de reconstruire grâce au code TRANSPEC les spectres émis par le plasma. L'accord relatif obtenu entre les spectres expérimentaux et simulés nous indique que les hypothèses de notre modèle hydrodynamique sont peut-être trop larges et que les mécanismes de l'interaction sont plus complexes. Toutefois, on peut voir que les états de charges obtenus sont cohérents avec les observations expérimentales. Le mode de dépôt d'énergie se fait visiblement bien autour d'un certain temps mais la comparaison des résultats expérimentaux avec les simulations tendent à montrer que le temps caractéristique de ce dépôt (~ 250 *fs* pour des agrégats de 250 Å) est plus grand que celui estimé par le code nanoplasma (~ 10 *fs* pour des agrégats de 250 Å). Les hypothèses de H. Milchberg *et al.* concernant une résonance en champ dans des couches de densité critique n_c semblent plus proches de la réalité expérimentale par rapport aux temps d'interaction calculés (~ 100 *fs* dans des agrégats de 100 Å) [9]. Ceci tend à confirmer les conclusions obtenues en interaction avec deux impulsions au chapitre 4 en section 4.3.3.

Toutefois, dans notre modèle, la densité d'interaction est, par construction, plus élevée que dans les différents codes nanoplasma. Ceci a pour principal effet de rendre le chauffage plus efficace. Ce modèle simple présente l'avantage d'utiliser des paramètres expérimentaux.

taux, avec les incertitudes que cela implique (intégration spatiale, densité uniforme, etc...), pour reconstruire les spectres X. Ce modèle doit être amélioré pour limiter ces erreurs.

Par ailleurs, l'intégration spatiale des spectres d'émission ne permet pas directement d'étudier l'émission X d'un agrégat unique en fonction des paramètres du laser. Également, l'intégration sur le profil d'intensité du laser empêche de fournir plus d'informations sur la réponse de l'agrégat unique.

En revanche, les mesures de durée d'émission X laissent entrevoir des applications possibles de la source dans l'étude des phénomènes ultra-brefs. Nous avons montré que la durée d'émission X calculée convoluée de la résolution temporelle de l'instrumentation donne une valeur très proche de la durée mesurée qui semble être du même ordre de grandeur que l'impulsion laser [136]. Dans ce cas, les spectres émis en configuration à doubles impulsions de 45 *fs* chacune peuvent éventuellement fournir des pulses d'émission X très courts. Une mesure mieux résolue temporellement (inférieure à la résolution de la caméra streak) de la durée d'émission X dans une telle expérience permettrait de vérifier les observations faites à partir des simulations. Une nouvelle méthode basée sur la corrélation croisée de spectres de photons-électrons a récemment été proposée. Cette technique semble posséder une résolution temporelle de 100 *fs* [137]. Une analyse théorique et expérimentale plus approfondie de l'influence des paramètres de l'impulsion laser sur cette durée d'émission peut permettre d'apporter de nouvelles informations sur la dynamique de l'interaction. Notamment, il est possible, dans l'état actuel de l'installation laser du laboratoire CELIA, d'utiliser les deux impulsions laser délivrées par la chaîne kilohertz. Chaque bras du laser possédant un compresseur à réseaux, il est possible de faire varier la durée de l'impulsion et son énergie indépendamment l'une de l'autre. Une expérience basée sur la variation du délai entre les deux impulsions irradiant la cible d'agrégats et sur la variation de la durée de la seconde impulsion peut fournir une donnée importante sur la durée d'impulsion conduisant à une émission optimale de rayons X.

Conclusion générale

Conclusion générale

Ce travail de thèse a permis d'étudier les propriétés et d'optimiser l'émission de rayonnement X d'une source basée sur l'interaction d'un laser intense avec un jet dense d'agrégats d'Argon. Nos expériences ont permis d'extraire certaines valeurs de paramètres fondamentaux de l'interaction comme le chauffage des agrégats ou le nombre de photons émis.

Initialement, nous avons porté une attention particulière à la caractérisation du jet. Celle-ci a révélé que l'agrégation des atomes dans le jet n'était pas forcément totale. L'optimisation de la source a ensuite montré que l'utilisation d'un jet dense présentant une agrégation partielle pouvait soulever des problèmes de propagation de l'impulsion dans le milieu. Les simulations faites au moyen du code WAKE ont permis d'associer cet effet à l'ionisation du gaz résiduel par l'impulsion. Il est alors nécessaire de se placer en bord du jet pour limiter la réfraction du faisceau.

Par ailleurs, le contrôle du contraste de l'impulsion s'est avéré crucial pour permettre la génération de rayons X. La présence de pré-impulsion à l'échelle nanoseconde détruit prématurément les agrégats si l'intensité de celle-ci excède le seuil de première ionisation des atomes de l'agrégat. En-deçà, la production de rayons X ne semble pas perturbée.

A l'échelle femtoseconde, la source a présenté un rendement de production de rayons X optimal lorsque la durée de l'impulsion laser était adaptée à la taille moyenne des agrégats présents dans le jet. Des mesures à deux impulsions visant à sonder la dynamique du chauffage de l'agrégat ont laissé entrevoir une possibilité supplémentaire d'améliorer ce rendement. Les résultats obtenus par ces mesures semblent aussi confirmer que la résonance en densité supposée du modèle nanoplasma n'est pas tout à fait une résonance au sens strict du terme mais plutôt un temps pendant lequel l'absorption d'énergie laser par l'agrégat est optimale. Nous avons proposé, par ailleurs, une expérience visant à optimiser la durée du dépôt de l'énergie par rapport à celle-ci. Ces mesures à deux impulsions nous ont permis de déduire les lois d'échelles entre le rayon de l'agrégat et l'énergie contenue dans la première impulsion. Celles-ci laissent entrevoir que le temps nécessaire pour atteindre un chauffage efficace peut être associé à une densité donnée dans le milieu. Elles permettent de mesurer le temps pendant lequel l'énergie laser est absorbée. Nous avons aussi mesuré l'énergie moyenne déposée par agrégat. A l'aide de ces différentes mesures,

nous avons développé un modèle simple de l'interaction. Nous avons simulé la dynamique de l'expansion des agrégats et tenté de reconstruire les spectres obtenus de couche K de l'Argon. Cette étude a révélée la difficulté liée à l'intégration temporelle et spatiale de notre spectromètre de Johann dans l'état actuel du montage. En revanche, l'analyse temporelle de l'émission X à la fois théorique et expérimentale a confirmé la brièveté de la source. Ce dernier résultat laisse entrevoir un potentiel intéressant dans l'utilisation de cette source pour des applications dans le domaine de l'ultra-rapide. La durée de l'émission X n'excède pas 3 ps (limite de la résolution temporelle de l'instrumentation) de durée à mi-hauteur pour une impulsion laser de 500 fs .

La comparaison des nos résultats de simulations avec ceux obtenus par collaboration avec le Centre de Données Spectroscopiques d'Ions Multichargés du VNIIFTRI de Moscou a montré que les spectres expérimentaux enregistrés semblent être issus de zones d'émission différentes au sein même du plasma. Également, le temps de dépôt de l'énergie dans les agrégats, déduit des simulations hydrodynamiques associées au code TRANSPEC, semble être supérieur à la durée prédite par le modèle nanoplasma, ce qui confirme l'analyse expérimentale à deux impulsions. Le modèle 1D proposé par H. Milchberg *et al.* donne un temps d'absorption plus long que ce modèle et semble plus proche des valeurs calculées [9].

Toutefois, les hypothèses du modèle hydrodynamique utilisé dans nos calculs sont très simplistes. Une étude plus approfondie des spectres expérimentaux et de leur reconstruction peut être envisagée en considérant toutes les phases du chauffage et de l'expansion de l'agrégat. Un calcul 1D de la détente de l'agrégat peut fournir un complément de cette étude et ainsi confirmer les hypothèses de H. Milchberg *et al.*.

Le rayonnement X émis par notre source est isotrope, incohérent et multi-keV. D'un point de vue quantitatif, il est relativement intense et délivre 2.3×10^6 photons/tir/sr. La source peut atteindre un taux de répétabilité de 40 Hz au maximum du système de pompage. Le rendement de conversion de l'énergie du laser en photons de rayonnement X est de 4×10^{-6} . Ce rendement peut être comparé à celui d'une cible solide, de l'ordre de 6×10^{-5} obtenu sur une cible solide d'Aluminium [74]. A l'inverse de ces cibles, notre source est sans débris et peut fonctionner plusieurs heures sans polluer les optiques environnantes.

De plus, la compétitivité de la source devant les cibles solides ou les nouveaux instruments développés par la communauté scientifique des accélérateurs (FEL X et LINAC femtosecondes), passe par l'amélioration du flux de photons X actuel. Ceci est envisageable en augmentant la cadence de tir et en limitant les effets de la réfraction. Pour cela, nous prévoyons la réalisation d'un nouveau type de buse permettant en même temps de limiter la réfraction par l'augmentation du taux de condensation dans le jet et de limiter le débit de gaz dans l'enceinte expérimentale afin d'utiliser le régime kilohertz du laser. Enfin, le changement de la nature du gaz pourra permettre d'accorder la source en longueur

d'onde (couches K et L) dans la limite des gaz disponibles et possédant des propriétés d'agrégation intéressantes.

Des applications possibles de cette source sont envisageables. Elles nécessitent l'utilisation d'optiques X permettant la focalisation de l'émission X du plasma (cristal sphérique, toroïdal, etc ...) sur un échantillon de matière à étudier. La résolution temporelle de la source permet d'effectuer au moyen des rayons X une photographie de l'échantillon. On peut par cette méthode étudier des processus dynamiques (changement de phase [4], réactions chimiques [138], diffraction X [3]) en filmant l'évolution de l'échantillon dans des échelles de temps très courtes.

La diffraction X résolue en temps peut être envisagée comme application de la source de rayons X caractérisée au cours de ce travail de thèse. Cette technique nécessite un rayonnement X possédant des propriétés de sélectivité en longueur d'onde, de brillance, de courte durée, de haut taux de répétition et avec une bonne reproductibilité tir à tir.

Le domaine de recherche concernant la physique des agrégats reste encore très ouvert : la compréhension des mécanismes peut encore être approfondie. Pour cela, il est nécessaire de pouvoir déconvoluer les mesures de l'intégration temporelle et spatiale des spectres. Il faut également pouvoir sonder l'absorption d'un agrégat unique et déterminer son émission X. La définition d'une méthode expérimentale visant à déterminer la réponse d'un agrégat unique en fonction des paramètres de l'interaction doit être étudiée. Nous proposons, dans les perspectives de cette étude, une démarche expérimentale visant à retirer la réponse d'un agrégat unique.

Perspectives

Perspectives : Vers l'émission X d'un agrégat unique

La plupart du temps, les simulations de l'interaction laser-agrégats reviennent à considérer un agrégat unique plongé dans un champ laser d'intensité donnée. Expérimentalement, on ne peut reproduire de telles conditions. En effet, le jet de gaz aussi bien caractérisé soit-il présente une densité d'agrégats relativement élevée. Lorsque le faisceau focalisé interagit avec cette densité, le volume d'interaction est limité par la région où l'intensité est supérieure à l'intensité de seuil décrite en section 4.3.1, c'est-à-dire par le volume où l'intensité laser est supérieure à $qqs 10^{14} W.cm^{-2}$. On a vu la possibilité d'utiliser des écrémeurs afin de limiter la densité d'agrégats dans la zone focale. Statistiquement, en choisissant un diamètre suffisamment petit et une distance par rapport à la sortie de la buse suffisamment grande, on peut s'arranger à limiter la présence des agrégats à un seul, au foyer du laser. C'est la technique employée par certaines équipes de recherche afin de réaliser l'interaction du laser avec un agrégat unique. Toutefois, à moins de contrôler très précisément la position de cet agrégat dans le volume focal, il est difficile de s'assurer, avec précision, de l'intensité laser réellement vue par l'agrégat lors de l'interaction. En outre, la faible émissivité d'un seul agrégat oblige l'observateur à accumuler pendant plusieurs milliers de tirs laser le signal émis par les agrégats successifs arrivant au foyer. Au final, ce type de mesure revient à observer le signal d'un jet d'agrégats homogène en taille interagissant avec tout le volume focal du faisceau laser. Cependant, la présence d'écrémeurs possède l'avantage de limiter voire de supprimer la réfraction liée à la densité de gaz non agrégé.

Jusqu'ici, les mesures réalisées ont été effectuées en intégrant sur le volume focal et donc sur une certaine distribution en intensité laser. La section 4.3.3 montrait que cet effet pouvait avoir une contribution sur les résultats expérimentaux et éventuellement élargir la "résonance" observée. Pour trancher sur les différents modèles proposés, il faudrait lever cette indétermination. Pour le moins, il serait intéressant d'extraire le comportement du nombre de photons X en fonction de l'intensité laser pour valider les modèles.

Nous avons évoqué au chapitre 1 les différentes observations faites sur le signal X émis en fonction de l'énergie laser. Dans tous les cas, ces résultats ont montré une dépendance

en loi de puissance du signal mesuré en fonction de l'énergie contenue dans l'impulsion du laser. En revanche, la puissance de la loi obtenue s'est avérée différer suivant les résultats présentés. Selon les conclusions présentées par S. Dobosz dans sa thèse de doctorat, la loi de puissance attendue pour l'évolution de l'émission X dans le régime de saturation (tant que le taux d'ions d'un état de charge donné est saturé) est en $I^{3/2}$ associé à l'augmentation du volume focal avec l'énergie laser [27]. Cette loi est vérifiée expérimentalement et est *a priori* indépendante de la durée de l'impulsion laser. D'un autre côté, les résultats présentés par T. Ditmire *et al.* montrent une loi de puissance différente, en $\sim I^{3,0}$ au-dessus de 1 keV et en $\sim I^{2,8}$ au-dessus de 3 keV pour des agrégats de 200 Å et variable avec la taille moyenne des agrégats utilisés, passant à $\sim I^{2,4}$ (1 keV) et $\sim I^{2,3}$ (3 keV) pour des agrégats de 400 Å [20].

Dans le but d'éclaircir la dépendance de l'émission X avec l'énergie du laser dans notre cas, nous avons étudié l'influence de ce paramètre.

La chaîne laser du laboratoire CELIA décrite au chapitre 3 est constituée de plusieurs étages d'amplifications pompés par des lasers YLF de fréquence 1 kHz. Afin d'optimiser l'énergie déposée dans les cristaux des différents étages par rapport à l'énergie emportée par l'impulsion du laser, il convient de synchroniser le délai entre l'impulsion de pompe et l'impulsion amplifiée.

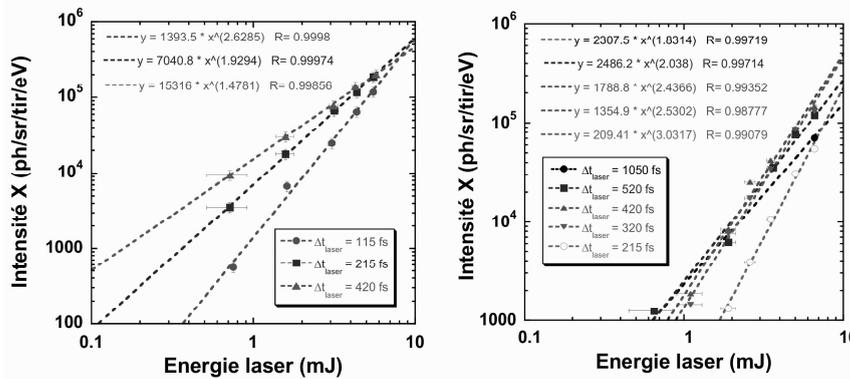


Fig. 5.11: Evolution de l'intensité du rayonnement X (raie $He_{\alpha 1}$) avec l'énergie contenue dans l'impulsion laser : à gauche, dans le cas de la parabole hors axe ($f_l = 2$) et à droite dans le cas de la lentille ($f_l = 4$).

Il est possible, en décalant ce délai, de limiter l'énergie emportée par l'impulsion principale. C'est ce "bouton" que nous avons utilisé pour faire varier l'énergie contenue dans l'impulsion dans cette série de mesures. Nous nous sommes assuré pour cela que le profil

de la tache focale ne variait pas avec le décalage, ce qui était le cas. Nous avons également vérifié que le contraste n'était pas altéré par ce biais. Nous sommes ainsi parvenu à faire varier l'énergie laser contenue dans l'impulsion de 0,5 à 7 mJ.

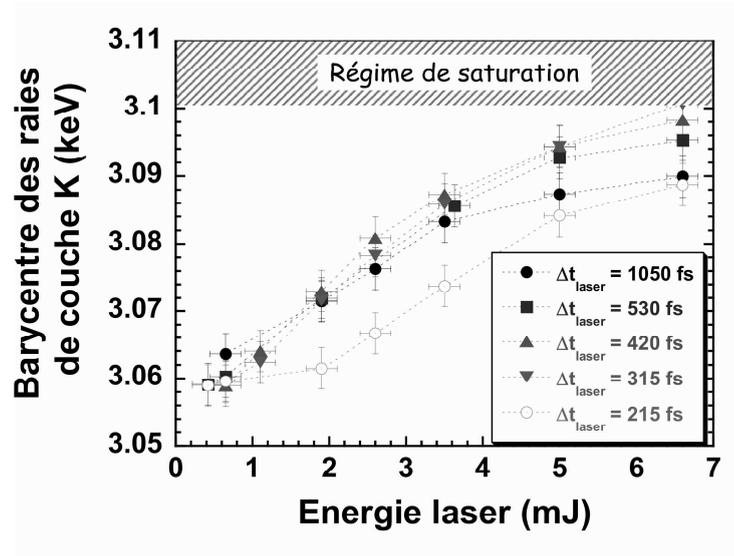


Fig. 5.12: Evolution du barycentre des raies de couche K de l'Argon en fonction de l'énergie du laser pour différentes durées d'impulsion pour 60 bars de pression en amont et dans le cas de la lentille.

Nous avons mesuré la variation de l'intensité du rayonnement X émis dans la raie $\text{He}_{\alpha 1}$ en fonction de l'énergie laser contenue dans l'impulsion. Cette mesure a été effectuée à différentes pressions et différentes durées de l'impulsion laser avec chacune des optiques de focalisation à notre disposition. Les résultats obtenus sur le spectromètre X à la fois dans le cas de la parabole hors-axe et de la lentille, sont présentés en figure 5.11. On peut voir, sur les deux graphes de cette figure, que le signal X augmente avec l'énergie laser en loi de puissance. La puissance de cette loi semble varier avec la durée de l'impulsion laser. Plus la durée de l'impulsion laser augmente, plus la puissance diminue, de $\sim I^3$ pour 200 fs à $\sim I^{1,8}$ pour 1 ps dans le cas de la lentille, et de $\sim I^{2,6}$ pour 115 fs à $\sim I^{1,5}$ pour 420 fs dans le cas de la parabole. Cette variation n'est donc pas tout à fait la même suivant l'optique de focalisation utilisée. L'exposant minimal est voisin de 1,5.

Afin d'étudier plus particulièrement les états d'ionisation observés, nous avons analysé l'influence de l'énergie laser sur la moyenne pondérée de l'intensité relative de chacune des raies du spectre. La figure 5.12 présente l'évolution du barycentre des raies de couche K de l'Argon, qui correspond à peu près à l'ionisation moyenne du milieu. On peut voir sur cette figure, que le barycentre varie avec l'énergie laser et tend vers une saturation lorsque l'on augmente l'énergie. De plus, en fonction de la durée laser, la vitesse de saturation est différente. Si la position du barycentre évolue avec l'énergie laser, cela signifie que

les rapports de raies varient. C'est donc que l'émission X et les différentes populations ioniques au sein du plasma varient. L'émission X des différents états de charge n'est, dans ce cas, pas saturée. La dépendance sur le volume focal n'a plus de raison de dominer l'émission.

On peut alors se demander si l'étude en fonction de l'intensité du laser constitue une information de la réponse de l'agrégat unique. La question de l'effet de l'intensité laser sur l'émission X d'un agrégat reste ouverte dans notre configuration.

Afin de mieux corréler les résultats théoriques avec les résultats expérimentaux, il convient de définir une méthodologie expérimentale permettant de s'affranchir de l'intégration sur le volume d'interaction. C'est ce que l'on se propose d'étudier à présent. On se limitera à la détermination du nombre de photons X de couche K émis par agrégat. Cette méthode est extrapolable à toute grandeur extensive (*i.e.* qui s'ajoute) qui s'intègre sur le volume.

Réponse de l'agrégat unique

Pour remonter à la physique de l'agrégat unique, on exprime l'émission totale de rayonnement X ($I_{Xtotale}$), d'un agrégat plongé dans un champ laser.

Les hypothèses sont les suivantes [139] :

- la densité d'agrégats $N_{ag}(\vec{r})$ est constante dans la zone où l'intensité dépasse le seuil,
- le modèle d'émission est le même pour tous les agrégats,
- le faisceau incident peut être considéré gaussien,
- le gaz ne modifie pas le profil du faisceau (absence de réfraction, absence d'absorption).

La réponse à l'intensité I dans le volume d'interaction s'écrit alors :

$$I_{Xtotale} = \int \int \int_I E_{1ag}(I(\vec{r})) \times N_{ag}(\vec{r}) d\vec{r} \quad (5.9)$$

où $E_{1ag}(I(\vec{r}))$ constitue la réponse d'un agrégat (le nombre de photons X émis) à l'intensité $I(\vec{r})$.

En supposant la densité d'agrégat homogène dans tout le volume d'interaction ($N_{ag} \equiv cte$), on peut alors écrire :

$$I_{Xtotale} = N_{ag} \int_{I_s}^{I_{max}} E_{1ag}(I) \times Vol(I, I + dI) \quad (5.10)$$

expression dans laquelle $Vol(I, I + dI)$ est le volume où l'intensité laser est comprise entre I et $I + dI$. Suivant l'expression 5.10, il est à présent nécessaire de déterminer à la fois le volume d'interaction et la dépendance de l'émission X d'un agrégat avec l'intensité du laser.

Expression du volume focal

Le calcul du volume focal suppose un faisceau gaussien, on regarde alors l'évolution de l'intensité en fonction des paramètres d'espace et du temps. On obtient :

$$I(r, z, t) = I_{max} e^{-\left(\frac{t-z/c}{\Delta\tau}\right)^2} \frac{1}{1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2} \times e^{-\frac{r^2}{\sigma(z)^2}}, \text{ avec } \begin{cases} \sigma(z) = \sigma_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2} \\ I_{max} = \frac{E_{tot}}{\pi^{3/2} \Delta\tau \sigma_0^2} \end{cases} \quad (5.11)$$

I_{max} est l'intensité maximale accessible et s'exprime en $W.cm^{-2}$, Z_R est la longueur de Rayleigh, σ_0 et $\Delta\tau$ respectivement la demi-durée et le rayon minimal accessible en $1/e$ de l'intensité. Si l'on se place à z fixé et que l'on intègre l'intensité en temps et en rayon, on retrouve l'énergie totale contenue dans l'impulsion :

$$E_{tot} = \frac{I_{max}}{1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2} \times \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\left(\frac{t-z/c}{\Delta\tau}\right)^2} dt \times \int_0^{+\infty} e^{-\frac{r^2}{\sigma(z)^2}} 2\pi r dr, \quad (5.12)$$

Dans la suite, on retire l'information temporelle de façon à retrouver l'information qui nous intéresse. On prendra en chaque point la valeur maximale de l'intensité. On utilisera alors la formule :

$$I(r, z) = I_{max} \frac{1}{1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2} \times e^{-\frac{r^2}{\sigma(z)^2}} = I_0(z) \times e^{-\frac{r^2}{\sigma^2(z)}}, \text{ avec } I_0(z) = \frac{I_{max}}{1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2} \quad (5.13)$$

Comme cela a été décrit précédemment, la création de lacunes en couche interne nécessite au minimum d'avoir au préalable ionisé le milieu. En deçà d'une certaine intensité crête du laser, on ne peut donc avoir d'émission X. On introduit alors un seuil d'intensité I_s en dessous duquel l'émission X est nulle. La zone d'émission est alors délimitée par un contour d'intensité égale à l'intensité de seuil I_s .

Le volume contenu dans cette zone correspond au volume de révolution défini par le contour d'iso-intensité I_s . L'expression obtenue de ce volume est [140] :

$$\begin{aligned} V_{I_s} &= \int_{-z_s}^{z_s} \pi r_s^2(z) dz \\ &= 2\pi \sigma_0^2 Z_R \left(\frac{2}{9} (x-1)^{3/2} + \frac{4}{3} \sqrt{x-1} - \frac{4}{3} \arctan \sqrt{x-1} \right) \end{aligned} \quad (5.14)$$

avec,

$$\begin{cases} x = \frac{I_{max}}{I_s}, \\ z_s = Z_R \sqrt{x-1}, \text{ demi-longueur de la zone d'émission X défini par } I_0(z_s) = I_s, \\ r_s(z) = \sigma(z) \sqrt{\ln \left(\frac{x}{1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2} \right)}, \text{ rayon de l'iso-contour } I_s \text{ en fonction de } z. \end{cases}$$

Dans nos expériences, l'intensité maximale peut dépasser l'intensité seuil de quelques ordres de grandeur. Le rapport, appelé x , peut alors être considéré grand devant l'unité. Si l'on observe l'évolution asymptotique du volume avec x , on obtient :

$$V_{I_s} \underset{z \rightarrow \infty}{\sim} \frac{4}{9} \pi \sigma_0^2 Z_R x^{3/2} \quad (5.15)$$

On obtient alors une évolution du volume en $I_{max}^{3/2}$ pour $x \rightarrow \infty$. Ceci coïncide avec les résultats expérimentaux déjà observés [21], [22]. Il semble alors légitime de penser que l'émission de photons X est simplement proportionnelle au volume dans le cas où la population des atomes dans un état de charge donné est saturée. Cela correspond à un modèle d'émission d'un agrégat pour lequel on aurait l'émission d'un nombre fixe de photons par agrégat au dessus du seuil d'émission, indépendamment de l'intensité laser (comme décrit sur la figure 5.13).

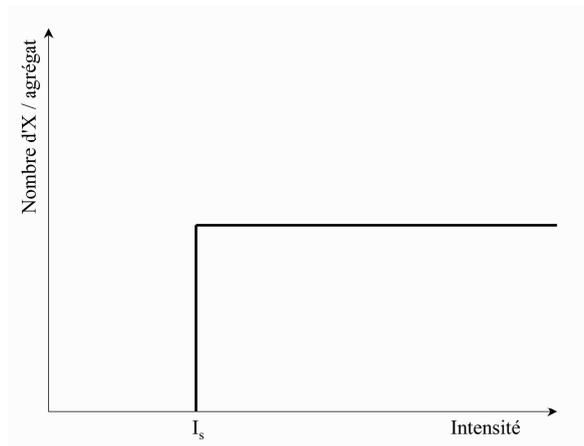


Fig. 5.13: Premier modèle d'émission.

Il est intéressant de se demander si ce résultat suffit à constituer une preuve que l'émission est du type de celle proposée en figure 5.13. Il a été jugé intéressant d'observer quelle serait l'évolution de l'intensité X en prenant un autre modèle d'émission, pour lequel la quantité de photons X émis par agrégat serait dépendante (avec une loi de puissance différente) mais pas seulement proportionnelle à l'intensité au delà du seuil.

Modèle de l'évolution de l'émission X d'un agrégat avec l'intensité

La représentation graphique de l'émission des agrégats dans un tel modèle est donnée sur la figure 5.14. L'évolution du nombre de photons X émis dans ce modèle est nulle tant que l'intensité du laser n'excède pas l'intensité de seuil. Au-delà, l'émission augmente avec l'intensité laser en loi de puissance α .

Posons la quantité $X_{\alpha,x}$ définie par la quantité de photons X émis par le plasma divisé par la densité d'agrégats N_{ag} . On obtient alors une fonction de $x = I_{max}/I_s$ et de α (loi de puissance de x) :

$$X_{\alpha,x} = \int_{-z_s}^{z_s} \int_0^{r_s(z)} \left(\frac{I(r,z)}{I_s} \right)^\alpha 2\pi r dr dz, \quad (5.16)$$

avec z_s la demi-longueur de la zone émettrice pour laquelle $I = I_s$ et $r_s(z)$, le rayon.

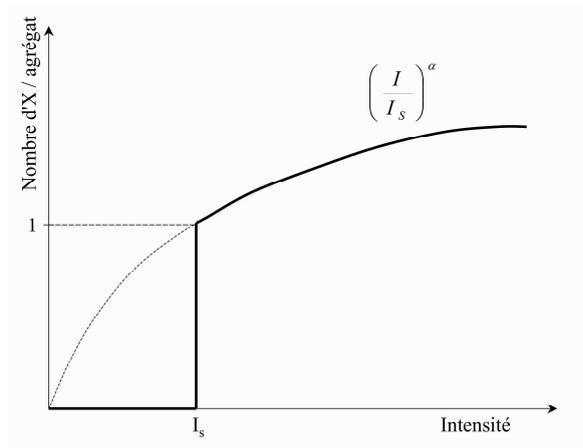


Fig. 5.14: *Modèle d'émission étudié (en trait plein). Le nombre de rayons X émis augmente en loi de puissance α dès lors que l'intensité du laser excède l'intensité de seuil.*

Le détail des calculs de ces intégrales est présenté en annexe C. La formule obtenue est la suivante :

$$X_{\alpha,x} = 2\pi\sigma_0^2 Z_R \frac{1}{\alpha} \left(x^\alpha h_\alpha(\sqrt{x-1}) - \sqrt{x-1} - \frac{(x-1)^{3/2}}{3} \right) \quad (5.17)$$

avec

$$h_\alpha(s) = \int_0^s \frac{1}{(1+u^2)^{\alpha-1}} du = \int_0^{\arctan(s)} \cos^{2\alpha-4}(v) dv, \quad (5.18)$$

Il est intéressant d'étudier le comportement de la fonction $h_\alpha(s)$. Asymptotiquement,

$$\frac{1}{(1+u^2)^{\alpha-1}} \underset{u \rightarrow \infty}{\sim} \frac{1}{u^{2\alpha-2}} \quad (5.19)$$

La fonction $h_\alpha(s)$ est donc intégrable sur $[0; +\infty[$ si et seulement si $\alpha > \frac{3}{2}$. On distingue deux régimes différents de part et d'autre de la valeur $3/2$.

– Premier cas : $\alpha < 3/2$.

La fonction est continue et positive, l'intégrale vers $+\infty$ devient :

$$h_{\alpha < \frac{3}{2}}(s) \underset{s \rightarrow \infty}{\sim} \int_1^s \frac{1}{u^{2\alpha-2}} du \underset{s \rightarrow \infty}{\sim} \frac{1}{3-2\alpha} s^{3-2\alpha} \quad (5.20)$$

ce qui donne alors pour l'émission X,

$$X_{\alpha < \frac{3}{2}}(x) \underset{x \rightarrow \infty}{\sim} \frac{4}{3(3-2\alpha)} \pi \sigma_0^2 Z_R x^{3/2} \quad (5.21)$$

Les approximations faites dans ce calcul ont été vérifiées numériquement. On remarque aussi que lorsque $\alpha \rightarrow 0$ on retrouve le coefficient 4/9 attendu d'après la formule du volume (expression 5.14). On remarque alors que sur tout l'intervalle $\alpha \in [0; 3/2[$, la quantité de rayonnement X évolue en fonction de $I_{max}^{3/2}$. On ne peut donc pas conclure aussi rapidement sur le modèle de l'émission de l'agrégat unique à partir de mesures intégrées sur tout le volume focal.

– Deuxième cas : $\alpha > 3/2$.

L'intégrale $h_{\alpha > \frac{3}{2}}(s)$ converge vers une constante $c(\alpha)$ et l'on a :

$$X_{\alpha > \frac{3}{2}}(x) \underset{x \rightarrow \infty}{\sim} 2\pi \sigma_0^2 Z_R \frac{c(\alpha)}{\alpha} x^\alpha \quad (5.22)$$

L'émission X intégrée sur le volume focal évoluerait donc comme I_{max}^α . Cependant, ceci est une évolution asymptotique, dans la pratique, x dépasse difficilement 3 ordres de grandeur. Et sur cette portion de courbe, l'évolution peut être assez proche de $I_{max}^{3/2}$.

Au final, l'émission globale du plasma en fonction de l'intensité ne fournit pas suffisamment d'informations pour déterminer avec précision la valeur de α et du seuil d'intensité I_s . L'observation d'une évolution du signal avec $I_{max}^{3/2}$ traduit seulement le comportement avec une loi de puissance inférieure à 3/2. Ceci ne constitue pas une preuve de l'influence de l'intensité laser sur l'émission X d'un agrégat unique. Nous n'avons pas forcément, dans ce cas, un régime de saturation. En revanche, si on observe une pente plus grande, le comportement est similaire à celui d'un agrégat unique.

Discussion

La vérification de la dépendance du volume focal par rapport à l'intensité laser a fait l'objet d'une attention particulière de notre part. En effet, le calcul précédent est valable pour une impulsion parfaitement gaussienne. Rien ne nous indique à première vue que c'est le cas dans nos expériences. Nous avons contrôlé l'évolution du volume au dessus du seuil en fonction de l'intensité laser au moyen des mesures de taches focales en fonction de la position sur l'axe de propagation (présentées en section 3.1.3, figure 3.8). Nous avons reconstruit la cartographie 3D du volume focal et comparé ce dernier aux calculs à partir de la formule 5.14. La figure 5.15 présente les résultats obtenus de l'évolution du volume focal au-dessus d'un seuil en intensité en fonction de la valeur de ce seuil. Le volume est reconstruit dans le cas de la lentille et de la parabole hors-axe. Le tracé des points expérimentaux en échelle logarithmique montre une diminution du volume à mesure que l'intensité de seuil augmente. Cette diminution suit la tendance de la loi théorique en $(\frac{I_{max}}{I_s})^{3/2}$. Lorsque l'intensité seuil avoisine l'intensité maximale accessible au foyer, le volume décroît très rapidement jusqu'à s'annuler. L'hypothèse d'un faisceau gaussien est validée dans ce cas, sous vide, en l'absence de réfraction.

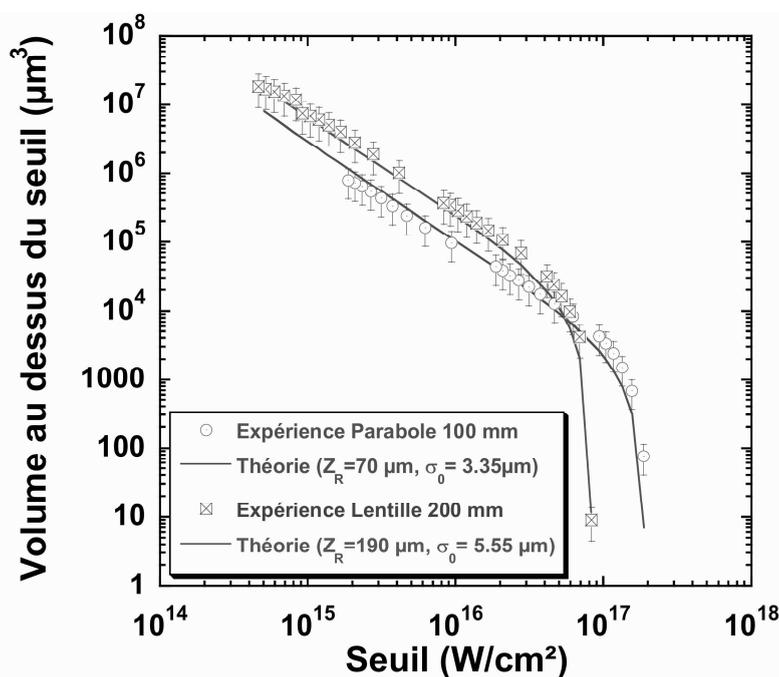


Fig. 5.15: Comparaison du volume expérimental au-dessus du seuil en fonction de l'intensité laser seuil avec l'expression théorique calculée pour une gaussienne pure (équation 5.14).

Par rapport aux résultats ayant déjà fait l'objet de publications, nos observations en fonction de la durée de l'impulsion laser sont nouvelles et légèrement différentes. Dans

le cas des résultats présentés par S. Dobosz, la durée de l'impulsion laser utilisée est de 130 fs pour une intensité maximale accessible de $5 \times 10^{17} \text{ W.cm}^{-2}$. Pour une telle durée d'impulsion, nous obtenons une pente près de deux fois supérieure. A l'inverse, la valeur de la pente obtenue par T. Ditmire pour une impulsion de 2 ps de durée varie de 2,8 à 2,3 suivant la taille moyenne des agrégats de Xénon utilisés (respectivement 200 et 400 Å) ne semble pas non plus correspondre aux valeurs mesurées dans notre cas.

Afin d'interpréter cette différence de comportement entre les résultats de S. Dobosz *et al.*, mais aussi ceux de J.P. Rozet *et al.* [22], et de T. Ditmire par rapport aux nôtres, deux pistes peuvent être envisagées (dans le cas de l'intégration du nombre d'X émis par rapport à l'énergie contenue dans l'impulsion) :

- Premièrement, dans notre cas, on ne regarde pas la dépendance de l'émissivité avec l'intensité maximale accessible mais en fonction de l'énergie. Il existe un lien de proportionnalité entre les deux, et dans nos conditions expérimentales, on ne peut être sûr que la réfraction par la densité de gaz non agrégé n'ait pas un effet néfaste sur l'intensité maximale accessible ainsi que sur tout le volume d'interaction par modification du rayon minimal accessible σ_0 . Bien que la focalisation se fasse en bord de jet, on risque tout de même de ne plus être dans le régime asymptotique avec une dépendance en $I_{max}^{3/2}$ au-dessus du seuil à $\sim 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$.
- Deuxièmement, l'hypothèse initiale repose sur l'absence d'absorption dans le milieu. Cet effet peut participer au confinement du volume focal.

On ne peut donc pas en l'état actuel de nos mesures déterminer la réponse de l'agrégat unique en terme d'émission X. La densité élevée du jet limite les observations et les conclusions. Il convient de trouver une autre méthode pour extraire la réponse d'un agrégat à la variation de l'intensité laser. Par exemple, il faudrait travailler dans un jet de faible densité pour s'affranchir de ces deux problèmes.

Vers la réponse de l'agrégat unique

Dans le but de valider nos hypothèses et de connaître l'influence de la variation de l'énergie laser sur l'émission d'un agrégat unique, il est donc nécessaire d'envisager une solution pour déconvoluer les effets de la réfraction et de l'intégration sur le profil d'intensité du laser. Il faut également se prémunir de l'effet de l'absorption de l'énergie laser contenue dans l'impulsion sur le profil spatial du plasma. Par exemple, on pourrait définir une géométrie de jet avec une densité suffisamment faible pour ne pas modifier la propagation du laser mais possédant tout de même des propriétés d'agrégation intéressante pour l'aspect émissif de la source. On peut aussi imaginer des paramètres de jet permettant une agrégation quasi-totale des atomes et ainsi diminuer la contribution de l'ionisation des atomes du gaz résiduel à la réfraction.

Malheureusement, nous ne disposons ni d'une buse donnant un jet dont les dimensions seraient de l'ordre de grandeur de Z_R (~ 70 à $190 \mu m$), ni de suffisamment d'énergie laser pour couvrir la longueur du jet actuel ($\sim 4 mm$). Il faudrait concevoir une nouvelle buse correspondant aux paramètres de nos optiques (largeur du jet $\simeq 2Z_R$) et à la quantité d'énergie disponible sur la chaîne laser actuelle ($\sim 11 mJ$). Ensuite, il faudrait redéfinir précisément les caractéristiques des agrégats pour pouvoir procéder ainsi. Une autre possibilité consisterait à utiliser la buse actuelle sur une autre installation laser disposant de suffisamment d'énergie pour couvrir tout le jet. Mais c'est sans compter sur le rôle joué par la réfraction lors de la propagation du faisceau dans un jet large. Pour limiter cet effet, il faut alors définir une nouvelle pression de fonctionnement avec sans doute également une nouvelle caractérisation des paramètres du jet.

En ce sens, on peut estimer le taux d'agrégation nécessaire initialement pour compenser l'effet de la réfraction. Pour cela, il faut que le déphasage soit positif ce qui revient à écrire, pour la partie entre crochets dans l'expression 4.15 :

$$(1 - \eta) - \frac{3\eta n_c}{n_{ag} Z_{gaz}^*} < 0 \quad (5.23)$$

On obtient alors la condition sur le taux de condensation du jet :

$$\eta > \frac{1}{1 + \frac{3\eta n_c}{n_{ag} Z_{gaz}^*}} \quad (5.24)$$

ce qui donne avec $n_c \simeq 1.75 \times 10^{21} e^- .cm^{-3}$, $Z_{gaz}^* \simeq 8$ et pour des agrégats de 250 \AA , $n_{ag} \simeq 3 \times 10^{22} at.cm^{-3}$ une agrégation de près de 98 % des atomes du jet tout de même.

On peut également estimer la densité totale d'atomes nécessaire dans le jet afin de limiter la réfraction par la densité du gaz résiduel si on conserve le même taux d'agrégation. Des calculs effectués à partir du code WAKE semblent montrer que l'on peut fonctionner avec une densité totale $n_{tot} \simeq 10^{18} at.cm^{-3}$ dans le jet sans trop altérer l'intensité du laser dans le volume focal. Cela implique alors de travailler avec une pression en amont du jet de $4 bars$ (estimée par calcul 1D).

En dernier lieu, on peut supposer réduire la densité moyenne d'agrégats dans le jet afin de limiter l'absorption de l'énergie du laser. On peut espérer alors une meilleure propagation de l'impulsion, sur une longueur plus grande. En supposant une diminution de l'absorption dans le jet d'agrégats de 80 % à seulement 8 %, on peut espérer que l'effet de la diminution de l'énergie laser au cours de la propagation soit limité. Cela nécessite une modification de la densité d'agrégats de $qqs 10^{12} ag.cm^{-3}$ actuellement au centre du jet, à $10^9 ag.cm^{-3}$. On peut obtenir une telle diminution de la densité en se plaçant éventuellement plus bas sous la sortie de la buse (avec la détente du jet, la densité moyenne diminue à mesure que l'on s'éloigne de la buse). L'effet est alors double : on peut ainsi réduire la densité moyenne d'agrégats, et donc l'absorption, mais aussi on peut

réduire la densité de gaz résiduel sans faire varier la taille moyenne des agrégats. En tenant compte de l'angle de divergence du jet (proche du demi-angle du cône de sortie de la buse de 5.4°), on en déduit la distance nécessaire pour atteindre la densité requise qui est d'environ 315 mm sous la buse. Mais dans ce cas, la largeur du jet est alors de 600 mm !

Si l'on maîtrise le volume focal et la répartition de l'intensité du laser à l'intérieur, on peut alors envisager d'étudier l'émission des agrégats plus précisément par rapport au profil d'intensité. Deux techniques sont alors proposées : la première consiste à mesurer l'émission X d'un jet limité en taille par rapport à la zone de Rayleigh de l'optique de focalisation utilisée, la seconde sur un jet étendu repose sur la mesure par imagerie sténopée du profil de la zone d'émission X.

Mesures sur un jet limité en taille

Le premier dispositif permettant de mettre en évidence les coefficients x et α que l'on veut mesurer consiste à faire varier un des paramètres de la mesure (l'intensité laser dans notre cas). On se place dans un jet d'agrégats dont les dimensions transverses z_{lim} sont inférieures à celles de la zone où l'intensité laser est supérieure au seuil. Il faut alors changer les bornes de l'intégrale.

L'expression 5.16 devient alors :

$$X_{\alpha,x} = \int_{-z_{lim}}^{z_{lim}} \int_0^{r_s(z)} \left(\frac{I(r,z)}{I_s} \right)^\alpha 2\pi r dr dz \quad (5.25)$$

et à la limite,

$$X_{\alpha,x} \underset{z \rightarrow \infty}{\sim} 2\pi\sigma_0^2 Z_R \frac{c(z_{lim}, \alpha)}{\alpha} x^\alpha \quad (5.26)$$

avec $c(z_{lim}, \alpha)$, fonction indépendante de x

Il est intéressant de remarquer que la pente de l'émission X en échelle log-log donne directement le coefficient α . Toutefois, il paraît difficile de concevoir un jet possédant une largeur de quelques microns. On peut éventuellement envisager d'utiliser une optique avec un paramètre confocal plus grand mais il est nécessaire dans ce cas de disposer de plus d'énergie dans l'impulsion laser pour couvrir toute la longueur du jet avec $I_{max} > I_s$.

Imagerie sténopée

Le second dispositif envisagé repose sur l'information donnée par l'imagerie sténopée. En effet, elle apporte une image à deux dimensions de l'émission du rayonnement X.

En l'absence de réfraction, l'information radiale peut être considérée. Mais réellement, cet effet altère le résultat obtenu. De plus, nous avons constaté que les vibrations de l'enceinte expérimentale modifient quelque peu la hauteur de visée de l'optique de focalisation. On a donc au final une mauvaise résolution suivant cet axe. On effectue alors l'intégrale suivant le rayon, de façon à ne conserver qu'une information suivant l'axe de propagation z .

Voici l'expression de la quantité $X_{\alpha,x}$ en fonction de la profondeur z , proportionnelle à la quantité de rayonnement X émis suivant l'axe de propagation du faisceau.

$$\begin{aligned}
 X_{\alpha,x}(z) &= \int_0^{r_s(z)} \left(\frac{I(r,z)}{I_s} \right)^\alpha \\
 &= \pi \frac{\sigma_0^2}{\alpha} \left(1 + \left(\frac{z}{Z_R} \right)^2 \right) \left(\left(\frac{x}{1 + \left(\frac{z}{Z_R} \right)^2} \right)^\alpha - 1 \right)
 \end{aligned}$$

L'évolution de la courbe résultante dépend beaucoup du coefficient α (puissance de x) et de l'intensité seuil contenue dans $x = \frac{I_{max}}{I_s}$, comme on peut le voir dans les graphiques suivants (figure 5.16).

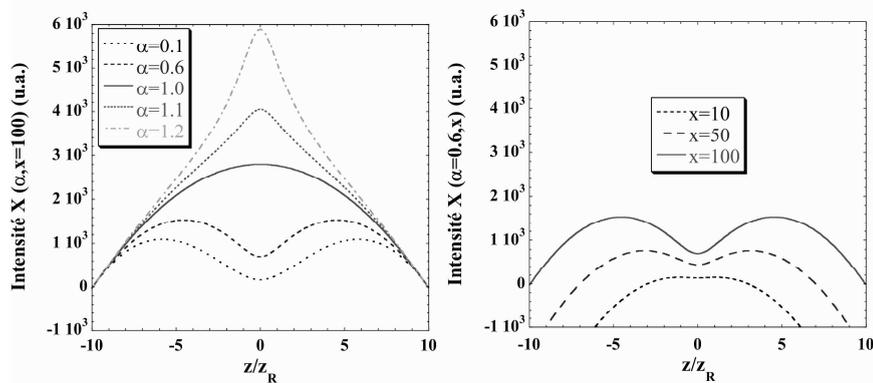


Fig. 5.16: Influence des paramètres α (puissance de x) et $x = \frac{I_{max}}{I_s}$ sur la quantité $X_{\alpha,x}$: profil longitudinal de l'émission X.

On remarque, à partir des courbes de la figure 5.16, que le seuil d'émission de rayons X dépend essentiellement de la longueur de la zone d'émission, alors que la puissance α est caractérisée par la forme du profil d'émission.

Le cas $\alpha = 1$ constitue une transition entre 2 régimes différents, l'un dominé par un effet de volume sur l'émission X, l'autre par l'effet de l'intensité sur l'émission X. Pour $\alpha < 1$, la quantité d'X est plus faible au centre que sur les lobes. On a une émission comparable à celle du volume où l'intensité dépasse le seuil. Par contre, pour $\alpha > 1$ l'émission est principalement concentrée au foyer. On a donc une forte dépendance du

profil d'émission avec l'intensité du laser. Le diagnostic d'imagerie sténopée permet donc d'obtenir le profil de la zone d'émission X en une seule mesure et permet de fournir les deux informations x et α que l'on souhaite récupérer.

Dans le but de retirer l'information sur la valeur de α , nous avons observé l'évolution du profil de la zone émettrice en fonction de l'énergie laser contenue dans l'impulsion. La figure 5.17 montre l'évolution de ce profil dans le cas de la parabole hors-axe utilisée comme optique de focalisation et dans le cas de la lentille. On observe sur les deux graphes une augmentation de l'intensité du signal avec l'énergie. Dans le cas de la parabole, la largeur de la zone émettrice est plus courte qu'avec la lentille. Ceci tient au fait qu'avec la parabole, la longueur de Rayleigh associée ($Z_R = 70 \mu m$) est plus faible que celle de la lentille ($Z_R = 190 \mu m$).

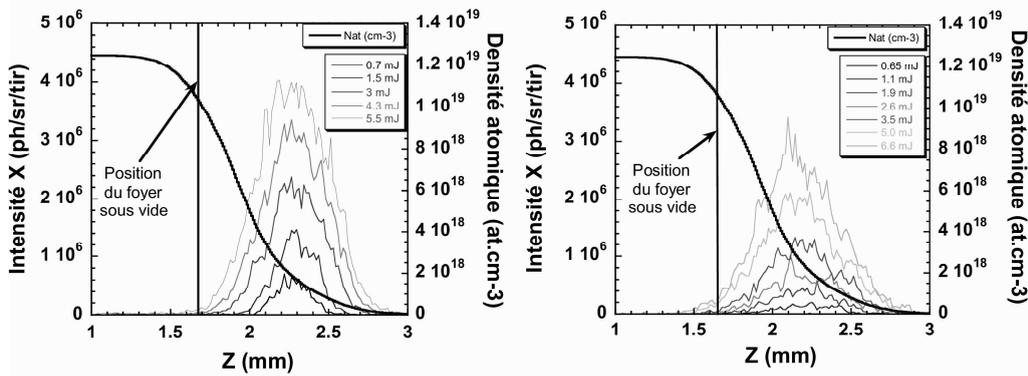


Fig. 5.17: Evolution du profil intégré de l'émission X mesuré par l'imagerie pinhole pour une pression de 40 bars en amont du jet et une durée laser de 430 fs pour différentes énergies de l'impulsion laser. A droite, il s'agit de la lentille de focalisation $f_{\#} = 4$ et à gauche de la parabole hors-axe $f_{\#} = 2$.

En outre, lorsque l'on étudie de près l'allure du profil obtenu et plus particulièrement, son évolution avec l'énergie laser, on peut voir qu'il n'est pas ou peu modifié par la variation de l'énergie. Ceci est vrai dans les deux cas, parabole et lentille. La forme piquée du profil du plasma tendrait à supposer que la valeur de α est supérieure à 1 (si l'on considère une valeur de x égale à 100 : voir figure 5.16). Mais ce paramètre souffre probablement ici de l'effet de la réfraction tout comme le paramètre x . Suivant que l'on considère ou pas qu'il y a un effet de la réfraction sur la valeur de l'intensité maximale accessible, à première vue, la valeur de x et de α sera ou ne sera pas affectée. Nous ne pouvons pas directement conclure en l'état actuel des mesures sur l'influence de ces paramètres.

Discussion

L'analyse de l'émission X d'un agrégat unique constitue un problème complexe et difficile à résoudre actuellement dans les conditions de notre jet dense. La réfraction et l'absorption ne facilitent pas l'analyse de l'influence de l'intensité du laser sur la réponse d'un agrégat unique quel que soit le diagnostic envisagé.

Il est donc nécessaire de redéfinir un ensemble de paramètres du jet, et donc de la buse. En outre, ce travail peut également s'orienter vers l'exploitation du jet pour des applications de la source. L'utilisation de la cadence kHz du laser constitue un point important de ce travail.

En supposant que le débit de gaz maximal supporté par le système de pompage actuel correspond à une ouverture de l'électrovanne de 40 ms chaque seconde à 40 $bars$ soit un facteur 25 sur le temps d'ouverture du jet par seconde, la conservation du débit impose une diminution du produit de la pression en amont de la buse P_0 par le carré de la section au col Φ_{col} de ce même facteur.

Supposons par exemple, une diminution d'un facteur 4 sur la pression (soit à passer de 40 à 10 $bars$ en amont de la buse) et d'un facteur 6,25 sur la section au col (soit à passer de 625 à 250 μm). Si l'on veut conserver la même taille d'agrégats, le paramètre d'Hagena Γ^* doit rester constant. Cela implique alors :

$$\Gamma^* \propto P_0 \left(\frac{\Phi_{col}}{\tan \alpha} \right)^{0.85} = cte \quad (5.27)$$

avec α le demi angle de la buse.

On obtient alors une estimation de la valeur du nouvel angle de la buse de $0,3^\circ$. En considérant une longueur de buse de 20 mm , le diamètre de sortie du jet Φ_{out} est alors de 450 μm .

Toutefois, la densité en sortie du jet n_{tot} dépend du rapport des sections de la buse et de la pression en amont du jet. On peut estimer sa nouvelle valeur normalisée par rapport à son ancienne valeur :

$$n_{tot} = \frac{P_0}{40} \left(\frac{\Phi_{col}}{625} \right)^2 \left(\frac{3800}{\Phi_{out}} \right)^2 \quad (5.28)$$

La valeur obtenue est alors ~ 100 fois supérieure à la densité totale actuellement utilisée. Il est donc nécessaire de se placer à 10 mm sous la nouvelle buse pour retrouver une valeur de densité identique. Le diamètre du jet est alors de 2,45 mm à cet endroit. Malheureusement, cette densité suppose que l'on a le même taux d'agrégation que précédemment et donc encore un effet lié à la réfraction. Il faut à priori se placer à une distance encore plus grande de la sortie du jet afin de limiter la réfraction.

La puissance X obtenue dans le cas d'un jet continu est beaucoup plus importante que dans le cas actuel, d'un facteur 30 environ, ce qui n'est pas négligeable en vue des

applications.

A ce stade, plusieurs choix s'offrent à nous. On peut décider de fonctionner avec une densité plus faible et donc un effet limité de la réfraction avec une buse définie comme précédemment, ou alors on peut tenter de définir un critère permettant d'estimer le taux de condensation de la buse en fonction de ses paramètres. Ceci nécessite alors une étude complète que nous ne ferons pas ici.

Afin d'augmenter le nombre de photons X reçus dans le cas d'une nouvelle buse, on peut supposer augmenter le volume focal en l'absence de réfraction, car on a alors des nouveaux paramètres de densité dans le jet. Ceci nécessite éventuellement l'utilisation d'un laser plus intense. Actuellement, au laboratoire CELIA, un laser femtoseconde 100 *Hz* avec des énergies de 100 *mJ* par impulsions est en construction. Cette installation pourrait répondre à ce besoin. L'énergie disponible peut éventuellement permettre de compenser le passage de 1 *kHz* à 100 *Hz*. Une collaboration est envisageable afin d'utiliser par exemple une autre installation laser (l'installation LUCA de Saclay par exemple délivre des impulsions jusqu'à 80 *mJ*)

Également, l'augmentation du volume focal peut permettre de résoudre spatialement le spectre raie par raie en fonction de la zone émettrice mais aussi en fonction de l'intensité laser dans le volume focal.

Annexes

Annexe A

Elements de physique atomique

Sur la figure A.1, on a reporté les différents niveaux d'énergie de l'ion Ar^{16+} (internationalement noté Ar XVII par les spectroscopistes). Les valeurs reportées sont celles de la base de donnée du NIST (National Institute of Standards and Technology). On a identifié les transitions possibles de cet ion et celles éventuellement observées sur nos spectres. Cette analyse permet une détermination de l'énergie des raies héliumoïdes, en l'absence de champ extérieur.

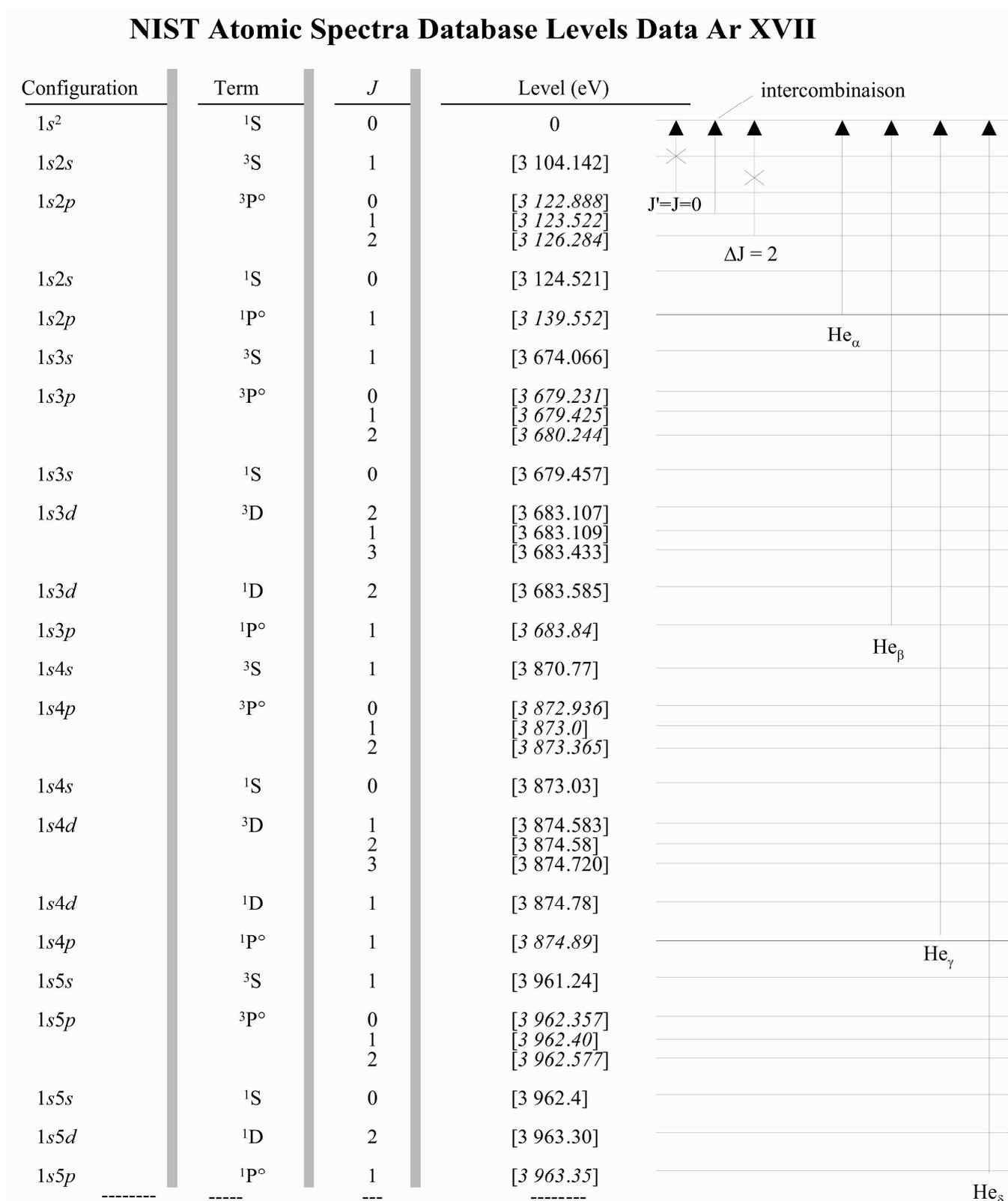


Fig. A.1: Niveaux référencés dans la base de donnée du laboratoire NIST (National Institute of Standards and Technology) du Maryland.

Annexe B

Propriétés optiques d'un mélange d'agrégats et de gaz ionisés

On se propose ici de calculer la susceptibilité totale χ_{gaz-ag} d'un ensemble macroscopique d'agrégats ionisés. On se place dans le système CGS pour les unités du calcul.

Écrivons le moment électrique total par unité de volume \vec{P} d'un milieu :

$$\vec{P} = \chi \vec{E} \quad (\text{B.1})$$

avec \vec{E} le champ laser extérieur et χ la susceptibilité diélectrique du milieu.

Le champ effectif \vec{E}' est alors la composition du champ extérieur \vec{E} et du champ local lié à la présence du milieu.

$$\vec{E}' = \vec{E} + \frac{4\pi}{3} \vec{P} \quad (\text{B.2})$$

Le moment électrique total par unité de volume B.1 peut aussi s'écrire en fonction de la polarisabilité α , de la densité totale de particules N et du champ effectif \vec{E}' [87] :

$$\vec{P} = N \vec{p} = N \alpha \vec{E}' \quad (\text{B.3})$$

En intégrant dans la relation précédente l'équation B.2, on obtient l'expression de la susceptibilité diélectrique du milieu :

$$\chi = N \alpha + \frac{4\pi}{3} \chi N \alpha \quad (\text{B.4})$$

La relation permettant d'exprimer la susceptibilité d'un milieu en fonction de sa polarisabilité est alors :

$$\chi = \frac{N \alpha}{1 - \frac{4\pi}{3} N \alpha} \quad (\text{B.5})$$

On a donc au total, d'après l'équation précédente, sur un ensemble d'agrégats ionisés, une susceptibilité égale à :

$$\chi_{gaz-ag} = \frac{n_{ag} \times \alpha_{ag}}{1 - \frac{4\pi}{3} n_{ag} \alpha_{ag}} \quad (\text{B.6})$$

avec n_{ag} la densité d'agrégat.

Regardons à présent la susceptibilité totale χ_{tot} du milieu constitué à la fois de gaz ionisé et d'agrégats ionisés, $\chi_{tot} = \chi_{gaz} + \chi_{gaz-ag}$ telle que :

$$\chi_{tot} = -\frac{1}{4\pi} \frac{n_e}{n_c} + \frac{n_{ag} \times \alpha_{ag}}{1 - \frac{4\pi}{3} n_{ag} \alpha_{ag}} \quad (\text{B.7})$$

$$= -\frac{1}{4\pi} \frac{n_e}{n_c} + \frac{\frac{3}{4\pi} Z_{ag}^* N_{at/ag} n_{ag} \left(\frac{1}{n_{e/agr} - 3n_c} \right)}{1 - Z_{ag}^* N_{at/ag} n_{ag} \left(\frac{1}{n_{e/agr} - 3n_c} \right)} \quad (\text{B.8})$$

or, $N_{at/ag} n_{ag} = \eta n_{tot}$, avec η le taux de condensation et n_{tot} la densité totale d'atomes dans le jet.

Hors de la résonance à $3n_c$ et tant que l'agrégat n'est pas complètement détruit ($n_{e/agr}$ reste très supérieure à n_{tot}), où le calcul serait plus complexe, nous pouvons considérer :

$$\frac{\eta n_{tot}}{n_{e/agr} - 3n_c} \ll 1 \Leftrightarrow \frac{Z_{ag}^* N_{at/ag} n_{ag}}{n_{e/agr} - 3n_c} \ll 1 \quad (\text{B.9})$$

Nous obtenons alors l'expression approchée de la susceptibilité totale en dehors de la résonance, tout au début de l'ionisation des agrégats par le champ laser (avec $n_{e/agr} \gg 3n_c$) :

$$\chi_{tot} = -\frac{1}{4\pi} \frac{n_e}{n_c} + \frac{3}{4\pi} Z_{ag}^* \frac{\eta n_{tot}}{n_{e/agr}} \quad (\text{B.10})$$

Au cours de l'interaction, les agrégats sont ionisés. Sous l'effet des forces de pression (coulombienne et hydrodynamique), ils vont exploser et se détendre. Nous avons effectué des calculs de l'évolution de la densité de l'agrégat en considérant une détente purement hydrodynamique de l'agrégat. Ces calculs sont présentés dans la section 5.3. A partir de l'évolution calculée de la densité intra-agrégat au cours du temps, en considérant un degré d'ionisation moyenne de 10 dans l'agrégat, nous avons estimé la susceptibilité totale du milieu (donnée par l'expression B.6) en fonction du temps (figure B.1). On constate sur cette figure qu'en fonction de la densité au sein de l'agrégat, la valeur de la susceptibilité totale de part et d'autre de la résonance est négative.

Au voisinage de la résonance, on a une singularité qui se traduit par une augmentation importante de la susceptibilité jusqu'à atteindre une valeur positive pendant un temps très court. Au-delà de cette singularité, la valeur de la susceptibilité redevient négative. On peut donc dire que principalement, dans notre cas, la contribution négative du gaz au

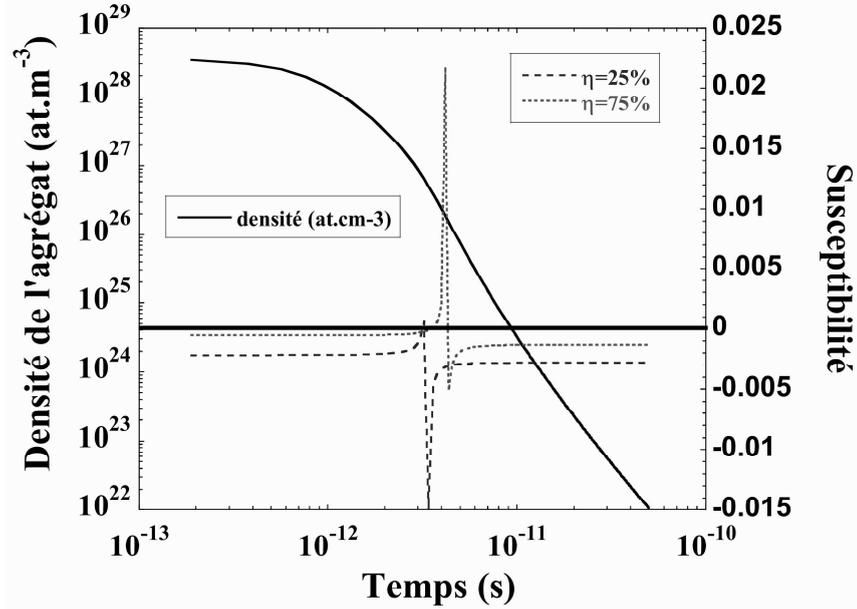


Fig. B.1: Evolution de la susceptibilité totale χ_{tot} en fonction de la densité au sein des agrégats à 40 bars ($n_{tot} = 6 \times 10^{18} \text{at.cm}^{-3}$) en considérant un taux de condensation $\eta = 25\%$ et une ionisation moyenne du gaz $Z_{gaz}^* = 8$ et des agrégats $Z_{ag}^* = 10$.

déphasage l'emporte sur la contribution positive des agrégats, et ce, pendant la majeure partie de l'expansion de l'agrégat.

On peut également voir sur le graphe que pour un taux d'agrégation de 75 %, la valeur de la susceptibilité totale est toujours négative de part et d'autre de la singularité. La différence de niveau obtenue entre les deux valeurs de la susceptibilité au voisinage de la singularité est principalement issue de l'échantillonnage du calcul et ne constitue pas une différence physique entre les deux situations.

Annexe C

Calculs

Appelons I_{max} l'intensité maximale de l'impulsion laser au cours du temps et I_s l'intensité seuil de production des X. Soient $x \stackrel{def}{=} \frac{I_{max}}{I_s}$ et $I(r, z)$ l'intensité maximale au cours du temps pour un faisceau gaussien.

$$I(r, z) = I_{max} \frac{1}{1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2} e^{-\frac{r^2}{\sigma(z)^2}} \quad (C.1)$$

- Sur l'axe $r = 0$, l'intensité sera égale à I_s lorsque $z = z_s \stackrel{def}{=} Z_R \sqrt{x - 1}$
- De même, à z fixe, le rayon pour lequel l'intensité est égale à I_s est

$$r^2 = r_s^2(z) \stackrel{def}{=} \sigma^2(z) \ln \left(\frac{x}{1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2} \right) \quad (C.2)$$

Posons la quantité $X_{\alpha, x}$, qui sera proportionnelle à la quantité de photons X intégrée sur le volume focal.

$$X_{\alpha, x} \stackrel{def}{=} \int_{z=-z_s}^{z_s} \int_{r=0}^{r_s(z)} \left(\frac{I_{max}}{I_s} \right)^\alpha 2\pi r dr dz \quad (C.3)$$

$$X_{\alpha, x} = \int_{z=-z_s}^{z_s} \int_{r=0}^{r_s(z)} \left(\frac{x}{1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2} \right)^\alpha 2\pi r dr dz \quad (C.4)$$

$$X_{\alpha, x} = 2\pi x^\alpha \int_{z=-z_s}^{z_s} \frac{1}{\left(1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2\right)^\alpha} \left[e^{-\frac{\alpha r^2}{\sigma^2(z)}} \left(\frac{-\sigma^2(z)}{2\alpha} \right) \right]_0^{r_s(z)} dz \quad (C.5)$$

Pour des raisons de symétrie suivant l'axe z , on a :

$$X_{\alpha, x} = 2\pi \frac{\sigma_0^2}{\alpha} x^\alpha \int_{z=0}^{z_s} \frac{1}{\left(1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2\right)^{\alpha-1}} \left(1 - e^{-\frac{\alpha r_s(z)^2}{\sigma^2(z)}} \right) dz \quad (C.6)$$

Or, $e^{-\frac{\alpha r_s(z)^2}{\sigma^2(z)}} = \frac{1}{x} \left(1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2\right)$, alors :

$$X_{\alpha,x} = 2\pi \frac{\sigma_0^2}{\alpha} x^\alpha \int_{z=0}^{z_s} \frac{1}{\left(1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2\right)^{\alpha-1}} dz - 2\pi \frac{\sigma_0^2}{\alpha} \int_{z=0}^{z_s} 1 + \left(\frac{z}{Z_R}\right)^2 dz. \quad (\text{C.7})$$

En posant $h_\alpha(s) \stackrel{\text{def}}{=} \int_{u=0}^s \frac{1}{(1+u^2)^{\alpha-1}} du$ on a :

$$X_{\alpha,x} = 2\pi \frac{\sigma_0^2 Z_R}{\alpha} \left(x^\alpha h_\alpha(\sqrt{x-1}) - \sqrt{x-1} - \frac{(x-1)^{\frac{3}{2}}}{3} \right)$$

Voici quelques expression particulières :

- $X_{0,x} = 2\pi \sigma_0^2 Z_R \left(\frac{2}{9}(x-1)^{3/2} + \frac{4}{3}\sqrt{x-1} - \frac{4}{3} \arctan \sqrt{x-1} \right),$
- $X_{1,x} = \frac{4}{3}\pi \sigma_0^2 Z_R (x-1)^{3/2},$
- $X_{3/2,x} = \frac{4}{3}\pi \sigma_0^2 Z_R \left(x^{3/2} \ln(\sqrt{x-1} + x) - \sqrt{x-1} - \frac{1}{3}(x-1)^{3/2} \right),$
- $X_{2,x} = \pi \sigma_0^2 Z_R \left(x^2 \arctan \sqrt{x-1} - \sqrt{x-1} - \frac{(x-1)^{\frac{3}{2}}}{3} \right).$

Bibliographie

- [1] Rouse A., Audebert P., Geindre J. P., Fallières F., Gauthier J. C., Mysyrowicz A., Grillon G., and Antonetti A. Efficient K_{α} X-ray source from laser produced plasmas. *Phys. Rev. E*, 50 :2200, 1994.
- [2] Rouse A., Rischel C., Fourmaux S., Uschmann I., Sebban S., Grillon G., Balcou P., Förster E., Geindre J.P., Audebert P., Gauthier J.C., and Hulin D. Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution. *Nature*, 410 :65, 2001.
- [3] Cavalleri A., Toth C., Siders C.W., Squier J.A., Raksi F., Forget P., and Kieffer J.C. Femtosecond structural dynamics in VO_2 during an ultrafast solid-solid phase transition. *Phys. Rev. Letters*, 87 :237401, 2001.
- [4] Fourmaux S., Rouse A., Rischel C., Uschmann I., Sebban S., Balcou P., Grillon G., Forster E., Gauthier J.C., and Hulin D. Femtosecond solid-liquid phase transition studied with ultrafast X-ray diffraction. *Proceedings of the SPIE The International Society for Optical Engineering*, 4504 :26, 2001.
- [5] Mallozzi P.J., Schwerzel R.E., Epstein H.M., and Campbell B.E. Fast Extended X-ray Absorption Fine Structure spectroscopy with a laser-produced X-ray pulse. *Phys. Rev. A*, 23 :824, 1981.
- [6] Boyer K. and Rhodes C. K. Superstrong coherent multi-electron intense-field interaction. *J. Phys. B*, 27 :L633, 1994.
- [7] Ditmire T., Donnelly T., Rubenchik A. M., Falcone R. W., and Perry M. D. Interaction of intense laser pulses with atomic clusters. *Phys. Rev. A*, 53 :3379, 1996.
- [8] Rose-Petruck C., Schafer K. J., Wilson K. R., and Barty C. P. J. Ultrafast electron dynamics and inner-shell ionization in laser driven clusters. *Phys. Rev. A*, 55 :1182, 1997.
- [9] Milchberg H. M., McNaught S. J., and Parra E. Plasma hydrodynamics of the intense laser-cluster interaction. *Phys. Rev. E*, 64 :056402, 2001.
- [10] McPherson A., Luk T. S., Thompson B. D., Boyer K., and Rhodes C. K. Multiphoton-induced X-ray emission and amplification from clusters. *Appl. Phys. B*, 57 :337, 1993.

-
- [11] Ditmire T., Donnelly T., Falcone R. W., and Perry M. D. Strong X-ray emission from high-temperature plasmas produced by intense irradiation of clusters. *Phys. Rev. Letters*, 75 :3122, 1995.
- [12] Donnelly T. D., Ditmire T., Neuman K., Perry M. D., and Falcone R. W. High-order harmonic generation in atom clusters. *Phys. Rev. Letters*, 76 :2472, 1996.
- [13] Shao Y. L., Ditmire T., Tisch J. W. G., Springate E., Marangos J. P., and Hutchinson M. H. R. Multi-keV electron generation in the interaction of intense laser pulses with Xe clusters. *Phys. Rev. Letters*, 77 :3343, 1996.
- [14] Ditmire T., Zweiback J. S., Yanovsky V. P., Cowan T. E., Hays G., and Wharton K. B. Nuclear fusion from explosions of femtosecond laser-heated deuterium clusters. *Nature*, 398 :489, 1999.
- [15] Springate E., Aseyev S. A., Zamith S., and Vrakking M. J. J. Electron kinetic energy measurements from laser irradiation of clusters. *Phys. Rev. E*, 68 :053201, 2003.
- [16] Zweiback J. S. and Ditmire T. Femtosecond laser energy deposition in strongly absorbing cluster gases diagnosed by blast wave trajectory analysis. *Phys. of Plasmas*, 8 :4545, 2001.
- [17] McPherson A., Gibson G., Jara H., Johann U., Luk T. S., McIntyre I. A., Boyer K., and Rhodes C. K. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4 :595, 1987.
- [18] Jones L. A. and Kallne E. A study of the VUV emission from highly ionized Krypton in a theta pinch plasma. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 30 :317, 1983.
- [19] Hagen O. F. and Obert W. Cluster formation in expanding supersonic jets : Effect of pressure, temperature, nozzle size and test gas. *The Journal of Chemical Physics*, 56 :1793, 1972.
- [20] Ditmire T., Hutchinson M. H. R., Marjoribanks R. S., Kulcsa G., and Smith R. A. X-ray yields from Xe clusters heated by short pulse high intensity lasers. *Appl. Phys. Letters*, 71 :166, 1997.
- [21] Dobosz S., Lezius M., Schmidt M., Meynadier P., Perdrix M., and Normand D. Absolute keV photon yields from ultrashort laser-field-induced hot nanoplasmas. *Phys. Rev. A*, 56 :R2526, 1997.
- [22] Rozet J. P., Cornille M., Dobosz S., Dubau J., Gauthier J. C., Jacqemot S., Lamour E., Lezius M., Normand D., Schmidt M., and Vernhet D. State selective measurements of HCI produced by strong ultrashort laser-clusters interaction. *Physica Scripta*, T92 :113, 2001.
- [23] Miura E., Honda H., Katsura K., Takahashi E., and Kondo K. Soft X-ray emission from noble gas clusters excited by an ultrashort KrF laser pulse. *Appl. Phys. B*, 70 :783, 2000.
-

- [24] Mori M., Shiraishi T., Takahashi E., Suzuki H., Sharma L. B., Miura E., and Kondo K. Extreme ultraviolet emission from Xe clusters excited by high-intensity lasers. *J. Appl. Physics*, 90 :3595, 2001.
- [25] Schroeder W. A., Omenetto F. G., Borisov A. B., McPherson A., Jordan C., Boyer K., Kondo K., and Rhodes C. K. Pump laser wavelength-dependent control of the efficiency of kilovolt X-ray emission from atomic clusters. *J. Phys. B*, 31 :5031, 1998.
- [26] Adoui L., Gobert O., Indelicato P., Lamour E., Meynadier P., Normand D., Perdrix M., Prigent C., Rozet J.-P., and Vernhet D. Xe(L) X-ray emission from laser-cluster interaction. *Nucl. Instr. and Methods B*, B205 :341, 2003.
- [27] Dobosz S. *Interaction d'agrégats de gaz rares avec un champ laser intense*. PhD thesis, Université Paris 13, 1998.
- [28] Schnurer M., Ter-Avetisyan S., Stiel H., Vogt U., Radloff W., Kalashnikov M., Sandner W., and Nickles P. V. Influence of laser pulse width on absolute EUV-yield from Xe-clusters. *Eur. Phys. J. D*, 14 :331, 2001.
- [29] Kumarappan V., Krishnamurthy V. M., Mathur D., and Tribedi L. C.
- [30] Zweiback J. S., Ditmire T., and Perry M. D. Femtosecond time-resolved studies of the dynamics of noble-gas cluster explosions. *Phys. Rev. A*, 59 :R3166, 1999.
- [31] Parra E., Alexeev I., Fan J., Kim K. Y., McNaught S. J., and Milchberg H. M. X-ray and extreme ultraviolet emission induced by variable pulse-width irradiation of Ar and Kr clusters and droplets. *Phys. Rev. E*, 62 :R5931, 2000.
- [32] Kumarappan V., Krishnamurthy M., and Mathur D. Two-dimensional effects in the hydrodynamic expansion of Xenon clusters under intense laser irradiation. *Phys. Rev. A*, 66 :033203, 2002.
- [33] Mendham K. J. *Energetic Cluster Explosions in Intense Femtosecond Laser Fields*. PhD thesis, Imperial College of Science, Technology and Medicine, 2002. Thesis submitted in partial fulfilment of the requirements for the degree of Doctor of Philosophy of the University of London.
- [34] Mendham K. J., Tisch J. W. G., Mason M. B., Hay N., and Marangos J. P. Control of laser heating in clusters through variation in temporal pulse shape. *Optics Express*, 11 :1357, 2003.
- [35] Mocek T., Kim C. M., Shin H. J., Lee D. G., Cha Y. H., Hong K. H., and Nam C. H. Soft-X-ray emission from small-sized Ne clusters heated by intense, femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. E*, 62 :4461, 2000.
- [36] Shiraishi T., Mori M., and Kondo K. Estimation of the pulse width of X-ray emission from Xe clusters excited by a subpicosecond intense Ti :sapphire laser pulse. *Phys. Rev. A*, 65 :045201, 2002.

- [37] Larsson J. and Sjögren A. Evaluation of laser-irradiated Ar clusters as a source for time-resolved X-ray studies. *Rev. of Scient. Instr.*, 70 :2253, 1999.
- [38] Tisch J. W. G., Ditmire T., Frasery D. J., Hay N., Mason M. B., Springate E., Marangos J. P., and Hutchinson M. H. R. Investigation of high-harmonic generation from Xenon atom clusters. *J. Phys. B.*, 30 :L709, 1997.
- [39] Tisch John W. G. Phase-matched high-order harmonic generation in an ionized medium using a buffer gas of exploding atomic clusters. *Phys. Rev. A*, 62 :041802, 2000.
- [40] Zweiback J. S., Cowan T. E., Hartley J. H., Howell R., Wharton K. B., Crane J. K., Yanovsky V. P., Hays G., Smith R. A., and Ditmire T. Detailed study of nuclear fusion from femtosecond laser-driven explosions of deuterium clusters. *Phys. of Plasmas*, 9 :3108, 2002.
- [41] McPherson A., Luk T. S., Thompson B. D., Borisov A. B., Shiryayev O. B., Chen X., Boyer K., and Rhodes C. K. Multiphoton-induced X-ray emission from Kr clusters on M-shell ($\sim 100\text{\AA}$) and L-shell ($\sim 6\text{\AA}$) transitions. *Phys. Rev. Letters*, 72 :1810, 1994.
- [42] Purnell J., Snyder E. M., Wei S., and Castleman A. W. Jr. Ultrafast laser-induced coulomb explosion of clusters with high charge states. *Chemical Phys. Letters*, 229 :333, 1994.
- [43] Ditmire T., Springate E., Tisch J. W. G., Shao Y. L., Mason M. B., Hay N., Marangos J. P., and Hutchinson M. H. R. Explosion of atomic clusters heated by high-intensity femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A*, 57 :369, 1998.
- [44] Springate E., Hay N., Tisch J. W. G., Mason M. B., Ditmire T., Marangos J. P., and Hutchinson M. H. R. Enhanced explosion of atomic clusters irradiated by a sequence of two high-intensity laser pulses. *Phys. Rev. A*, 61 :044101, 2000.
- [45] Liu J., Li R., Zhu P., Xu Z., and Liu J. Modified hydrodynamic model and its application in the investigation of laser-cluster interactions. *Phys. Rev. A*, 64 :033426, 2001.
- [46] Springate E., Hay N., Tisch J. W. G., Mason M. B., Ditmire T., Hutchinson M. H. R., and Marangos J. P. Explosion of atomic clusters irradiated by high-intensity laser pulses : Scaling of ion energies with cluster and laser parameters. *Phys. Rev. A*, 61 :063201, 2000.
- [47] Megi F., Belkacem M., M. A. Bouchene, Suraud E., and Zwicknagel G. On the importance of damping phenomena in clusters irradiated by intense laser fields. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 36 :273, 2003.
- [48] Last I., Schek I., and Jortner J. Energetics and dynamics of coulomb explosion of highly charged clusters. *J. of Chem. Phys.*, 107 :6685, 1997.

-
- [49] Last I. and Jortner J. Theoretical study of multielectron dissociative ionization of diatomic molecules and clusters in a strong laser field. *Phys. Rev. A*, 58 :3826, 1998.
- [50] Last I. and Jortner J. Dynamics of the coulomb explosion of large clusters in a strong laser field. *Phys. Rev. A*, 62 :013201, 2000.
- [51] Last I. and Jortner J. Electron and nuclear dynamics of molecular clusters in ultraintense laser fields. I. Extreme multielectron ionization. *J. Chem. Phys.*, 120 :1336, 2004.
- [52] Last I. and Jortner J. Electron and nuclear dynamics of molecular clusters in ultraintense laser fields. II. Electron dynamics and outer ionization of the nanoplasma. *J. Chem. Phys.*, 120 :1348, 2004.
- [53] Krainov V. P. and Roshchupkin A. S. Dynamics of coulomb explosion of large Xe clusters irradiated by a super-intense ultra-short laser pulse. *J. Phys. B*, 34 :L297, 2001.
- [54] Sakabe S., Shimizu S., Hashida M., Sato F., Tsuyukushi T., Nishihara K., Okihara S., Kagawa T., Izawa Y., Imasaki K., and Iida T. Generation of high-energy protons from the coulomb explosion of hydrogen clusters by intense femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A*, 69 :23203, 2004.
- [55] Kostyukov I. and Rax J. M. Collisional versus collisionless resonant and autoresonant heating in laser-cluster interaction. *Phys. Rev. E*, 67 :066405, 2003.
- [56] Grigorenko I., Bennemann K. H., and Garcia M. E. Theory for the explosion of clusters due to strong femtosecond electric fields : Size and charge effects. *Europhysics Letters*, 57 :39, 2002.
- [57] Ditmire T. Simulation of exploding clusters ionized by high-intensity femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. A*, 57 :R4094, 1998.
- [58] Eloy M., Azambuja R., Mendonça J. T., and Bingham R. Interaction of ultrashort high-intensity laser pulses with atomic clusters. *Phys. of Plasmas*, 8 :1084, 2001.
- [59] Brewczyk M., Clark C. W., Lewenstein M., and Rzazewski K. R. Stepwise explosion of atomic clusters induced by a strong laser field. *Phys. Rev. Letters*, 80 :1857, 1998.
- [60] Rusek M., Lagadec H., and Blenski T. Cluster explosion in an intense laser pulse : Thomas-Fermi model. *Phys. Rev. A*, 63 :013203, 2000.
- [61] Keldysh L. V. *Soviet. Phys. JETP*, 20 :1307, 1965.
- [62] Perelomov A. M. *Sov. Phys. JETP*, 23 :924, 1966.
- [63] L'Huillier A., Lompre L. A., Mainfray G., and Manus C. Multiply charged ions induced by multiphoton absorption in rare gases at 0.53 μm . *Phys. Rev. A*, 27 :2503, 1983.
-

- [64] Ammosov M. V., Delone N. B., and Krainov V. P. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, 64 :1191, 1986.
- [65] Mevel E. *Ionisation atomique en champ électromagnétique intense : dynamique des résonances induites, transition vers le régime tunnel et ionisation double*. PhD thesis, Université de Paris-Sud, 1994.
- [66] *Reviews of Plasma Physics*, I :213, 1965.
- [67] Dawson J. M. *Phys. of Fluids*, 7 :981, 1964.
- [68] Djaoui A. and Offenberger A. *Phys. Rev. A*, 50 :4961, 1994.
- [69] Landau L. D. and Lifshitz E.M. *Electrodynamics of Continuous Media*. Pergamon (Oxford), 1984.
- [70] Lotz W. *Z. Phys.*, 216 :241, 1968.
- [71] Huba J. D. NRL plasma formulary. Naval Research Laboratory, Washington.
- [72] Spitzer L. *Physics of fully ionised gases*. Interscience (New York), 1967.
- [73] Haught A. F. and Polk D. H. Formation and heating of laser irradiated solid particle plasmas. *Phys. of Fluids*, 13 :2825, 1970.
- [74] Bastiani Serena. *Etude et optimisation de l'émission X d'un plasma créé par une impulsion laser ultra-courte*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 1998.
- [75] Stenz C., Brückner R., Blasco F., Amiranoff F., Malka V., De Wispelaere E., Bonadio R., Gauthier J.C., Audebert P., Geindre J.P., Dos Santos A., Rey G., Mysyrowicz A., and Antonetti A. Femtosecond laser interaction with high density gas jets. *OSA Technical Digest : High Field Interaction and Short Wavelength Generation*, 16 :171, 1994.
- [76] Farges J., De Feraudy M. F., Raoult B., and Torchet G. Structure and temperature of rare gas clusters in a supersonic expansion. *Surface Science*, 106 :95, 1981.
- [77] Chen Z. Y., Cogley C. D., May B. D. Hendricks J. H., and Castelman A. W. Photodissociation of Kr^+_n clusters. *Journal of Chemical Physics*, 93 :3215, 1990.
- [78] Nagata T., Hirokawa J., and Kondow T. Photodissociation of Ar^+_n cluster ions. *Chemical Physics Letters*, 176 :526, 1991.
- [79] Buck U. and Meyer H. Scattering analysis of cluster beams : Formation and fragmentation of small Ar_n clusters. *Phys. Rev. Letters*, 52 :109, 1984.
- [80] Smith R. A., Ditmire T., and Tisch J. W. G. Characterization of a cryogenically cooled high-pressure gas jet for laser/cluster interaction experiments. *Review of Scientific Instruments*, 69 :3798, 1998.
- [81] Stenz C., Cussat-Blanc S., Grillon G., and Kraabel B. Imagerie par diffusion rayleigh de jets d'agrégats. Technical report, Laboratoire LULI, Ecole Polytechnique, 1998.

- [82] Hagen O. F. Condensation in free jets : Comparison of rare gases and metals. *Z. Phys. D : At. Mol. Clusters*, 4 :291, 1987.
- [83] Hagen O. F. Cluster ion sources (invited). *Review of Scientific Instruments*, 63 :2374, 1992.
- [84] Buck U. and Krohne R. Cluster size determination from diffractive He atom scattering. *Journal of Chemical Physics*, 105 :5408, 1996.
- [85] Bockatsen K. Transformation of observed radiances into radial distribution of the emission of a plasma. *Journal of the Society of America*, 51 :943, 1961.
- [86] Gordon W. Drake, editor. *Atomic, Molecular and Optical Physics Handbook*. Springer-Verlag (New-York), 1996.
- [87] Born M. and Wolf E. *Principles of Optics*. Cambridge University Press (Cambridge), 6th edition, 1980.
- [88] Prandtl L. *Précis de Mécanique des fluides*. Dunod (Paris), 1940.
- [89] Boldarev A. S., Gasilov V. A., Blasco F., Stenz C., Dorchie F., Salin F., Faenov A. Ya., Pikuz T. A., Magunov A. I., and Skobelev I. Yu. Modeling cluster jets as targets for high-power ultrashort laser pulses. *JETP Letters*, 73 :514, 2001.
- [90] Dorchie F., Blasco F., Caillaud T., Stevefelt J., Stenz C., Boldarev A. S., and Gasilov V. A. Spatial distribution of cluster size and density in supersonic jets as targets for intense laser pulses. *Phys. Rev. A*, 68 :023201, 2003.
- [91] Frenkel I. Y. *Kinetic Theory of Liquids*. Nauka(Leningrad), 1975.
- [92] Skobelev I. Y., Faenov A. Y., Magunov A. I., Pikuz T. A., Boldarev A. S., Gasilov V. A., Abdallah Jr. A., Junkel-Vives G. C., Auguste T., Dobosz S., D'Oliveira P., Hulin S., Monot P., Blasco F., Dorchie F., Caillaud T., Bonte C., Stenz C., Salin F., Loboda P.A., Litvinenko I.A., Popova V. V., Baidin G. V., and Sharkov B. Y. X-ray spectroscopy diagnostic of a plasma produced by femtosecond laser pulses irradiating a cluster target. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 94 :966, 2002.
- [93] Krainov V.P. and Smirnov M.B. Cluster beams in the super-intense femtosecond laser pulse. *Physics Reports*, 370 :237, 2002.
- [94] Gumbrell E. T., Comley A. J., Hutchinson M. H. R., and Smith R. A. Intense laser interactions with sprays of submicron droplets. *Physics of Plasmas*, 8 :1329, 2001.
- [95] Bush A. M., Bell A. J., Frey J. G., and Mestdagh J. M. Rayleigh scattering of laser and synchrotron radiation from pulsed free jets of Ar_n and $(N_2O)_n$ clusters. *J. Phys. Chem. A*, 102 :6457, 1998.
- [96] Strickland D. and Mourou G. *Optics Communications*, 62 :419, 1985.
- [97] Bagnoud V. *Etude et réalisation d'une chaîne laser femtoseconde kilohertz térawatt. Etude de l'accord de phase spectrale : amplification de puissance en présence de charge thermique*. PhD thesis, Université de Bordeaux I, Talence, France, 1999.

- [98] Siegman A. E. *Lasers*. Mill Valley, 1986.
- [99] Blasco F., Stenz C., Salin F., Faenov A. Ya., Magunov A. I., Pikuz T. A., and Skobelev I. Yu. Portable, tunable, high-luminosity spherical crystal spectrometer with an X-ray charge coupled device, for high-resolution X-ray spectromicroscopy of clusters heated by femtosecond laser pulses. *Review of Scientific Instruments*, 72 :1956, 2001.
- [100] Hölzer G., Wehrhan O., Heinisch J., Förster E., Pikuz T. A., Faenov A. Ya., Pikuz S. A., Romanova V. M., and Shelkovenko T. A. Flat and spherically bent muscovite (Mica) crystals for X-ray spectroscopy. *Physica Scripta*, 57 :301, 1998.
- [101] Lechner P. and Strüder L. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 354 :464, 1995.
- [102] Sandner H. *Optical Measurements*. Mayinger Franz, 1994.
- [103] Blasco F. *Etude expérimentale de l'ionisation optique d'un jet d'Argon haute pression par une impulsion laser femtoseconde intense*. PhD thesis, Université d'Orléans, Orléans, France, 1997.
- [104] Augst S., Meyerhofer D., Strickland D., and Chin S. Laser ionization of noble gases by coulomb-barrier suppression. *J. Opt. Soc. Am. B*, 8 :858, 1991.
- [105] Perry M., Landen O., Szöke A., and Campbell E. Multiphoton ionization of the noble gases by an intense $10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ dye laser. *Phys. Rev. A*, 37 :747, 1988.
- [106] Monot P., Auguste T., Lompré L. A., Mainfray G., and Manus C. Focusing limits of a terawatt laser in an underdense plasma. *J. of the Optical Society of America B*, 9 :1579, 1992.
- [107] Mackinnon A. J., Borghesi M., Iwase A., Jones M. W., Pert G. J., Rae S., Burnett K., and Willi O. Quantitative study of the ionization-induced refraction of picosecond laser pulses in gas-jet targets. *Phys. Rev. Letters*, 76 :4615, 1996.
- [108] Chessa P., De Wispelaere E., Dorchies F., Malka V., Marquès J.R., Hamoniaux G., Mora P., and Amiranoff F. Temporal and angular resolution of the ionization-induced refraction of a short laser pulse in helium gas. *Phys. Rev. Letters*, 82 :552, 1999.
- [109] Mora P. and Antonsen T. Self-focusing and Raman scattering of laser pulses in tenuous plasmas. *Phys. Fluid. B*, 5 :1440, 1993.
- [110] Fill Ernst E. Focusing limits of ultrashort laser pulses : analytical theory. *J. Opt. Soc. of America*, 11 :2241, 1994.
- [111] Gibbon P., Monot P., Auguste T., and Mainfray G. Measurable signatures of relativistic self-focusing in underdense plasmas. *Physics of Plasmas*, 2 :1305, 1994.
- [112] Fedosejevs R., Wang X. F., and Tsakiris G. D. Onset of relativistic self-focusing in high density gas jet targets. *Phys. Rev. E*, 56 :4615, 1997.

- [113] Stenz C., Blasco F., Stevefelt J., Pellicer J.C., Rouse A., Cheriaux G., Darpentigny G., Grillon G., Mysyrowicz A., Antonetti A., and Amiranoff F. Autofocalisation et autoguidage d'une impulsion laser femtoseconde multiterawatt dans un jet d'Argon. Technical report, Laboratoire LULI, Ecole Polytechnique, 1995.
- [114] Tajima T., Kishimoto Y., and Downer M. C. Optical properties of cluster plasma. *Physics of Plasmas*, 6 :3759, 1999.
- [115] Kim A. V., Anderson D., Chernobrovtsseva M. D., and Lisak M. *Superstrong Fields in Plasmas*. Number 426 in pp 79. AIP, Woodbury, NY, 1998.
- [116] Kim K. Y., Alexeev I., Parra E., and Milchberg H. M. Time-resolved explosion of intense-laser-heated clusters. *Phys. Rev. Letters*, 90 :023401, 2003.
- [117] Alexeev I., Antonsen T. M., Kim K. Y., and Milchberg H. M. Self-focusing of intense laser pulses in a clustered gas. *Phys. Rev. Letters*, 90 :103402, 2003.
- [118] Gupta A., Antonsen Jr. T. M., and Milchberg H. M. Propagation of intense short laser pulses in a gas of atomic clusters. *Phys. Rev. E*, 70 :046410, 2004.
- [119] Zharova N. A., Litvak A. G., and Mironov V. A. Self-focusing of laser radiation in cluster plasma. *JETP Letters*, 78 :619, 2003.
- [120] Audebert P., Geindre J.P., Gauthier J.C., Amiranoff F., Malka V., De Wispelaere E., Stenz C., Bruckner R., Blasco F., Dos Santos A., Mysyrowicz A., and Antonetti A. X-ray emission from Ar induced by an intense femtosecond laser pulse. In *Generation and application of ultrashort X-ray pulse*, 1994. 10-13 March 1994, Salamanca (Espagne).
- [121] Mora P. and Antonsen T. Effets cinétiques dans le sillage d'une impulsion laser ultra-intense et ultra-courte dans un plasma peu dense. Rapport annuel du luli, Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses (LULI), 1993.
- [122] Zweiback J. S. *Resonance Effects in Laser Cluster Interactions*. PhD thesis, University of California, Livermore, California, 1998.
- [123] Junkel-Vives G. C., Abdallah Jr. J., Blasco F., Dorchies F., Caillaud T., Bonte C., Stenz C., Salin F., Faenov A. Ya., Magunov A. I., Pikuz T. A., and Skobelev I. Yu. Evidence of supercritical density in 45-fs-laser-irradiated Ar-cluster plasmas. *Phys. Rev. A*, 66 :033204, 2002.
- [124] Magunov A. I., Faenov A. Ya., Skobelev I. Yu., Pikuz T. A., Biemont E., Quinet P. and Blasco F., Dorchies F., Caillaud T., Bonte C., Stenz C., Salin F., Loboda P. A., Litvinenko I. A., Popova V. V., Baidin G. V., and Sharkov B. Yu. Observation of dielectronic satellites in the K-spectrum of Argon ions in plasma produced by femtosecond laser pulses. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 95 :998, 2002.

- [125] Abdallah Jr. J., Junkel-Vives G. C., Blasco F., Bonte C., Dorchies F., Caillaud T., Stenz C., Salin F., Faenov A. Ya., Skobelev I. Yu., Pikuz T. A., and Magunov A. I. Time-dependent study of K-shell satellite line structure from L-shell ions in ultrashort laser argon cluster experiments. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 81 :3, 2003.
- [126] Junkel-Vives G. C., Abdallah Jr. J., Blasco F., Stenz C., Salin F., Faenov A. Ya., Magunov A. I., Pikuz T. A., Skobelev I. Yu., Auguste T., D'Oliveira P., Hulin S., Monot P., and Dobosz S. High resolution x-ray spectroscopy investigations of fs laser irradiated Ar clusters by varying cluster size and laser flux density. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 71 :417, 2001.
- [127] Magunov A. I., Pikuz T. A., Skobelev I. Yu., Faenov A. Ya., Biemont E., Quinet P. and Blasco F., Dorchies F., Caillaud T., Bonte C., Stenz C., Salin F., Loboda P. A., Litvinenko I. A., Popova V. V., Baidin G. V., Junkel-Vives G. C., and Abdallah Jr. J. Influence of ultrashort laser pulse duration on the X-ray emission spectrum of plasma produced in cluster target. *JETP Letters*, 74 :375, 2001.
- [128] Junkel-Vives G. C., Abdallah Jr. J., Auguste T., D'Oliveira P., Hulin S., Monot P., Dobosz S., Faenov A. Ya., Magunov A. I., Pikuz T. A., Skobelev I. Yu., Boldarev A. S., and Gasilov V. A. Spatially resolved X-ray spectroscopy investigation of femtosecond laser irradiated Ar clusters. *Phys. Rev. E*, 65 :034410, 2002.
- [129] Abdallah Jr. J., Csanak G., Fukuda Y., Akahane Y., Aoyama M., Inoue N., Ueda H., Yamakawa K., Faenov A. Ya., Magunov A. I., Pikuz T. A., and Skobelev I. Yu. Time-dependent Boltzmann kinetic model of X-rays produced by ultrashort-pulse laser irradiation of argon clusters. *Phys. Rev. A*, 68 :063201, 2003.
- [130] Edwards M. J., MacKinnon A. J., Zweiback J. S., Shigemori K., Ryutov D., Rubenchik A. M., Keilty K. A., Liang E., Remington B. A., and Ditmire T. Investigation of ultrafast laser-driven radiative blast waves. *Phys. Rev. Letters*, 87 :085004, 2001.
- [131] Zeldovich Y. B. and Raizer Y. P. *Physics of Shock Waves and High- Temperature Hydrodynamic Phenomena*. Academic, New York, 1967.
- [132] Cavaliere A. and Messina A. *Astrophys. J.*, 209 :424, 1976.
- [133] Lezius M., Dobosz S., Normand D., and Schmidt M. Explosion dynamics of rare gas clusters in strong laser fields. *Physical Review Letters*, 80 :261, 1998.
- [134] Peyrusse Olivier. A model for the simulation of nonequilibrium line transfer in laboratory plasmas. *Phys. Fluids B*, 4 :7, 1992.
- [135] Peyrusse Olivier. X-ray spectroscopy studies using the transpec code. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 51 :281, 1994.
- [136] Dorchies F., Blasco F., Bonté C., Caillaud T., Gauthier J.C., Stenz C., and Stevefelt J. Multi-keV picosecond x-ray source development from ultra-intense kHz la-

- ser :cluster interaction. In *48th SPIE International Conference on Laser-Generated and Other Laboratory X-ray and EUV Sources, Optics and Applications*, page 5196, 2003.
- [137] Palianov P., Gaudin J., Martin P., Merdji H., Meynadier P., and Perdrix M. Effet auger généré par rayons X issus de l'explosion d'agrégats soumis à un champ laser intense. *J. Phys. IV*, 108 :179, 2003.
- [138] Rischel C., Rouse A., Uschmann I. ande Albouy P.A., Geindre J.P., Audebert P., Gauthier J.C., Fröster E., Martin J.L., and Antonetti A. Femtosecond time-resolved X-ray diffraction from laser-heated organic films. *Nature*, 390 :490, 1997.
- [139] Glinec Y. Etude du rayonnement X émis par des agrégats d'Argon en champ laser intense. Projet de fin d'études, ENSTA, 2002.
- [140] El-Zein A., Sanderson J. H., Bryan W. A., Goodworth T. R. J., Williams I. D., McKenna P., Johnston I. M. G., Taday P. F., Divall E. J., and Langley A. J. Spatially resolved atomic ionisation processes in high intensity femtosecond laser pulses. Central laser facility annual report, High Power Laser Programme - Femtosecond Pulse Physics, 2001.

ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE L'ÉMISSION X ISSUE DE L'INTERACTION LASER-AGRÉGATS

Ce travail de thèse a consisté en l'étude et l'optimisation d'une source ultra-brève de rayonnement X dans la gamme multi-keV, issue de l'interaction d'un laser intense avec un jet d'agrégats d'Argon. Nous avons porté un intérêt tout particulier sur la caractérisation du jet d'agrégats d'Argon employé lors des expériences (densité totale, densité et taille moyenne des agrégats). L'étude de la propagation de l'impulsion laser dans le jet dense d'agrégats a révélé l'existence d'un effet lié à la réfraction dans le jet. L'absorption, le chauffage et les spectres d'émission X ont été étudiés en fonction des paramètres du laser femtoseconde (durée et énergie de l'impulsion laser, contraste temporel) et de la taille des agrégats (20 à 35 nm), dans le but d'optimiser la source de rayonnement X. L'absorption et l'émission X présentent un optimum avec la durée laser consistant avec un modèle existant. Le contraste s'est avéré un paramètre crucial pour la production de rayonnement X. Un rendement énergétique très intéressant a été obtenu : 12 nJ de rayonnement X émis autour de 3 keV, pour 3 mJ d'énergie laser incidente. L'analyse de l'énergie moyenne déposée par agrégat est associée à une modélisation simple de l'expansion hydrodynamique de l'agrégat. Un code de physique atomique est utilisé pour tenter de reconstruire les spectres et pour analyser l'aspect temporel de la source X. La comparaison de ces calculs avec une expérience préliminaire montre une durée ultra-brève de l'émission X (\sim ps).

EXPERIMENTAL STUDY OF X-RAY EMISSION IN LASER-CLUSTER INTERACTION

Rare gas cluster jets are an intermediate medium between solid and gas targets. Laser-cluster jets interaction may generate a great number of energetic particles as X-rays, UV, high harmonics, ions, electrons and neutrons. To understand all the mechanisms involved in such an interaction we need to make a complete study of individual cluster response to an ultra-short laser pulse. We studied the laser interaction with our Argon cluster gas jet, which is well characterized in cluster size and density, to enlarge the knowledge of this interaction. We measured absorption, heating and X-ray emission spectra versus laser parameters and clusters size (15-30 nm). We show that there is a strong refraction effect on laser propagation due to the residual gas density. This effect was confirmed by laser propagation simulation with a cylindrical 2D particle code WAKE. The role played by refraction was to limit maximum laser intensity on the focal spot and to increase interaction volume. By this way, X-ray emission was observed with laser intensity not so far from the ionization threshold (few 10^{14} W.cm⁻²). We also studied plasma expansion both at cluster scale and focal volume scale and deduced the deposited energy distribution as a function of time. Thanks to a simple hydrodynamic model, we used these results to study cluster expansion. X-ray emission is then simulated by TRANSPEC code in order to reproduce X-ray spectra and duration. Those results revealed an extremely brief X-ray emission consistent with a preliminary measure by streak camera (\sim ps).