HAL
open science

Génération d'impulsions attosecondes sur miroir plasma à très haute cadence

Antonin Borot

To cite this version:

Antonin Borot. Génération d'impulsions attosecondes sur miroir plasma à très haute cadence. Physique des plasmas [physics.plasm-ph]. Ecole Polytechnique X, 2012. Français. NNT : . pastel-00787912

HAL Id: pastel-00787912

https://pastel.hal.science/pastel-00787912

Submitted on 13 Feb 2013

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.

Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique

Spécialité : Physique

Génération d'impulsions attosecondes sur miroir plasma à très haute cadence

Antonin Borot

Thèse soutenue le 12 février 2012 devant le jury composé de :

Anne l'Huillier : Rapporteur
Dimitri Batani : Rapporteur
Philippe Martin
Julien Fuchs : Président du jury
Rodrigo Lopez-Martens : Encadrant de thèse
Gérard Mourou : Directeur de thèse

Laboratoire d'Optique Appliquée UMR 7639
ENSTA ParisTech - Ecole Polytechnique - CNRS

Table des matières

1 Introduction **7**
1.1 Le contexte scientifique 7
1.2 Très haute cadence et maîtrise du champ laser : une nouvelle approche 15
1.3 Plan de thèse 17

2 Génération d'harmoniques d'ordre élevé sur miroir plasma **21**
2.1 Propriétés de l'interaction d'un laser intense avec une cible solide 21
2.1.1 La formation du plasma 22
2.1.2 L'interaction du laser avec le plasma 26
2.2 La génération d'harmonique par émission cohérente de sillage 31
2.2.1 Découverte 31
2.2.2 Mécanisme 33
2.3 Conclusion 46

3 Moyens expérimentaux et numériques de caractérisation de l'émission **48**
3.1 Système laser 49
3.1.1 La source laser 49
3.1.2 Mise en forme spectrale et spatiale 50
3.2 Dispositif expérimental de génération à très haute cadence 55
3.3 Le porte-cible kHz 59
3.3.1 Conception du porte-cible haute cadence 59
3.3.2 Contrôle interférométrique de la position de la cible 61
3.3.3 Préalignement de la cible 66
3.3.4 Stabilisation retro-active de la position de la cible 68
3.4 Critères de caractérisation du spectre harmonique généré 70
3.4.1 Spectromètre XUV 70
3.4.2 Détection et reconstruction du spectre harmonique 72

3.4.3 Mesure de l'énergie, de la largeur spectrale et de la divergence des harmoniques . . . 73
3.5 Modèle semi-analytique de l'émission cohérente de sillage . . . 76
3.5.1 La modélisation intra-cycle . . . 77
3.5.2 La modélisation inter-cycle . . . 80
3.6 Conclusion . . . 82

4 Génération d'harmoniques avec une impulsion laser de 10 cycles optiques 85
4.1 Caractérisation générale de la source harmonique . . . 86
4.1.1 Spectre et fréquence de coupure . . . 86
4.1.2 Efficacité de conversion . . . 88
4.1.3 Divergence du faisceau . . . 90
4.2 Influence des paramètres sur la dynamique de l'interaction . . . 90
4.2.1 Les prévisions du modèle théorique . . . 92
4.2.2 Résultats expérimentaux . . . 99
4.2.3 Confrontation avec les résultats du modèle, mesure de longueur de gradient et de la température électronique du plasma . . . 103
4.3 Conclusion . . . 111

5 Contrôle attoseconde de la dynamique d'un plasma surdense 115
5.1 La génération d'harmoniques comme sonde attoseconde du plasma . . . 116
5.1.1 La stabilisation de la phase absolue . . . 116
5.1.2 La nécessité d'utiliser une impulsion courte . . . 117
5.1.3 L'émission cohérente de sillage comme témoin de la dynamique plasma . 118
5.2 Dispositif expérimental . . . 118
5.3 Effet de la forme du champ laser sur l'émission . . . 119
5.4 Distorsion temporelle du train attoseconde et effet de moiré spectral . . . 123
5.5 Conclusion . . . 128

6 L'effet phare attoseconde : génération d'impulsions attosecondes isolées 131
6.1 L'effet phare attoseconde . . . 132
6.1.1 Dispersion angulaire du train attoseconde . . . 132
6.1.2 Rotation des fronts d'onde et propagation . . . 133
6.1.3 Mesure spectrale du train faiblement dispersé . . . 134
6.1.4 L'effet phare attoseconde dans nos conditions expérimentales . . . 137
6.2 Dispositif expérimental . . . 138
6.3 L'effet phare attoseconde comme spectrogramme de l'émission . . . 140

6.3.1 Obtention et mesure de la rotation du front d'onde 140
6.3.2 Mesures spectrales résolues en angle 141
6.4 Génération d'impulsions attosecondes isolées 143
6.4.1 Optimisation de la vitesse de rotation des fronts d'onde laser et séparation angulaire des impulsions attosecondes 144
6.4.2 Contrôle du phare attoseconde par la phase absolue du laser 146
6.4.3 Mesures spectrales 148
6.5 Conclusion 149

7 Conclusions et perspectives 153

A Miroir plasma à haute cadence 159
A.1 Principe de l'effet miroir plasma 160
A.2 Dispositif expérimental et résultats 161

B Détails expérimentaux 165
B.1 Effet non-linéaire vs dispersion 165
B.2 Mise en forme spatiale 167
B.3 Calibration de la tache focale 169

References 171

Chapitre 1

Introduction

1.1 Le contexte scientifique

L'observation et l'étude de phénomènes dynamiques de plus en plus rapides ont poussé les scientifiques à développer des outils de mesure possédant une résolution temporelle toujours plus grande. L'enjeu de l'étude de ces processus est donc de disposer d'appareils de mesure suffisamment rapides pour pouvoir, à l'image de l'obturateur d'un appareil photographique, figer pendant un court instant l'état du phénomène observé au cours de son évolution. De nombreux outils de mesure temporelle existent, adaptés à la dynamique du phénomène étudié. Le premier outil de mesure temporelle est évidement l'œil humain, qui, malgré la limitation due à la persistance rétinienne, nous permet de résoudre à l'échelle de la dizaine de millisecondes l'évolution d'un système lent, comme par exemple la chute d'une pomme sous l'effet de la gravité. Mieux encore, un appareil photo à obturation mécanique permet d'abaisser à quelques millisecondes la résolution temporelle de la mesure. Puis l'avènement de l'électronique, qui permet aujourd'hui de générer des oscillateurs au GHz, permet de détecter des variations de tension à l'échelle de la nanoseconde, voire de la picoseconde.

Cependant, c'est l'optique qui, nous permettant de disposer d'oscillateurs fondamentaux -les photons- pouvant osciller à des fréquences inégalées, se révèle être le meilleur outil d'observation des phénomènes ultra-rapides de la nature. A titre d'exemple, la lumière visible « vibre » avec une période de l'ordre de 3 femtosecondes (1 fs=10^{-15} s) : si on dispose d'une telle source, et que son spectre est suffisamment large (voir Figure 1.1), on peut potentiellement sonder des phénomènes ultra-rapides avec une résolution de l'ordre du millionième de milliardième de seconde.

Cependant, si la capacité qu'ont les ondes lumineuses à résoudre les phénomènes dynamiques n'est plus à démontrer, elle ne peut être exploitée que si (i) le nombre de photons est suffisant

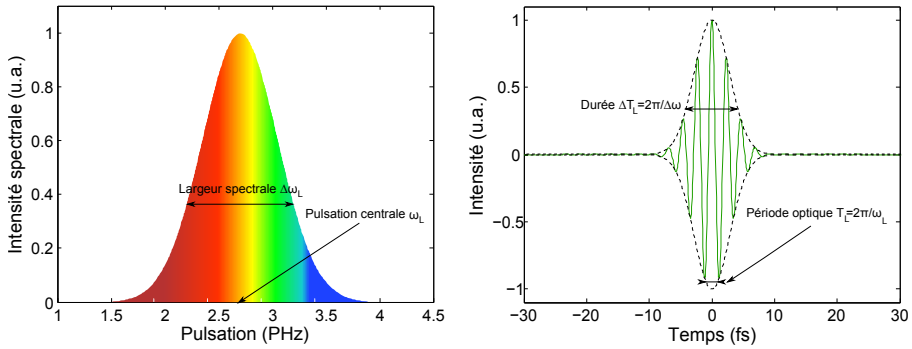

FIGURE 1.1 – *Fréquence centrale et largeur spectrale* A gauche est représenté le spectre d'une source lumineuse centré dans le visible à 2.7 PHz avec une largeur de 0.5 PHz. A droite est calculée la représentation temporelle de ce spectre (présentant une phase plate), qui prend la forme d'une impulsion d'environ 5 fs (deux périodes optiques).

pour sonder le phénomène physique, (ii) si les photons ont une relation de phase spatiale et temporelle suffisamment cohérente. Le phénomène d'émission stimulée découvert par Einstein en 1916 est la réponse à ces deux exigences. En effet, il rend possible l'amplification d'une onde électromagnétique de façon cohérente : c'est l'effet laser. D'abord démontré en 1958 dans le domaine des micro-ondes par C. H. Townes (qui partagea le Prix Nobel en 1964), l'extension au domaine optique a ensuite été proposée par C. H. Townes et A. L. Schawlow (Schawlow & Townes, 1956) puis démontrée expérimentalement par T. H. Maiman (Maiman, 1960) en 1960. Les rapides développements qui ont suivis ont permis à la fois d'identifier des milieux amplificateurs à large bande spectrale ainsi que des techniques d'amplification permettant d'atteindre de très hautes énergies, comme l'amplification à dérive de fréquence (Strickland & Mourou, 1985), produisant ainsi des impulsions énergétiques de plus en plus courtes. Des impulsions d'une centaine de femtosecondes permettent notamment d'observer la formation et la rupture de liaisons atomiques lors de réactions chimiques à l'échelle femtoseconde (prix Nobel de Chimie 1999 attribué à A. Zewail). Aujourd'hui, les derniers développements permettent de s'approcher de la limite du cycle optique autour de 800 nm ($T_L = 2.7\,fs$), c'est-à-dire de générer des impulsions de quelques femtosecondes seulement, permettant par exemple de suivre les mouvements des noyaux les plus légers au sein d'une molécule.

Il existe cependant des processus atomiques plus brefs encore. Par exemple, l'évolution temporelle des paquets d'ondes électroniques, en particulier celle des électrons de cœur, est bien plus rapide et se situe dans le domaine temporel de l'attoseconde (1 as=10^{-18} s). Son observation nécessite donc des « flashs » lumineux plus courts encore. Or, pour atteindre le régime attoseconde, il est nécessaire d'élargir le spectre au delà de la dizaine de PHz (environ 7 électronVolt), ce qui est impossible dans le domaine visible, centré autour de 2.7 PHz (voir Figure 1.1). Il faut

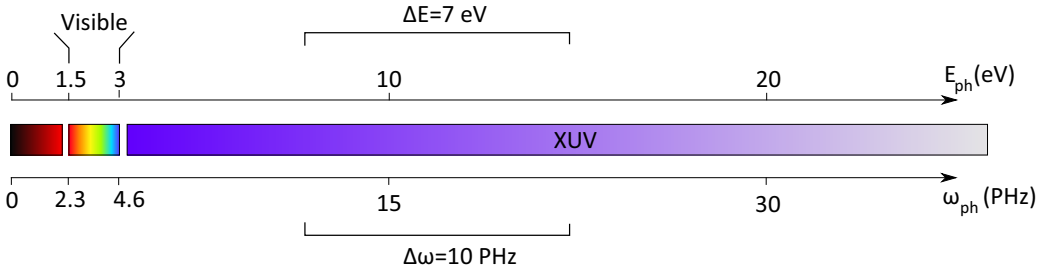

FIGURE 1.2 – *Energies et pulsations photon.* La largeur spectrale minimale pour générer une impulsion dans le régime attoseconde (ici environ 300 as) est indiquée sur la figure. On voit qu'il est nécessaire de se situer dans le domaine de l'XUV

donc se situer à des fréquences supérieures à 5 PHz, c'est-à-dire des énergies photon au delà de 4 eV, comme l'illustre la Figure 1.2. Le spectre visible ne suffit plus, il faut monter dans le domaine VUV (vacuum ultra-violet) ou XUV (X ultraviolet).

Cependant, transposer le principe du laser dans le domaine de l'XUV n'est pas chose aisée. Il existe toutefois deux techniques qui reproduisent le schéma de l'amplification laser dans le domaine des XUV et des X : le laser XUV par plasma et le laser à électrons libres. Dans le cas du laser XUV par plasma, le milieu amplificateur est une colonne de plasma d'ions multi-chargés créé soit par laser, soit par une décharge électrique (Daido, 2002). Ce plasma est mis en inversion de population par différents mécanismes de pompage, mais seul le schéma dit collisionnel a jusqu'à présent permis atteindre la saturation. Le plasma ainsi inversé émet et amplifie son propre rayonnement, par un régime d'amplification de l'émission spontanée, à la longueur d'onde de la transition inversée, dans l'axe de la colonne. La durée du gain est généralement trop courte pour effectuer plusieurs passages. Cependant les gains sont assez forts pour atteindre la saturation après moins d'un cm d'amplification. Ce type de source délivre cependant des impulsions plutôt monochromatiques autour de 10 nm de longueur d'onde, de quelques ps de durée, et d'énergie autour de la dizaine de μJ. En utilisant des lasers à impulsions plus longues (ns), l'énergie de ces lasers X atteint la dizaine de mJ. Les lasers à électrons libres (Deacon *et al.*, 1977) ou LEL, se basent eux sur le rayonnement synchrotron. Le principe est de rendre le rayonnement synchrotron cohérent en le faisant interagir avec le faisceau d'électrons qui en est la source dans une structure magnétique périodique appelée onduleur. Les LELs dans le domaine X sont des machines récentes, disponibles depuis moins d'une dizaine d'années. Le plus emblématique est le LCLS (Linac Coherent Light Source) à Stanford en Californie, mis en service en 2009 (Emma *et al.*, 2010). C'est le premier capable de fonctionner dans le domaine des rayons X durs. En régime d'impulsions courtes, il est capable de délivrer des photons d'énergie située entre 540 eV et 9 keV (soit une longueur d'onde entre 2.3 nm et 1.4 Å) dans des

impulsions de 3 mJ, en quelques fs, le tout à une cadence de 60 Hz.

Les schémas de génération basés sur le modèle de l'émission stimulée ne sont cependant pas les seuls mécanismes possibles pour obtenir des sources XUV à spectre large. Chronologiquement, c'est d'ailleurs une autre technique de génération qui a permis la première expérience de diffraction X résolue en temps (Rischel *et al.*, 1997) : le rayonnement $K\alpha$. En focalisant un laser intense sur une cible métallique, les électrons accélérés par le champ arrachent d'autres électrons situés sur des couches de cœur dans les parties plus froides du plasma, qui en se recombinant émettent du rayonnement autour du keV, avec une durée de l'ordre de la centaine de femtosecondes (Murnane *et al.*, 1991). Ce rayonnement a en particulier été utilisé pour observer la transition de phase ultra-rapide solide-liquide d'un cristal semi-conducteur.

En revanche, aucun de ces mécanismes de génération de sources XUV n'a encore franchi le domaine attoseconde. Jusqu'en 2009 (Nomura *et al.*, 2009), le seul mécanisme ayant donné lieu à une mesure de durée attoseconde est la génération d'harmoniques d'ordre élevé en milieu gazeux. Ce processus a lieu lors de l'interaction d'un laser court et intense (entre 10^{13} et $10^{15}\,W.cm^{-2}$) avec un milieu atomique. Le modèle semi-classique dit « en trois étapes » (Corkum, 1993; Kulander *et al.*, 1993), permet d'avoir d'une image simple de mécanisme de génération : sous l'effet du champ laser, la barrière du potentiel coulombien de l'atome est déformée, ce qui permet aux électrons des couches les plus hautes de la traverser par effet tunnel. L'électron oscille alors librement dans le continuum et acquière de l'énergie cinétique. Puis quand le champ change de sens, il peut se recombiner avec l'ion en émettant un photon, dont l'énergie est la somme de son énergie cinétique et du potentiel d'ionisation. Ainsi, la réponse non-linéaire du milieu donne lieu à l'émission de rayonnement de fréquence supérieure à celle du laser, ayant de plus un profil spectral spécifique : le spectre de l'émission présente un profil harmonique, constitué de pics localisés autour des fréquences multiples impaires de la fréquence laser. En effet, comme cette émission XUV due à la recombinaison de l'électron avec son atome a lieu deux fois par cycle laser, la périodicité de génération est à l'origine de la structure harmonique du spectre. Ce processus a été pour la première fois observé expérimentalement vers la fin des année 80 (McPherson *et al.*, 1987; Ferray *et al.*, 1988) et est très rapidement devenu l'objet d'intenses études autour des propriétés de l'émission harmonique. Une des caractéristiques principales de ce mécanisme de génération est évidemment sa largeur spectrale : celle-ci indique que si le rayonnement harmonique présente une bonne relation de phase temporelle, il est possible de synthétiser des trains d'impulsions lumineuses dans le domaine attoseconde (Farkas & Tóth, 1992; Harris *et al.*, 1993; Antoine *et al.*, 1997). Les démonstrations expérimentales qui suivirent (Drescher *et al.*, 2001; Paul *et al.*, 2001; Tzallas *et al.*, 2003) ont définitivement ouvert

la voie à la physique attoseconde. En témoignent les nombreuses observations résolues en temps utilisant comme sonde les harmoniques gaz, comme par exemple l'observation de l'évolution temporelle du réarrangement des couches électroniques de cœur d'un atome (Drescher *et al.*, 2002), de la dynamique d'émission des électrons de cœur et de valence à la surface d'un solide (Cavalieri *et al.*, 2007) ou encore l'observation de l'ionisation par effet tunnel (Uiberacker *et al.*, 2007).

La génération d'harmoniques dans les milieux gazeux a donc donné lieu à la naissance annoncée de la science attoseconde. Les gigantesques progrès qui ont été réalisés ces vingt dernières années dans ce domaine ont permis d'en faire une source très fiable, relativement aisée à mettre en place expérimentalement, et surtout exploitant au mieux les dernières évolutions laser, comme par exemple le contrôle de la phase absolue (voir Figure 1.3), permettant ainsi un excellent contrôle du champ électrique générateur, et par conséquent des propriétés de la source (Brabec & Krausz, 2000; Baltuska *et al.*, 2003). Cependant, il existe une limitation intrinsèque au phénomène de génération : si l'intensité du champ laser est trop élevée, l'électron oscillant dans le continuum ne se recombine plus avec l'ion parent et ne donne plus lieu à l'émission XUV. Malgré tous les efforts mis en œuvre pour augmenter l'efficacité de génération, les plus hautes énergies présentées se trouvent donc limitées autour du μJ (Hergott *et al.*, 2002). Ainsi, le seul moyen pour augmenter l'énergie du rayonnement secondaire est d'augmenter l'énergie laser en élargissant le volume d'interaction, afin de maintenir l'intensité laser à des niveaux adaptés au mécanisme d'interaction. Non seulement l'efficacité de génération stagne, mais en plus l'augmentation de l'énergie XUV exige l'utilisation de focales toujours plus longues, ce qui complique considérablement le dispositif de génération. C'est la raison pour laquelle il n'est toujours possible d'effectuer des expériences pompe-sonde en pompant avec une impulsion XUV.

Or, il existe un autre mécanisme de génération d'harmoniques, qui permettrait d'augmenter considérablement l'efficacité de conversion ainsi que l'énergie du faisceau XUV. Il s'agit cette fois de générer des harmoniques en focalisant un laser sur un solide -présentant une surface optiquement plate- à des intensités suffisantes ($I_L > 10^{15} W.cm^{-2}$) pour créer un plasma surdense dans la zone d'interaction. Pour les longueurs d'onde laser utilisées dans ce type d'interaction, la densité électronique du plasma est suffisante pour réfléchir l'impulsion laser incidente : cependant, l'interaction avec le plasma module la phase laser, faisant ainsi apparaitre des composantes harmoniques dans le spectre. A l'instar de l'interaction laser-gaz, ce mécanisme peut donc générer un signal harmonique dans l'XUV. Or, le plasma étant un milieu déjà pratiquement totalement ionisé, il ne souffre a priori d'aucune limitation en terme d'intensité à laquelle

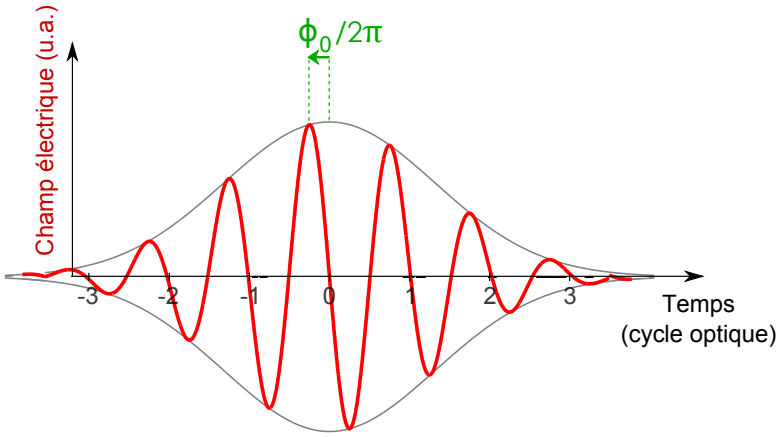

FIGURE 1.3 – *Phase absolue ϕ_0 d'une impulsion de deux cycles optiques.*

il peut être soumis : mieux encore, les modèles et les simulations prévoient, dans le régime d'interaction relativiste ($I_L > 1.32 \times 10^{18} W.cm^{-2}$ à $800\,nm$), une augmentation de l'efficacité de génération et de l'étendue du spectre harmonique avec l'intensité laser (Tsakiris *et al.*, 2006). Les plus grosses installations laser (qui atteignent des intensités de 10^{21}, voire $10^{22}\,W.cm^{-2}$ (Danson *et al.*, 2004; Bahk *et al.*, 2004)) pourraient alors être pleinement exploitées, convertissant ainsi plusieurs Joules ou kiloJoules d'énergie laser en rayonnement XUV avec une bonne efficacité. Cette source présente donc a priori toutes les caractéristiques requises pour prendre le relai de la génération d'harmoniques dans les gaz, fournissant un spectre potentiellement plus large ainsi qu'un plus grand nombre de photons, ouvrant par exemple la porte aux expériences pompe XUV/sonde XUV, ainsi qu'à l'optique non-linéaire dans le domaine XUV.

Historiquement, la première observation de la génération d'harmoniques sur cible solide a d'ailleurs été faite en 1977 (Burnett *et al.*, 1977), une dizaine d'année avant l'observation d'harmoniques sur cible gazeuse. En focalisant un laser CO_2 de durée nanoseconde sur une cible solide, des lignes d'émission harmoniques ont été observées jusqu'à l'ordre 46 (Carman *et al.*, 1981b; Carman *et al.*, 1981a; Bezzerides *et al.*, 1982) dans toutes les directions de l'espace. Puis il faut attendre presque une quinzaine d'année pour que la communauté se réapproprie le domaine, avec une série de travaux théoriques (Bulanov *et al.*, 1994; Gibbon, 1996; Lichters *et al.*, 1996; Baeva *et al.*, 2006), qui étudient la génération d'harmoniques sur cible solide à intensité relativiste, et propose un mécanisme de génération, le miroir oscillant relativiste. Puis, avec la standardisation des lasers femtosecondes à haut-contraste, suivent rapidement de nouvelles mesures expérimentales à plus hautes intensités (Kohlweyer *et al.*, 1995; von der Linde *et al.*, 1995; Zepf *et al.*, 1998), qui montrent cette fois que le rayonnement est cohérent et directionnel. Cependant, si certaines de ces expériences se rapproche du régime relativiste en terme d'intensité laser, aucune, à part Norrey et al (Norreys *et al.*, 1996), n'a pu montrer

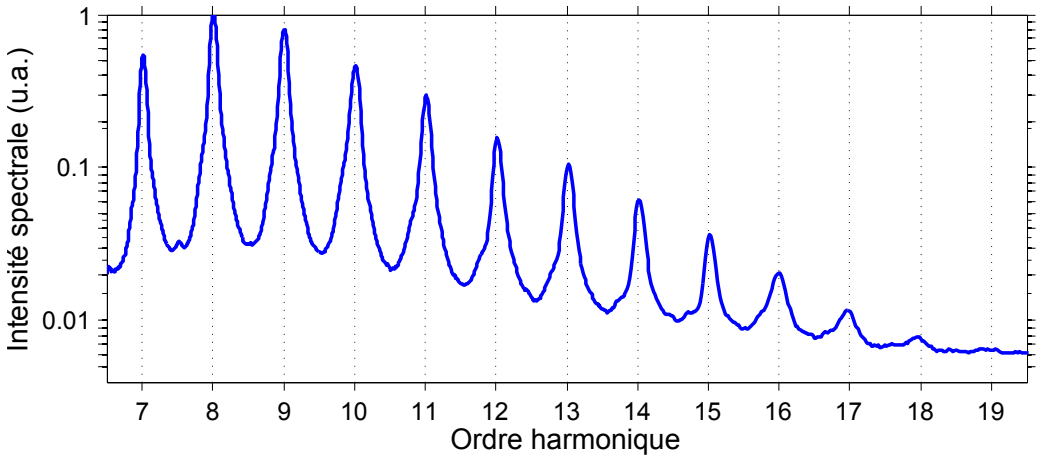

FIGURE 1.4 – *Spectre typique d"émission cohérente de sillage, obtenu pour une intensité de* $8 \times 10^{17}\,W.cm^{-2}$*, en accumulant le signal sur 100 tirs consécutifs*

de façon non-ambigüe que le mécanisme de génération était le miroir oscillant relativiste. Plus frappant encore, l'observation en 2004 par Teubner et al (Teubner *et al.*, 2004) d'un cut-off dans le spectre harmonique qui dépend de la densité électronique maximum du gradient de densité plasma, donné par $\sqrt{n_{max}/n_c}$, où n_{max} est la densité maximum et n_c la densité critique. Contrairement au schéma de génération relativiste, qui est un phénomène de surface, le plasma est ici désigné comme étant à l'origine de la génération de la source XUV. L'année suivant, Quéré et al (Quere *et al.*, 2006) explicitent en détail le phénomène, en pointant du doigt les électrons accélérés à la surface par le champ comme étant à l'origine du transfert de l'énergie laser au plasma, qui lui même réémet dans l'XUV. Ce nouveau mécanisme, qui prédomine pour des intensités sous-relativistes ($10^{16}W.cm^{-2} < I_L < 10^{18}W.cm^{-2}$), a été baptisé l'émission cohérente de sillage (coherent wake emission en anglais).

Dès lors, les mécanismes de génération étant mieux compris et mieux identifiés, suivent plusieurs expériences illustrant les caractéristiques des deux processus de génération. Tout d'abord l'identification du régime de transition entre les mécanismes (Thaury *et al.*, 2007; Tarasevitch *et al.*, 2007), autour de la frontière de l'intensité relativiste (quelques $10^{18}W.cm^{-2}$). Puis l'observation d'harmoniques d'énergies supérieures au keV dans le régime relativiste (Dromey *et al.*, 2006). La cohérence de la source harmonique a ensuite été confirmée dans le régime de l'émission cohérente de sillage (**?**). Une mesure d'auto-corrélation a également été effectuée, démontrant que les harmoniques générées sont en phase et présentent une structure temporelle en train d'impulsions de durée attoseconde (Nomura *et al.*, 2009).

Ainsi, deux mécanismes de génération d'harmoniques sur cible solide, prévalant à différentes

intensités laser, sont donc identifiés théoriquement et expérimentalement :

- Le miroir oscillant relativiste, dont l'identification théorique a précédé l'observation expérimentale, est basé sur la réflexion du laser à intensité relativistes ($I_L > 1.32 \times 10^{18} W.cm^{-2}$ à $800\,nm$) sur la surface critique du plasma. On peut donner une représentation simplifiée du phénomène. Comme nous allons le voir plus loin, un plasma issu de l'ionisation presque complète d'un solide est dit critique (ou surdense) aux longueurs d'ondes visibles, car sa densité électronique est suffisante pour empêcher la propagation du laser en son sein : le champ électromagnétique laser est alors réfléchi dans la direction spéculaire, comme s'il frappait un simple miroir -ici, un miroir plasma. Or, ce miroir, constitué par la surface critique du plasma, oscille à des vitesses relativistes sous l'action conjuguée du champ laser et de la force de rappel électrostatique due aux ions du plasma. La phase du champ laser réfléchi subit donc un déphasage proportionnel à la position de la surface critique en mouvement (à des vitesses relativistes) à l'instant de la réflexion, ce qui induit une forte distorsion temporelle du champ électromagnétique. Le spectre réfléchi contient donc de nouvelles fréquences, d'autant plus élevées que la distorsion, directement liée à l'intensité laser, est grande. Ces fréquences sont modulées par une oscillation spectrale harmonique due à la périodicité du phénomène.

- L'émission cohérente de sillage, qui est le mécanisme qui fait l'objet de ce travail de thèse. Ce mécanisme est dominant pour des intensités comprises entre quelques 10^{15} et $10^{18} W.cm^{-2}$, et peut se décomposer en trois étapes. Sous l'effet conjugué du champ laser et du champ électrostatique généré par la séparation de charge, une population d'électrons, les électrons de Brunel (Brunel, 1987), est accélérée vers le vide puis renvoyée vers le plasma. Une fois la surface critique traversée, ces électrons échappent à l'action du champ, et finissent par se croiser au sein du gradient de densité, selon une dynamique qui sera explicitée dans le Chapitre 1. La surdensité électronique engendrée excite le plasma dans son sillage, qui rentre en oscillation à la pulsation plasma locale. A cause de l'inhomogénéité du plasma, ces oscillations plasma voient leur front de phase évoluer spatialement, jusqu'à atteindre une configuration où elles peuvent se convertir de façon cohérente en onde électromagnétique oscillant dans l'XUV. Ce mécanisme se répétant à chaque cycle laser, on observe également une structure spectrale harmonique.

1.2 Très haute cadence et maîtrise du champ laser : une nouvelle approche

La deuxième partie de cette introduction a pour but de présenter en quoi notre jeune groupe de recherche, baptisé « Physique du Cycle Optique », a adopté un angle d'approche original pour l'étude de la génération d'harmoniques sur cible solide. Mais pour cela, il est nécessaire de revenir sur le point commun qu'ont toutes les expériences de génération qui ont précédées : l'utilisation de système laser à haute énergie et basse cadence.

En effet, jusqu'à présent, l'étude de la génération d'harmoniques d'ordre élevé sur cible solide a nécessité l'utilisation de laser de classe TetaWatt ou plus, fournissant des énergies élevées, de quelques dizaines de milliJoules à quelques dizaines de Joules. Cette approche est naturellement motivée par la nécessité de disposer de suffisamment d'intensité laser pour déclencher le mécanisme. Evidemment, de tels systèmes laser présentent des avantages : disposer d'impulsions très énergétiques facilite non seulement l'accès aux hautes intensités, mais assure aussi d'avoir un signal élevé lors de la mesure. En revanche, les inconvénients existent : la limitation en durée, difficilement en dessous de la trentaine de femtosecondes (sauf pour les nouveaux systèmes OPCPA), le faible taux de répétition (ces laser fonctionnent le plus souvent en « single-shot »), et surtout le manque de contrôle sur le champ électrique, dû à la difficulté de maîtriser le spectre et la phase à de telles énergies et avec un faible taux de répétition. Si les progrès obtenus ces dernières années sont impressionnants, le domaine reste encore très loin derrière le niveau de compréhension physique et de maîtrise expérimentale atteint dans les gaz. En particulier, deux points cruciaux, qui font les beaux jours de la génération d'harmoniques dans les gaz, restent à adresser :

1. tout d'abord l'exploration du phénomène en régime dit « few-cycle », c'est-à-dire avec une impulsion laser de quelques fs dont la phase est bien contrôlée (en particulier la phase absolue), qui permettrait d'une part d'explorer la dynamique du plasma à l'échelle sub-femtoseconde et d'autre part de mettre en forme le rayonnement généré, en réduisant au maximum le nombre d'impulsions attosecondes du train, pour au final espérer parvenir à en isoler une.
2. et ensuite l'utilisation proprement dite du faisceau XUV généré pour des expériences applicatives, qui nécessitent d'avoir une source cadencée. En effet, aujourd'hui, aucune expérience d'application utilisant une source harmonique-solide n'a encore été proposée, simplement parce que toutes les expériences menées sur le sujet se déroule en mono-coup.

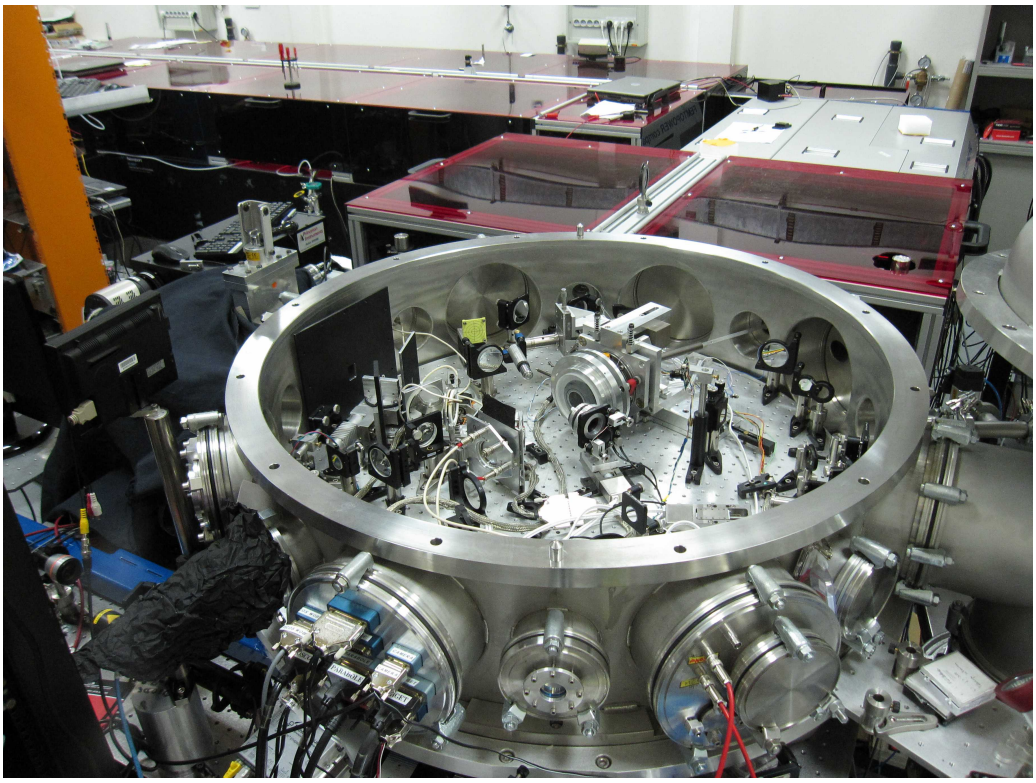

FIGURE 1.5 – *Dispositif expérimental de la Salle Noire au Laboratoire d'Optique Appliquée.*

Ce sont les raisons pour lesquelles notre groupe, Physique du Cycle Optique, emmené par Rodrigo Lopez-Martens, propose de procéder autrement : nous avons ainsi misé sur une approche originale de l'interaction laser-matière à haute intensité, en optant pour l'utilisation de systèmes laser plus petits, moins énergétiques (de l'ordre du milliJoule), et fonctionnant à haut taux de répétition. L'idée qui soutient cette approche est de parvenir à adapter à l'interaction laser-solide ce qui a fait le succès de la génération d'harmoniques sur cible gazeuse, c'est-à-dire la haute cadence et le contrôle du champ laser.

Les obstacles à la mise en place d'une expérience d'interaction laser-solide à haute cadence avec un système laser d'énergie millijoule sont d'une part (i) l'accès aux très hautes intensités laser, et d'autre part (ii) la conception et la fiabilisation d'une cible solide fonctionnant à la cadence du laser.

- ◇ Pour atteindre le niveau d'intensité requis, notre approche est de porter notre effort sur la maîtrise de la compression temporelle, qui nous permet de passer sous les 5 fs, et de la phase spatiale, pour permettre la focalisation de l'énergie laser sur la plus petite tache possible (Albert *et al.*, 2000). Si nous ne sommes pas encore au niveau d'intensité atteint par les plus gros systèmes laser, nous nous approchons aujourd'hui du seuil d'intensité relativiste, ce qui nous autorise à explorer de nombreux régimes d'interaction à très haute

intensité, jusqu'à lors inaccessibles aux systèmes laser haute-cadence modérément énergétiques.

- ◇ En ce qui concerne la problématique de l'interaction laser-solide à haute cadence, il est nécessaire de proposer une solution originale qui remplisse trois conditions : tout d'abord, chaque impulsion laser devant interagir avec une surface solide de qualité optique, il faut donc rafraîchir la surface d'interaction à chaque tir, à une vitesse suffisante pour autoriser l'interaction à la cadence du laser. Ensuite, pour pouvoir accumuler le signal obtenu, il est indispensable d'assurer des conditions parfaitement répétables pour chaque tir. Les longueurs de Rayley obtenues pour de fortes focalisations étant de l'ordre de quelques micromètres, la surface d'interaction doit donc être positionnée à chaque tir avec une précision micrométrique. Enfin, le dispositif d'interaction devra proposer une longévité suffisante pour permettre un nombre de tir suffisant pour réaliser l'étude paramétrique du phénomène observé.

1.3 Plan de thèse

C'est donc sur la base de cette nouvelle approche de l'interaction que j'ai été chargé pendant ma thèse de monter l'ensemble du dispositif expérimental destiné à fournir une source d'harmoniques d'ordre élevé générées à très haute cadence sur cible solide. En effet, lors de mon arrivée au laboratoire, la situation était la suivante : deux doctorants était en charge du montage de notre système laser (Trisorio, 2008; Canova, 2009), mais le dispositif d'interaction était encore à concevoir. La première partie de ma thèse a donc constitué à dimensionner et monter l'expérience, avec un triple objectif : mettre en forme le faisceau laser pour pouvoir atteindre les hautes intensités au foyer, monter et valider un prototype de cible solide stabilisée fonctionnant au kHz, et mettre en place tous les diagnostiques de détection de l'émission harmonique. Après l'observation des premières harmoniques et une période indispensable de fiabilisation du dispositif expérimental, nous avons pu lancer les campagnes expérimentales, que j'ai menées avec le soutien d'Arnaud Malvache, deuxième doctorant du groupe, en charge toute la modélisation théorique du mécanisme de génération d'harmoniques, et sans qui l'interprétation physique de nombreuses de nos observations expérimentales aurait été impossible. Nous avons d'abord mené une étude paramétrique de la structure spectrale du rayonnement harmonique utilisant des impulsions longues (sub-30 fs). Puis nous avons sondé la dynamique du plasma à l'échelle attoseconde, en observant le comportement spectral de l'émission générée avec des impulsions de deux cycles optiques (sub-5 fs) stabilisées en phase absolue. Enfin, nous avons démontré, toujours en utilisant les impulsions sub-5fs stabilisées en phase absolue, un schéma expérimental de séparation spatiale du train d'impulsions attosecondes associé au

rayonnement harmonique.

Ce manuscrit, qui décrit chronologiquement les grandes étapes de mon travail de thèse, est composé de cinq parties, articulées de la façon suivante :

- Après avoir décrit les caractéristiques principales de l'interaction d'une impulsion laser intense avec une cible solide, le **Chapitre 2** aura pour objet de rentrer dans le détail du mécanisme de génération d'harmoniques dominant dans nos conditions expérimentales, l'émission cohérente de sillage. Nous verrons que ce processus complexe consiste à transférer l'énergie du laser vers les couches denses du plasma par le biais d'un ensemble d'électrons accélérés au niveau de la surface critique du plasma, puis d'une conversion de l'énergie plasma accumulée sous forme de rayonnement pulsé situé spectralement dans le domaine de l'XUV.

- Le **Chapitre 3** décrit les moyens expérimentaux et numériques mis en œuvre pour permettre la génération à très haute cadence et l'observation de l'émission cohérente de sillage. Le système laser utilisé sera brièvement décrit, avant de présenter le dispositif expérimental (propagation du faisceau, mise en forme). Une partie décrira la conception, le test et la validation de la cible d'interaction laser-solide à très haute cadence. La partie suivante traitera du dispositif expérimental de détection du rayonnement émis. Enfin sera présenté le modèle théorique d'analyse spectrale et temporelle de l'émission, utilisé pour confronter les données expérimentales.

- Le **Chapitre 4** présente dans un premier temps les caractéristiques générales de la source obtenue avec impulsions longues (sub-30 fs) : son spectre, son efficacité et sa divergence. Puis nous présentons une série de mesures paramétriques de la structure spectrale du signal harmonique pour identifier les effets des paramètres de l'interaction (intensité laser, gradient plasma, phase laser) sur la phase des harmoniques. En confrontant les résultats expérimentaux et les prévisions du modèle, nous proposons une méthode inédite de mesure du gradient de densité plasma.

- Nous poursuivons l'étude du spectre de l'émission générée cette fois avec impulsions de deux cycles optiques stabilisées en phase absolue. En contrôlant avec une précision attoseconde la forme du champ électrique laser, nous observons une très forte variabilité du spectre de l'émission, qui perd sa forme harmonique au profit d'une structure dite de moiré, liée à la périodicité du train attoseconde généré. Ces résultats, relatés dans le

Chapitre 5, font état du contrôle attoseconde de la dynamique du plasma surdense par le champ électrique laser.

- Le **Chapitre 6** présente la démonstration expérimentale de la génération d'impulsions attosecondes isolées sur cible solide. Ce procédé, baptisé « effet phare attoseconde » et consistant à faire tourner les fronts de phase du laser lors de l'interaction avec le plasma, permet d'isoler les différentes impulsions attosecondes du train en les dirigeant dans différentes directions de l'espace. Nous avons ainsi réussi à isoler trois impulsions, et à contrôler à la fois leur énergie ainsi que leur direction respective en faisant varier la phase absolue du laser.

- Dans le **Chapitre 7**, nous faisons le bilan des résultats obtenus et de la validation de notre approche « haute cadence » de l'interaction laser-solide, et nous proposons plusieurs pistes de réflexion sur les expériences futures à mener.

Chapitre 2

Génération d'harmoniques d'ordre élevé sur miroir plasma

Ce chapitre a pour objet de présenter le contexte théorique de l'interaction d'une impulsion laser intense avec une surface solide en général (Partie 2.1), et du mécanisme de génération d'harmoniques sur miroir plasma par émission cohérente de sillage en particulier (Partie 2.2). La première partie traite dans un premier temps de la formation du plasma par le front montant du laser, puis de son expansion, et dans un deuxième temps, de l'interaction du pic principal de l'impulsion avec le plasma détendu. L'objectif est de fournir les clefs essentielles de la physique de l'interaction, que sont les notions de fréquence plasma, de longueur de gradient ou de miroir plasma. La deuxième partie rentre dans les détails du mécanisme de la génération d'harmoniques par émission cohérente de sillage, qui est le mécanisme de génération dominant dans nos conditions expérimentales. A partir des équations décrivant les trajectoires des électrons accélérés par le champ (électrons dit « de Brunel », en hommage à François Brunel qui les a identifiés en 1986), nous présenterons comment le champ électrique laser transfert une partie de son énergie au plasma, et comment celui-ci la reconvertit sous la forme de rayonnement impulsionnel, dans le domaine XUV.

2.1 Propriétés de l'interaction d'un laser intense avec une cible solide

Le but de cette partie est d'introduire les concepts et les paramètres essentiels qui caractérisent l'interaction entre un laser intense et une cible solide. La formation d'un plasma dense et son expansion seront abordés dans la première partie. Puis nous traiterons des grandes lignes de l'interaction du champ électrique avec ce plasma dense détendu, en introduisant le concept

de pulsation plasma et de miroir plasma.

2.1.1 La formation du plasma

L'ionisation du milieu

Comme nous l'avons présenté dans l'introduction, notre domaine scientifique étudie l'interaction d'un laser avec un plasma dense (la signification d'un « plasma dense » sera précisée par la suite). Cependant, le plasma n'existe que par la présence du laser, qui transfert une partie de son énergie à la matière en la ionisant lors de l'interaction, la faisant passer sous l'état de plasma. Bien sûr, il ne s'agit pas d'une photo-ionisation directe, dite « à un photon », du matériau. En effet, l'énergie des photons des lasers utilisés est de l'ordre de l'électron-volt ($\hbar\omega = 1.3\,eV$ dans notre expérience), alors que les plus faibles énergies de liaison I_p des électrons au sein de l'atome sont supérieures à la dizaine d'eV. C'est la concentration dans l'espace et dans le temps de ces photons laser de faible énergie (en d'autres termes, l'intensité du champ électrique laser), qui permettra l'ionisation efficace du matériau.

Nos impulsions laser ultra-courtes présentent un front de montée en intensité très raide. Le matériau sur lequel le laser est focalisé voit donc au cours du temps l'intensité laser augmenter très rapidement pendant l'interaction jusqu'à l'arrivée du pic d'intensité. De façon schématique, on distingue deux régimes d'intensité pendant lesquels la matière subit différents types d'ionisation (Gibbon, 2005).

- A intensité modérée, l'ionisation multiphoton est efficace. Il s'agit de l'absorption simultanée de plusieurs photons laser, en nombre suffisant pour que l'électron atteigne le continuum, c'est-à-dire l'absorption de n photons tel que $n\hbar\omega > I_p$ (voir Figure 2.1(a)).
- A plus haute intensité, l'ionisation par effet tunnel, puis par suppression de la barrière de potentiel, devient prédominante. Ainsi, le champ laser est suffisamment intense pour tordre la barrière de potentiel créée par l'atome, et permettre à l'électron de la traverser par effet tunnel, ou même d'abaisser suffisamment la barrière pour que l'électron se libère de son emprise (voir Figure 2.1(b) et (c)).

Le régime de transition est donné par le paramètre de Keldysh, qui compare le temps que met l'électron pour traverser la barrière de potentiel par effet tunnel et la période laser $T_L = 2\pi/\omega_L$. Il s'exprime :

$$\gamma_K = \omega_L \sqrt{\frac{2m_e I_p}{e^2 E_L^2}}\,, \tag{2.1}$$

où E_L et ω_L sont l'amplitude et la pulsation du champ laser, et m_e la masse électronique.

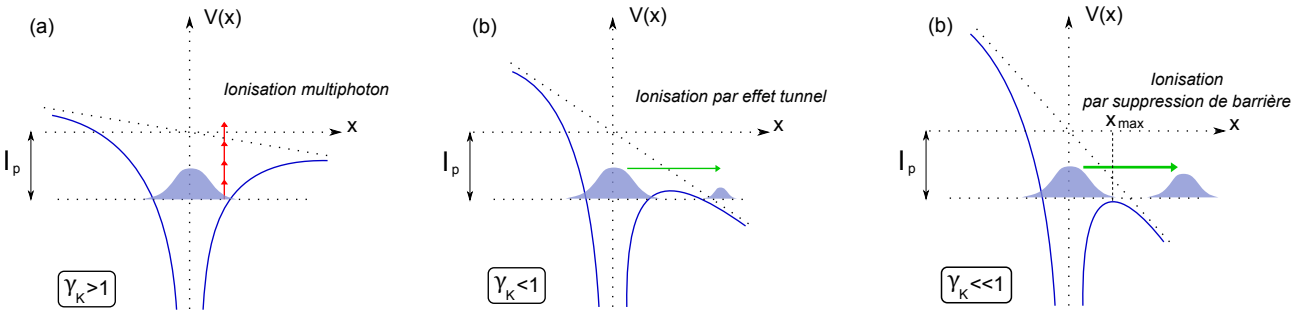

FIGURE 2.1 – *Ionisation d'un atome sous l'effet du champ laser.* La barrière de potentiel de l'atome est déformée sous l'effet du champ laser. Lorsque $\gamma_K > 1$, la probabilité que l'électron traverse la barrière de potentiel lorsqu'elle est abaissée par le champ est faible, l'ionisation multiphoton domine alors (a). Lorsque $\gamma_K < 1$, la probabilité de franchissement est beaucoup plus grande, l'ionisation se fait principalement par effet tunnel.

Pour $\gamma_K > 1$, le régime d'ionisation multiphoton est prédominant. Pour $\gamma_K < 1$, c'est l'ionisation par effet tunnel (qui devient de l'ionisation par suppression de barrière pour des plus grandes intensités laser) qui domine.

Cependant, ce paramètre n'est valable que pour l'interaction d'un champ avec un atome isolé. Lorsque la densité de photoélectrons est suffisamment grande, d'autres processus d'ionisation comme l'ionisation collisionnelle finissent par prendre le pas sur l'ionisation par le champ.

Afin de se faire une idée de l'intensité laser nécessaire pour ioniser les atomes de la cible, prenons le modèle classique en une dimension où le potentiel coulombien est modifié par le champ électrique du laser. On peut écrire l'énergie potentielle de l'électron comme la somme de l'énergie potentielle d'interaction avec le noyau et celle créée par le champ laser :

$$V(x) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 x} - e\epsilon_L x \tag{2.2}$$

où ϵ_L est l'amplitude du champ laser

On peut alors calculer la valeur que doit prendre le champ pour permettre à l'électron de s'échapper spontanément de l'emprise du potentiel coulombien (c'est l'ionisation par suppression de barrière, voir Figure 2.1(c)), c'est-à-dire :

$$V(x_{max}) = -I_p \Longleftrightarrow \epsilon_L = \frac{\pi\epsilon_o I_p^2}{Ze^3} \tag{2.3}$$

On obtient ainsi l'intensité laser nécessaire pour ioniser un atome par suppression de bar-

rière :

$$I_L = \epsilon_0 c \epsilon_L^2/2 = \frac{\pi^2 \epsilon_0^3 c I_p^4}{Z^2 e^6} \tag{2.4}$$

Ainsi, pour arracher le 7e électron de l'ion oxygène ionisé 6 fois O^{6+}, dans le cas où on tire sur une cible en SiO_2 par exemple, il faudra fournir une énergie d'ionisation $I_p = 138.1\,eV$, ce qui correspond à une intensité laser de $4 \times 10^{16}\,W.cm^{-2}$. Nos intensités étant de l'ordre de $10^{17}\,W.cm^{-2}$, ce raisonnement laisse penser que notre plasma sera presque totalement ionisé. Ce sont bien sûr des résultats qualitatifs, étant donné que le potentiel vu par l'électron est perturbé par les charges qui sont autour de lui, qui ne sont pas prises en compte dans ce calcul. Cependant, cela donne une idée de l'état d'ionisation du plasma lors de l'interaction de celui-ci avec le pic principal du laser.

Si on applique cela à un plasma créé à partir d'une cible en verre (SiO_2) totalement ionisée, on obtient une densité électronique $n_e = Zn_i = Z\mathcal{N}\rho/M \approx 6.6 \times 10^{23}\,électrons.cm^{-3}$, avec Z le nombre d'électrons fournis par une molécule de SiO_2, $\mathcal{N}$ le nombre d'Avogadro, ρ la densité de la silice et M sa masse volumique. La valeur de la densité plasma aura une grande importance lorsque le plasma sera soumis à une excitation électromagnétique, car elle va d'une part quantifier la capacité du plasma à s'opposer au passage de cette excitation, mais aussi conditionner la pulsation à laquelle le plasma peut à son tour émettre une onde électromagnétique.

L'expansion du plasma

Comme le suggère le paragraphe précédent, le plasma est formé avant l'arrivée du pic principal de l'impulsion laser. Les électrons et les ions du plasma sont alors soumis au champ électrique ainsi qu'au champ de pression, qui tend à expulser les particules vers les zones moins denses, c'est-à-dire vers le demi-espace formé par le vide. On dit que le plasma s'étend. Selon un modèle d'expansion proposé par Kruer (Kruer, 1988), ce sont les électrons, plus légers, plus nombreux et plus chauds, qui, soumis à l'importante force de pression, vont s'étendre vers le vide et ainsi créer un champ électrostatique qui va à son tour tirer le fluide ionique vers le vide. En supposant une équation d'état isotherme pour le fluide électronique, Kruer démontre que la vitesse $v_i(x,t)$ et la densité $n_i(x,t)$ du fluide ionique vérifient :

$$\begin{cases} v_i(x,t) = c_s + x/t \\ n_i(x,t) = n_0 \exp(-x/c_s t) \end{cases} \tag{2.5}$$

où $n_{i,0}$ est la densité maximum du gradient ionique, $c_s = \sqrt{Zk_bT_e/m_i}$, avec Z l'état de charge des ions, k_b la constante de Boltzmann, T_e la température des électrons et m_i la masse des ions.

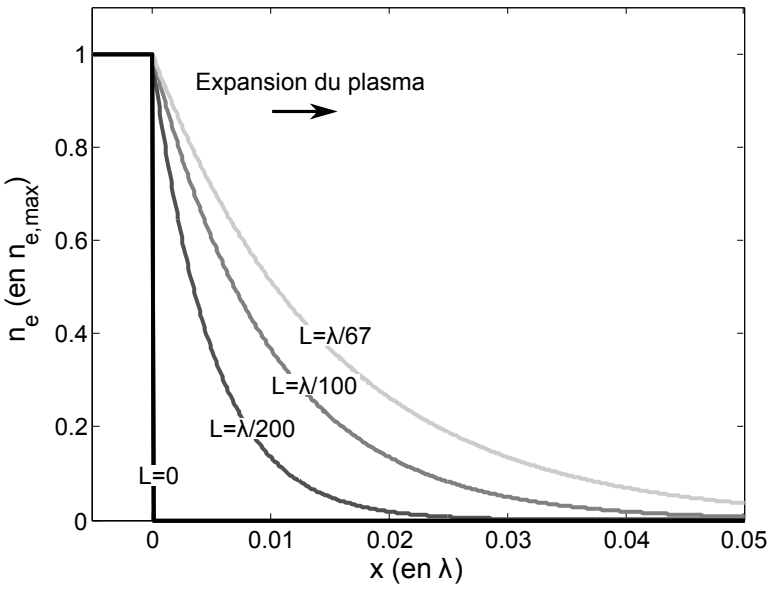

FIGURE 2.2 – **Expansion du plasma dans le vide.** Le graphe illustre le profil de densité électronique $n_e/n_{e,max}$ en fonction de la profondeur x, d'un plasma de température électronique $k_bT_e = 100\,eV$, formé d'ions silicium complètement ionisés ($c_s \approx 70 \times 10^3 m.s^{-1}$), pour t=0, 60, 120 et 180 fs correspondant à des gradients $L = 0$, $\lambda/200$, $\lambda/100$, $\lambda/67$)

On retrouve dans cette expression de cette vitesse d'expansion ionique le fait que c'est l'énergie thermique Zk_bT_e du fluide électronique qui définit la vitesse ionique.

On définit ici un paramètre crucial de l'interaction : la longueur de gradient $L = c_st$. La longueur de gradient correspond donc à la longueur caractéristique d'évolution du fluide ionique (et également dans nos conditions du fluide électronique). On note que le gradient ionique s'allonge à la vitesse c_s lors de l'expansion. En ce qui concerne le profil du gradient électronique, on peut le relier simplement au gradient ionique par $n_e \approx Zn_i$, ce qui est valable si le fluide électronique n'est pas trop « chaud », c'est-à-dire si sa longueur de Debye $\lambda_D = \sqrt{\epsilon_0 k_B T_e/n_e e^2}$, qui représente la distance caractéristique d'écrantage des phénomènes électrostatiques dans un plasma, est plus petite que la longueur de gradient ionique. On peut alors tracer l'évolution du gradient électronique en fonction du temps (voir Figure 2.2).

Ainsi, dès que le plasma est formé, il tend à s'étendre vers le vide. Nous verrons plus loin (voir Chapitre 4) que cela a de grosses conséquences sur l'interaction du laser avec le plasma, et que la longueur de gradient L est un paramètre essentiel de l'interaction.

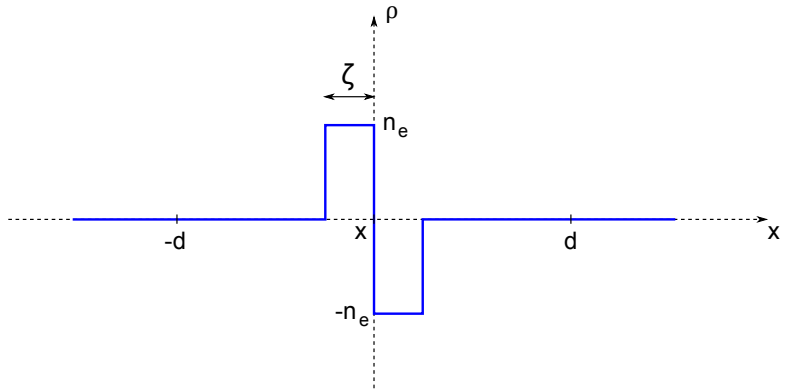

FIGURE 2.3 – *Plasma unidimensionnel soumis à une perturbation.* La charge locale ρ est exprimée en fonction de la position x

2.1.2 L'interaction du laser avec le plasma

Réaction d'un plasma soumis à une perturbation

Considérons un plasma neutre. Si on brise la neutralité du plasma en lui appliquant une perturbation, les forces électrostatiques générées auront tendance à ramener les charges à leur position d'origine. Celles-ci vont se mettre alors à osciller autour de cette position avec une certaine pulsation (dépendant de la densité locale), appelée pulsation plasma.

Pour trouver simplement l'expression de cette pulsation, on peut considérer un plasma unidimensionnel initialement neutre (voir Figure 2.3), auquel on applique une perturbation locale : on suppose qu'en x, les électrons sont déplacés d'une quantité ζ, alors que le fond ionique, plus lourd, est considéré comme immobile, et on observe l'évolution temporelle du déplacement de ces électrons (Mora, 2006).

Si on intègre l'équation de Maxwell-Gauss entre x et $x-d$, puis entre x et $x+d$, on obtient :

$$\begin{cases} E(x,t) - E(x-d,t) = en_e\zeta/\epsilon_0 \\ E(x+d,t) - E(x,t) = -en_e\zeta/\epsilon_0 \end{cases} \tag{2.6}$$

Le théorème de Gauss donnant $E(x-d,t) = -E(x+d,t)$, on trouve finalement :

$$E(x,t) = en_e\zeta/\epsilon_0 \tag{2.7}$$

L'équation du mouvement appliquée aux électrons déplacés donne :

$$m_e \frac{d^2\zeta}{dt^2} = -\frac{e}{m_e} E \quad \Longrightarrow \quad \frac{d^2\zeta}{dt^2} + \frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}\zeta = 0 \tag{2.8}$$

Ainsi, les électrons déplacés oscillent librement autour de leur position d'origine, avec une pulsation plasma ω_p donnée par :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}} \tag{2.9}$$

Ainsi, un plasma soumis à une perturbation oscille à une fréquence d'autant plus élevée que la densité électronique locale est grande.

Réponse diélectrique et propagation d'une onde électromagnétique dans un plasma

Cette partie a pour objectif de présenter comment le plasma répond au passage une onde électromagnétique. Considérons un plasma de densité électronique au repos n_e, où l'on considère les ions comme immobiles, soumis à un champ électrique oscillant à la pulsation ω_L, $\mathbf{E} = \mathbf{E(x)} \exp(-i\omega_L t)$. En linéarisant l'équation du mouvement appliquée au fluide électronique (en négligeant le terme du deuxième ordre de la dérivé particulaire), et si l'on néglige l'action du champ magnétique (plasma non-magnétisé), le terme de pression (plasma froid), le terme collisionnel (plasma non-collisionnel) on obtient :

$$\frac{\partial \mathbf{v_e}}{\partial t} = -\frac{e}{m_e}\mathbf{E(x)} \exp(-i\omega_L t) \tag{2.10}$$

où $\mathbf{v_e}$ est la vitesse du fluide électronique.

Puisque la densité de courant $\mathbf{J}$ vaut

$$\mathbf{J} = -e n_e \mathbf{v_e}\,, \tag{2.11}$$

on relie la densité de courant au champ par :

$$\frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} = \frac{e^2 n_e}{m_e}\mathbf{E} \quad \Longrightarrow \quad \mathbf{J} = \frac{i\epsilon_0 \omega_p^2}{\omega_L}\mathbf{E} \tag{2.12}$$

en cherchant un courant de la forme $\mathbf{J} = \mathbf{J(x)} \exp(-i\omega_L t)$. Comme $\mathbf{J}$ et $\mathbf{E}$ sont reliés par la constante diélectrique du milieu ϵ selon :

$$\mathbf{J} = i\epsilon_0 \omega_L (1-\epsilon)\,\mathbf{E}\,, \tag{2.13}$$

on obtient une expression de ϵ qui met en regard la pulsation de l'onde incidente ω_L et la pulsation plasma ω_p :

$$\epsilon = 1 - \omega_p^2/\omega_L^2 \tag{2.14}$$

Les loi d'Ampère et de Faraday, où on a substitué la valeur de $\mathbf{J}$ précédemment déterminée, donnent

$$\begin{cases} \nabla \times \mathbf{E} = i\omega_L \, \mathbf{B} \\ \nabla \times \mathbf{B} = -\dfrac{i\omega_L}{c^2} \epsilon \, \mathbf{E} \end{cases} \tag{2.15}$$

On obtient alors :

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) + k_0^2 \, \epsilon \, \mathbf{E} = \mathbf{0} \tag{2.16}$$

avec $k_0 = \omega_L/c$

Cas d'un plasma uniforme

Dans le cas d'un plasma uniforme, $\rho = 0$ et $\nabla \cdot \mathbf{E} = \mathbf{0}$. L'équation 2.16 devient :

$$\nabla^2 \mathbf{E} + k_0^2 \, \epsilon \, \mathbf{E} = \mathbf{0} \tag{2.17}$$

On obtient alors la relation de dispersion en cherchant une solution pour le champ électrique de la forme $\mathbf{E} = \mathbf{E(t)} \exp(i\mathbf{k}.\mathbf{x})$:

$$k = k_0 \sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega_L^2}} \tag{2.18}$$

La pulsation ω_p est donc la pulsation minimum à laquelle une onde électromagnétique peut se propager dans un plasma de densité n_e. En effet, le vecteur d'onde k devient imaginaire pour $\omega_L < \omega_p$, et l'onde ne peut plus se propager. Le calcul présenté en Partie 2.1.2, où nous y avons introduit ω_p^{-1} comme le temps caractéristique de réaction du plasma à une perturbation, permet d'illustrer la physique du phénomène : si $\omega_p^{-1} < \omega_L^{-1}$, alors les électrons du plasma auront le temps de (ou seront suffisamment nombreux pour) créer les charges d'espace suffisantes pour écranter le champ électromagnétique et empêcher sa propagation. Le plasma se comporte alors comme un miroir (sous réserve que sa surface reste de qualité optique pour ne pas dégrader le front d'onde) : on parle alors de « miroir plasma ».

Cas d'un gradient de densité et d'une incidence oblique

Considérons maintenant le contexte expérimental : une impulsion laser est focalisée sur une cible solide, en formant un angle θ avec la surface. Soit x la direction normale à la cible, y la direction perpendiculaire telle que x-y forme le plan d'incidence, et z la direction normale au plan x-y. Nous avons vu précédemment que lorsqu'un laser intense interagit avec une cible solide, le plasma formé prend la forme d'un gradient de densité dans la direction x, on a alors $\omega_p = \omega_p(x)$ et $\epsilon = \epsilon(x)$. Dans le cas d'une onde polarisée s (selon l'axe z), on peut écrire $\mathbf{E} = E_z(x)e^{ik_0 \sin\theta y}\mathbf{u_z}$ et montrer facilement que l'équation d'Helmholtz du champ électrique devient :

$$\frac{\partial^2 E_z}{\partial x^2} + k_0^2(\epsilon(x) - \sin^2\theta)E_z = 0 \tag{2.19}$$

La recherche d'une solution de la forme $E_z(x) = E_z e^{ik_x x}$ indique que k_x s'annule cette fois pour $\epsilon = \sin^2\theta$, ce qui implique que la fréquence plasma à laquelle est réfléchie une onde de pulsation ω_L à incidence θ est donc égale à $\omega_L \cos\theta$, qui, au sein du gradient, se situe spatialement avant la pulsation $\omega_p = \omega_L$. En revanche, il n'y a aucun couplage onde électromagnétique (onde laser) et onde électrostatique (onde plasma), car l'oscillation des charges se fait dans le plan de la surface du plasma, n'entrainant aucune perte de neutralité du plasma.

En revanche, si l'onde est polarisée p, c'est-à-dire dans le plan d'incidence, l'équation de propagation (écrite cette fois pour $\mathbf{B}$, car le champ magnétique en polarisation p n'a qu'une composante B_z, ce qui simplifie le calcul), s'écrit :

$$\frac{\partial^2 B_z}{\partial x^2} - \frac{1}{\epsilon(x)}\frac{\partial \epsilon(x)}{\partial x}\frac{\partial B_z}{\partial x} + k_0^2(\epsilon(x) - \sin^2\theta)B_z = 0 \tag{2.20}$$

De nouveau, on cherche une solution de la forme $B_z(x) = B_z e^{ik_x x}$. La partie réelle du vecteur d'onde k_x s'annule pour $\epsilon(x)$ vérifiant $4k_0^2(\epsilon(x) - \sin^2\theta) = \left(\frac{1}{\epsilon(x)}\frac{\partial\epsilon(x)}{\partial x}\right)^2$. Ainsi, en polarisation p, le laser rebrousse chemin plus tôt encore dans le plasma sous-dense que dans le cas de la polarisation s.

La Figure 2.4 montre l'évolution du vecteur d'onde k_x pour les polarisation s et p en fonction de la position dans la partie sous-dense du plasma ($x < 0$), pour un gradient de la forme $n(x) = n_c \exp(2x/L)$, avec $L = \lambda/100$. Dans le cas d'une polarisation s, la partie réelle de k_x (trait plein rouge) s'annule avant $\omega_p = \omega_L$ ($x = 0$), pour $\omega_p = \omega_L \cos^2\theta$. L'onde est donc réfléchie en ce point. Pour la polarisation p, le terme $\frac{1}{4k_0^2}\left(\frac{1}{\epsilon(x)}\frac{\partial\epsilon(x)}{\partial x}\right)^2$ décale vers les plus basses fréquences plasma le point de rebroussement (trait plein rouge). Cependant, dans les deux cas, le champ atteint les zones plus denses du plasma (en particulier la zone où $\omega_p = \omega_L$) sous la forme d'une onde évanescente, et mettre en mouvement les électrons du plasma. Cependant, pour la polarisation p, le champ évanescent a une composante selon x, ce qui lui permet d'exciter

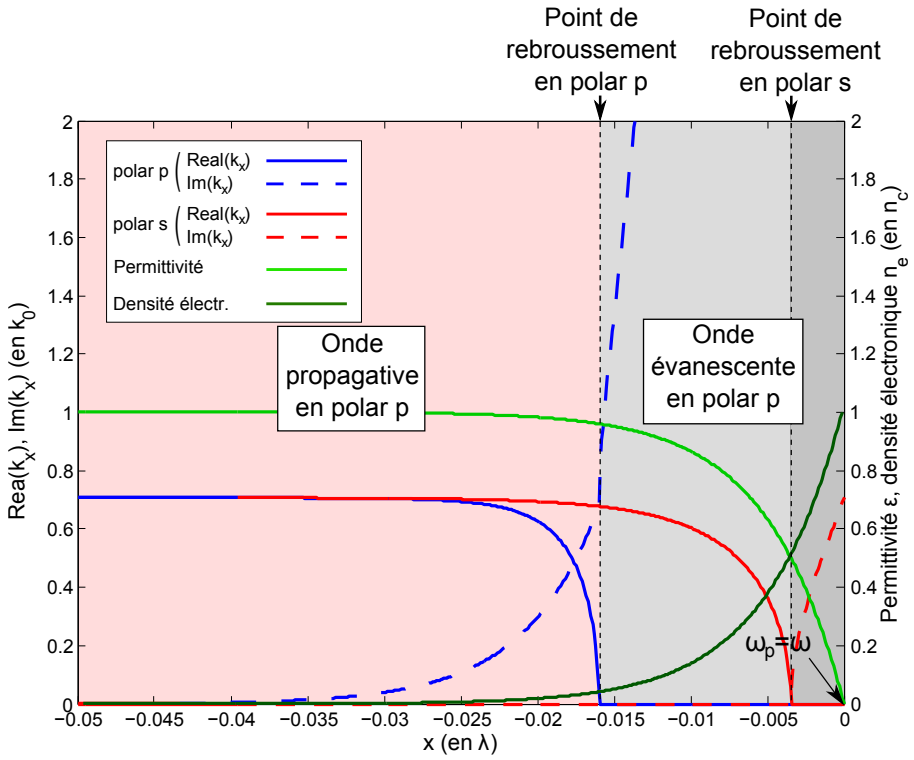

FIGURE 2.4 – *Evolution du vecteur d'onde k_x dans la partie sous dense du gradient, en polarisation s et p.* En bleu, les parties réelles (trait plein) et imaginaires (trait pointillé) de k_x en polarisation p, en rouge pour la polarisation s. L'évolution de la permittivité ϵ est tracée en vert clair. Le profil de densité exponentiel en vert foncé ($n(x) = n_c \exp(2x/L)$, avec $L = \lambda/100$). Les x négatifs correspondent donc à la partie sous-dense du plasma.

les électrons dans le gradient de densité, entrainant ainsi une séparation de charges. Ainsi, le plasma rentre en résonance avec cette oscillation pour $\omega_p = \omega_L$. On peut dire ici que le champ est converti du mode électromagnétique vers le mode électrostatique.

Comme la composante k_y du vecteur d'onde est constante et vaut $k_0 \sin\theta$ alors que k_x décroit de $k_0 \sin\theta$ jusqu'à 0, l'onde électromagnétique réfracte dans le plasma, est réfléchie et ressort avec un angle $-\theta$ du plasma, tandis que sa partie évanescente excite le plasma en résonance en $\omega_p = \omega_L$. Ce comportement est schématisé sur la Figure 2.5, et a été appelé absorption résonante. C'est un des mécanismes de transfert d'énergie du laser vers le plasma dans le cas d'un laser en incidence oblique et en polarisation p. Cependant, ce n'est pas le régime le plus efficace dans nos conditions d'interaction à gradient très raide, où le chauffage par effet Brunel est dominant. L'effet Brunel, à l'origine de l'émission cohérente de sillage, sera présenté dans la partie suivante. Cependant, la présentation du mécanisme de l'absorption résonante est intéressante dans l'étude de l'émission cohérente car la conversion des ondes plasmas en rayonnement XUV peut être interprété comme de l'absorption résonante inverse, comme nous

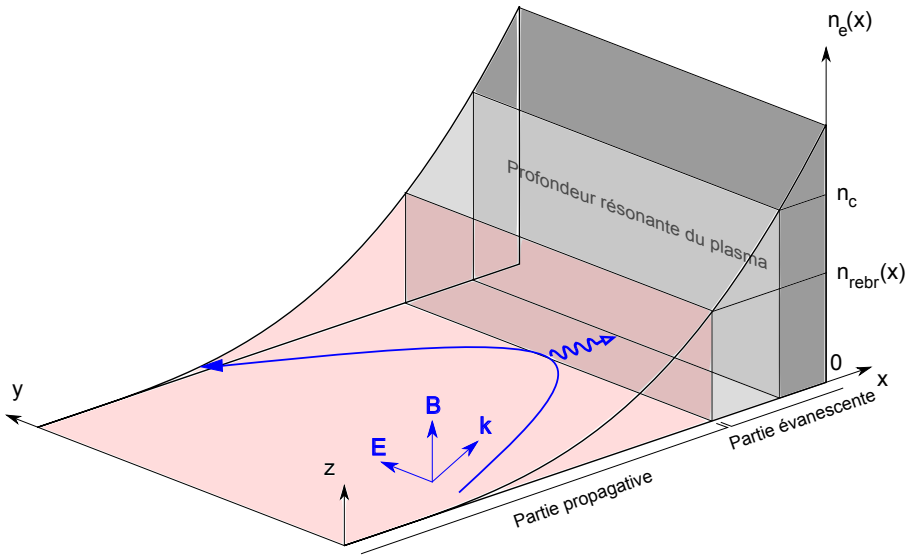

FIGURE 2.5 – *Propagation d'une onde polarisée p en incidence oblique dans un gradient de densité plasma.* L'onde (rouge) réfracte jusqu'à ce que le point de rebroussement soit atteint, avec $(k_x,k_y)=(0,k_0 \sin\theta)$, puis est réfléchie dans la direction spéculaire. Cependant la partie évanescente de l'onde qui oscille au delà du point de rebroussement excitent les électrons de la densité critique dans la direction du gradient, faisant ainsi rentrer le plasma en résonance.

le verrons dans la dernière partie de ce chapitre.

2.2 La génération d'harmonique par émission cohérente de sillage

2.2.1 Découverte

Les premiers pas de l'identification théorique de l'émission cohérente de sillage découle de l'observation en 2004 (Teubner *et al.*, 2004), au Max Planck Institut de Garching, par Teubner *et al*, d'une émission harmonique en face arrière d'une feuille mince irradiée par un laser femtoseconde à des intensités légèrement sous-relativiste ($a_0 = 0.4$). Le spectre d'émission présentait deux aspects remarquables : premièrement, malgré le fait que le plasma restait surdense pendant l'interaction (en améliorant le contraste temporel de leur impulsion par doublage de fréquence, et en validant la faible expansion du plasma avec des simulations hydrodynamiques) et ainsi opaque à toute émission de fréquence inférieure à la fréquence plasma maximum, une émission de fréquence inférieure à $\omega_{p,max}$ était observée. Deuxièmement, l'émission en face arrière présentait une rupture justement à $\omega_{p,max}$. Ces spectres n'étaient donc pas liées à une émission harmonique générée en face avant par le champ laser incident et transmise à travers la feuille

mince. A l'appui de simulation 1D-PIC, Teubner et al montrèrent que cette émission était due à des oscillations du plasma au sein du gradient de densité du plasma détendu, en face arrière de la cible, et que ces oscillations étaient déclenchées par les électrons de Brunel accélérés en face avant et traversant la feuille mince. Comme le plasma présente un maximum de densité $n_{e,max}$, le spectre harmonique ne s'étend que sur jusqu'à la fréquence correspondant à $n_{e,max}$, qui vaut $\omega_{p,max} = \sqrt{n_{e,max}e^2/m_e\epsilon_0}$. Ainsi, Teubner et al ont pointé du doigt dans cette expérience un nouveau mécanisme de génération d'harmoniques, apparemment issu des oscillations du plasma sous l'effet des électrons de Brunel traversant le gradient de densité. Cependant, si l'origine de l'émission commençait à se dessiner, le mécanisme de génération n'était pas décrit en détail.

L'année suivant, en 2005, l'équipe Physique à Haute Intensité du CEA-Saclay, observait la génération d'harmoniques d'ordre élevée en focalisant à intensité franchement sous-relativiste (descendant jusqu'à $a_0 = 0.04$) un laser Titane-Saphire de $50\,fs$ à $45\,\mathrm{deg}$ d'incidence en polarisation p, sur une cible épaisse en BK7 (Quere *et al.*, 2006). Observer des harmoniques à des intensités aussi faibles allait à l'encontre des modèles pré-existants de génération d'harmoniques par miroir oscillant, qui prévoyaient une génération efficace uniquement dans le régime relativiste, c'est-à-dire pour des intensités supérieures à $10^{18}\,\mathrm{W}\,cm^{-2}$ à $800\,nm$. De plus, ils ont observé que la dépendance en intensité laser de l'efficacité de génération n'était que faiblement non-linéaire, et que la structure du spectre, notamment la fréquence de coupure, ne changeait pas avec l'intensité laser, comportements qui ne correspondaient pas à celui prévu par les modèles de miroir oscillant. Et enfin, ils ont remarqué que la largeur des pics harmoniques variait avec la dérive de fréquence de l'impulsion laser : les harmoniques se raffinaient lorsque la dérive de fréquence était positive, et s'élargissaient quand la dérive était négative. Pour expliquer ce comportement inattendu, l'équipe de Saclay a simulé l'interaction dans des conditions proches de celles de l'expérience à l'aide du code PIC $1\frac{1}{2}\,D$ EUTERPE, et ont découvert, à l'instar de l'équipe du MPQ, que dans ce régime d'interaction, le spectre harmonique généré présentait une coupure au dessus de la fréquence plasma $\omega_{p,max}$ correspondant au maximum de densité électronique. De même, ils ont observé que les électrons de Brunel générés à l'interface vide-plasma et renvoyés profondément dans le gradient de densité étaient responsables de l'excitation d'ondes plasma. Mais surtout, ce sont la dynamique de l'excitation du plasma, ainsi que les mécanismes d'émission des harmoniques qui ont été plus précisément explicités par le groupe du CEA-Saclay.

2.2.2 Mécanisme

Comme l'ont identifié les groupes de Saclay et du MPQ de Garching, l'émission cohérente de sillage n'est pas un effet de surface comme le miroir oscillant relativiste, mais se déroule dans le gradient de densité électronique résultant de l'expansion du plasma juste avant l'arrivée du pic principal de l'impulsion laser. En effet, lorsque le laser est focalisé en incidence oblique avec une polarisation oscillant dans le plan d'incidence (polarisation dite « p »), que l'intensité est suffisamment haute et le gradient suffisamment court, une certaine population d'électrons, dits de Brunel, est efficacement accélérée dans le vide par le champ électrique du laser, puis renvoyée dans le gradient de densité lorsque l'amplitude du champ commence à décroitre. Une fois que ces électrons ont traversé le seuil de densité critique n_c dans le gradient plasma, synonyme de point de non-propagation de l'impulsion laser, ils s'échappent de l'influence de celui-ci et continuent librement leur incursion dans la partie surdense du gradient de densité, déclenchant dans leur sillage l'oscillation d'ondes de densité plasma. Compte tenu de la structure du gradient, ces oscillations plasma (mode électrostatique du champ) peuvent ensuite émettre sous forme de rayonnement de longueur d'onde égale à la fréquence plasma locale $\omega_p(x) = \sqrt{n_e(x)e^2/m_e\epsilon_0}$ (mode électromagnétique du champ). C'est l'émission cohérente de sillage.

L'accélération des électrons de Brunel

Comme nous l'avons vu précédemment, lorsque qu'un laser ultra-court de pulsation ω_L, est focalisé sur une surface optiquement plane à suffisamment haute intensité, le plasma généré, d'une part, a une densité électronique qui dépasse la densité critique ($n_e > \omega_L^2 m_e\epsilon_0/e^2$) et, d'autre part, n'a pas eu le temps de s'étendre significativement par rapport à λ_L : il se comporte comme un miroir optique et réfléchit spéculairement l'impulsion incidente. Ainsi, le champ électrique à la surface du plasma, est la somme du champ laser incident et réfléchi. Dans le cas d'une impulsion laser polarisé « p » frappant la cible solide avec un angle θ, lorsque l'on observe le champ total tout proche de la surface (c'est-à-dire à des distances δ faibles devant λ_L, afin de pouvoir considérer le champ constant dans l'espace, voir Fig. 2.6), les composantes transverses du champ incident et réfléchi s'annulent (dans l'approximation d'un miroir plasma réfléchissant à 100% l'énergie laser), et ne reste que la somme des composantes du champ électrique normales à la surface (Fig. 2.6). Ainsi, pour un champ incident $\overrightarrow{E} = Eo\sin(\omega_L t + \phi)\overrightarrow{u_i}$, le champ total à la surface du plasma vaut (sans considérer l'enveloppe variable ici) :

$$\overrightarrow{E_T}^{surf} = 2E_0 \sin\theta \sin(\omega_L t + \phi)\overrightarrow{u_z} = E_x \sin(\omega_L t + \phi)\overrightarrow{u_x} \tag{2.21}$$

Le champ à la surface du plasma étant normal, on peut donc étudier l'interaction en une dimension. Ainsi, dans la suite du manuscrit, la composante normale du champ électrique sera

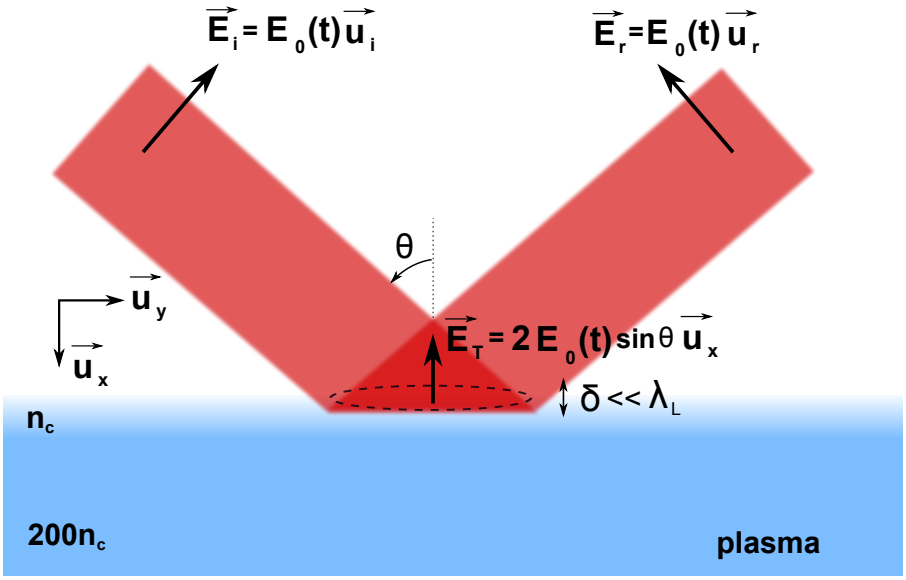

FIGURE 2.6 – *Schéma du champ électrique total à la surface d'un miroir plasma.* E_i et E_r sont respectivement les champs électriques incidents et réfléchis par le miroir plasma. A distance $\delta << \lambda_l$ de la surface du miroir plasma, le champ total est quasiment normal.

notée $E_z(t)$.

Pour décrire la dynamique des électrons impliqués dans la génération des harmoniques de sillage, nous nous appuierons sur la théorie qu'a proposée François Brunel en 1987 présentant un nouveau mécanisme de transfert d'énergie du laser au plasma, dominant dans le cas de l'interaction d'un laser intense polarisé « p » focalisé en incidence oblique avec un plasma surdense de gradient très raide.

On considère un espace à une dimension, avec le vide dans le demi-espace $x < 0$, et un conducteur parfait (assurant un champ nul en son sein), infiniment pourvoyeur d'électrons, dans le demi-espace $x \geq 0$. L'excursion δ des électrons dans le vide sous l'effet du champ laser étant faible devant λ_L, on considère le champ laser constant dans l'espace x, égal à $E_L = E_x \sin \omega_L t$. Pour $t > 0$, alors que le champ laser devient positif, des électrons du plasma sont tirés vers le vide afin de maintenir le champ total nul en x=0, c'est-à-dire à l'interface du vide et du conducteur parfait. En d'autres termes, ils créent un champ électrostatique qui s'oppose au champ laser : on dit que ces électrons écrantent le champ laser (Brunel, 1987).

Afin de décrire la dynamique de ces électrons, nous les labéliserons en fonction de leur ordre de sortie du plasma : $x_l(t)$ et $v_l(t)$ sont donc respectivement la position et la vitesse à t du $l^{ième}$ électron arraché du plasma par le champ. Le $l^{ième}$ électron voit donc, au temps t, le champ total suivant, somme du champ laser $E_L(t)$ et du champ électrostatique $\Delta E_l(t)$ créé par les $l-1$

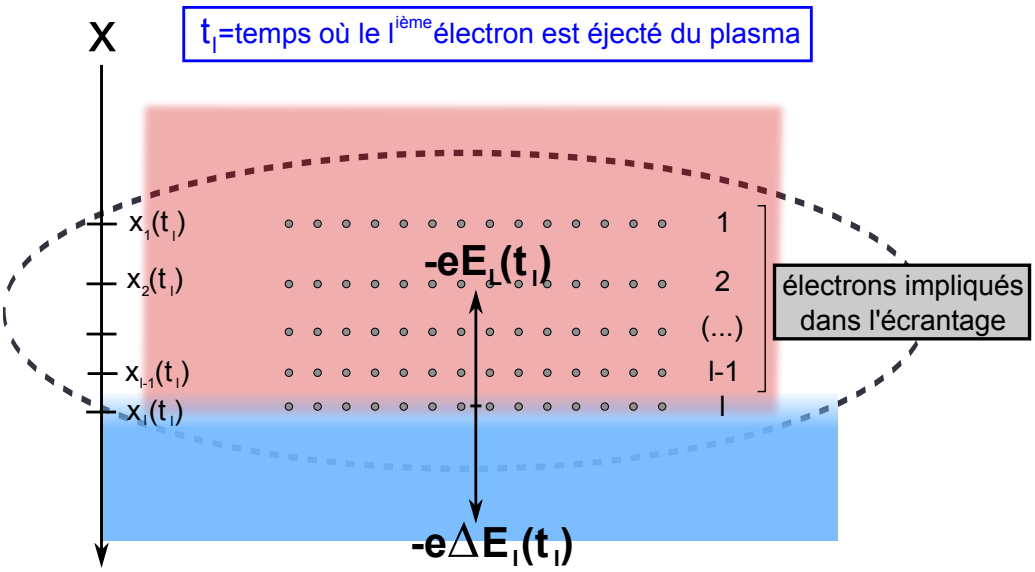

FIGURE 2.7 – *Schéma de l'écrantage du champ laser par les électrons de Brunel.* Les couches électroniques sont numérotées de 1 à l en fonction de leur temps de sortie du plasma sous l'effet du champ laser, et leur position est notée $x_i(t)$. Le $l_{ième}$ électron situé à la surface du plasma (en $x_l(t = t_l)$) voit un champ nul, le champ laser $E_l(t_l)$ étant complètement écranté par le champ électrostatique $\Delta E_l(t_l) = -E_l(t_l)$ créé par les électrons précédemment arrachés

électrons précédemment arrachés (voir Fig. 2.7) :

$$E(x_l, t) = E_L(t) + \Delta E_l(t)\,, \tag{2.22}$$

où le théorème de Gauss donne :

$$\Delta E_l(t) = -e\epsilon_0 \int_{x_1(t)}^{x_l(t)} n_e dx\,, \tag{2.23}$$

avec n_e la densité électronique.

Une des hypothèses du modèle de Brunel est que les trajectoires des électrons accélérés vers le vide ne se croisent pas : ainsi, le champ électrostatique $\Delta E_l(t)$ vu par l'électron l, proportionnel à la quantité d'électrons arrachés avant lui (voir Equation 2.23), est constant. Il est donc égal à sa valeur lors de l'éjection de l'électron l, i.e. à $t = t_l$, et donc, à cause de la condition de nullité du champ dans le plasma, égal à l'opposé du champ laser au temps t_l de son éjection du plasma :

$$\Delta E_l(t) = \Delta E_l(t_l) = -E_L(t_l) \tag{2.24}$$

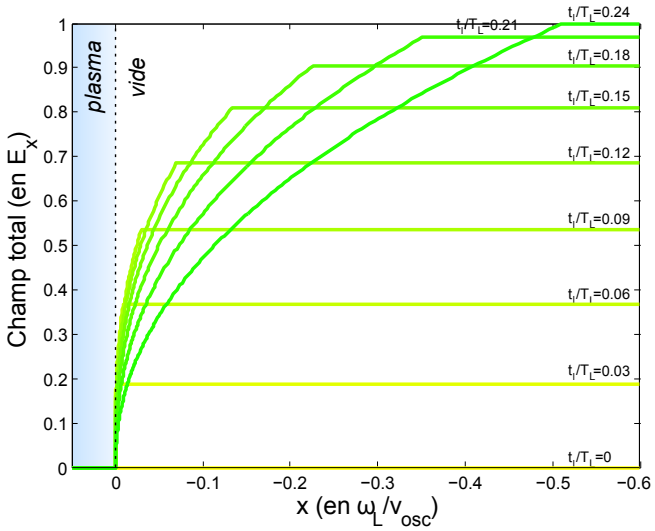

FIGURE 2.8 – *Evolution temporelle du champ électrique total dans le vide.* Les nuances de vert montrent le champ électrique total que voient les électrons à différents temps répartis sur un quart de période optique. Le champ laser est toujours écranté à la surface du plasma (x=0)

Le champ total vu par l'électron l au temps t s'écrit donc :

$$E(x_l, t) = E_L(t) - E_L(t_l) = E_x(\sin \omega_L t - \sin \omega_L t_l) \tag{2.25}$$

La Figure 2.8 présente le champ électrique totale $E(x)$ pour différentes valeurs de t comprises entre $t = 0$ et $t = T_L/4$.

En intégrant l'équation du mouvement $dv_l/dt = -eE(x_l, t)/m_e$, on obtient la vitesse et la position de l'électron l à tout instant de son excursion dans le vide.

$$\begin{cases} v_l(t) = v_{osc}\Big((\cos \omega_L t - \cos \omega_L t_l) + \omega_L (t - t_l) \sin \omega_L t_l\Big) \\ x_l(t) = \dfrac{v_{osc}}{\omega_L}\Big((\sin \omega_L t - \sin \omega_L t_l) - \omega_L (t - t_l) \cos \omega_L t_l + \dfrac{\omega_L^2}{2}(t - t_l)^2 \sin \omega_L t_l\Big) \end{cases} \tag{2.26}$$

où $v_{osc} = eE_z/m_e\omega_L$ est la vitesse maximum acquise par un électron dans le vide soumis à un champ uniforme d'amplitude maximum E_x oscillant à la pulsation ω_L.

Les positions et vitesses normalisées $x_l^{norm}(t) = v_l(t)/v_{osc}$ et $v_l^{norm}(t) = x_l(t)\,\omega_L/v_{osc}$ sont tracées en Fig. 2.9 pour différent temps t_l d'éjection du plasma. On voit que sous l'effet conjugué du champ laser et du champ d'écrantage (Fig. 2.9(a)), les électrons éjectés un peu plus tard ($t_l/T_L \geq 0.053$, en orange-jaune) retombent rapidement dans le plasma, en moins d'un cycle laser, alors que les premiers retombent beaucoup plus tard ($t_l/T_L \leq 0.053$, en rouge) ou oscillent même dans le vide (($t_l/T_L = 0$). Plus précisément, plus un électron est éjecté tard dans le vide,

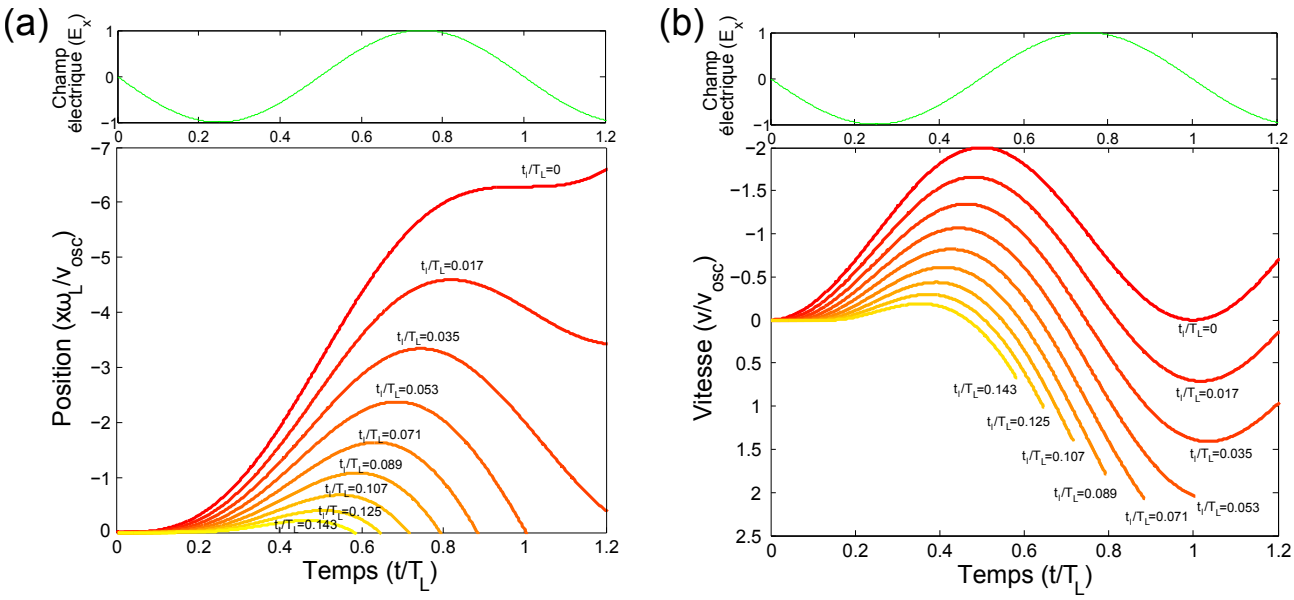

FIGURE 2.9 – *Positions et vitesses des électrons de Brunel dans le vide sous l'effet du champ électrique.* Le champ électrique (en haut) a une amplitude $a_0 = 0.4$. Les couleurs des courbes (du rouge au jaune) correspondent aux temps d'arrachage t/T_L (du plus précoce au plus tardif). Les courbes de position (a) montrent que les électrons arrachés les plus tard reviennent en premier, et les courbes de vitesse (b) suggèrent que les vitesses de retour dans le plasma présentent un maximum ($t/T_L = 0.071$ dans ce cas).

plus il retombera tôt dans le plasma. Si l'on considère maintenant la norme de leurs vitesses respectives lorsqu'ils pénètrent le plasma (Fig. 2.9(b)), on voit que cette vitesse présente un maximum ($t_l/T_L \geq 0.071$), puis se réduit pour les électrons éjectés plus tard du plasma.

La Figure 2.10 fait le lien entre l'instant où les électrons pénètrent le plasma et leur vitesse à cet instant. On voit que les électrons revenant « rapidement » dans le plasma (c'est-à-dire la partie de la courbe à gauche du maximum) présentent la particularité suivante : plus ils rentrent tôt dans le plasma, plus leur vitesse est faible. Ceci, ajouté au fait que l'effet du champ s'estompe dès lors que les électrons traversent la zone de densité critique du plasma, entraîne le croisement des trajectoires de ces électrons à l'intérieur du plasma.

Les croisements de trajectoires des électrons de Brunel dans le plasma

Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, le champ laser cesse de se propager dès que la densité électronique du plasma atteint la densité critique. Ainsi, lorsque les électrons de Brunel, dont la dynamique a été décrite précédemment, dépassent la zone de densité critique lors de leur retour dans le plasma, ils s'échappent de l'influence du champ et conservent leur vitesse de propagation. Comme les électrons rentrant les premiers dans le plasma vont moins

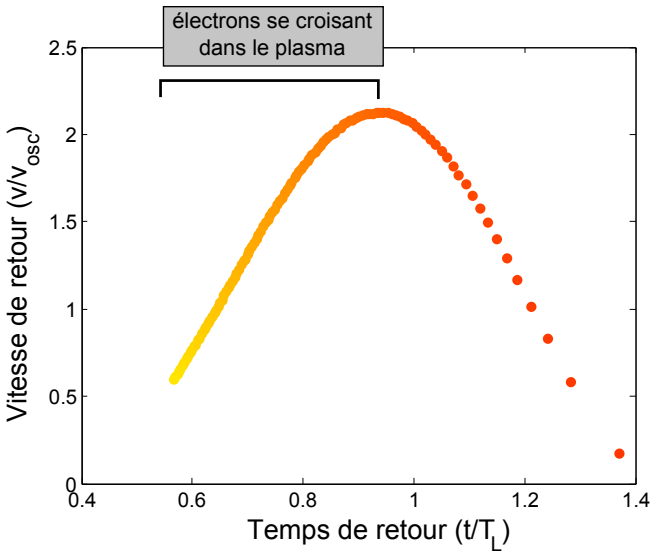

FIGURE 2.10 – *Vitesse de retour des électrons en fonction de leur temps de retour.* La courbe présente une forme en cloche : pour $t < 0.95$, plus les électrons reviennent tard dans le plasma, plus leur vitesse est élevée : une fois passée la densité critique, leur vitesse est constante, ce qui signifie que leurs trajectoires vont se croiser dans le plasma. Pour $t/T_l > 0.95$, les croisements n'ont pas lieu.

vite que ceux qui reviennent plus tard, leurs trajectoires se croisent dans le gradient de densité. La dynamique complète de ces électrons est présentée dans la Fig. 2.11.

Pour identifier les électrons impliqués dans ce croisement de trajectoire, on peut tracer les temps d'arrivée des électrons de Brunel en un point du plasma : c'est l'objet de la Fig. 2.12. En (a) sont tracés les temps d'arrivée des électrons en fonction de leurs temps d'éjection du plasma (représentés en dégradé du rouge vers le jaune) pour trois points du plasma, $x = 0.4$, 0.6 et 0.8 (en unité ω_L/v_{osc}, voir Fig. 2.11). Chacune des courbes présentent une zone « plate » (encadrée en pointillé), ce qui indique qu'au temps correspondant, un grand nombre d'électrons se croise au sein de la zone x du plasma. En (b) est représenté le profil temporel de la densité électronique traversant les trois zones $x = 0.4$, 0.6 et 0.8 du plasma, obtenu en intégrant les courbes de la Fig. 2.12 (a) sur les temps d'arrivée des électrons dans la zone du plasma considérée. Ces profils montrent que la propagation des électrons de Brunel au sein du plasma surdense se fait sous la forme d'un pic de densité qui progresse le long de la trajectoire qu'on peut définir comme la caustique des trajectoires individuelles des électrons (qui sont des droites dans l'espace x-t). Cette trajectoire est surlignée en pointillé bleu sur la Figure 2.11.

Il est intéressant de noter que :

1. les électrons qui forment le pic de densité à un instant t sont des électrons « voisins », dans le sens où ils ont été éjectés du plasma consécutivement, ce que montre clairement

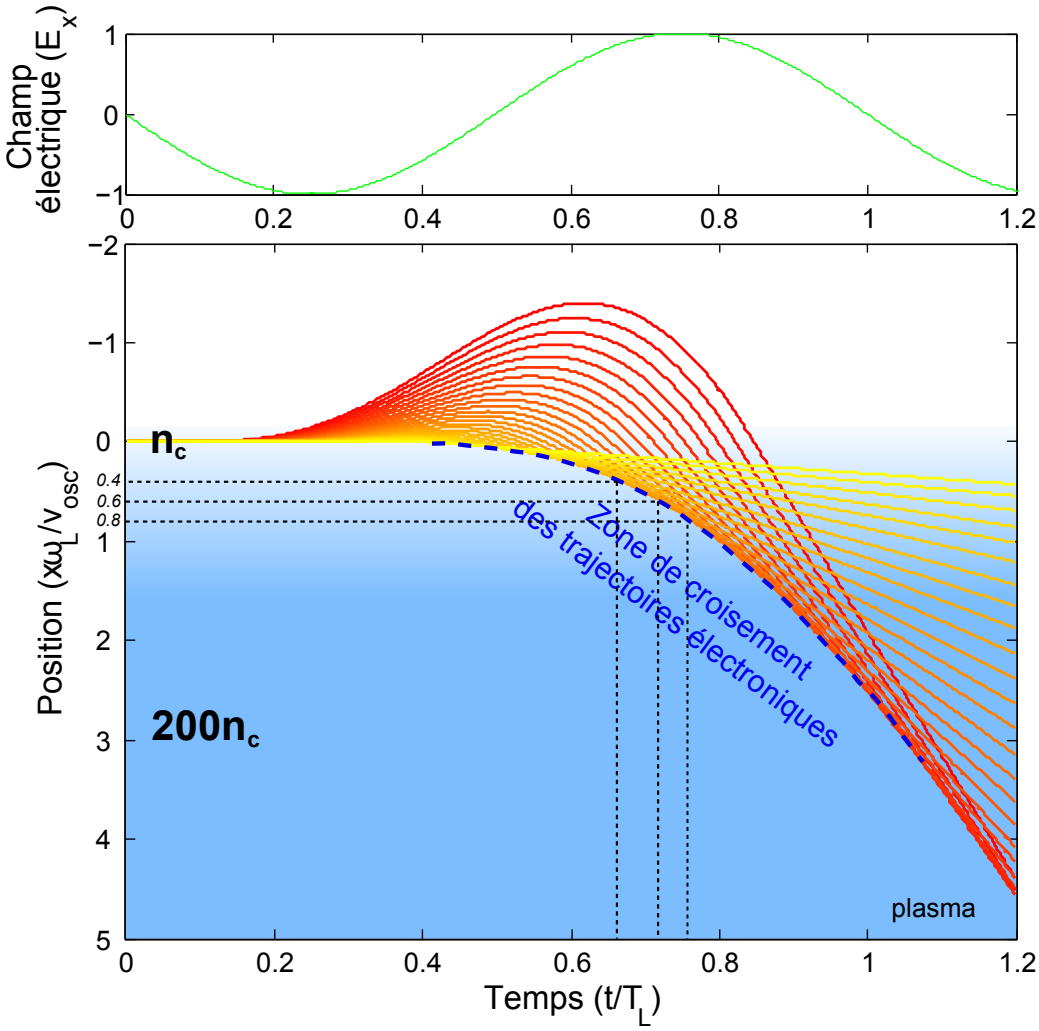

FIGURE 2.11 – *Trajectoires des électrons dans le gradient de densité.* Les courbes présentent les trajectoires d'un groupe d'électrons émis entre $t/T_L = 0.15$ (rouge) et $t/T_L = 0.2$ (jaune). Dans le vide ($x < 0$), les trajectoires sont dictées par le champ électrique, alors que dans la partie surdense du plasma ($x > 0$), la vitesse des électrons est supposée constante. La caustique de ces trajectoires, représentée en pointillé bleu, correspond à une zone de croisement massif des électrons de Brunel (voir Figure 2.12)

la Figure 2.12 (a),

2. ce ne sont pas les mêmes électrons qui constituent le pic de densité tout au long de sa propagation. A l'entrée du plasma ($x = 0.4$), ce sont les électrons éjectés « tard » qui forment le pic, alors que plus profondément dans le plasma ($x = 0.8$), ce sont les électrons qui ont été arrachés plus tôt par le champ.
3. si la vitesse des électrons dans le plasma surdense est constante, ce n'est pas le cas du pic de densité, qui a une accélération positive durant sa propagation (voir Fig. 2.12 (c))

Oscillations des ondes plasma dans le sillage du pic de densité électronique

Pour comprendre l'effet sur le plasma de ce pic de densité électronique lors de sa propagation dans la partie surdense du gradient, considérons le modèle suivant (proposé dans la thèse de Cédric Thaury). Prenons le cas d'un plasma homogène en une dimension selon l'axe x, de densité électronique au repos n_0, et considérons le pic de densité comme une fonction de Dirac composée de N électrons, se déplaçant à vitesse constante v_p dans le plasma. Cette hypothèse d'un pic de densité infiniment court est justifiée par la brièveté de ce pic de densité par rapport au temps typique $1/\omega_p$ de réaction du plasma. Si on écrit la densité électronique $n = n_0 + n_1$, la vitesse $v = v_0 + v_1$ et le champ électrique $E = E_0 + E_1$ en traitement perturbatif, la linéarisation de la première équation de Maxwell, de l'équation de conservation de la charge et de l'équation du mouvement donne :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot E_1 &= \frac{-e\left(n_1 + N\delta(x - v_p t)\right)}{\epsilon_0} \\ n_0 \nabla \cdot v_1 + \frac{\partial n_1}{\partial t} &= 0 \\ m\frac{\partial v_1}{\partial t} &= -eE_1 \end{aligned} \tag{2.27}$$

La géométrie du problème permet de passer les vecteurs en scalaire et de simplifier les opérateurs différentiels, et en posant $\xi = x - v_p t$:

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_1}{\partial \xi} &= \frac{-e\left(n_1 + N\delta(\xi)\right)}{\epsilon_0} \\ n_0\frac{\partial v_1}{\partial \xi} - v_p\frac{\partial n_1}{\partial \xi} &= 0 \\ -mv_p\frac{\partial v_1}{\partial \xi} &= -eE_1 \end{aligned} \tag{2.28}$$

En combinant ces trois équations, on obtient une équation du deuxième degré en n_1 :

$$\frac{\partial^2 n_1}{\partial \xi^2} + (\omega_p/v_p)^2\, n_1 = -(\omega_p/v_p)^2 N\delta(\xi) \tag{2.29}$$

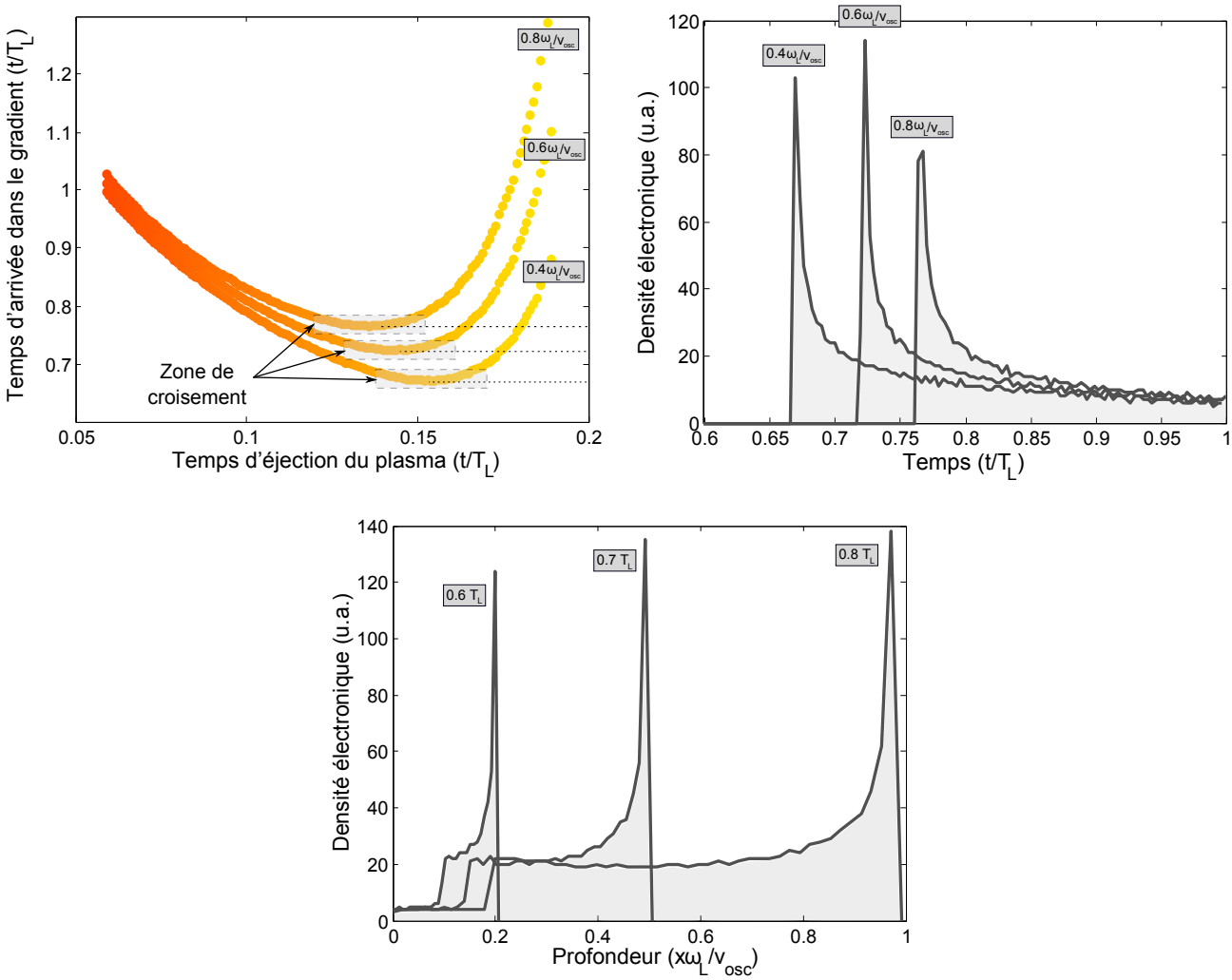

FIGURE 2.12 – *Propagation du pic de densité électronique dans le plasma surdense.* Les courbes de temps d'arrivée à trois profondeurs données ($x = 0.4$, $0.6\,et\,0.8\,\omega_L/v_{osc}$, voir Figure 2.11) en fonction du temps d'éjection du plasma (a) présente une dérivée nulle, ce qui correspond à une forte densité électronique. En intégrant ces courbes sur les temps d'éjection, on obtient les profils temporels de densité électronique aux trois profondeurs dans le plasma (b). Nous avons également tracé le profil spatial du pic électronique (c) à différents temps ($t = 0.6$, $0.7\,et\,0.8\,T_L$)

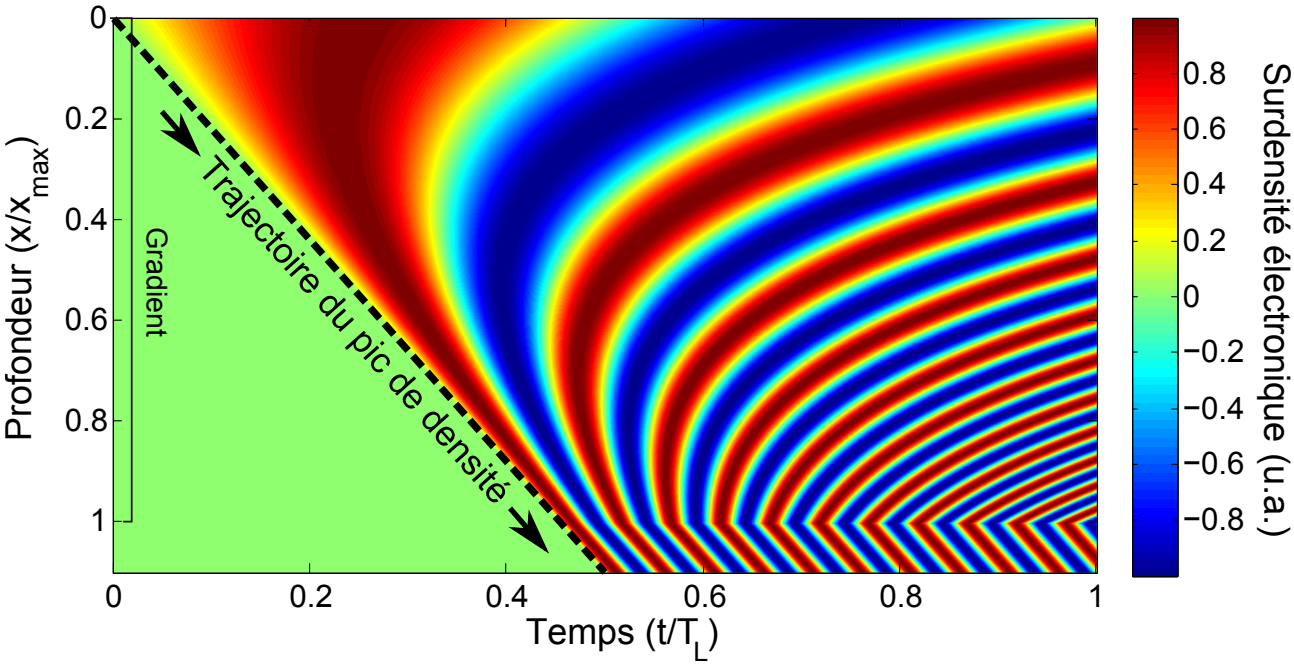

FIGURE 2.13 – *Carte (x,t) des oscillations de la densité électronique dans le gradient, au passage du pic de densité électronique.* Les zones les plus profondes du gradient oscillent plus vite que celles plus proches de la surface critique. Pour faciliter la lecture, la décroissance exponentielle de n_1 n'est pas prise en compte

avec w_p la pulsation plasma. La solution de cette équation, qui est celle d'un oscillateur harmonique soumis à une excitation impulsionnelle, est :

$$n_1 = \begin{cases} -N\dfrac{w_p}{v_p}\sin(\dfrac{w_p}{v_p}\xi) & \text{pour } \xi < 0 \\ 0 & \text{pour } \xi > 0 \end{cases} \tag{2.30}$$

On voit donc que dans le sillage du pic électronique, des ondes de densité sont générées, oscillant à la fréquence plasma w_p, avec une amplitude proportionnelle à la densité du pic. On est évidemment dans le cas simple d'un plasma homogène, mais le comportement dans un gradient de densité est similaire, à la différence près que les oscillations plasma générées s'amortissent dans le temps, d'autant plus rapidement que le gradient est raide.

Si on trace la carte de densité en (x, t) à l'aide de la formule 2.30, en prenant un profil de densité exponentiel suivi d'un plateau, on obtient :

Dans le sillage du pic électronique, dont la trajectoire est tracée en pointillé (voir Fig. 2.13), la densité plasma oscille à la fréquence plasma locale $\omega_p(x)$. Cette dépendance en x entraine la courbure de la phase des oscillations plasma dans l'espace (x, t), ce qui se révèlera être à l'origine de l'émission CWE. On note qu'au niveau du plateau de densité, la fréquence plasma

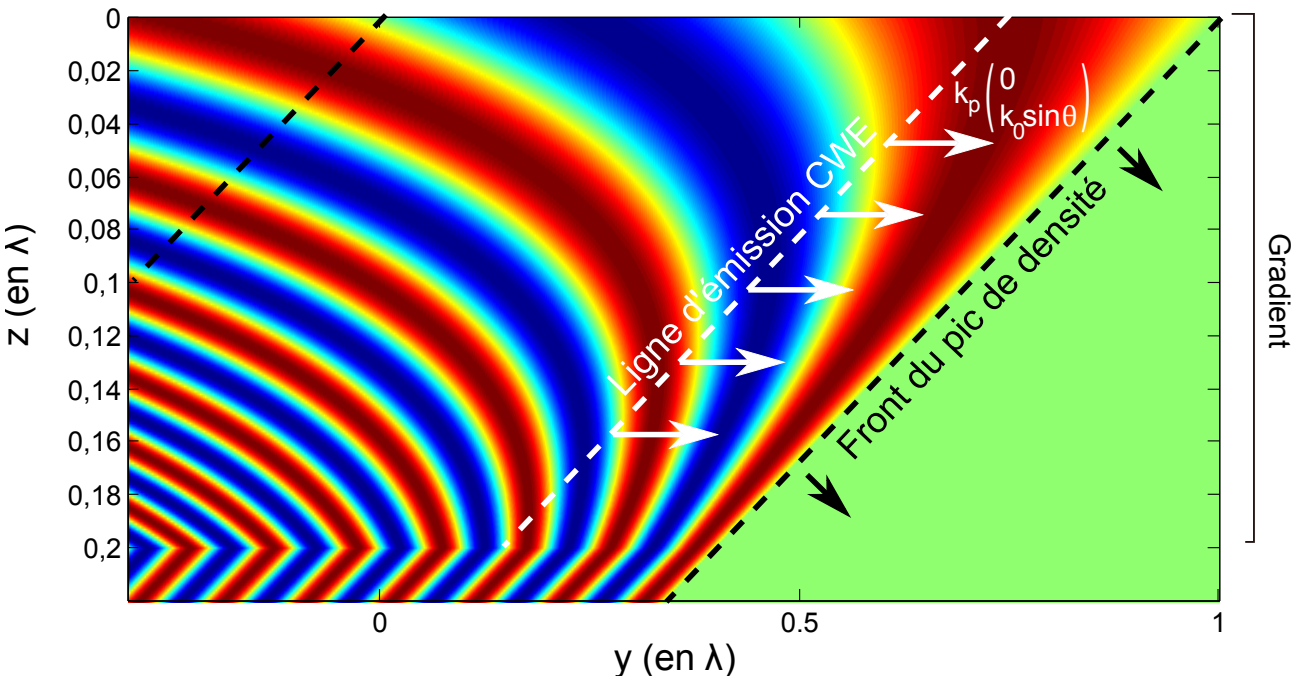

FIGURE 2.14 – *Carte (x,y) des oscillations de la densité électronique dans le gradient, au passage du pic de densité électronique.* La ligne pointillée blanche indique la zone d'émission CWE, où la composante selon x du vecteur d'onde de l'onde plasma s'annule.

$\omega_{p,max}$ est constante et les oscillations plasma générées ne se courbent pas.

Pour représenter ces oscillations du plasma en deux dimensions, dans le plan d'incidence du laser, on considère le champ électrique se propageant à la vitesse c en formant un angle θ avec la surface critique du plasma. On peut reprendre l'analyse précédente menée en une dimension, en notant que le front de phase du laser atteint le point $(y, 0)$ de la surface critique à $t = y \sin\theta/c$ par rapport au point $(0, 0)$, atteint à $t = 0$. La densité électronique dans le sillage du laser s'exprime alors :

$$n_1 = \begin{cases} N\dfrac{w_p}{v_p}\sin(w_p(t - x/v_p - y\sin\theta/c) & \text{pour } y < c/\sin\theta(t - x/v_p) \\ 0 & \text{pour } y > c/\sin\theta(t - x/v_p) \end{cases} \tag{2.31}$$

Couplage onde plasma / onde électromagnétique

Le mécanisme de conversion de ces ondes plasma en ondes électromagnétiques qui constituent l'émission CWE peut être présenté sous plusieurs angles. Nous en choisirons un ici, parce qu'il permet de comprendre intuitivement en quoi la géométrie de ces oscillations plasma sont susceptibles d'émettre du rayonnement.

Il s'agit ici de voir l'émission CWE comme une manifestation macroscopique de l'émission à l'échelle submicroscopique des électrons du plasma, qui agissent comme des oscillateurs harmoniques sous l'effet de la perturbation. Comme nous l'avons montré précédemment, la nappe de charges générée par les croisements dans le plasma des électrons de Brunel (en pointillé sur la figure 2.14), engendre une oscillation des électrons du plasma dont une composante se situe dans la direction du gradient de densité. Le plasma perd alors sa neutralité de charge, et se met à osciller à la fréquence locale $\omega_p(x)$, dans le sillage de la perturbation. Ces charges qui oscillent à $\omega_p(x)$ autour de leur position d'origine, émettent naturellement une onde électromagnétique de fréquence $\omega_p(x)$ dans toutes les directions, avec une phase directement liée à celle de l'oscillation. Le phénomène est identique à celui d'une onde électromagnétique se propageant dans un milieu, à la différence que l'onde ici est électrostatique et que les molécules ou les atomes du milieu sont remplacés par les électrons libres du plasma oscillant à cause des inhomogénéités de charge.

Pour savoir si la somme de ces émissions à l'échelle submicrometrique, dont les propriétés sont dictées par l'onde plasma, peut donner naissance à une émission à l'échelle macroscopique, il faut considérer les propriétés de cohérence qu'ont ces émissions les unes avec les autres. En d'autres termes, il faut voir quelles sont les conditions sur ces émissions (en termes de fréquence d'émission et de vecteur d'onde) pour qu'il y ait « accord de phase » avec l'onde plasma. Cet accord de phase s'écrit, en terme de conservation de l'énergie et du moment, comme $\omega_{em} = \omega_{pl}$ et $k_{em} = k_{pl}$, où ω_{em} et k_{em} sont la pulsation et le vecteur d'onde de l'onde électromagnétique, et ω_{pl} et k_{pl} sont la pulsation locale et le vecteur d'onde local du plasma.

Nous avons vu qu'à partir du modèle en une dimension de génération d'ondes plasma dans le sillage du pic de densité électronique, on pouvait en tirer une carte instantanée du champ électrostatique $E_x(x, y, t)$ dans le gradient de densité (voir Fig 2.14), qui s'écrit $E_x(x, y, t) = Ne/\epsilon_0 \cos(\psi_0(x, y, t))$, avec $\psi_0(x, y, t) = \omega_p(x)(t - x/v_p - y \sin\theta/c)$, pour $t - x/v_p - y \sin\theta/c > 0$.

A partir de la carte de la phase du champ, on peut déterminer le vecteur d'onde k_p, tel que $k_p = -\nabla\psi_0(x, y, t)$, en rappelant le profil exponentiel du gradient de densité,

$$k_p = (k_x, k_y) = \left(\frac{\omega_p(x)}{2L}\Big(- (t - 2L/v_p) + x/v_p + y \sin(\theta)/c\Big), \omega_p(x) \sin(\theta)/c\right) \tag{2.32}$$

Reprenons ici le schéma de l'absorption résonnante (Freidberg *et al.*, 1972), qui se déroule lorsqu'une onde électromagnétique polarisée « p » arrive en incidence oblique avec un angle θ sur un gradient de densité (voir Partie ? ?). Le couplage entre l'onde électromagnétique et l'onde plasma se fait lors de la réflexion du laser au point de rebroussement, où $k_{em} = (k_x, k_y) = (0, k_0 \sin\theta)$. Or, c'est ici exactement le même phénomène que nous obser-

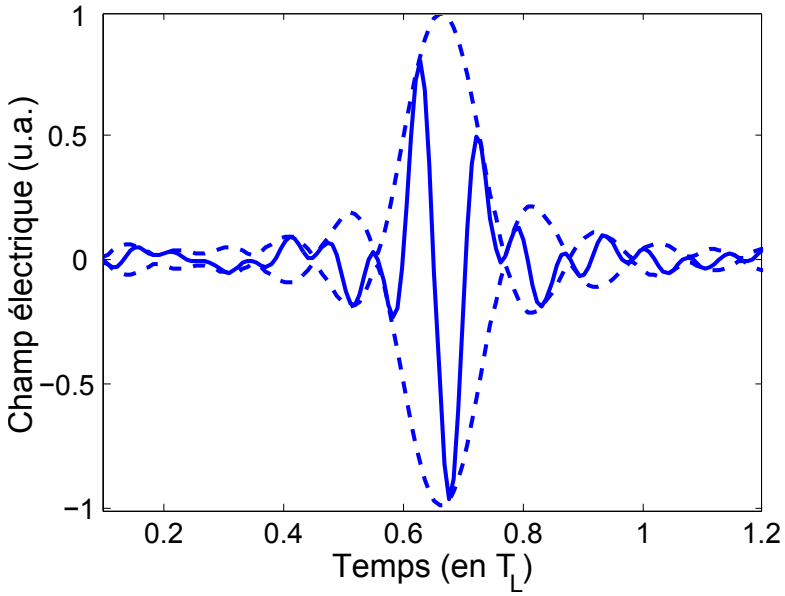

FIGURE 2.15 – *Impulsion attoseconde générée*

vons, avec cette fois un transfert énergétique de l'onde plasma vers l'onde électromagnétique. Il est raisonnable de penser que le couplage se fasse dans les mêmes conditions d'accord de phase : l'onde électromagnétique est émise avec une pulsation égale à la pulsation locale $\omega_p(x)$ et un vecteur d'onde parallèle à la surface de coordonnée $(0, \omega_p(x)\sin(\theta)/c)$. Ainsi, de la même manière qu'un faisceau réfléchi en incidence oblique par la surface critique, l'onde CWE émise en x va réfracter dans le gradient pour finalement atteindre le vide en formant un angle $-\theta$ avec la surface.

La condition de nullité de la composante selon x du vecteur d'onde plasma circoncit la zone de conversion à la ligne d'équation $x/v_p = -y\sin(\theta)/c + t - 2L/v_p)$, représentée sur la Figure 2.14.

Ce couplage onde plasma-onde électromagnétique avait déjà été observé dans un gradient de densité sous-dense, dont les oscillations plasma étaient créées par le laser se propageant dans le plasma (Sheng *et al.*, 2004; Sheng *et al.*, 2005). La conversion donnait lieu, dans ce cas, à une émission dans le domaine des Terahertz.

Génération d'une impulsion attoseconde

Nous avons donc vu comment la propagation du pic de densité électronique engendrait des oscillations plasma, et comment ces oscillations plasma pouvaient émettre du rayonnement dont la gamme spectrale se situe entre ω_L et $\omega_{p,max}$. Il s'agit maintenant de voir si la relation de phase entre les différentes composantes du spectre peut donner lieu à l'émission d'une impulsion de durée attoseconde. Pour illustrer cela, nous calculons la phase spectrale $\phi(\omega)$ à partir des temps

relatifs d'excitation des différentes couches du plasma par le front de densité électronique décrit précédemment. La Figure 2.15 est la représentation temporelle de l'émission calculée, pour un gradient de $\lambda/100$, une amplitude du champ $a_0 = 0.4$, une amplitude spectrale constante et en filtrant le spectre XUV entre $5 < \omega < 14$. On observe une impulsion chirpée positivement, de durée à mi-hauteur en intensité d'environ 300 as.

2.3 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les différentes étapes du mécanisme de génération d'harmoniques par le mécanisme d'émission cohérente de sillage :

- l'ionisation de la cible par le front montant de l'impulsion, qui conduit à la formation d'un plasma de densité supérieure à $10^{23}\, e^{-}.cm^{-3}$,
- l'expansion du plasma, originellement en marche d'escalier, qui prend une forme exponentiellement décroissante et s'allonge avant l'arrivée du pic principal,
- l'interaction avec l'impulsion, qui accélère une population d'électrons vers le vide avant de la projeter dans la partie dense du plasma, sous forme d'un pic de densité électronique,
- l'oscillation du plasma dans le sillage du pic électronique, et la conversion de ces ondes plasma en rayonnement XUV.

Nous avons également pointé du doigt l'existence d'un délai entre la mise en mouvement des électrons de Brunel par le champ électrique laser et l'émission du rayonnement XUV. Quéré *et al* ont démontré que ce délai dépendait fortement de l'amplitude du cycle optique générateur, entrainant ainsi une distorsion temporelle du train d'impulsions attosecondes et un élargissement des harmoniques (Quere *et al.*, 2008). Le Chapitre 3 se place dans le sillage de ce travail et étudie l'effet de différents paramètres de l'interaction sur la distorsion temporelle du train.

Chapitre 3

Moyens expérimentaux et numériques de caractérisation de l'émission

Agé de quelques années seulement, le groupe « Physique du Cycle Optique » a pour objectif scientifique d'étudier la physique de l'interaction d'un laser de quelques cycles optiques avec un plasma. La première étape a donc naturellement été de monter un système laser dit « few-cycle », disposant d'une énergie par impulsion suffisante pour générer un plasma lors de l'interaction avec la matière. Ce travail – qui continue encore aujourd'hui –, a été mené successivement par Alexandre Trisorio, Lorenzo Canova, Xiaowei Chen et Aurélien Ricci (Canova *et al.*, 2009; Chen *et al.*, 2009; Chen *et al.*, 2010). La seconde étape consistait à imaginer un dispositif expérimental d'interaction, avec les règles du jeu suivantes : l'interaction doit se faire sur miroir plasma (c'est-à-dire un plasma sur-dense) et doit se dérouler au kiloHertz. L'idée sous-jacente était de démontrer qu'il était possible d'étudier l'interaction d'un laser avec un miroir plasma avec des impulsions peu énergétiques (mJ) mais à très haute cadence (kHz), à la manière de ce qui se fait pour générer des harmoniques en milieu gazeux. Le cas échéant, il serait alors possible d'exploiter les derniers développements laser permettant de contrôler précisément la forme du champ électrique, en particulier sa phase absolue, paramètre crucial dès que l'enveloppe de l'impulsion devient de l'ordre de grandeur de la période optique.

Etant le premier thésard en charge de l'utilisation du système laser, j'ai été chargé de la conception complète du dispositif expérimental. Il s'agissait donc de démontrer la faisabilité expérimentale d'une expérience d'interaction laser-matière sur cible solide à très haut taux de répétition, dont l'objectif scientifique principal était l'étude de la génération d'harmoniques sur miroir plasma. Ce dispositif a aussi été utilisé pour réaliser des expériences d'accélération de protons et d'amélioration de contraste par effet miroir plasma (voir Annexes).

Ce chapitre décrit chronologiquement les différentes étapes de l'interaction. La première partie de ce chapitre concerne le système laser utilisé en expérience, en particulier la possibilité

d'utiliser soit des impulsions longues (sub-30 fs), soit des impulsions courtes (5 fs) stabilisées en phase absolue. La deuxième partie présente le dispositif expérimental mis en place pour l'interaction (propagation, mise en forme). La troisième partie décrit le travail effectué pour concevoir, tester et valider la cible d'interaction à très haute cadence (technologie que nous avons aujourd'hui breveté en Europe, aux Etats-Unis, au Japon et en Inde). La quatrième partie présente les moyens mis en place pour caractériser le rayonnement harmonique généré par l'interaction. Enfin, la dernière partie décrit le principe de fonctionnement du modèle semi-analytique basé sur les trajectoires des électrons de Brunel, qui nous servira à confronter les résultats expérimentaux.

3.1 Système laser

Cette partie a pour objet de présenter brièvement le système laser hébergé par la Salle Noire, que nous avons utilisé pour mener les expériences d'interaction laser-matière à haute intensité et haute cadence. Ce système présente la particularité de proposer deux modes de fonctionnement, présentés dans la Partie 3.1.2 :

- en impulsions longues : sub-30 fs, 1.5 mJ, 1 kHz
- en impulsions courtes : sub-5 fs, 1 mJ, 1 kHz, stabilisé en CEP

Ces deux modes de fonctionnement sont en fait deux extensions d'un même système laser (Canova, 2009), brièvement décrit dans la partie 3.1.1.

Cette accordabilité nous a permis de mener deux campagnes expérimentales de génération d'harmoniques sur miroir plasma : la première, en impulsions longues, a permis de déterminer la dépendance de la phase harmonique (ce qui est équivalent à la non-périodicité du train attoseconde) avec les paramètres de l'interaction que sont le champ électrique laser et le profil du gradient. La seconde nous a permis de démontrer pour la première fois, à l'instar de ce qui a été fait dans les milieux gazeux, le contrôle de la dynamique du plasma à l'échelle attoseconde, en exploitant la maitrise du champ que nous donnent la brièveté des impulsions laser à 5 fs et la stabilisation en phase du champ.

3.1.1 La source laser

La source laser est schématisée sur la Figure 3.1 (Canova *et al.*, 2009). Notre système laser se compose d'un front-end commercial CPA Ti :Sa (Moulton, 1986) cadencé au kHz et stabilisé en phase (Femtopower Compact Pro CE Phase), suivi d'un amplificateur Ti :Sa à trois passages. Les deux étages d'amplification successifs sont pompés respectivement par 11 et 25 W fournis par un seul laser de pompe Ni :YLF doublé en fréquence (DM 50 series, Photonics Industries).

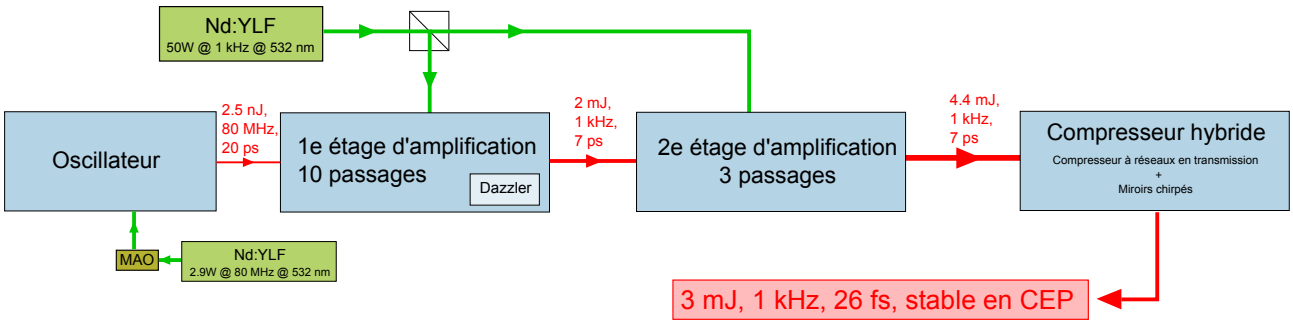

FIGURE 3.1 – *Schéma simplifié du système laser fournissant 3 mJ, 29 fs à 1 kHz.* L'impulsion laser venant de l'oscillateur (énergie au nJ) est étirée à environ 20 ps avant d'être élevé en énergie par deux étages d'amplification successifs, puis comprimé à 29 fs pour une énergie finale de 3 mJ.

L'oscillateur fournit un train d'impulsion à 80 MHz, avec quelques nJ d'energie et une très bonne stabilité en CEP (<50 mrad rms) (Telle *et al.*, 1999). Le train est ensuite étiré dans un bloc de SF57 à environ 20 ps, puis injecté dans le premier étage d'amplification. Après quatre passages et une énergie de l'ordre du μJ, le train est envoyé à travers un filtre acousto-optique (Dazzler, Fastlight (Verluise *et al.*, 2000)), utilisé à la fois pour contrer le rétrécissement par le gain et pour contrôler la phase spectrale de l'impulsion. Une cellule de Pockels sélectionne ensuite le train au kHz (tout en améliorant le contraste nanoseconde), et l'amplification se termine dans les six derniers passages du premier amplificateur jusqu'à une énergie maximum de 2 mJ.

La sortie du front-end est ensuite amplifiée à 4.4 mJ dans un booster de trois passages, en injectant 750 μJ prélevés par une deuxième cellule de Pockels. L'impulsion est ensuite comprimée par un compresseur hybride, composé de deux réseaux en transmission et d'un jeu de miroirs chirpés. L'impulsion est ainsi partiellement comprimée à 800 fs par le compresseur à réseau en transmission (afin de limiter les effets non-linéaires dans le bulk), puis la compression est achevée par 32 rebonds sur les miroirs chirpés. L'énergie de l'impulsion comprimée est de 3 mJ

3.1.2 Mise en forme spectrale et spatiale

La mise en forme spatiale et spectrale du faisceau laser, illustrée sur la Figure 3.2, se décompose en cinq étapes : filtrage spatial et élargissement spectral, compression temporelle, gestion de la polarisation et de l'intensité, stabilisation de la CEP et enfin mesure et optimisation du profil temporel.

– Le filtrage spatial et l'élargissement spectral s'effectuent en faisant propager le faisceau

dans une fibre creuse d'1 mètre de longueur et de 250 μm de diamètre. Le filtrage spatial est dû au blocage en entrée de fibre des fréquences spatiales hautes du laser ainsi qu'aux pertes infligées aux fréquences spatiales hautes lors de la propagation. Nous avons validé le filtrage spatial en mesurant le front d'onde laser en sortie de fibre, obtenant une planéité de $\lambda/17$ sur l'ensemble du profil spatial. Pour l'élargissement spectral, la première étape est d'imposer un vide primaire dans la fibre (le spectre est ainsi conservé), la seconde est de la remplir d'un gaz neutre (dans notre cas d'Helium) et d'élargir le spectre grâce à la réponse non-linéaire des atomes du gaz soumis au champ laser (Chen *et al.*, 2009; Chen *et al.*, 2010).

- La compression du spectre est réalisée par un ensemble de miroirs chirpés introduisant du chirp négatif (deux jeux de miroirs sont utilisés en fonction de la bande spectrale choisie). Il s'agit plus précisément de surcompenser le chirp introduit par la propagation du faisceau avant le jeu de miroirs chirpés, pour tenir compte de la dispersion qui sera introduite jusqu'à l'interaction avec la cible.
- La polarisation est choisie grâce à une lame demi-onde, puis nettoyée par un polariseur. Ce dispositif permettra également de faire varier l'intensité laser, en jouant sur l'angle de la lame demi-onde.
- Une fraction du faisceau est ensuite prélevée pour mesurer la CEP relative du laser à l'aide d'un interféromètre f-2f. La stabilisation est effectuée en réalisant une rétroaction sur le modulateur acousto-optique (MAO) du laser de pompe de l'oscillateur.
- Enfin, la mesure temporelle du faisceau est effectuée grâce à un WIZZLER (Moulet *et al.*, 2010) pour les impulsions de 30 fs ou un FROG (Kane & Trebino, 1993) home-made pour les impulsions de 5 fs. On optimise alors la compression à l'aide du DAZZLER (Verluise *et al.*, 2000) de la chaine (ainsi qu'avec un jeu de prismes montés « tête-bêche » pour les impulsions 5 fs)

Ainsi, selon la configuration choisie, nous avons à disposition un faisceau d'impulsions longues (1.5 mJ, 29 fs, 1 kHz) ou un faisceau d'impulsions courtes (1 mJ, 5 fs, 1 kHz, stabilisé en CEP). Les performances sont détaillées dans les deux parties suivantes.

La source sub-30 fs, 1.5-mJ, 1 kHz

La Figure 3.3 montre l'intensité spectrale ainsi que le profil et la phase temporels du laser en impulsion longue, c'est-à-dire sans gaz dans la fibre et avec le jeu de miroirs chirpés adaptés à la bande spectrale. L'optimisation de la phase est réalisée au WIZZLER. La mesure montre une impulsion de 29 fs à mi-hauteur en intensité.

Le contraste est mesuré par un autocorrélateur du troisième ordre grande dynamique,

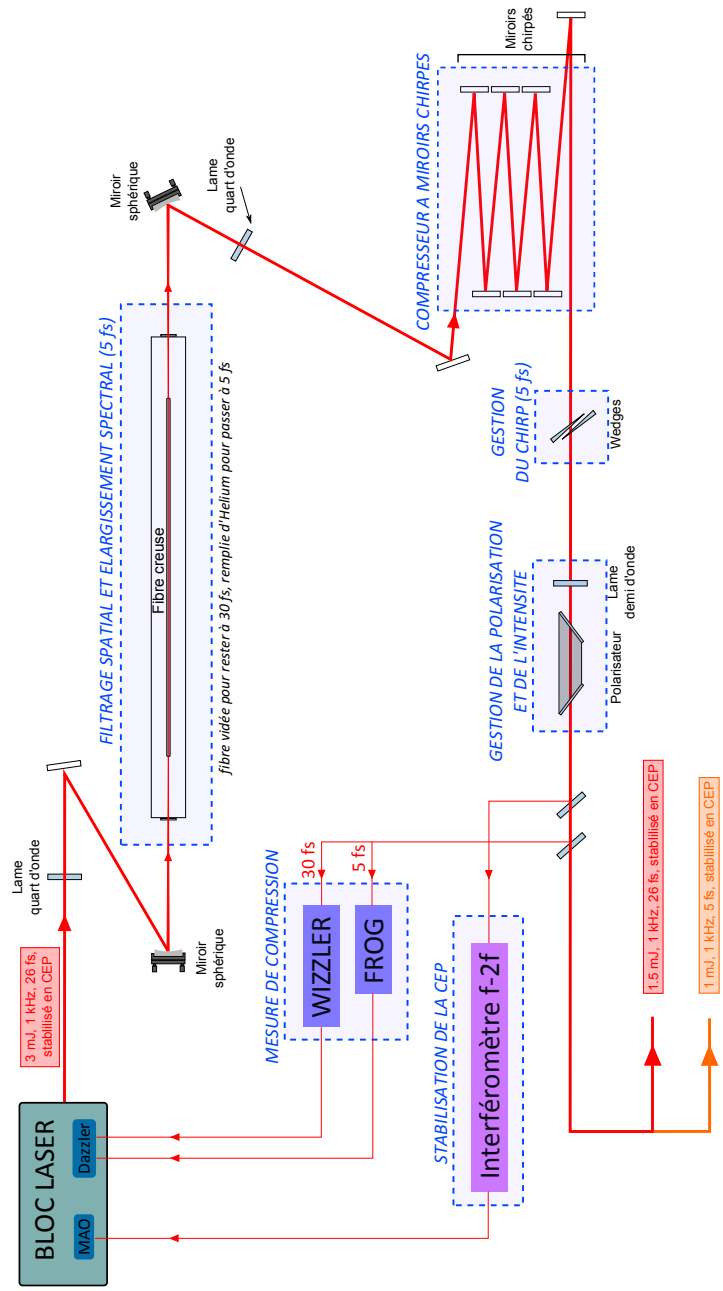

FIGURE 3.2 – *Schéma simplifié du dispositif de mise en forme spatiale et spectrale du faisceau laser.* L'impulsion laser venant du bloc laser subit d'abord un filtrage spatial et un élargissement spectral (pour obtenir une impulsion 5 fs) dans une fibre creuse. Puis la compression est effectuée par un ensemble de miroir chirpés adaptés à la bande spectrale. La polarisation est ensuite déterminée et nettoyée par une lame demi-onde suivie d'un polariseur. Une fraction du faisceau est alors prélevée pour mesurer (interféromètre f-2f) et stabiliser (MAO) la CEP. Enfin, on effectue la mesure (par WIZZLER à 30 fs et FROG à 5 fs) et l'optimisation (par Dazzler à 30 fs et par Dazzler et jeu de wedges à 5 fs)) de la compression temporelle.

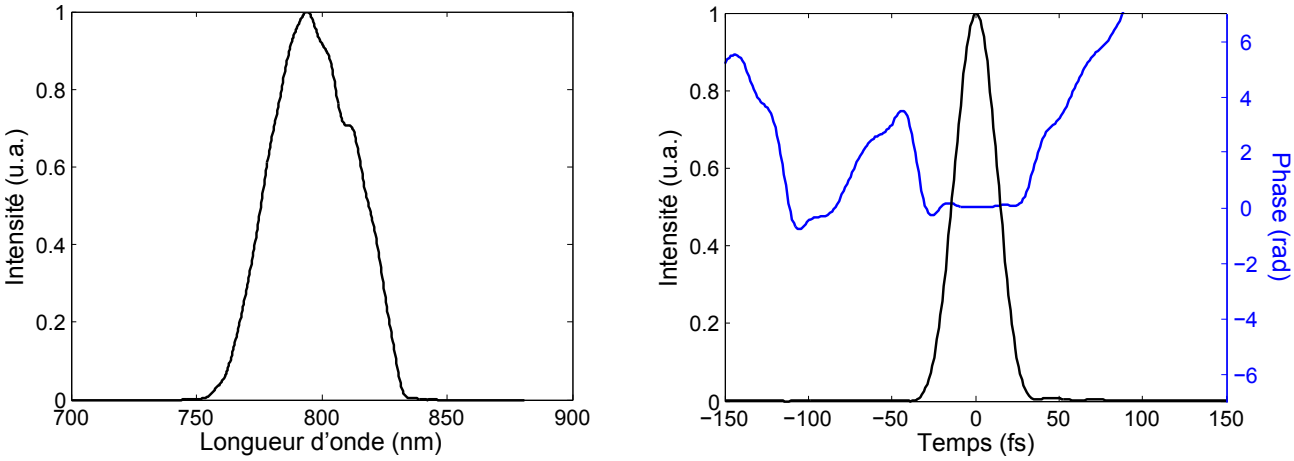

FIGURE 3.3 – *Caractérisation spectrale et temporelle.* (a) Spectre du laser après le premier amplificateur (pointillé), après le deuxième amplificateur (rouge) et après le compresseur hybride (vert) et (b) mesure WIZZLER de la durée de l'impulsion après compression hybride et optimisation de la phase avec le DAZZLER.

donnant un contraste de 10^7 : 1 jusqu'à 3 ps avant l'impulsion, ce qui est largement suffisant pour réaliser des expériences d'interaction sur cible solide à des intensités inférieures à $1 \times 10^{18}\, W.cm^{-2}$. De plus, la mesure a été effectuée avec un autocorrélateur dont la bande passante n'acceptait que des impulsions ayant un spectre inférieur à 20 nm à mi-hauteur, ce qui laisse penser que le pic d'intensité de la mesure de contraste est sous-estimé, probablement d'un facteur de l'ordre de 4. Le niveau de bruit de l'autocorélateur est mesuré à 10^{10}

La source sub-5 fs, mJ, 1 kHz stabilisée en CEP

La Figure 3.5 montre l'intensité spectral ainsi que le profil et la phase temporels du laser en impulsion courte, avec 1.5 bar d'Helium dans la fibre et avec le jeu de miroirs chirpés à bande ultra-large. L'optimisation de la compression est réalisée au FROG. Nous avons dans ces conditions une impulsion de durée inférieure à 5 fs à mi-hauteur. On peut noter ici que pour conserver une énergie suffisante pour réaliser les expériences d'interaction, notre groupe a proposé une méthode originale d'élargissement spectral en polarisation circulaire : à intensité égale, on augmente ainsi le seuil d'ionisation du gaz tout en réduisant les effet non-linéaires liés à l'intensité. Cette technique nous a permis d'atteindre des impulsions d'1 mJ (après mise en forme complète du faisceau) et de durée inférieure à 5 fs.

La CEP est quant à elle stabilisée de façon tout-à-fait satisfaisante (voir Figure 3.6(b)), avec une déviation standard de 230 mrad, sur plus d'une heure de fonctionnement, ce qui est absolument indispensable pour le bon déroulement des expériences d'interaction prévues.

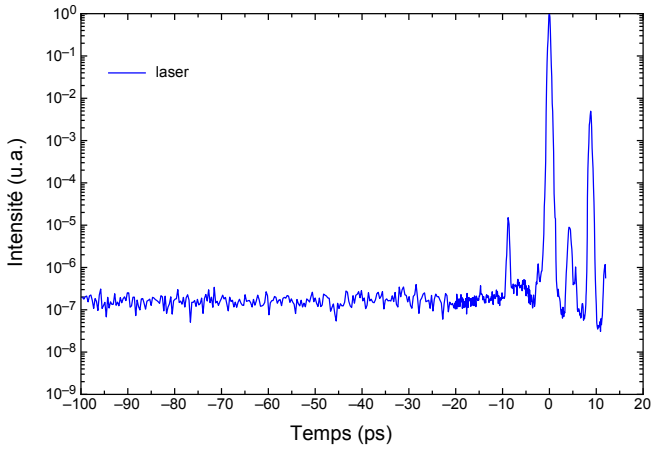

FIGURE 3.4 – *Mesure de corrélation grande dynamique de l'impulsion après la fibre (sans gaz) et les miroirs chirpés.* Le contraste est de l'ordre de 1×10^7 jusqu'à 3 ps avant le pic principal. La préimpulsion à environ -10 ps est une réplique de post-impulsion créée par le corrélateur. Le front avant de l'impulsion est situé vers les temps négatifs

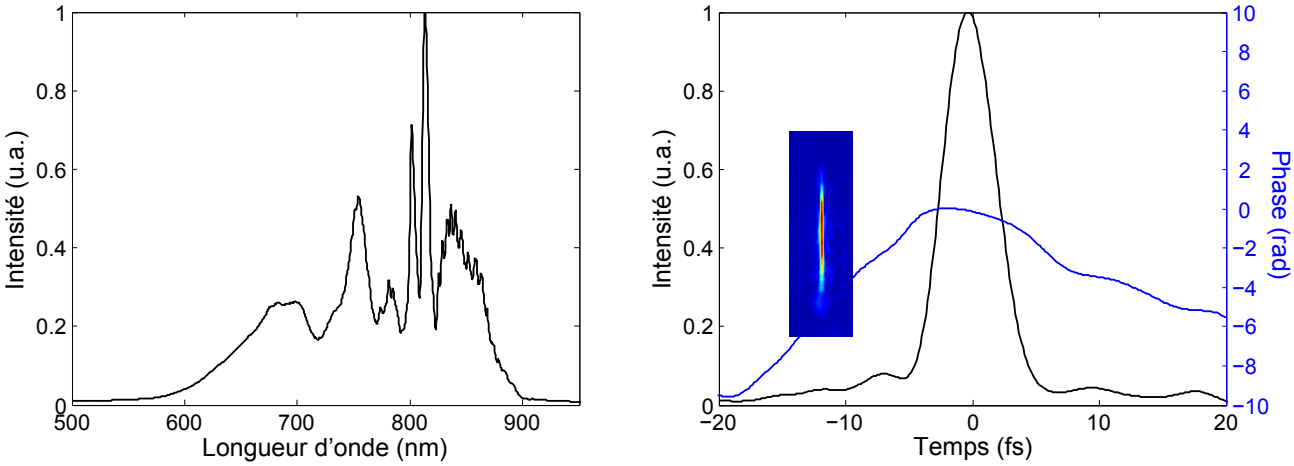

FIGURE 3.5 – *Caractérisation spectrale et temporelle.* (a) Spectre du laser en sortie de compresseur à fibre creuse, (b) mesure FROG de la durée de l'impulsion et de sa phase après compression par les miroirs chirpés et optimisation de la phase avec la paire de wedges.

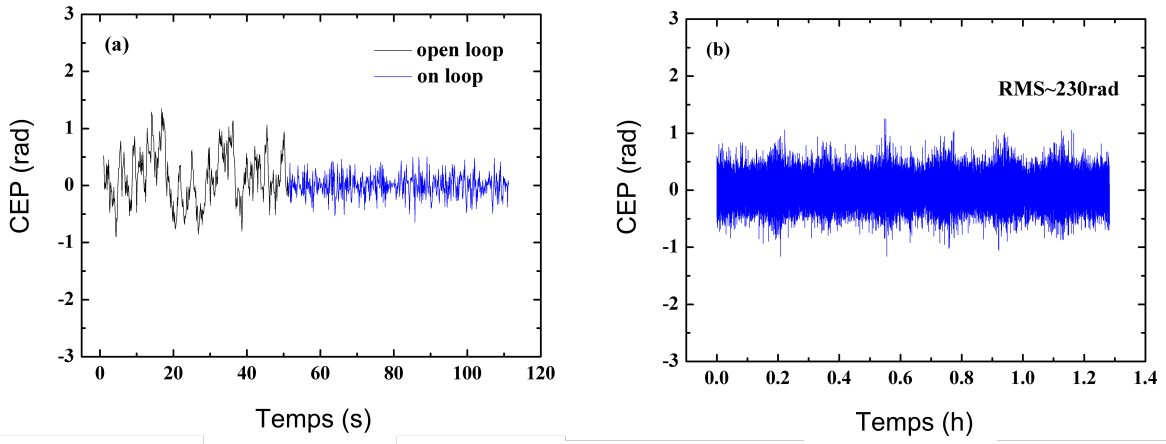

FIGURE 3.6 – *Mesure de la dérive de la CEP après le compresseur à prismes.* (a) Comparaison de la dérive de la CEP sans (noir) et avec (bleu) boucle lente de rétroaction sur une courte période, (b) Mesure de la CEP stabilisée sur une longue période (une heure et demi).

Une interrogation concerne le contraste de l'impulsion en présence de gaz dans la fibre, paramètre crucial de l'interaction laser-solide. En comparaison à celui mesuré sans gaz (voir Figure 3.4), et si le contraste semble un peu dégradé, cela reste suffisant pour mener des expériences d'interaction sur cible solide. La mesure est présentée sur la Figure 3.7. Cependant, cette mesure est à prendre avec précaution, car l'autocorrélateur que nous avons utilisé n'est pas adapté à une bande spectral aussi large que la notre : l'intensité pic de l'impulsion est donc fortement réduite par la coupure spectrale, et le contraste mesuré de quelques 10^7 est probablement sous-estimé.

En conclusion, l'élargissement spectral dans la fibre remplie d'Helium, suivie du compresseur hybride (miroir chirpés et prismes) nous permet de disposer d'une source laser de 1 mJ, 5 fs, avec un contraste de quelques 10^7, cadencée à 1 kHz et stabilisée en phase avec une fluctuation résiduelle de 230 mrad rms.

3.2 Dispositif expérimental de génération à très haute cadence

Dans la partie précédente, nous avons décrit les deux conditions laser -impulsions longues et impulsions courtes- que nous allons utiliser pour l'expérience d'interaction. Cette partie présente quant à elle le dispositif expérimental mis en place pour la génération et la détection d'harmoniques d'ordre élevé sur miroir plasma. Ce dispositif est schématisé sur la Figure 3.8.

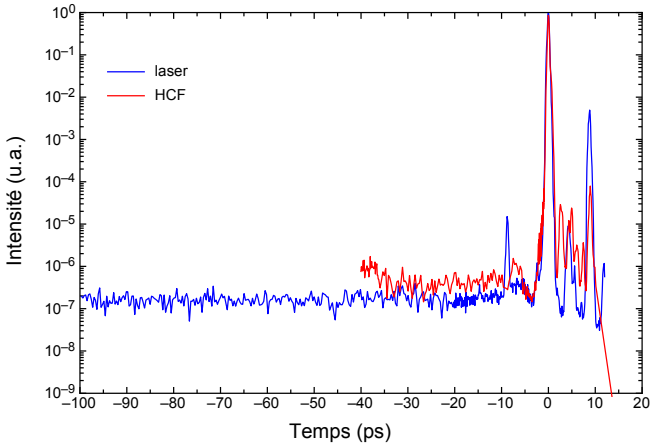

FIGURE 3.7 – *Mesure de corrélation grande dynamique de l'impulsion après la fibre (rouge).* Le contraste est légèrement dégradé par rapport à la mesure sans gaz. Le front avant de l'impulsion est situé vers les temps négatifs

Le faisceau, de polarisation p, est tout d'abord agrandi d'un facteur 1.5 par un télescope afocal composé de deux miroirs sphériques utilisés en incidence rasante. Ce télescope a été installé ici dans un but précis : optimiser la taille du faisceau lors de son passage dans la fenêtre d'entrée de la chambre d'interaction. En effet, le passage d'un faisceau trop petit à travers la fenêtre d'entrée détériore la phase et le spectre de l'impulsion par automodulation de phase, alors qu'un faisceau trop large nécessite une fenêtre plus large aussi, et par conséquent plus épaisse pour supporter la force de pression lors de la mise sous vide, ce qui augmente fortement la dispersion du faisceau et rend la compression temporelle sur cible de l'impulsion délicate à atteindre.

Une fois le faisceau dans la chambre d'interaction, son diamètre est une fois de plus augmenté, cette fois pour optimiser sa taille par rapport à la parabole hors axe de grande ouverture utilisée pour la focalisation. Le télescope, afocale de magnification 3.3, est ici composé de deux miroirs sphériques en configuration astigmatique, c'est-à-dire que les angles d'incidence du faisceau sont ajustés de telle sorte que l'astigmatisme engendré par le premier est compensé par le second.

Le faisceau est ensuite focalisé par une parabole hors-axe d'ouverture 1.7 (70 mm de longueur focale et 40 mm de diamètre utile), concentrant l'énergie laser sur une tache focale de 1,7 μm de diamètre (FWHM). Les profils spatiaux à 30 et 5 fs sont présentés sur la Figure 3.9. En tenant compte de la répartition spatiale de l'énergie laser au foyer, des imperfections de compression temporelle, des pertes sur les optiques, nous avons estimé l'intensité pic maximum à $1 \times 10^{18}\, W.cm^{-2}$ en impulsions longues et $1.3 \times 10^{18}\, W.cm^{-2}$ en impulsions courtes. De façon

à pouvoir explorer des régimes d'intensités plus faibles sans devoir sacrifier de l'énergie laser, nous avons la possibilité de court-circuiter le télescope intérieur, de façon à réduire d'un facteur 3.3 le diamètre du faisceau sur la parabole. Nous obtenons ainsi des taches focales 3.3 fois plus grosses, avec la même qualité de focalisation, qui nous permet d'explorer des régimes d'intensité dix fois inférieurs, tout en gardant une bonne quantité de signal. Ainsi, en régime de focalisation « faible », l'intensité pic maximum est estimée à $1 \times 10^{17}\, W.cm^{-2}$ en impulsions longues et $1.3 \times 10^{17}\, W.cm^{-2}$. En pratique, les intensités utilisées pendant les campagnes expérimentales (voir Chapitre 4 et 5) seront légèrement inférieures.

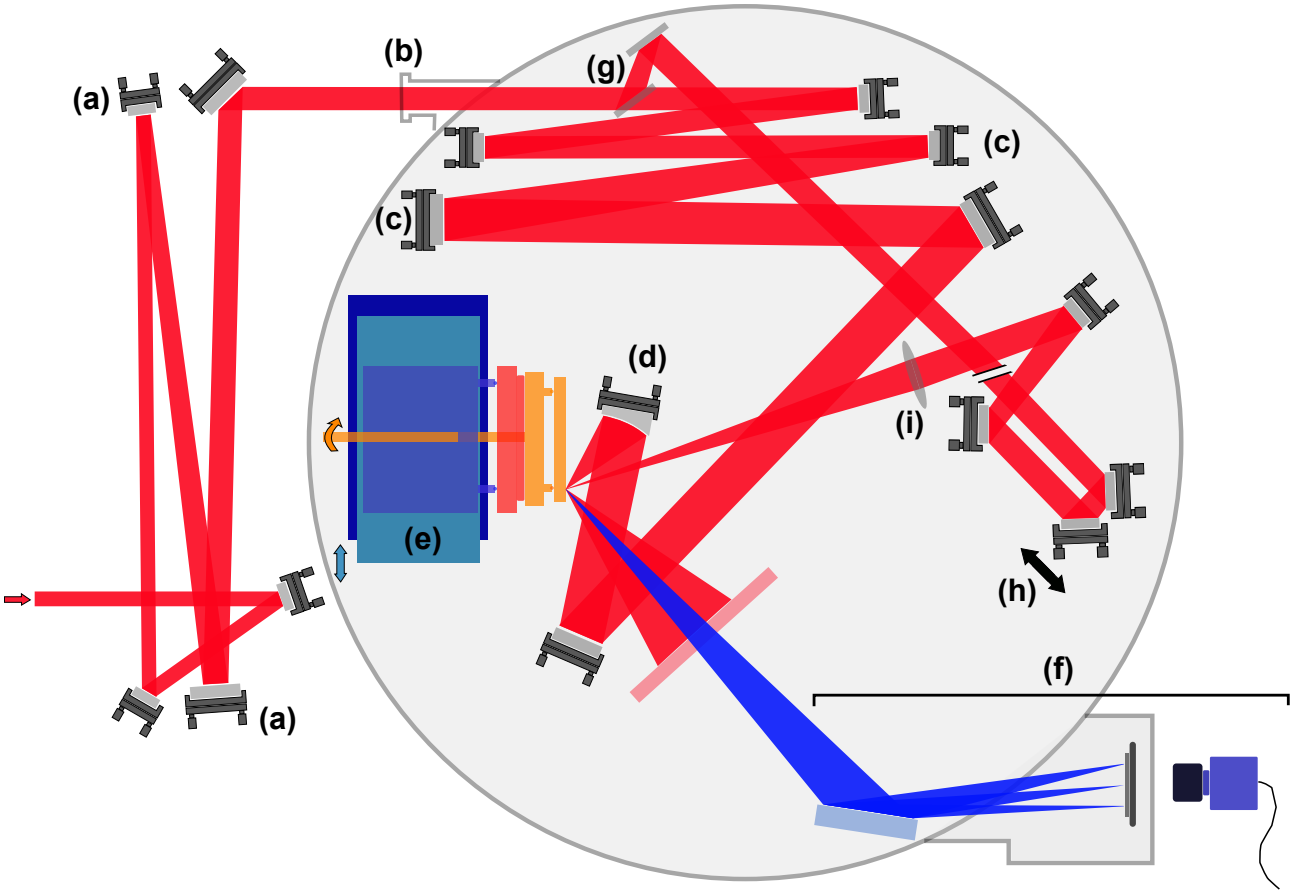

FIGURE 3.8 – *Schéma du dispositif expérimental.* Le faisceau est élargi d'un facteur 1.5 dans un premier télescope (a), puis entre dans l'enceinte d'interaction à travers une fenêtre d'1 mm d'épaisseur. Un deuxième télescope (c) élargit le faisceau d'un facteur 3.3, avant d'être focalisé par une parabole hors-axe d'ouverture 1.7 (d) sur la cible solide kHz (e). Le faisceau harmonique généré est ensuite analysé spectralement (f). Pour les expériences pompe-sonde, une partie du faisceau est prélevée avant le deuxième télescope par un séparateur de faisceau (g), puis envoyée sur une ligne à délai avant d'être focalisée par une lentille mince (i)

Nous avons également effectué des expériences pompe-sonde (voir Chapitre 4). Une partie

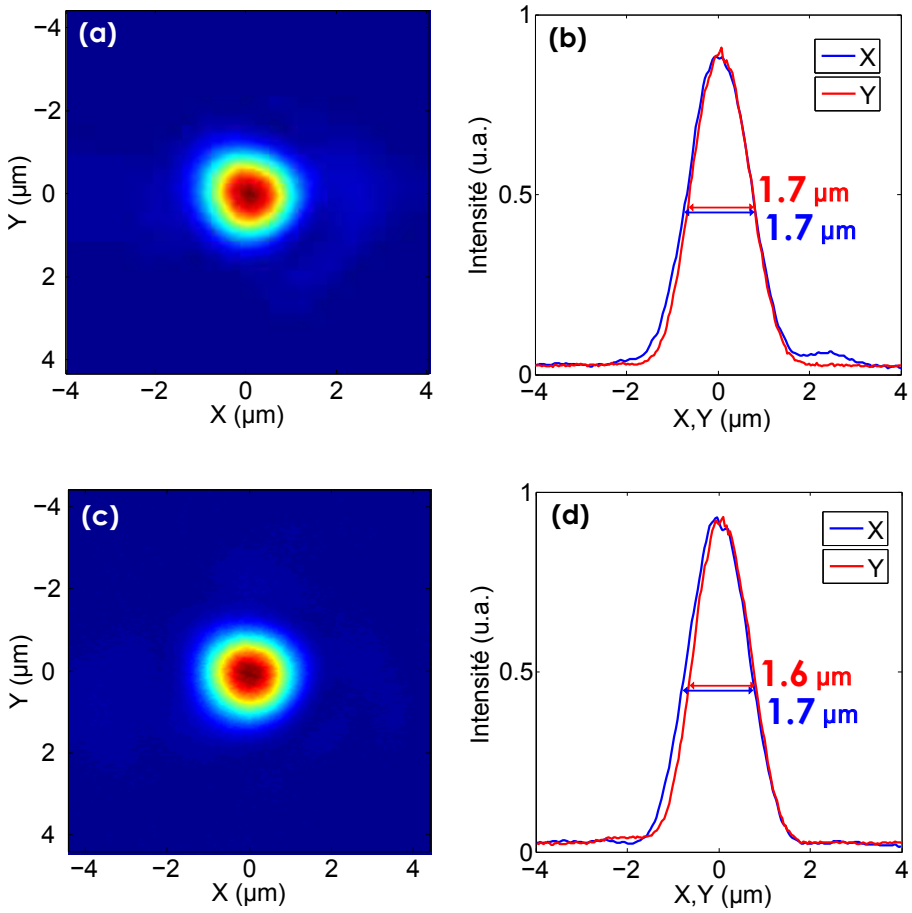

FIGURE 3.9 – *Mesure expérimentale des profils spatiaux laser au point de focalisation.* Répartition spatial de l'intensité pour le faisceau à 5 fs (a) et (b) et 30 fs (c) et (d), en focalisation forte. Les profils en focalisation « faible » non représentés, sont identiques mis à part la magnification du facteur 3.3

du faisceau est pour cela prélevée avant le deuxième télescope afocal par une lame séparatrice (voir Figure 3.8), puis envoyée dans une ligne à délai avant d'être focalisée, avec un angle de 20 degrés par rapport au faisceau principal, par une optique d'ouverture inférieure à celle de la parabole, afin d'obtenir une tache environ six fois plus grande que celle du faisceau principal. Une ligne à délai permet le réglage fin du retard temporel entre les deux impulsions. Deux intensités de pompe, 1×10^{15} et $1 \times 10^{16} W.cm^{-2}$, seront utilisées pour les expériences pompe-sonde présentées dans le Chapitre 4.

3.3 Le porte-cible kHz

Nous avons donc présenté le laser ainsi que le dispositif expérimental mis en place pour permettre la génération d'harmoniques sur miroir plasma à haute intensité et haute cadence. Cependant, le principal verrou technologique à la mise en place d'une telle expérience est le développement de la cible d'interaction.

Or, aujourd'hui, la plupart des expériences d'interaction laser-plasma à haute intensité ont été réalisées avec des systèmes laser de classe TeraWatt, à très bas taux de répétition (<1 Hz). Si ces travaux permettent l'identification des mécanismes physiques, ils ne permettent pas d'envisager la pleine utilisation de la source générée pour les applications, à l'instar de tout ce qui a été réalisé, grâce à la haute cadence, par exemple dans le domaine de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les milieux gazeux. Ce domaine a su développer les cibles adaptées à la haute cadence, et ainsi exploiter les caractéristiques uniques des lasers associés, qui fournissent en particulier un meilleur contrôle du champ électrique, une plus grande stabilité tir à tir, et surtout donne un accès immédiat à la statistique du phénomène étudié. Notre objectif est donc d'exporter cette approche vers l'interaction laser-matière à plus haute intensité, en particulier pour l'interaction laser-solide.

3.3.1 Conception du porte-cible haute cadence

La grande difficulté du développement d'une cible d'interaction laser-matière à haute cadence réside dans la nécessité (1) de renouveler la surface ou le volume d'interaction à chaque tir, et (2) d'assurer à chaque impulsion laser consécutive des conditions d'interaction identiques. Dans le cas d'une interaction laser-solide, il s'agit de présenter une surface d'interaction intacte à chaque tir, présentant les mêmes caractéristiques en terme de position par rapport au point focal du laser, ainsi qu'en terme d'orientation, c'est-à-dire d'angle entre la normale à la cible et la direction du laser. La condition sur la position est la plus contraignante. En effet, pour assurer une interaction répétable, il est indispensable que l'erreur résiduelle dans le positionnement de la cible reste bien inférieure à la longueur de Rayleigh du laser, qui est typiquement de quelques microns pour les plus fortes focalisations (8 microns dans notre cas).

Nous avons choisi un porte-cible en rotation et translation, sur lequel est monté un substrat circulaire (dont la surface, de qualité optique, est polie à $\lambda/20$) de 14 cm de diamètre (voir Figure 3.10). La cible est placée verticalement, au point focal du laser, avec un angle choisi en fonction des conditions expérimentales souhaitées. De façon à maximiser le nombre de tirs par surface de cible, la cible est mise en rotation pendant un tour complet, les impacts laser formant ainsi un cercle, puis est translatée de telle sorte que le second cercle d'impacts soit concentrique au premier. Ce motif est reproduit sur toute la surface de la cible, donnant un

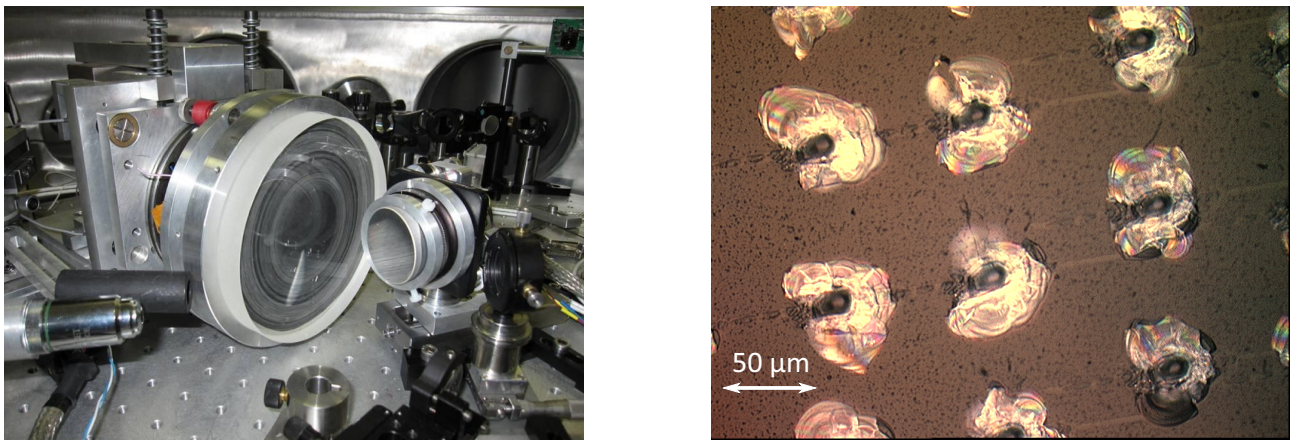

FIGURE 3.10 – *Porte-cible kHz et observation au microscope des impacts laser.* La distance entre les impacts est de 100 μm. On observe l'éclatement de la surface autour du point d'impact dû à la diffusion thermique après l'interaction.

nombre approximatif de tirs $N = \pi R^2/a^2$, où R est le rayon de la cible et a l'écart entre deux tirs consécutifs. Pour déterminer la distance entre les tirs, nous avons effectué des séries de tirs dans différentes conditions, et observé la taille du cratère créé par le plasma. Au vu de la plus grande surface détruite par le laser (voir Figure 3.10), nous avons choisi de laisser 100 μm entre chaque tir. Ainsi, dans nos conditions, l'utilisation de cette cible avec un système laser kHz d'énergie mJ, fournit plus de 1.5 millions de tirs par face.

Le choix d'une géométrie de cible circulaire en rotation/translation, plutôt qu'une cible rectangulaire translatée par exemple, se justifie par deux raisons : tout d'abord la géométrie choisie minimise l'encombrement généré dans l'enceinte, où la place est chère, lors du déplacement de la cible. Ensuite, cette configuration permet d'adopter un mouvement continu et d'éviter au maximum les phases d'accélération et de décélération, contrairement à une configuration en translation.

La Figure 3.11 schématise le mode de fonctionnement du porte cible kHz. Un axe met la cible en rotation, dont la normale à la surface est alignée à l'axe de rotation par deux pico actuateurs placés sur la partie en rotation de la cible (jaune). La rotation de cette partie est rendue possible par un roulement à bille (rouge), lequel est fixé en trait-point-plan sur un cadre fixe (violet) par trois piezomoteurs, qui permettent les alignements fins de la surface de la cible. Ce cadre est lui-même placé sur une platine de translation destinée à scanner latéralement la cible une fois qu'une rotation complète est effectuée.

Pour permettre la rotation de la cible par rapport au support, nous avons opté pour un roulement à bille axial cylindrique de haute précision (INA YRT50). Cette géométrie présente l'avantage de supporter des charges excentrées tout en limitant le mouvement résiduel angulaire à seulement une dizaine de μrad. Ce type de roulement remplit les conditions du cahier des

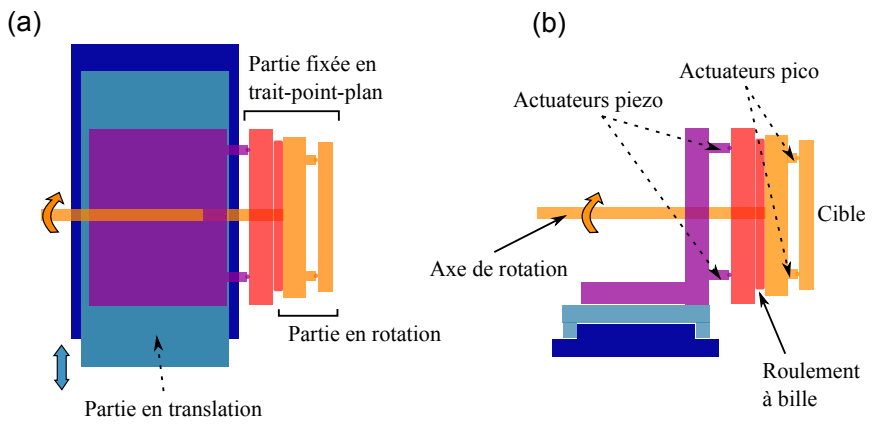

FIGURE 3.11 – *Schéma de fonctionnement du porte-cible.* (a) Vue de dessus, identifiant la partie en rotation (jaune), la partie fixée en trait-point-plan (rouge) et la partie en translation (violet). (b) Vue de coté.

charges : en effet, la cible sera nécessairement déportée par rapport au roulement, et nous souhaitons, après alignement, pouvoir maintenir le mouvement résiduel en profondeur en dessous de la longueur de Rayleigh à moins de quelques microns. Le prix à payer est le haut couple de friction à appliquer pour mettre le roulement en rotation : pour cela, notre choix s'est porté sur un moteur à haut couple et haute vitesse de rotation (Mitsubishi ? ?), que nous avons du placer à l'extérieur de l'enceinte pour la dissipation de la chaleur et la minimisation des vibrations. Pour autoriser la translation du porte cible, l'axe moteur et l'axe du roulement sont découplés par deux cardans successifs, et connectés par un système de fourreau permettant le glissement axial. Ce système permet donc un positionnement libre dans l'enceinte du porte-cible par rapport au moteur de rotation. Enfin, une platine de translation motorisée permet le scan radial de la cible. Les dessins CAO sont présentés sur la Figure 3.12.

La vitesse de rotation du porte-cible Ω est donnée par la distance entre impacts consécutifs a, le taux de répétition du laser f et la position radiale du point focal laser par rapport au centre de la cible R, par $\Omega = fa/R$. La translation de la cible est définie par la distance souhaitée entre les cercles concentriques.

3.3.2 Contrôle interférométrique de la position de la cible

Nous avons présenté plus haut la nécessité de contrôler la position de la surface d'interaction. Ce contrôle doit être effectué sans interférer ou perturber l'environnement expérimental. Nous avons donc opté pour une solution interférométrique, qui fournit une excellente résolution, se révèle peu invasive et fonctionne sous vide. Comme source, nous avons choisi d'utiliser un laser Helium-Néon (He-Ne) stabilisé en fréquence, pour deux raisons : tout d'abord, la stabilisation

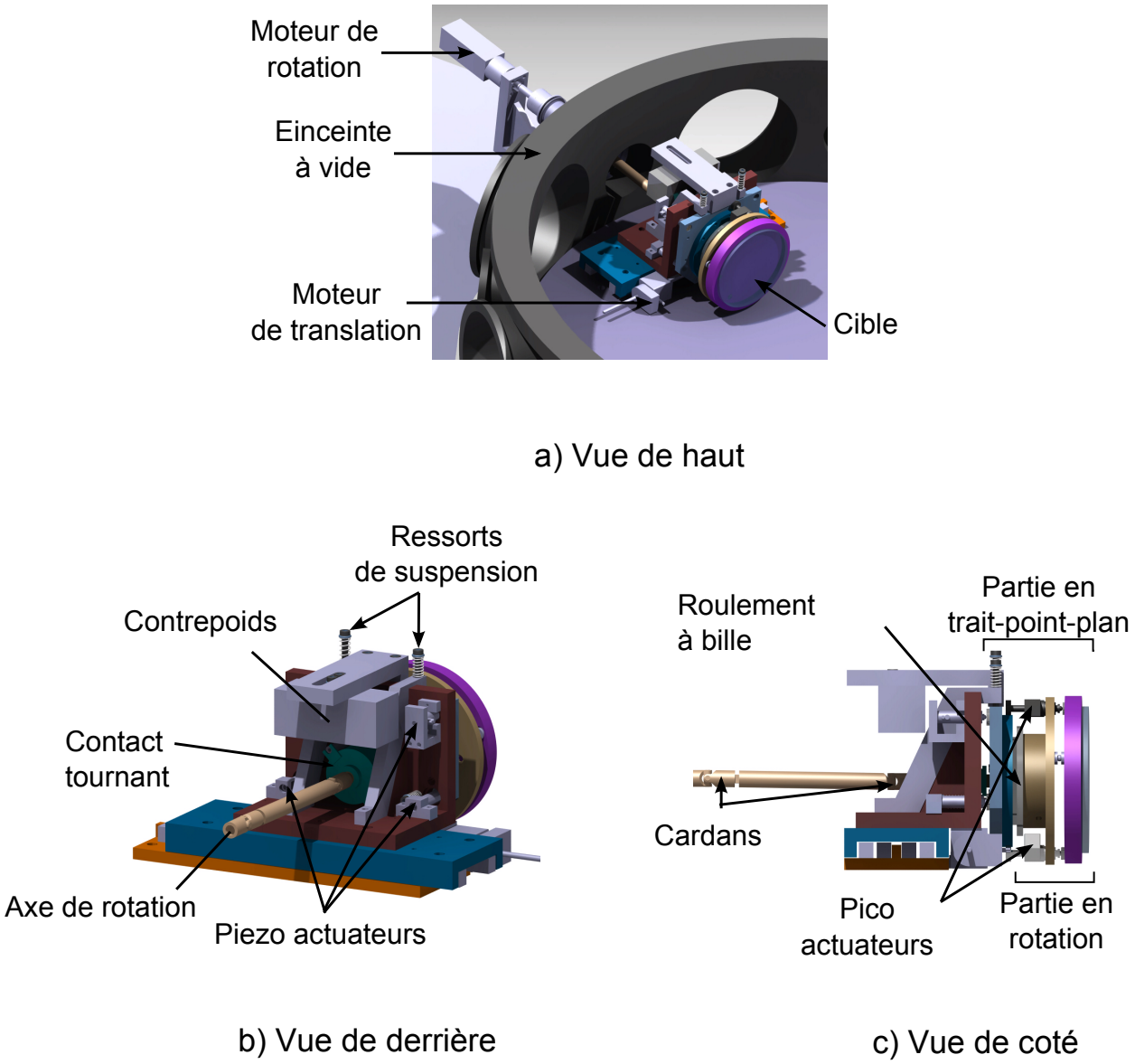

FIGURE 3.12 – *Dessins CAO du porte-cible.* (a) Vue de haut, (b) vue de derrière et (c) vue de coté.

active en fréquence, qui assure une dérive fréquentielle inférieure à 3 MHz sur plusieurs heures de fonctionnement, empêche les oscillations naturelles entres les modes laser (transversaux et longitudinaux), et améliore fortement la qualité et la stabilité des franges d'interaction. Ensuite, cela fournit une très grande longueur de cohérence spatiale (plusieurs centaines de mètre), ce qui permet d'avoir une flexibilité très grande dans la mise en place des différents bras de l'interféromètre. Le faisceau He-Ne est d'abord étendu jusqu'à un diamètre d'1 cm, puis introduit dans l'enceinte à vide et envoyé dans un interféromètre de type Mach-Zehnder, un bras se réfléchissant sur la cible, l'autre sur un miroir fixe (voir Figure 3.13). On adopte ici une polarisation s pour éviter la chute de la réflectivité lors de la réflexion du He-Ne sur la surface de la cible en silice. Le deux bras sont ensuite recombinés en introduisant un angle dans le plan horizontal, de façon à obtenir des franges verticales d'égales inclinaisons. Ces franges sont enregistrées par une caméra CCD. Le contraste de la figure d'interférence est optimisé en égalisant la brillance des deux bras avec des densités. Toutes les optiques utilisés dans l'interféromètre ont une qualité de surface supérieure à $\lambda/20$ pour $632\,nm$.

Lorsque la cible est mise en mouvement, le déplacement de la surface d'interaction, sur laquelle un des bras de l'interféromètre se réfléchit, introduit un changement de la figure d'interférence. Ce mouvement peut être décomposé : tout d'abord, un changement de la profondeur (déplacement horizontal de la cible) provoque une translation de la figure d'interférence (Figure 3.13(c)). Un changement d'orientation selon l'angle tangentiel (quand le vecteur normal à la cible bouge dans le plan vertical) introduit une rotation des franges d'interférences (Figure 3.13(d)). Enfin, un changement d'orientation selon l'angle azimutal (quand le vecteur normal à la cible bouge dans le plan horizontal) introduit une variation de l'écartement des franges d'interférences (Figure 3.13(e)).

Nous décrivons ici les grandes lignes du programme d'analyse de l'interférogramme obtenu. Il consiste bien-sûr à faire une analyse de Fourier du signal pour remonter à la phase spatiale de l'interférogramme, qui contient l'information de la profondeur et de l'orientation de la zone d'interaction de la cible.

L'interférogramme pouvant être bruité, en particulier par des interférences parasites ou un manque de contraste, la première étape consiste à déterminer un filtre fréquentiel à appliquer sur les figures d'interférences afin d'améliorer la précision de la mesure. Tout d'abord, nous prenons une image de référence de l'interférogramme (voir Figure 3.14(a)), de laquelle nous extrayons une coupe horizontale (Figure 3.14(b)). A partir de sa transformée de Fourier, on détermine ensuite la zone du spectre correspondant à la fréquence des franges, à partir de laquelle on construit un filtre gaussien, centré autour du maximum local (Figure 3.14(c)). Ce filtre sera appliqué sur toutes les mesures suivantes.

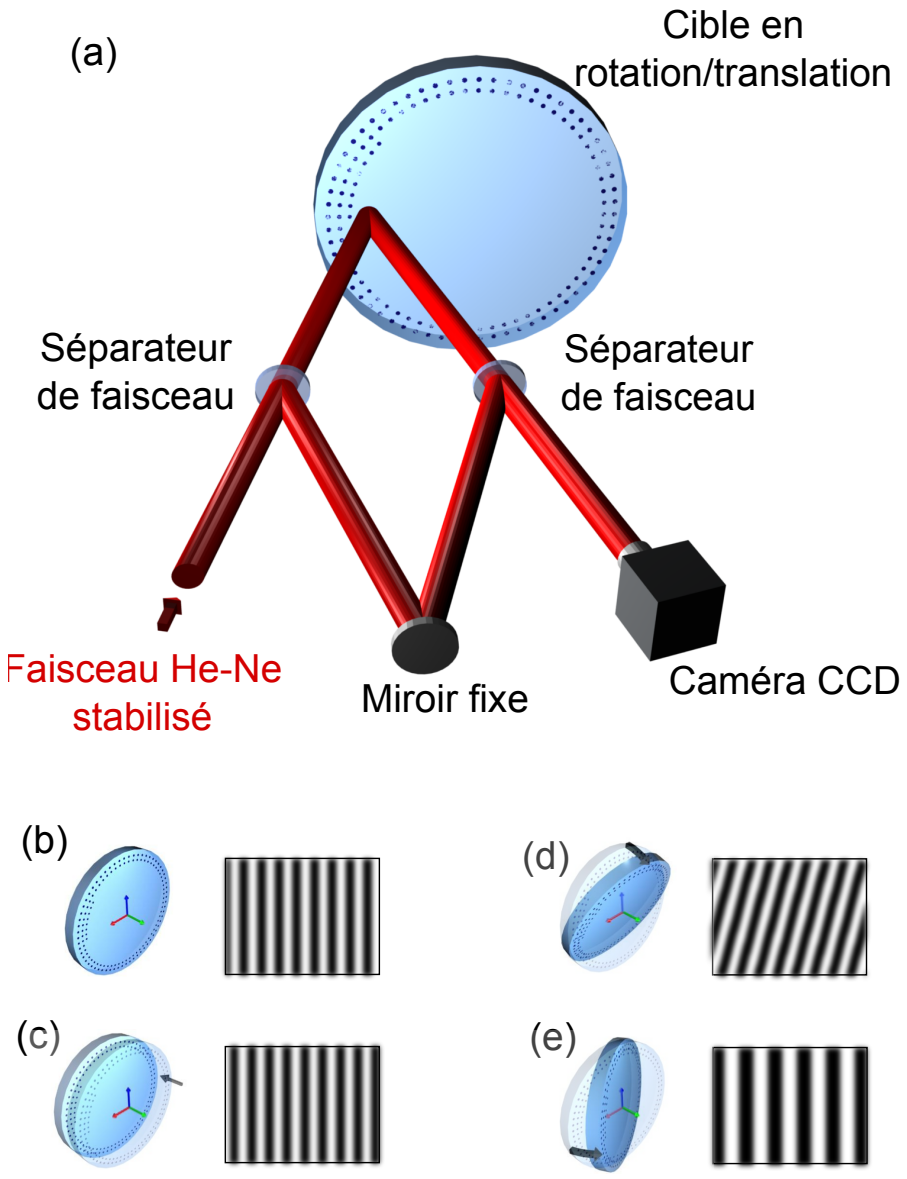

FIGURE 3.13 – *Fonctionnement de l'interféromètre de Mach-Zehnder.* (a) Schéma de l'interféromètre, (b) position initiale de la cible et interférogramme associé, (c) variation de la position en profondeur et effet sur l'interférogramme, (e) variation de la position en angle azimutal et effet sur l'interférogramme

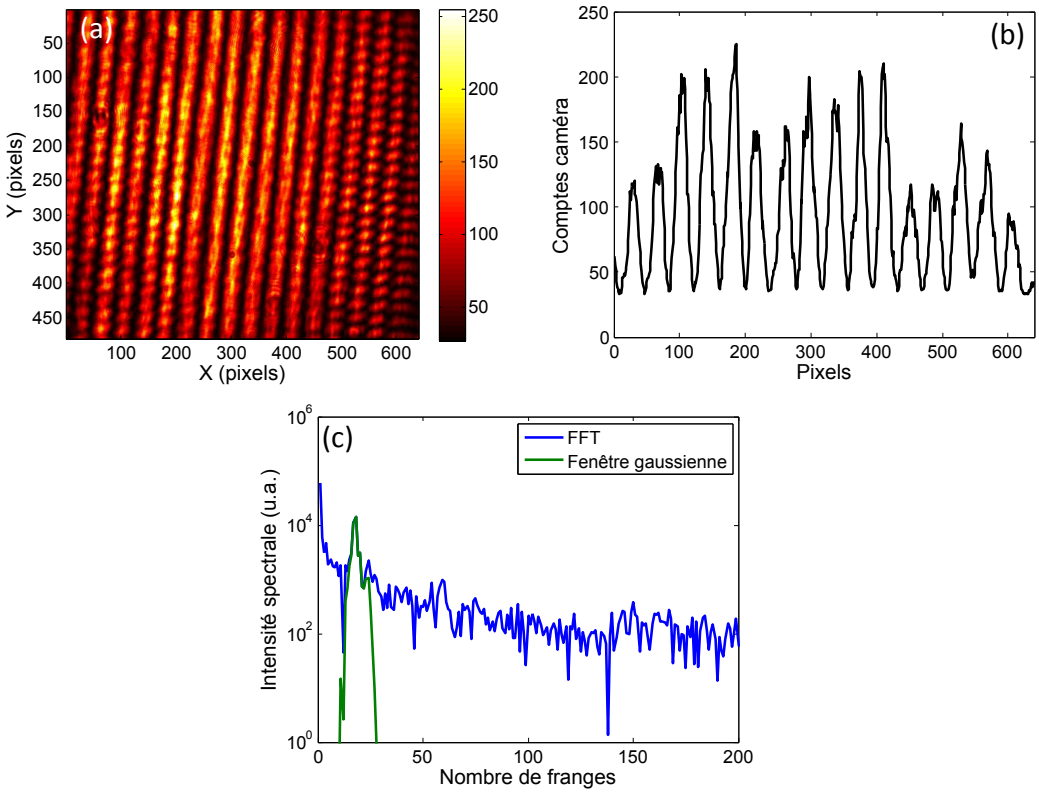

FIGURE 3.14 – *Détermination du filtre spectral.* (a) interférogramme, (b) coupe horizontale et (c) spectre associé (bleu) et fenêtre gaussienne autour du maximum local (vert).

L'image suivante, correspondant à un instant ultérieur où la cible s'est légèrement déplacée, présente donc un interférogramme différent. On applique alors une transformée de Fourier à chaque ligne de l'interférogramme, puis le filtre spectral déterminé précédemment. L'amplitude et la phase spectrale filtrées sont alors translatées d'une quantité égale au maximum du filtre fréquentiel, de façon à retrancher la partie constante de la phase due à l'angle intentionnellement introduit ($TF(S(\omega - \omega_0)) = \tilde{S}(x)\exp(-i\omega_o x)$) puis une transformée de Fourier inverse est appliquée sur le signal complexe. On en récupère la phase. En reproduisant cela sur toutes les lignes, on récupère ainsi la phase totale de l'interférogramme. L'étape suivante consiste à détecter les sauts de π, et les éliminer, de façon à avoir une phase continue sur toute la surface analysée. Enfin, on applique une régression linéaire au signal afin d'obtenir les coordonnées du plan qui épouse le mieux la surface de phase.

On obtient donc la phase de chaque interférogramme, en radians. A l'aide des paramètres physiques de l'expérience (longueur d'onde du He-Ne, angle d'incidence sur la cible, taille des pixels de la caméra), on remonte à la profondeur et à l'orientation de la surface d'interaction de la cible. La Figure 3.15 montre le panneau utilisateur du programme lors de l'analyse du positionnement de la cible en mouvement. Le panneau en haut à gauche montre la figure d'in-

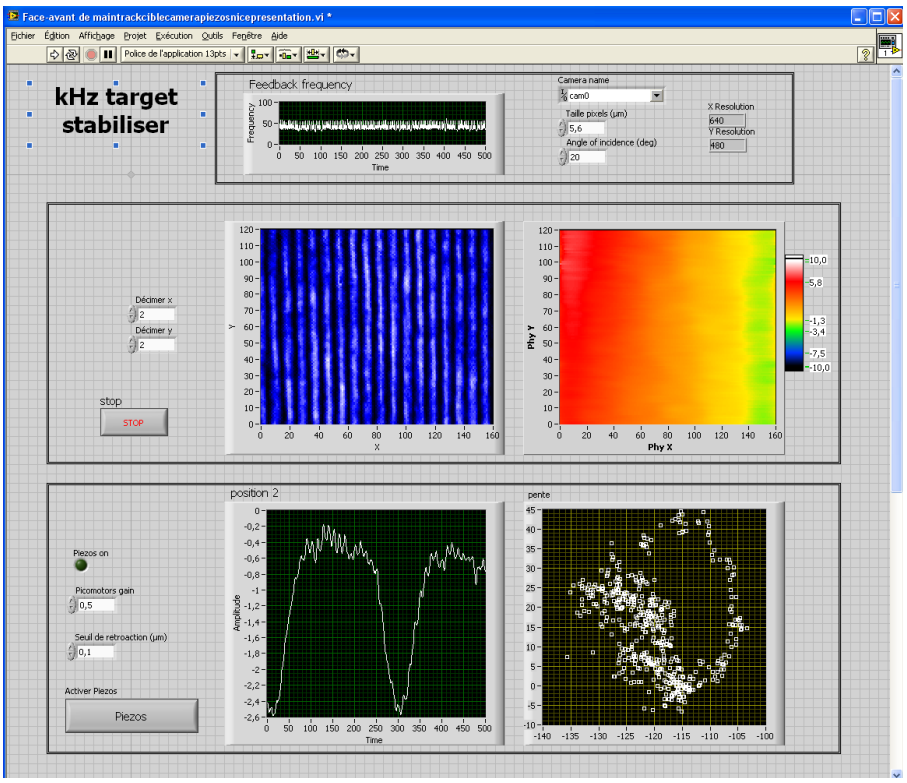

FIGURE 3.15 – *Panneau utilisateur du programme d'analyse des franges.*

terférence analysée, à droite la phase spatiale déduite en radian. En bas est tracé l'historique de la profondeur en microns (à gauche) et de l'orientation en μrad (à droite) sur 500 analyses concécutives (un peu plus d'un tour et demi de cible dans ce cas). Le niveau de bruit (cible fixe) est inférieur à 10 nm

3.3.3 Préalignement de la cible

Grâce à l'analyse du déplacement des franges d'interférences, nous pouvons donc traquer en temps réel le positionnement de la surface d'interaction en mouvement, avec une précision nanométrique, et donc procéder à l'alignement de la cible.

De la même façon qu'une antenne parabolique semble précesser quand elle tourne et que son axe de rotation n'est pas parallèle à la direction vers laquelle elle pointe, si la normale à la cible n'est pas alignée avec l'axe de rotation, cela engendrera un mouvement périodique de la surface. Nous voulons évidemment minimiser ce mouvement, en rendant ces deux vecteurs colinéaires. Cet alignement est fait à l'aide d'une paire de pico actuateurs montés sur la partie tournante de la cible (voir Figure 3.12), avec une précision sub-micrométrique. L'alimentation et la communication avec les pico actuateurs se fait par l'intermédiaire d'un contact tournant

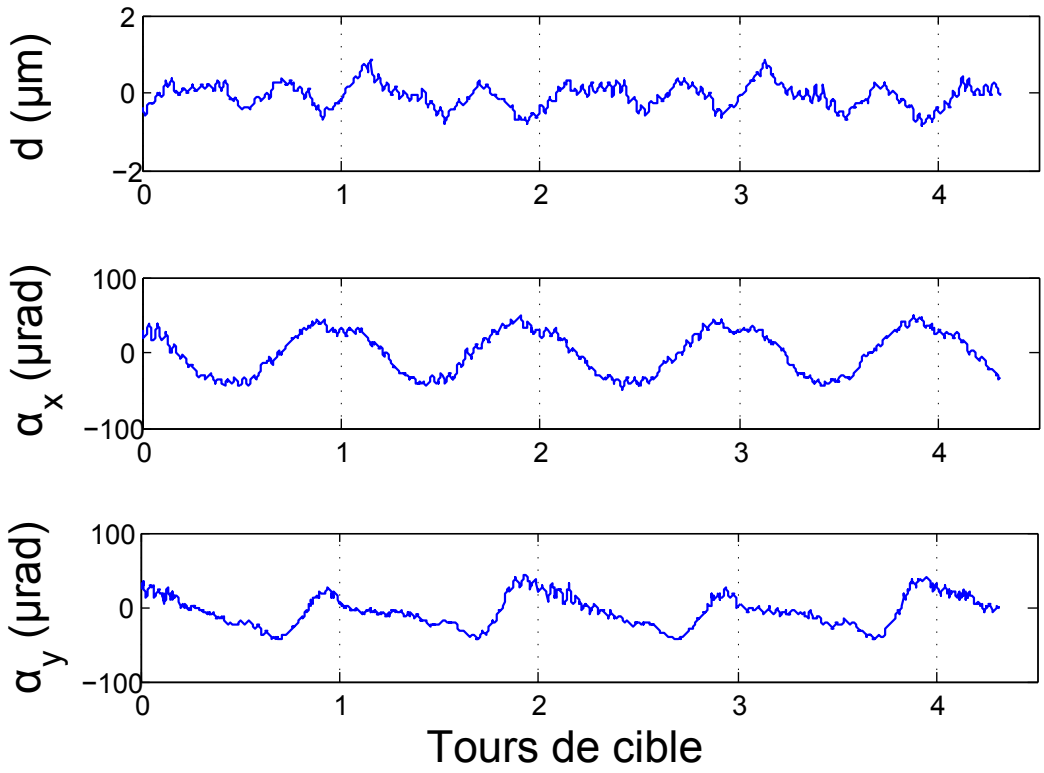

FIGURE 3.16 – *Résultats de la variation de la position de la cible mesurée sur quatre tours de cible.* En haut, mesure de la profondeur, au milieu, mesure de l'angle azimutal, en bas, mesure de l'angle tangentiel

fixé autour de l'axe de rotation de la cible, ce qui permet l'alignement de la cible pendant le mouvement de rotation.

La Figure 3.16 montre les performances d'alignement en profondeur et en angle après minimisation du mouvement décrit précédemment. Ces mesures ont été effectuées à l'extrémité de la cible, là où le mouvement résiduel est le plus élevé. Les mesures montrent une variation en profondeur limitée à 1.7 μm pic-to-valley (310 nm rms) et une variation en angle de 80 μrad pic-to-valley (25 μrad rms). Ces résultats confirment que le porte-cible que nous avons conçu respecte les caractéristiques que nous avions fixées. Il offre des performances largement suffisantes pour assurer une interaction à haut taux de répétition fiable et répétable, même dans des conditions très fortes de focalisation.

Il est intéressant de noter sur les résultats présentés en Figure 3.16, la double périodicité, a priori non intuitive, de la variation de la profondeur et de l'orientation en fonction de la rotation de la cible (particulièrement visible sur la courbe de la profondeur d et de l'angle tangentiel α_y). Cela vient du fait que la période de rotation du roulement est deux fois plus faible que

celle de la cible : il faut deux tours de cible pour que le roulement ait effectué un tour complet. Ainsi, la périodicité du mouvement mesuré n'est plus dictée par le mouvement de précession résiduel, mais par les défauts du roulement. Autre fait remarquable, la période d'oscillation rapide, de l'ordre d'$1/25^{ième}$ de tour de cible, est due à la rotation propre des cylindres du roulement : en effet, le roulement est composé de 50 cylindres, qui demandent donc deux tours de cible pour revenir à leur place initiale. Leur période de rotation, d'$1/25^{ième}$ de tour de cible, et d'amplitude correspondant à une centaine de nanomètres, est donc observé par notre système interféromètrique.

3.3.4 Stabilisation retro-active de la position de la cible

L'objectif scientifique de la technologie que nous avons développée est de rendre possible l'interaction d'un laser haute-cadence avec une cible solide. Or certaines sources secondaires générées par interaction laser-matière possèdent la particularité d'être très courte temporellement, atteignant le domaine de l'attoseconde. L'intérêt principal de ces sources vient de leur brièveté, qui peut être utilisée comme « obturateur ultrarapide »pour l'observation de phénomènes ultrarapides. Ce type d'observation nécessite une approche de type « pompe-sonde ». Une impulsion pour déclencher le phénomène, et une autre pour le sonder. De façon à tirer le meilleur parti de la brièveté de la sonde, il est naturellement nécessaire de maintenir la gigue temporelle entre les deux impulsions inférieure à la durée de l'impulsion sonde. Dans le cas d'une impulsion sonde générée par l'interaction d'un laser avec notre cible solide, il apparait donc nécessaire de limiter au maximum les mouvements résiduels de la surface. Par exemple, les performances décrites précédemment ($310\,nm$ rms) donnent une gigue temporel de $2\,fs$ rms. Pour atteindre le régime attoseconde, il est donc impératif d'améliorer les performances de stabilité de la cible, en vue d'en faire une source de rayonnement attoseconde utilisable comme sonde ultra-rapide.

L'idée est évidemment d'utiliser le système de contrôle de la position pour pouvoir compenser en temps réel le désalignement résiduel. Pour cela, le choix naturel est d'utiliser des piezos-actuateurs, qui possèdent la particularité de pouvoir déplacer des charges élevées avec un haut taux de répétition. La partie du porte-cible composée de la cible, des pico-actuateurs et du roulement a ainsi été découplée du reste la structure, et fixée, comme une monture de miroir classique, en trait-point-plan sur la partie fixe du porte-cible (voir Figure 3.11). Un ensemble de trois piezo-moteurs permet donc l'alignement fin en profondeur et en orientation de la surface de la cible. Trois ressorts de rappel maintiennent le contact avec les piezo-actuateurs

Certaines contraintes existent cependant dans l'utilisation de piezos-actuateurs. En particulier, s'ils peuvent déplacer des charges élevées en longitudinal, ils ne supportent pas les

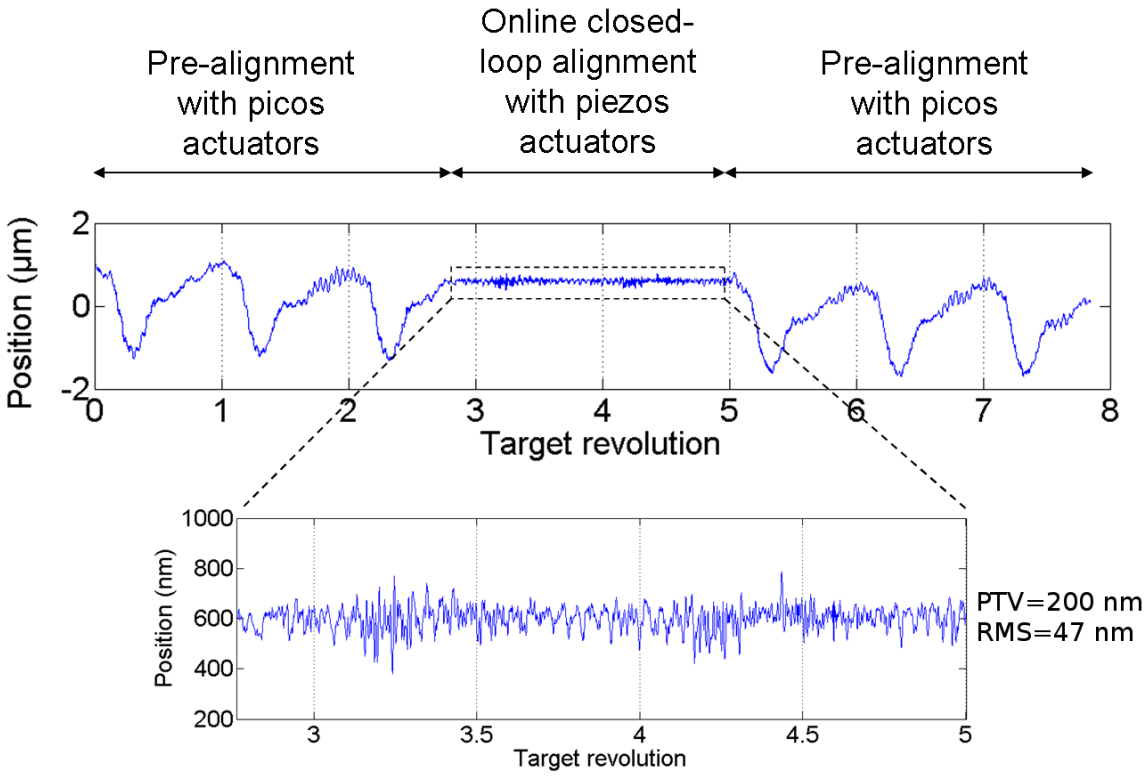

FIGURE 3.17 – *Résultats de la variation de la profondeur avec et sans la stabilisation active par piezo-moteurs.* En haut, mesure de la profondeur sur huit tours de cible, avec et sans stabilisation active. En bas, zoom sur le mouvement résiduel en mode actif, mesuré à 47 nm rms

contraintes latérales ou de torsion. Or l'excentrage du poids de la cible exerce une force latérale importante, que ne peuvent supporter les piezo-moteurs. Pour éviter cette contrainte, nous avons monté une potence sur la partie fixe de la cible, afin de suspendre la partie en trait-point-plan de la cible et annuler l'effet de son poids sur les piezo-moteurs. Un contrepoids a aussi été ajouté afin de centrer le projeté vertical du centre de gravité de la structure à aligner au niveau des piezo-actuateurs (voir Figure 3.12).

Le jeu de piezomoteurs est donc utilisé pour rétroagir en temps réel sur la position de la cible, mesurée par le système interférometrique, lorsqu'elle est en mouvement. Chaque image caméra est analysée et fournit la modification de la position de la cible. Ces changements sont alors corrigés, avant d'analyser l'image caméra suivante. La Figure 3.17 compare les performances en profondeur du mouvement résiduel de la cible avec et sans la rétroaction par les piezo-moteurs, et cela sur 8 tours complets de cible. Les performances sans rétroaction donnent une variation en profondeur de 2.3 μm peak-to-valley (640 nm rms). Lorsque la rétroaction est activée, les performances atteignent 200 nm peak-to-valley, et 47 nm rms. La rétroaction est effectuée à

15 Hz.

Grâce à l'implémentation de la stabilisation active par piezos-actuateurs, les performances de stabilité ont été améliorées d'un facteur 10 pour une stabilité rms de l'ordre de quelques dizaines de nm. Ainsi, une source de rayonnement générée par sera stable à l'échelle attoseconde, (300 as rms dans ce cas). Ce développement technologique permet donc pour la première fois d'envisager des expériences pompe-sonde avec des rayonnements ultracourts issus de l'interaction d'un laser avec une cible solide.

3.4 Critères de caractérisation du spectre harmonique généré

3.4.1 Spectromètre XUV

Pour la mesure spectrale de l'émission harmonique, nous avons opté pour un spectromètre en reflexion, non-imageur, à champ-plan, et à grande ouverture. Le choix d'un spectromètre non-imageur a été dicté par notre souhait d'avoir accès, en plus du spectre, à la divergence de l'émission en fonction de celui-ci. La dépendance en divergence du spectre harmonique sera présentée au chapitre 4. Quant à la focalisation du spectre dite « champ-plan », elle présente l'avantage de permettre l'utilisation d'un détecteur plan, placé dans le plan de focalisation de l'optique de focalisation du spectromètre. Enfin, la grande ouverture, nécessaire pour avoir accès à la divergence du faisceau harmonique, permet en plus de collecter le faisceau harmonique sur un grand angle solide.

Nous avons utilisé un réseau concave Hitachi # 001-0639 pour la refocalisation du faisceau et la dispersion du spectre. C'est un réseau

1. **sphérique**, ce qui implique que, lorsqu'il est utilisé en incidence non-normale, le plan sagittal et le plan tangentiel du faisceau harmonique, qui se propage en divergeant après sa génération au point focal du laser IR, voient deux différents rayons de courbure, R pour le plan tangentiel et $R \sin \phi$ pour le plan sagittal, où R est le rayon de courbure du miroir sphérique et ϕ l'angle d'incidence. La diffraction du spectre ayant lieu dans le plan sagittal (les lignes du réseau sont verticales), le spectre est donc imagé dans le plan focal sagittal, alors que la partie tangentielle du faisceau harmonique est « hors-foyer ». Ainsi, lorsque l'on place le détecteur dans le plan image de la partie tangentielle du faisceau, l'information de divergence est contenue dans le plan sagittal ;
2. **à pas variable**, ce qui permet d'imager le spectre non pas sur le cercle de Rowland

du système optique, mais sur une surface plane, adaptée aux détecteurs utilisés en spectroscopie XUV (Micro Channel Plate, CCD à rayons X, etc)(Harada *et al.*, 1999). Le champ plan est optimisé pour la bande spectrale $22 - 124nm$, couvrant ainsi le spectre harmonique de H7 à H36 pour un photon incident à $800nm$.

De plus, l'incidence rasante, le revêtement or et l'utilisation d'une unique optique pour la refocalisation et la dispersion du faisceau permet de minimiser les pertes. Enfin, en raison de la très petite taille du point source des harmoniques, ne limitant pas la résolution du spectromètre, nous avons directement imagé le point source avec le réseau sphérique. Le schéma du spectromètre est présenté Figure 3.18

Nous avons choisi de détecter le spectre harmonique à l'aide une Micro Channel Plate (MCP). Les avantages de la MCP sont principalement l'insensibilité au rayonnement infrarouge et le gain très élevé. Fort de la possibilité que nous avons de travailler au kHz, et ainsi d'accumuler le signal, nous avons décidé d'utiliser une MCP simple étage, malgré son gain moindre, afin de minimiser le bruit de la mesure (dû à l'extrême sensibilité des MCP en chevron), et d'éviter l'effet de perte de résolution spatiale du chevron due à la vitesse radiale des électrons à l'interface des deux MCP. Soumise à une tension de 800 Volts, le gain théorique d'une MCP simple étage dépasse 10^3, ce qui s'est révélé suffisant pour détecter le signal harmonique dans de bonnes conditions.

La MCP est couplée en sortie à un écran phosphore (convertissant les électrons en photons visibles) de type P47. Ce type d'écran phosphore est dit rapide, c'est-à-dire ayant un temps caractéristique de fuorescence de l'ordre de 0.1 μs. Sachant que les écrans phosphores les plus répandus, de type P43, ont un temps caractéristique supérieur à la milliseconde, nous nous sommes tourné vers ce type particulier d'écran pour s'affranchir de tout effet éventuel d'accumulation dû au taux de répétition kHz de l'expérience. La sortie de l'écran phosphore est ensuite imagée par un objectif sur une caméra CCD PCO-Pixelfly de 12 bit de dynamique. Le temps d'exposition de la caméra détermine le nombre de tir intégrés par spectre mesuré.

Le spectre harmonique dispersé par le réseau sphérique sur le champ plan s'étale sur 110 mm. Le diamètre utile de la MCP étant de 30 mm, nous l'avons monté sur une platine de translation manuelle, contrôlée de l'extérieur de l'enceinte annexe, couvrant ainsi l'ensemble du spectre. De plus, afin de minimiser tout parasitage dû à des émissions plasma de particules ou de photons, en direct ou en diffusé, nous avons installé une fente d'entrée et de sortie autour du réseau sphérique. Ainsi, seuls les photons émis par le plasma dans la bande spectrale qui nous intéresse et diffracté par le réseau ne pénètrent dans l'enceinte de détection. En particulier, l'ordre zéro de diffraction est bloqué, ainsi que l'ordre un du fondamental, et que toute émission venant directement du plasma. Ces précautions nous ont permis de de pas avoir à utiliser de filtre métallique pour isoler le rayonnement harmonique. Enfin, la MCP est placée dans une enceinte

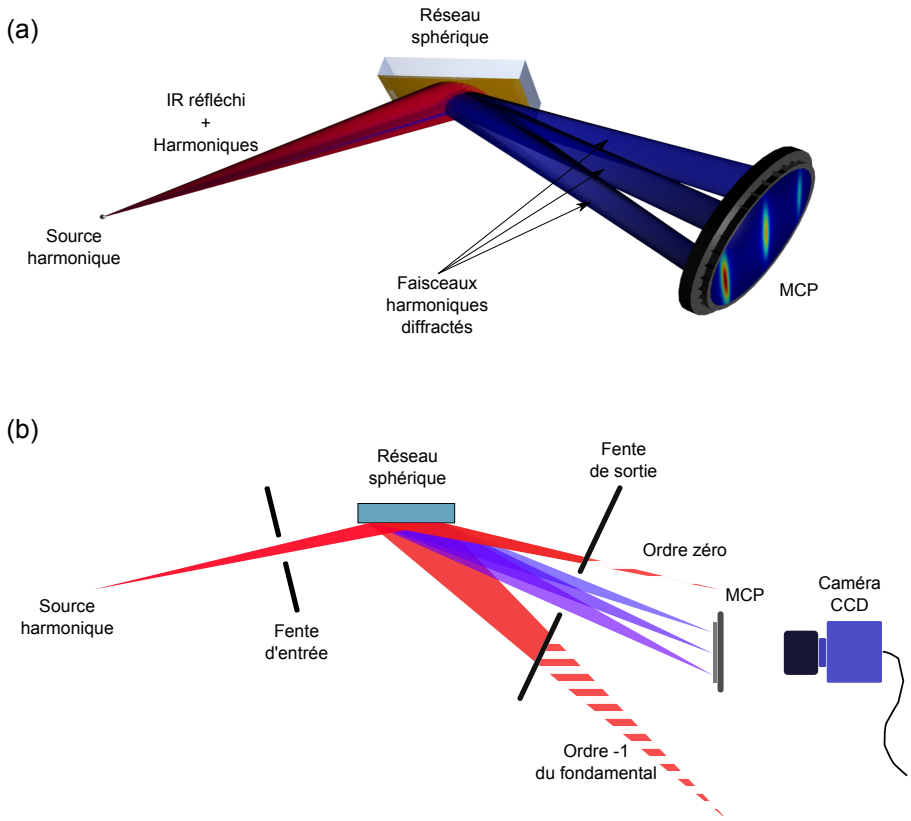

FIGURE 3.18 – *Schémas du spectromètre XUV.* (a) Vue artistique en trois dimensions du spectromètre. Le faisceau harmonique est diffracté dans la direction sagittale par le réseau sphérique, et continue à diverger dans la direction tangentielle. (b) Vue de dessus du spectromètre. Le faisceau harmonique diffracté est détecté par une galette micro-canaux (MCP), suivie d'un écran phosphore imagé par une caméra CCD.

annexe à pompage différentiel, afin d'assurer un vide supérieur à 10^{-6} mbar, et de pouvoir isoler la MCP lors des remises à l'air de l'enceinte principale.

3.4.2 Détection et reconstruction du spectre harmonique

Comme nous l'avons précisé, la surface utile de la MCP (30 mm de diamètre) ne couvre pas tout le spectre imagé par le spectrometre dans un plan qui s'étend sur une dizaine de cm. Pour reconstruire un spectre complet, le détecteur est monté sur une platine, elle-même translatée le long du plan image du spectrometre. On reconstruit ainsi le spectre complet en concaténant les différentes parties du spectre (voir Figure 3.19).

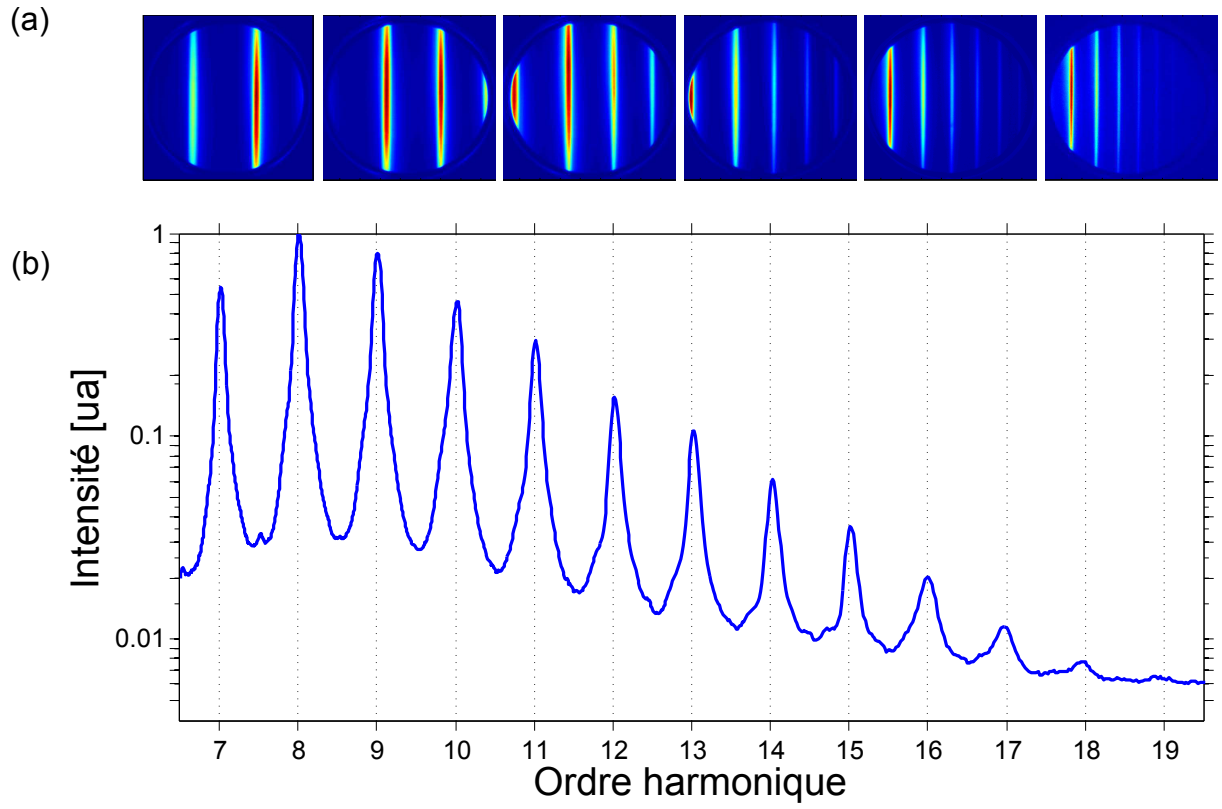

FIGURE 3.19 – *Images MCP et reconstruction du spectre.* (a) Images prises pour différentes positions de la MCP le long du plan de focalisation du spectre diffracté. (b) Reconstruction de l'intensité spectrale en fonction de l'ordre harmonique, en échelle logarithmique.

3.4.3 Mesure de l'énergie, de la largeur spectrale et de la divergence des harmoniques

Plusieurs paramètres permettent de caractériser l'émission harmonique dans le cas où on utilise un spectromètre non-imageur.

- la largeur spectrale d'une harmonique, c'est-à-dire l'étalement spectral autour d'une fréquence multiple de la fréquence du laser.
- la divergence d'une harmonique,
- l'énergie d'une harmonique, obtenue en intégrant le signal harmonique sur sa largeur spectrale et sa divergence.

Compte tenu de la bonne qualité de notre signal, nous avons pris le parti de déterminer la largeur spectrale, la divergence, et l'énergie de nos harmoniques en appliquant un fit gaussien en deux dimensions. Pour cela, on définit une zone encadrant l'harmonique, englobant au maximum la largeur spectrale et la divergence, sur laquelle le "fit" est appliqué. On définit alors la largeur

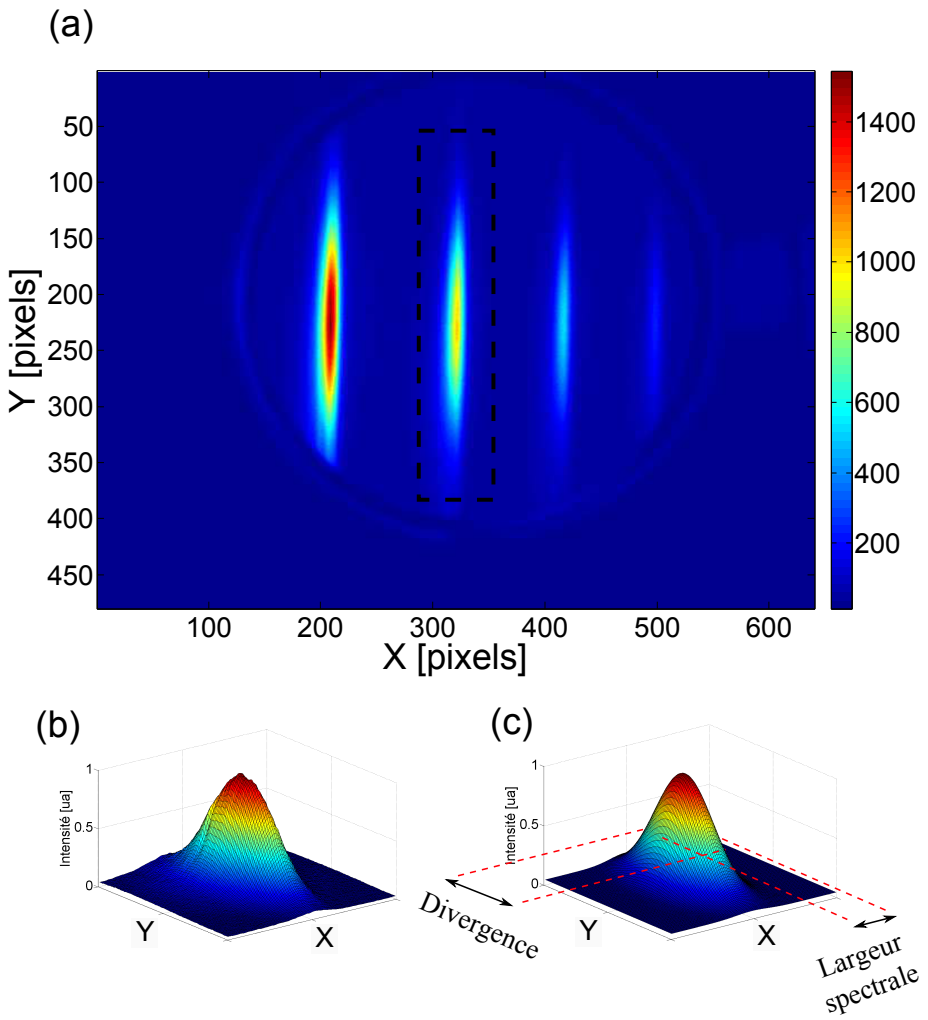

FIGURE 3.20 – *Mesure de la largeur spectrale et de la divergence harmonique.* (a) Image expérimentale type d'une partie du spectre harmonique, (b) représentation 3D du profil de l'harmonique sélectionnée, (c) résultat du fit gaussien 2D, donnant la largeur et la divergence harmonique.

harmonique comme la largeur à mi-hauteur (FWHM) du fit mesuré dans la dimension spectrale, la divergence harmonique comme la largeur à mi-hauteur du fit mesurée dans la dimension spatiale, et l'énergie harmonique comme l'intégrale bi-dimensionnelle du fit. Le procédé est illustré en Figure 3.20. La divergence et la largeur spectrale, une fois leurs mesures calibrées, donnent des résultats absolus, alors que l'énergie sera souvent donnée en mesure relative. En effet, la calibration en énergie est beaucoup moins directe que celle de la largeur spectrale ou de la divergence, car il faut estimer la « fonction de transfert »de tous les éléments qui composent le spectromètre (réseau, MCP, écran phosphore, objectif de collection, caméra) ce qui comporte des incertitudes. Une estimation de l'énergie absolue est donnée dans le chapitre 4

La calibration du spectre revient à mesurer la largeur d'une harmonique en pixels sur la caméra, puis lui appliquer le grandissement de l'objectif, puis la conversion en longueur d'onde par la formule des réseaux en réflexion, et enfin de la convertir en fraction de longueur d'onde laser. Cette représentation « normalisée »se justifie par le fait qu'un train d'impulsions de même CEP et régulièrement espacées a un spectre harmonique dont les largeurs spectrales des pics sont identiques quand on les écrit en fraction de longueur d'onde laser : nous verrons plus tard que des différences de largeurs spectrales sont la trace d'un battement non-régulier du train attoseconde généré. On a alors :

$$\Delta = \frac{\delta\lambda}{\lambda} = \frac{\Gamma ab}{\lambda v} \arcsin(\cos(\lambda/a + \sin(i_1)))\delta x_{pixel},$$

où Γ est le grandissement de l'objectif, b est la taille du pixel et δx la largeur harmonique mesurée en pixel. Il faut noter que cette formule n'est qu'une différentiation de la formule des réseaux à l'ordre un, uniquement valable que si la largeur harmonique est faible devant 1. Dans le cas contraire, il faut tenir compte des ordres supérieurs.

Quant à la mesure de la divergence, l'application des lois de conjugaison à la partie tangentielle du faisceau harmonique qui contient l'information de divergence donne :

$$\Delta = \frac{u'}{u'+v}\frac{\Gamma D_{pixel}}{u} = \frac{1}{u(1+2v/R)-v}\Gamma D_{pixel}$$

où u est la distance source-réseau, v la distance réseau-détecteur, R le rayon de courbure du réseau sphérique et D_{pixel} la taille verticale en pixels de l'harmonique sur la caméra (voir Figure 3.21).

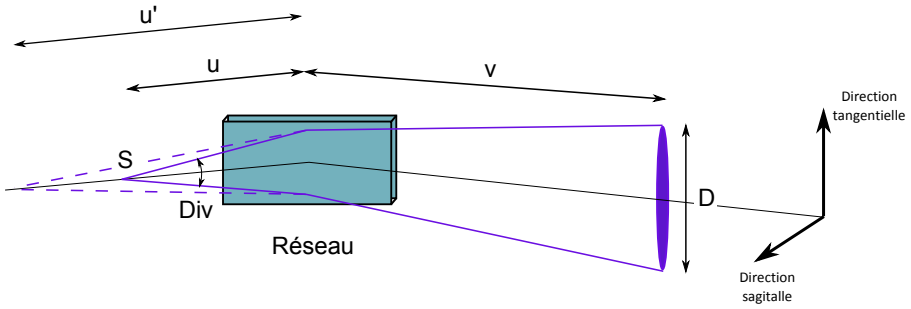

FIGURE 3.21 – *Vue de côté du spectromètre.* u représente la distance source/réseau, v la distance réseau/détecteur, u' la distance point image/réseau

3.5 Modèle semi-analytique de l'émission cohérente de sillage

Grâce au travail précurseur de l'équipe de Saclay (Thaury, 2008), les mécanismes fondamentaux de l'émission cohérente de sillage sont maintenant éclaircis. En particulier, un travail paramétrique a été mené à l'aide de codes de simulation PIC pour déterminer la dépendance de l'émission en fonction des principaux paramètres de l'interaction. Il a été ainsi démontré que l'émission cohérente de sillage trouvait son origine dans l'accélération sous l'effet de champ laser d'une population d'électrons, appelés électrons de Brunel, dont le retour dans le gradient de densité provoquait l'oscillation du plasma, qui pouvait sous certaines conditions réémettre un faisceau de lumière XUV. Dans le sillage de ce travail, notre équipe de recherche s'est proposée de développer un modèle semi-analytique de l'émission, basé sur les temps de retour de ces électrons de Brunel. L'élaboration de ce modèle est le résultat du travail d'Arnaud Malvache, deuxième doctorant de l'équipe, avec lequel j'ai travaillé en très étroite collaboration : ainsi, la confrontation de nos résultats respectifs, expérimentaux et théoriques, nous a permis de converger rapidement vers la mise en place d'un programme expérimental, destiné dans un premier temps à valider la démarche théorique en l'appuyant sur la robustesse de l'expérience, puis dans un deuxième temps à explorer la physique de l'interaction d'un point de vue fondamental. La description du modèle qu'Arnaud a développé fait l'objet de cette section. Une description plus détaillée est disponible dans son manuscrit de thèse (Malvache, 2011)

Comme nous l'avons vu plus tôt, l'émission cohérente de sillage est composée d'un train d'impulsions attosecondes, chaque impulsion étant générée par un cycle laser. Les spectres de chacune de ses impulsions interfèrent (dû à la dispersion du spectromètre), ce qui entraine l'apparition des modulations spectrales, caractéristiques du spectre dit « harmonique ».

La démarche de reconstruction du spectre par le modèle se déroule en deux temps :

1. d'abord la détermination du temps d'émission de l'impulsion attoseconde par rapport au cycle générateur (intra-cycle),
2. puis le calcul du spectre total, en sommant les spectres intra-cycle en leur appliquant les retards déterminés précédemment, avec une enveloppe caractérisant leurs intensités spectrales respectives (inter-cycle)

3.5.1 La modélisation intra-cycle

Rappelons ici brièvement (voir Chapitre 2 pour plus de détails) que les trajectoires des électrons de Brunel, à l'origine de l'émission CWE, sont calculées en reprenant l'équation du mouvement, selon le modèle de Brunel. Dans le vide, les électrons sont soumis à la fois au champ laser et au champ électrostatique créé par les électrons précédemment accélérés. Une fois les électrons de retour dans le plasma dense, ils s'échappent de l'influence de ces deux champs (écrantés par le plasma), et continuent leurs trajectoires à vitesse constante. Les électrons rentrant le plus tard dans le plasma étant les plus rapides, leurs trajectoires finissent par se croiser dans le plasma, formant ainsi des pics de densité électronique.

La première étape du modèle consiste à déterminer l'instant $\tau(x)$ auquel le pic de densité électronique atteint une profondeur donnée x du gradient de densité. Pour mesurer $\tau(x)$, il suffit de compter le nombre d'électrons de Brunel traversant la profondeur x par unité de temps, et de déterminer le maximum du profil temporel de densité électronique ainsi obtenu (voir Figure 3.22).

Une fois $\tau(x)$ déterminé, on associe la profondeur x à la pulsation plasma correspondante $\omega_p(x)$, en fonction de la forme du profil de densité. Or nous avons vu précédemment que les oscillations du plasma donnaient lieu à l'émission d'une onde électromagnétique dont la pulsation est égale à la pulsation plasma locale. Une hypothèse du modèle est ici de dire que le temps d'émission de cette onde est confondu avec le temps d'excitation. Ainsi, on définit le temps d'émission $\tau(\omega)$ de la pulsation $\omega(x)$ comme égale au temps $\tau(x)$ que le pic de densité a mis pour atteindre la profondeur x. Si ce délai que nous négligeons dépend vraisemblablement de l'amplitude du cycle concerné, ainsi que du gradient, il est négligeable par rapport au retard dû aux trajectoires électroniques. En effet, les temps d'émission estimés par le modèle sont en excellent accord avec les temps observés pour des simulations PIC effectuées dans les mêmes conditions laser. Deuxième retard négligeable devant les temps de croisement, les retards dûs au fait que les différentes fréquences ω soient émises à différentes profondeurs du plasma (nous

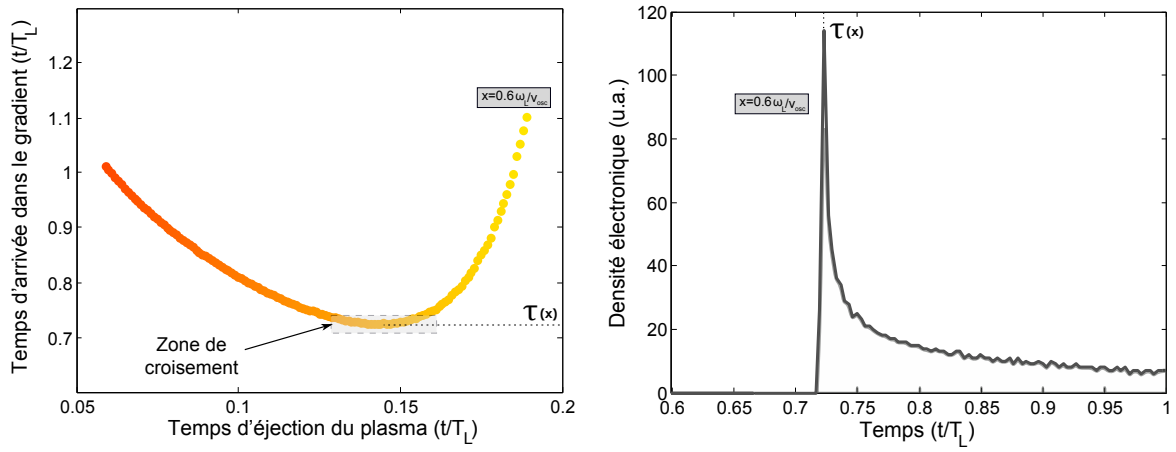

FIGURE 3.22 – *Temps d'arrivée du pic de densité électronique dans le gradient.* A gauche sont représentés les temps d'arrivée en un point du plasma $x = 0.6\omega_L/v_{osc}$ des électrons de Brunel : on observe une grande quantité d'électrons atteignant ce point pour $\tau(x) \approx 0.72T_L$. A droite est représenté le profil temporel du pic électronique traversant la zone de profondeur x. Le maximum de cette courbe donne accès à $\tau(x)$

parlons ici uniquement de l'effet spatial). En effet, le pic électronique à l'origine des retards $\tau(\omega)$ a une vitesse de l'ordre du dixième de la vitesse de la lumière dans le vide, pour nos intensités laser. En revanche, les pulsations ω, qui effectuent le chemin dans l'autre sens, de la zone de génération du plasma vers le vide, se propagent des vitesses de phase supérieures à c, ainsi le temps qu'elles mettent pour sortir du gradient de densité est bien inférieur au temps que met le pic de densité électronique à le traverser.

Ainsi, le calcul du temps d'émission nous permet de définir une phase spectrale $\phi(\omega) = \omega\tau(\omega)$ associée à ω. Autre hypothèse du modèle, nous considérons que $\phi(\omega)$ ne dépend que de l'effet de retard de la propagation du pic électronique, sans considérer d'effet de phase supplémentaire dû à la phase de l'oscillateur plasma qui génère l'harmonique.

En reproduisant ce calcul pour toutes les fréquences composant le gradient de densité du plasma, on obtient ainsi la phase spectrale de l'impulsion attoseconde. La courbe des $\tau(x)$ (que l'on associe à $\tau(\omega)$ lorsqu'on définit la forme du gradient) est présentée sur la Figure 3.23. L'émission des pulsations $\omega = 5\omega_L, 10\omega_L, 15\omega_L$ et $20\omega_L$, y est représentée, en supposant un gradient de densité linéaire (pour faciliter la lecture)

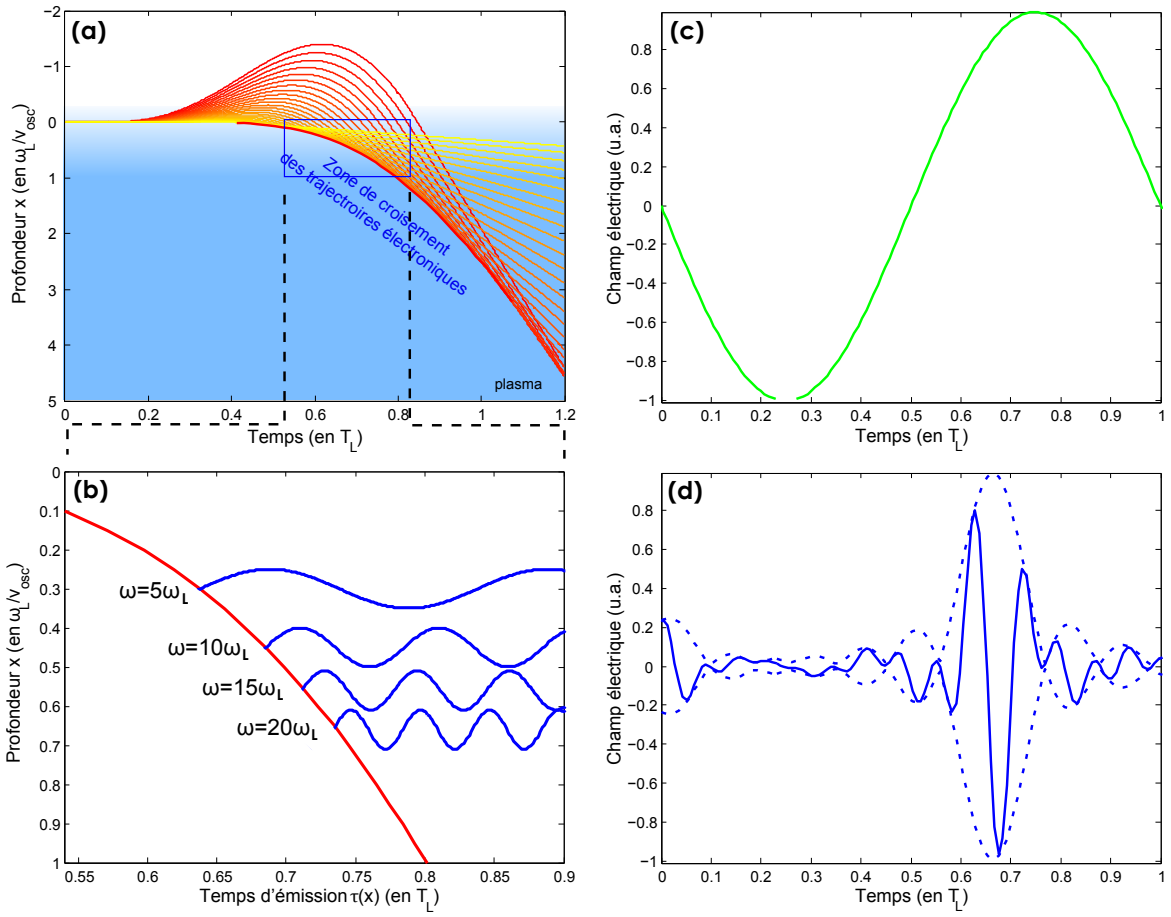

FIGURE 3.23 – *Construction du spectre complexe d'une impulsion attoseconde.* Trajectoires des électrons de Brunel dans le plasma (a) sous l'effet du champ électrique laser (c). Trajectoire du pic de densité dans le plasma avec les fréquences XUV générées par le passage du pic (b). On observe que les fréquences générées sont chirpées positivement. Impulsion attoseconde générée par le code, filtrée entre l'harmonique 5 et 14 (d)

Cependant, la phase spectrale précédemment déterminée n'est pas complète : en effet, les différentes fréquences du spectre étant émises à différentes profondeurs dans le plasma, elles vont accumuler de la phase lors de leur propagation dans le plasma sous-dense avant d'atteindre le vide. Cette phase vaut :

$$\phi_{pr}(\omega) = \int_{x_e(\omega)}^{-\infty} k(\omega, x)dx \tag{3.1}$$

où $x_e(\omega)$ est la profondeur du plasma oscillant à ω, $k(\omega, x)$ le moment local en x de l'onde de pulsation ω.

En prenant un profil de densité exponentiel $n_e(x) = n_{cr}\exp(x/L)$, et ainsi un profil de pulsation plasma $\omega_p(x) = \omega_0 \exp(x/2L)$, on a alors, en utilisant l'équation de dispersion $c^2k(x)^2 =$

$\omega^2 - \omega_p(x)^2$:

$$\phi_{pr}(\omega) = \frac{1}{c}\int_{2L\ln(\omega_0/\omega)}^{\infty} \omega\sqrt{1 - \frac{\omega_0^2}{\omega^2}\exp(x/L)}\,dx \tag{3.2}$$

En posant le changement de variable $x \to \Omega = \omega_0/\omega \exp(x/2L)$, on obtient :

$$\phi_{pr}(\omega) = \frac{L\omega}{c}\int_0^1 \sqrt{1/\Omega^2 - 1}\,d\Omega \tag{3.3}$$

Ainsi, la phase accumulée par la propagation dans le gradient de densité est proportionnelle à ω, ce qui correspond simplement à ajouter un retard à l'impulsion. De plus, le retard est identique pour toutes les impulsions du train, puisqu'il ne dépend que de la forme du gradient, qu'on suppose constante le temps de l'interaction avec l'impulsion laser.

En ce qui concerne l'intensité spectrale $A(\omega)$ de l'impulsion attoseconde, nous prenons généralement la forme exponentiellement décroissante des spectres expérimentaux. Cependant, la forme globale du spectre n'est pas importante dans la modélisation, car ce sont les structures locales fines qui nous intéressent, comme les largeurs harmoniques par exemple, qui ne dépendent pas de l'enveloppe spectrale de l'impulsion attoseconde.

Ainsi, on connait le spectre complexe de l'impulsion attoseconde générée par le n^{ième} cycle laser, que l'on écrit comme :

$$S(\omega) = A(\omega)\exp\Big(j(\omega\tau(\omega) + \phi_{pr}(\omega))\Big) \tag{3.4}$$

3.5.2 La modélisation inter-cycle

Le modèle donne le champ électrique dans le domaine spectral émis par un cycle optique d'une certaine amplitude. La phase spectrale de l'impulsion est composée de deux termes, le premier dû aux temps auxquels le pic de densité électronique excite les différentes profondeurs du gradient, dépendant de l'amplitude du cycle générateur et de la longueur du gradient L, et le second correspondant à la propagation de l'impulsion attoseconde dans le plasma sous-dense, terme linéaire ne dépendant que de L.

Maintenant, considérons le train d'impulsions attosecondes généré par l'impulsion laser complète : chaque cycle possède une amplitude propre, déterminée par l'enveloppe du champ laser, qui va conditionner la phase spectrale de l'impulsion attoseconde correspondante. De plus, l'amplitude du cycle joue non seulement sur la phase spectrale, mais aussi sur l'efficacité de génération des impulsions attoseconde individuelles : en effet, celle générée en début d'impulsion laser ne sera pas aussi énergétique que celle générée au maximum de l'enveloppe. Pour modéliser cette dépendance, on définit un paramètre de non-linéarité, b, qui va définir l'enveloppe du train d'impulsion attoseconde $a_n(t)$ par rapport à celle du champ laser, tel que $a_n = \exp(-bn^2/2\tau_L^2)$, où τ_L est la durée de l'impulsion laser et n l'indexation du cycle.

Ainsi, on peut définir le spectre total comme :

$$S(\omega) = \sum_n a_n A_n(\omega) e^{j(\omega(nT_L+\tau_n(\omega))+\phi_{pr,n}(\omega))} \tag{3.5}$$

Comme nous l'avons vu, le spectre de chacune des impulsions attosecondes est arbitraire dans le modèle, et compte tenu de la physique du phénomène, il est raisonnable de penser que sa forme ne dépend que de la forme du gradient. Or les impulsions laser que nous utilisons sont extrêmement courtes (toujours inférieures à $100\,fs$, même chirpées), et le plasma n'a pas le temps de se déformer pendant l'interaction. On considère donc la longueur de gradient L constante pendant tout le temps de l'interaction. On choisit donc une forme de spectre identique pour toutes les impulsions attosecondes du train, i.e. $A_n(\omega) = A(\omega)$.

De plus, on a vu que la phase dû à la propagation dans le plasma sous-dense $\phi_{pr,n}(\omega)$ dépendait linéairement de ω, et que le coefficient de proportionnalité ne dépendant que de la longueur de gradient L. Cette phase est donc identique pour tous les cycles (on suppose que le gradient ne change pas pendant l'interaction), on a donc $\phi_{pr,n}(\omega) = \phi_{pr}(\omega)$. La propagation dans le plasma de l'impulsion ne résulte donc que sur un retard, de plus identique pour toutes les impulsions du train, c'est-à-dire un décalage globale du train attoseconde dans le temps. Cela n'aura donc aucune influence sur le spectre, on peut donc la négliger.

Le spectre total devient :

$$S(\omega) = A(\omega) \sum_n a_n e^{j\omega(nT_L+\tau_n(\omega))} \tag{3.6}$$

et on tire le profil temporel du train en effectuant la transformée de Fourier du spectre ainsi calculé.

Pour conclure, le modèle, basé sur le calcul des trajectoires des électrons de Brunel sous l'effet du champ laser, permet de calculer la phase spectrale du train attoseconde généré. Les hypothèses sont (i) de confondre le temps de passage du pic de densité électronique avec le temps d'émission, (ii) de ne considérer que le retard d'émission dans la phase spectrale, sans considérer de phase associée à la phase de l'oscillateur plasma, et (iii) de négliger le retard dû à la répartition spatiale des points-source le long du gradient. Pour la reconstruction du spectre, nous prenons comme hypothèse que le spectre $A(\omega)$ de chaque attoseconde est identique, et nous modulons les intensités respectives de chaque spectre attoseconde à l'aide de la fonction $a_n = \exp(-bn^2/2\tau_L^2)$, qui reprend la forme de l'enveloppe laser, corrigée d'un facteur de non-linéarité b. La forme du spectre attoseconde est choisie, soit arbitrairement ($A(\omega) = 1$ par exemple), soit à partir des spectres expérimentaux. On reconstruit le champ E(t) en effectuant la transformée de Fourier du spectre calculé.

3.6 Conclusion

Cette partie décrit donc les moyens expérimentaux et numériques mis au point pour réaliser, caractériser et analyser la génération de rayonnement harmonique sur miroir plasma, avec un laser haute-cadence, d'énergie modeste (1 mJ), accordable en durée (30 ou 5 fs) et stabilisé en phase. En tirant profit du filtrage spatial du front d'onde laser dans la fibre creuse, nous avons opté pour des paraboles de grande qualité offrant de grandes ouvertures numériques sans détérioration du front d'onde, afin d'atteindre une intensité sur cible satisfaisante malgré une énergie par impulsion modeste.

Pour permettre la génération d'harmoniques sur cible solide à haute cadence, nous avons également conçu un porte-cible original, que nous avons breveté (priorité n^o FR080058270), dont nous contrôlons la position en temps réel par interférométrie, et qui peut fonctionner selon deux modes : passif (310 nm rms) ou actif (47 nm rms).

Enfin, un modèle de l'interaction basé sur les trajectoires des électrons de Brunel sous l'effet du champ laser, est proposé pour interpréter les futurs résultats.

Chapitre 4

Génération d'harmoniques avec une impulsion laser de 10 cycles optiques

Nous avons démarré les premiers essais de génération d'harmoniques à très haute cadence en mars 2010, en utilisant le faisceau laser en impulsions longues, beaucoup moins contraignant que les impulsions de deux cycles optiques en termes de gestion du spectre et de compression, et ne nécessitant pas de stabilisation de la CEP. Au delà des problèmes inhérents au test d'un premier dispositif expérimental, nous avons tout de suite été confrontés à un problème de contraste laser. Le signal que nous détections sur le spectromètre était uniquement constitué de lignes d'émission plasma. De plus, le faisceau laser réfléchi par le plasma présentait une structure spatiale très instable, et bien plus divergente que prévu. Après une série de mesures de contraste à différents niveaux de la chaine, nous avons réussi à identifier la source de la dégradation du contraste (l'alignement du compensateur de Berek (Newport, n.d.) dans le premier étage d'amplification, qui laissait passer une fraction du train mégahertz résiduel de l'oscillateur, ce qui dégradait le contraste laser à l'échelle nanoseconde), les premières harmoniques de la Salle Noire furent observées.

Une fois le signal harmonique observé, nous nous sommes attelés à fiabiliser le dispositif expérimental, en automatisant la séquence d'acquisition des données et en optimisant les paramètres de l'interaction et de la mesure, comme la distance imposée entre chaque impact sur la cible et le nombre de tirs accumulés par spectre. Nous avons ensuite calibré le spectromètre, en longueur d'onde et en divergence, et mesuré sa résolution, puis nous nous sommes lancés dans la prise de mesures quantitatives, dont une partie est consignée dans ce chapitre. Toutes les mesures présentées dans ce chapitre ici ont été effectuées dans les deux conditions de focalisation décrites au Chapitre 3 : les intensités maximales obtenues sont $I_{max} = 8 \times 10^{17}\, W.cm^{-2}$ ($a_0 = 0.6$) et $8 \times 10^{16}\, W.cm^{-2}$ ($a_0 = 0.2$), et ces deux conditions de focalisation seront tracées en bleu pour la focalisation forte, et en rouge pour la focalisation faible. Par ailleurs, seuls les

potentiels vecteurs normalisés $a_0 = eE_L/\omega_L mc$ seront indiqués dans la suite.

Dans un premier temps, nous décrivons les caractéristiques de la source harmonique directement mesurables que sont son spectre, son efficacité et sa divergence. L'émission présente un spectre harmonique, exponentiellement décroissant, avec un maximum autour de l'harmonique 19 et une efficacité de conversion atteignant 3×10^{-6}. La source délivre donc un puissance moyenne de $3\,\mu W$. La divergence se situe autour de 10 % de la divergence laser.

Dans un second temps, nous nous concentrons sur l'étude de la phase harmonique, appelée « chirp femtoseconde », à travers la structure des harmoniques. Tout d'abord, nous nous appuyons sur le modèle, qui donne le chirp femtoseconde grâce au calcul des temps d'émission, pour comprendre l'effet des paramètres de l'interaction sur le spectre harmonique. Puis nous décrivons le résultat de différentes études paramétriques et qui ont donné l'occasion d'une première validation du modèle. Enfin, nous présentons comment l'expérience et le modèle convergent pour donner l'accès à une donnée inconnue lors de l'interaction d'un laser avec un plasma : la longueur de gradient. Nous analysons enfin la vitesse d'expansion du gradient de densité dans une expérience de type pompe-sonde, où une impulsion pompe déclenche l'expansion, et une impulsion sonde vient générer l'émission harmonique sur le plasma en expansion, dont le spectre contient l'information sur l'état du gradient lors de l'interaction avec l'impulsion sonde.

4.1 Caractérisation générale de la source harmonique

4.1.1 Spectre et fréquence de coupure

Nous présentons ici deux exemples typiques de spectres harmoniques obtenus en intégrant 100 tirs consécutifs, pour $a_0 = 0.6$ et $a_0 = 0.2$, avec une impulsion de $1\,mJ$ et de $28\,fs$. Tout d'abord, un mot sur l'obtention du spectre. Comme nous l'avons vu dans la Partie 3.4.3, notre spectromètre est non-imageur, c'est-à-dire qu'il refocalise le signal dans le plan sagittal (le plan de diffraction du réseau) mais laisse le faisceau se propager dans le plan tangentiel, afin de pouvoir mesurer sa divergence. Pour obtenir le spectre réel, il faut donc intégrer le signal obtenu sur le détecteur dans le plan tangentiel. Le spectre présenté en Figure 4.1 n'intègre le signal que sur la partie centrale du faisceau, sur une divergence inférieure à 8 mrad (demi-angle à mi-hauteur en intensité), pour des questions de simplicité : l'objectif ici est de présenter un spectre typique, de façon qualitative.

Ce spectre comporte des maxima très marqués autour des harmoniques de la pulsation laser, ce qui est caractéristique du spectre d'un train d'impulsions espacées dans le temps de $\approx 2\pi/\omega_L$. Ces harmoniques sont plutôt fines et bien contrastées, ce qui indique a priori que le

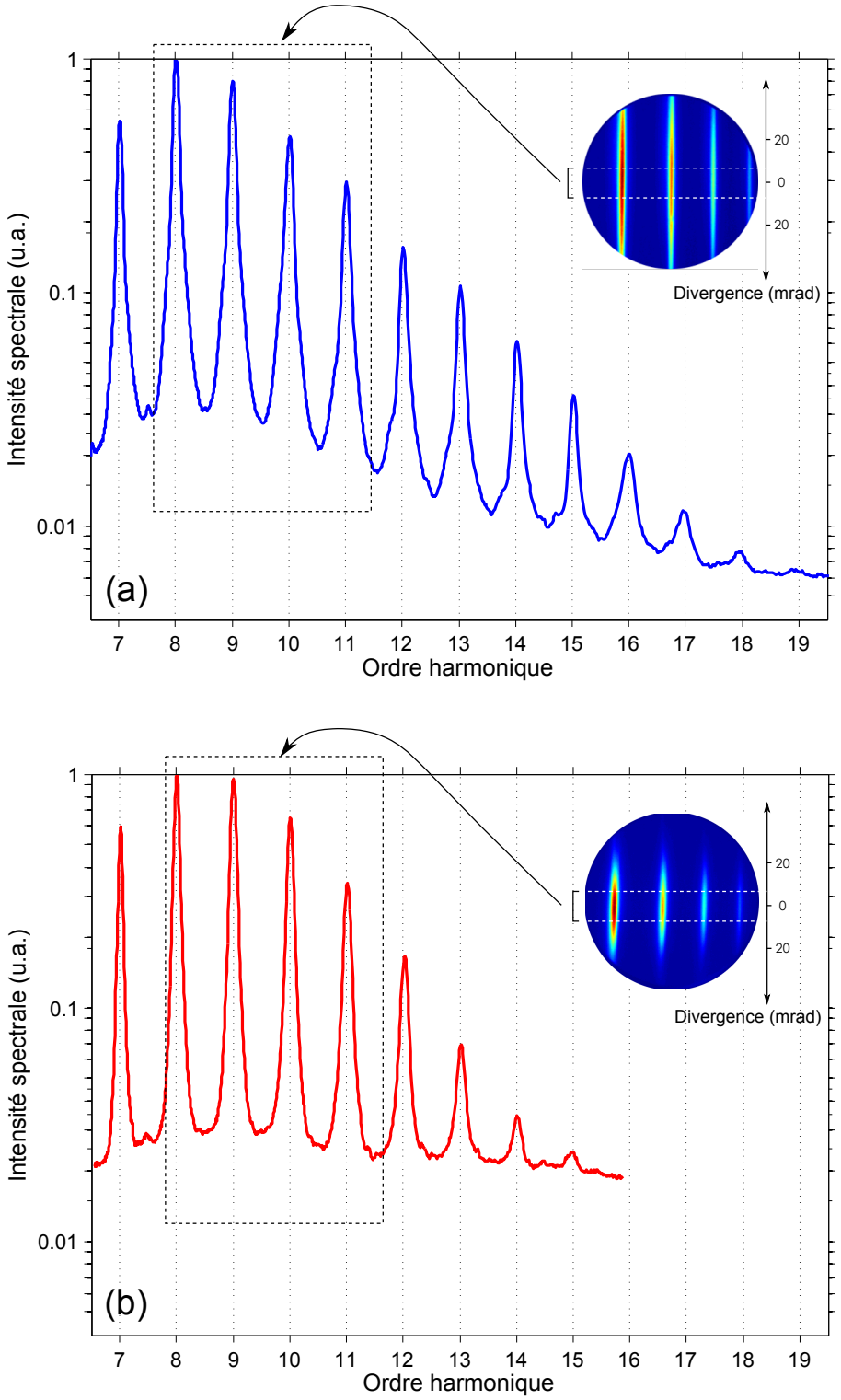

FIGURE 4.1 – *Spectres du signal harmonique,* pour des amplitudes laser de $a_0 = 0.6$ (a) et $a_0 = 0.2$ b). Spectres obtenus en intégrant la partie centrale du faisceau harmonique dans le plan tangentiel (voir inserts)

nombre d'impulsions attosecondes est conséquent. Il s'étend de l'harmonique 7 à l'harmonique 19. La décroissance du spectre pour les harmoniques basses correspond à la chute de la réponse spectrale de la MCP (dont les atomes de la surface ne sont photo-ionisés que pour des longueurs d'onde inférieures à $120\,nm$), et ne représente pas la physique de l'interaction. En revanche, la coupure du spectre, située autour de l'harmonique 19 est une caractéristique de l'émission cohérente de sillage : en effet, on a vu précédemment que le signal harmonique prenait sa source dans le gradient de densité électronique, et que chaque composante ω du spectre harmonique était générée par la zone du gradient de densité $n_e = \omega^2 m\epsilon_0/e^2$. Ainsi, la valeur maximum que l'on peut observer dans le spectre harmonique correspond à la fréquence plasma associée à la plus grande densité électronique dans le gradient de densité. Or, nous tirons sur des cibles en silice (SiO_2), dont la densité vaut 2.2. Si on considère que la cible est totalement ionisée par le champ laser, cela mène à une densité électronique maximum de 5×10^{23} électrons.cm^{-3}, correspondant à une fréquence plasma maximum de 20 fois la fréquence laser. Ceci est cohérent avec les spectres que nous avons obtenus, qui ne dépassaient jamais l'harmonique 19 : ceci constitue un premier indice dans l'identification du mécanisme de génération. L'identification formelle de l'émission cohérente de sillage comme processus de génération nous permettra d'ailleurs de conclure ici que notre plasma est presque totalement ionisé par le champ du laser.

4.1.2 Efficacité de conversion

Une caractéristique importante d'une source de rayonnement est son efficacité de conversion. N'ayant pas eu la possibilité de faire une mesure directe de puissance du signal (avec une photodiode calibrée ou une caméra CCD X par exemple), nous avons cependant estimé l'efficacité de conversion photon-photon du mécanisme. Il s'agit donc, à partir du signal mesuré sur la caméra, de remonter à l'énergie des harmoniques en estimant la « fonction de transfert » spectrale de chaque élément qui compose le spectromètre.

L'information physique du signal harmonique dont nous disposons est le nombre de comptes mesuré sur la caméra. On peut tout d'abord remonter aux nombres de photons émis par l'écran phosphore, en tenant compte du nombre de tir accumulés lors de l'acquisition, la conversion analogique-numérique et l'efficacité quantique de la caméra, la collection du système optique d'imagerie, ainsi que les pertes dues aux transmissions à travers les éléments optiques (hublots, lentilles et iris de l'objectif). Ensuite, on estime le nombre de photons XUV émis en évaluant l'efficacité de conversion électron-photon de l'écran phosphore, le gain de la MCP pour les tensions appliquées, l'efficacité quantique photon harmonique-photoélectron de la MCP, ainsi que l'efficacité de réflexion et de diffraction du réseau.

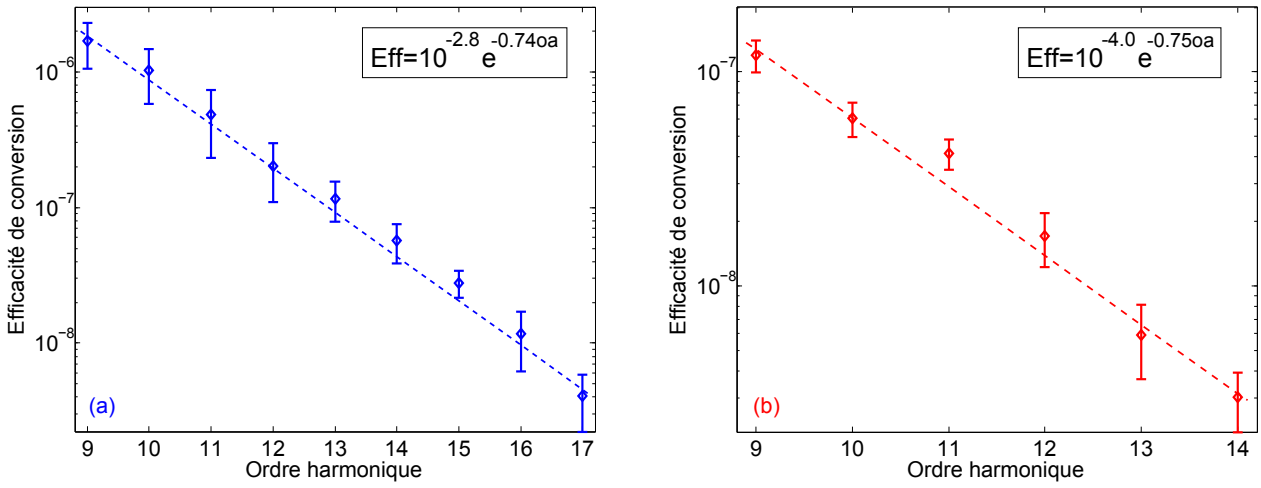

FIGURE 4.2 – *Efficacité de conversion en fonction de l'ordre harmonique* pour des amplitudes laser de $a_0 = 0.6$ (a) et $a_0 = 0.2$ (b). Les efficacités présentent un profil de décroissance exponentielle par rapport à l'ordre harmonique. Les équations des ajustements exponentiels sont insérées sur les graphes.

L'efficacité de conversion photon laser-photon XUV est présentée en Figure 4.2. Pour une amplitude laser de $a_0 = 0.6$, on mesure une efficacité de conversion de 1.6×10^{-6} pour l'harmonique 9 et de 4.1×10^{-9} pour l'harmonique 17. L'efficacité globale pour les harmoniques 9 à 17 est supérieure 3×10^{-6}. Nous proposons un ajustement exponentiel de la décroissance de l'efficacité de conversion avec l'ordre harmonique : eff $\approx 10^{-2.8} e^{-0.74oa}$. Pour une amplitude laser de $a_0 = 0.2$, on mesure une efficacité de conversion de 1.3×10^{-7} pour l'harmonique 9 et de 3.0×10^{-9} pour l'harmonique 14. L'efficacité globale est supérieure 3×10^{-7}. L'ajustement exponentiel de la décroissance de l'efficacité de conversion avec l'ordre harmonique donne eff $\approx 10^{-4.0} e^{-0.75oa}$.

On peut noter ici que le profil de densité du plasma est lui aussi probablement exponentiel (voir Partie 2.1.1), et par là-même le profil de pulsation plasma en fonction de la profondeur dans le gradient. On peut donc penser qu'il y a une relation forte entre le profil du gradient et la décroissance du spectre harmonique, comme le suggère Dromey *et al* (Dromey *et al.*, 2009) en étudiant la modification du spectre due à l'écrasement du plasma par la force pondéromotrice du laser.

4.1.3 Divergence du faisceau

La divergence est mesurée à l'aide du spectromètre non-imageur. En effet, la partie tangentielle du faisceau continue à diverger après la diffraction sur le réseau jusqu'au détecteur (voir Partie 3.4.3). On obtient ainsi les divergences de chaque composante du spectre : celles-ci sont présentées sur la Figure 4.3. On définit ici la divergence comme le demi-angle de l'angle solide ayant le point source comme sommet et comme base la largeur à mi-hauteur en intensité de l'harmonique en champ proche.

Dans le cas où la source harmonique est générée pour $a_0 = 0.6$ (à l'aide du faisceau laser fortement focalisé de divergence égale à 93 mrad), on observe une divergence du signal harmonique comprise entre 8 et 16 mrad selon l'ordre harmonique (Figure 4.3(a)). Lorsque l'amplitude du champ laser vaut $a_0 = 0.2$ (focalisation plus lâche telle que la divergence laser vaut 28 mrad), la divergence se situe entre 4 et 7 mrad (Figure 4.3(b)). La source harmonique est donc plus de 6 fois moins divergente que le laser en cas de focalisation forte, et plus de 4 fois moins divergente en cas de focalisation plus lâche. La relation « divergence laser-divergence harmonique » est présentée sur les Figures 4.3(c) et (d), illustrant le fait que le faisceau harmonique est bien plus collimaté que le laser générateur.

4.2 Influence des paramètres sur la dynamique de l'interaction

La partie précédente présentait les caractéristiques générales de la source, c'est-à-dire la forme globale du spectre, l'efficacité de génération et la divergence de l'émission harmonique. Cette partie rentre dans les détails de la dépendance de la forme du spectre en fonction des paramètres de l'interaction. Nous avons en effet observé une très forte variabilité des structures spectrales (en particulier des largeurs harmoniques) lors des études paramétriques (intensité, phase laser, longueur de gradient plasma) que nous avons effectuées. Avec l'appui du modèle, nous avons attribué ces comportements à la variation des temps d'émission relatifs des différentes composantes du spectre de l'émission en fonction des paramètres de l'interaction.

Dans un premier temps, nous illustrerons à l'aide du modèle la relation qui lie entre elles les temps d'émission $\tau_n(\omega)$ des harmoniques de chaque impulsion attoseconde n [1]. Ces temps

1. Parler de temps d'émission d'une fréquence est un abus de langage puisque une onde plane monochromatique a une extension temporelle infinie. Il est en revanche possible de parler de temps d'émission des impulsions attosecondes du train (Quere *et al.*, 2008), qui sont elles localisées dans le temps. Mais cette définition a l'inconvénient de dépendre du contenu spectral que l'on regarde. Il est donc plus aisé de parler abusivement de temps

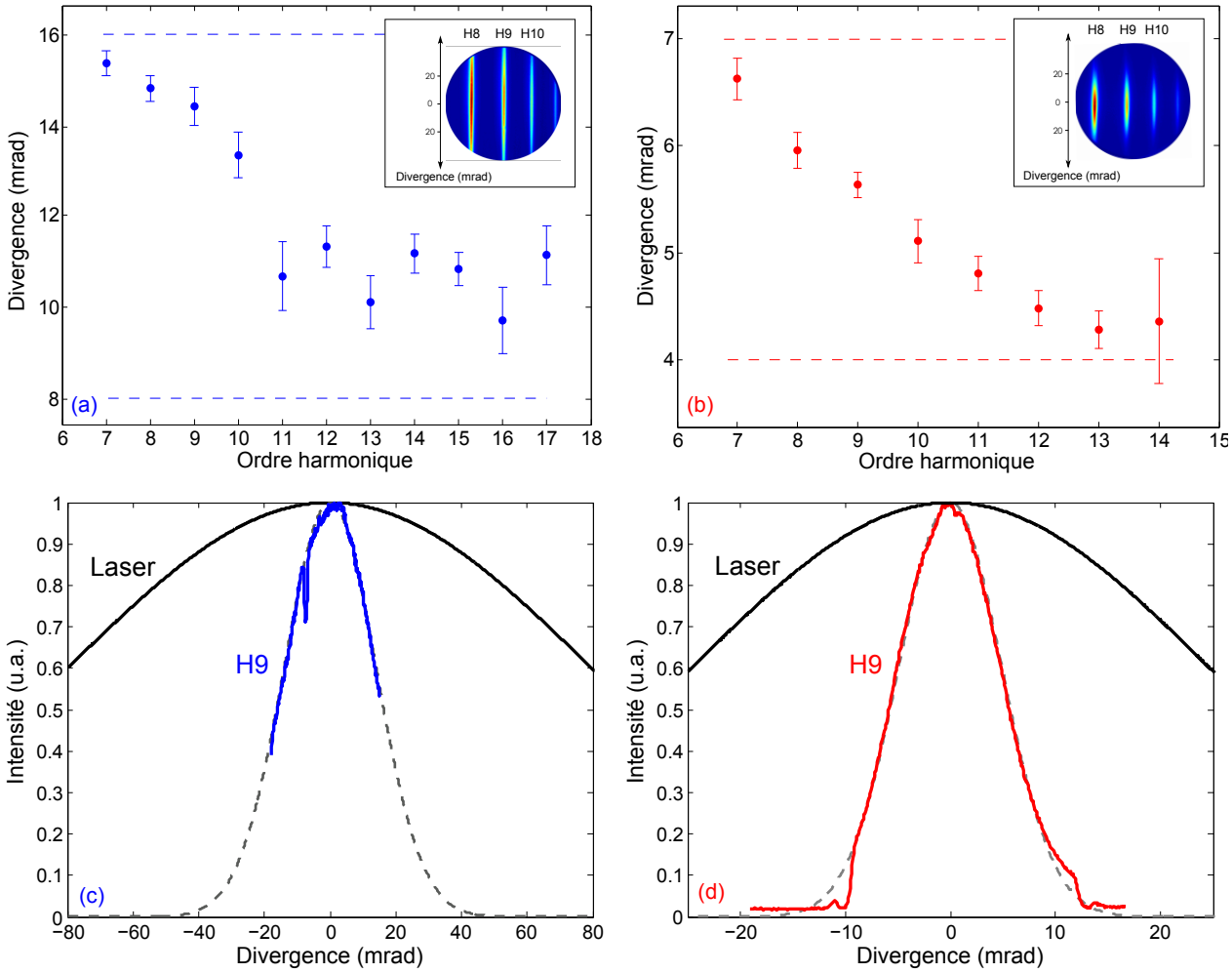

FIGURE 4.3 – *Divergence en fonction de l'ordre harmonique,* pour des amplitudes du champ laser de $a_0 = 0.6$ (a) et (c) et $a_0 = 0.2$ (b) et (d). (a) et (b) présentent la dépendance de la divergence en fonction de l'ordre harmonique et une image type du signal MCP en insert, (c) et (d) présentent le profil spatial de l'harmonique 9 (couleur), le fit gaussien (pointillé) et le profil spatial du laser (noir).

d'émission sont directement reliés (dans notre modèle) aux phases spectrales $\phi_n(\omega) = \omega\tau_n(\omega)$. Nous appellerons cette relation entre les temps d'émission « phase temporelle harmonique », ou encore « chirp femtoseconde ». Ces appellations, un peu abusives car il ne s'agit pas à proprement parler d'une fréquence instantanée qui varie dans le temps, permettent d'illustrer que les temps d'émission $\tau_n(\omega)$ de chaque fréquence ω générée par chaque cycle laser n ne sont pas égaux et ne sont pas parfaitement calqués sur la fréquence d'oscillation du laser. Ainsi, quand on dira par la suite que le chirp femtoseconde du train (ou la phase temporelle des harmoniques) est négatif, cela aura pour but d'illustrer que le retard entre deux impulsions attosecondes consécutives augmente le long du train (voir Figure 4.5). On pourra aussi parler de non-périodicité ou de dilatation du train attoseconde. Nous présenterons donc dans cette partie en quoi les paramètres de l'interaction modifient le chirp femtoseconde, et les conséquences de cela sur l'intensité spectrale du train attoseconde.

Dans un second temps, nous présenterons les résultats expérimentaux, dont nous tenterons d'expliquer qualitativement les tendances à la lumière du modèle.

Enfin, nous présenterons une analyse quantitative de ces résultats, par une confrontation expérience-modèle, qui permet de déterminer la longueur de gradient du plasma. Finalement, en effectuant une expérience pompe-sonde, nous explorerons l'expansion du plasma au cours du temps à travers l'analyse spectrale du signal harmonique.

4.2.1 Les prévisions du modèle théorique

Le Chapitre 3 présentait comment, à l'aide des trajectoires électroniques déterminées par le modèle de Brunel, on avait accès aux temps d'émission $\tau_{(n)}(\omega)$ associés à chaque cycle optique laser n. Ici, nous décrivons comment la relation de phase de ces temps d'émission, appelée « chirp femtoseconde » (car nous verrons que la différence temporelle $\Delta^{(n)}\tau(\omega) = T_L + \tau^{(n+1)}(\omega) - \tau^{(n)}(\omega)$ entre deux impulsions consécutives augmente avec n) dépend des paramètres de l'interaction tels que l'intensité laser ou la longueur de gradient, et comment ces paramètres modifient la structure spectrale du train attoseconde.

La non-périodicité du train attoseconde

Nous avons introduit le temps $\tau(\omega)$, correspondant au délai d'émission d'une composante du spectre harmonique ω par rapport au cycle optique générateur, que nous avons associé au temps de passage du pic de densité électronique dans la zone du plasma telle que $\omega_p = \omega$. Ici, nous étudions la dépendance de $\tau(\omega)$ selon l'amplitude du cycle optique. Sur la Figure 4.4(a), on représente un groupe d'électrons, accélérés par un cycle optique d'amplitude $a_0 = 0.7$, qui se

d'émission harmonique, ce qui permet en plus d'avoir accès au chirp attoseconde.

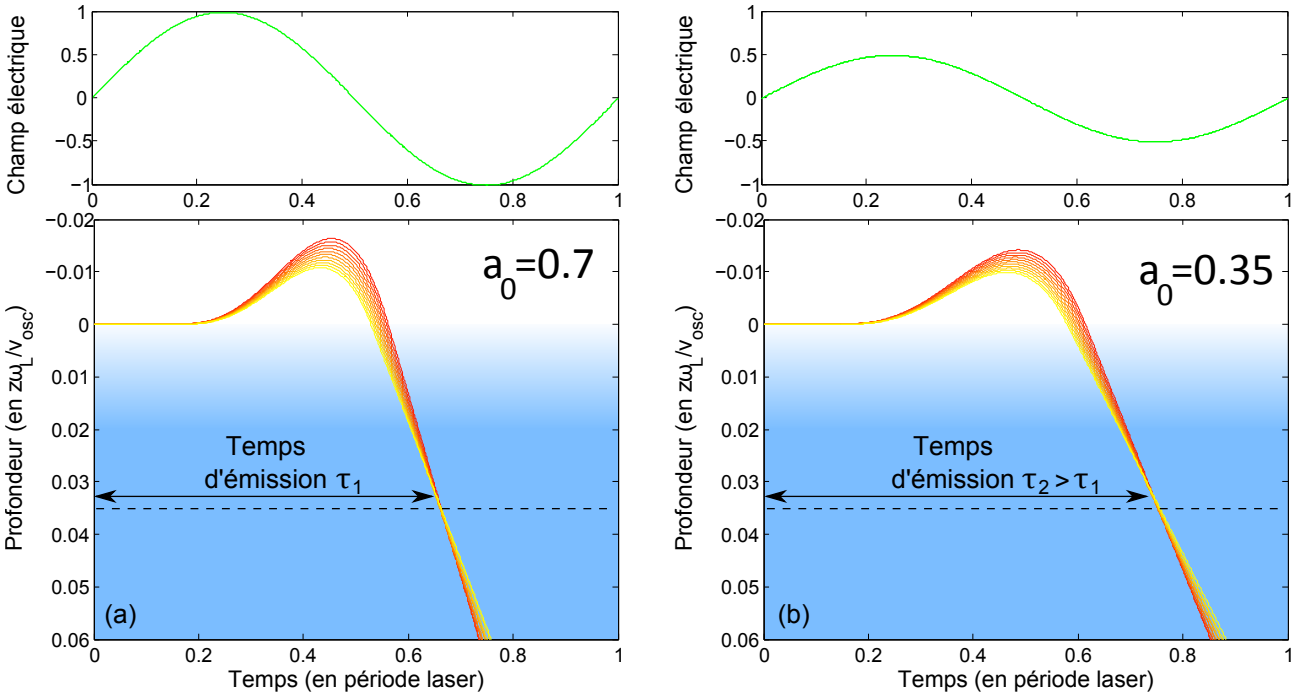

FIGURE 4.4 – *Temps d'émission pour deux cycles laser d'amplitudes différentes.* Trajectoires des électrons de Brunel impliqués dans la génération de l'harmonique 8 pour un gradient de $\lambda/100$ (a) comparées à celles générées par un cycle d'amplitude deux fois plus faible (b). On observe que plus l'amplitude du cycle optique laser est élevée, plus le temps d'émission est faible ($\tau_1 < \tau_2$). Les cycles optiques générateurs sont tracés en vert.

croisent à une certaine profondeur dans le gradient (correspondant à la zone $\omega_p = 8\,\omega_L$ pour un gradient de $\lambda/100$, c'est-à-dire la zone où l'harmonique 8 est émise). Ce temps de croisement est noté τ_1. Puis on compare ce temps τ_1 au temps d'émission τ_2 dans le cas où l'amplitude du cycle optique générateur $a_0 = 0.35$ est deux fois plus faible (voir Figure 4.4(b)). Ce temps τ_2 est supérieur à τ_1 de plus d'un dixième de période optique.

Ainsi, le temps d'émission de l'harmonique 8 au sein du cycle optique dépend de l'amplitude du cycle : plus l'amplitude est faible, et plus l'harmonique sera émise tard. Si on se place maintenant à l'échelle de l'impulsion laser, comprenant plusieurs cycles optiques dont l'amplitude est modulée par l'enveloppe laser, la phase temporelle femtoseconde présentera donc un écart à la périodicité du cycle laser. Et si on considère l'ensemble des pulsations du train attoseconde (qui présentent au premier ordre la même phase temporelle), le train d'impulsions attosecondes présente également cet écart à la périodicité. L'écart temporel entre chaque impulsion consécutive augmente donc tout au long du train.

La Figure 4.5(a) présente les temps d'émission (en unité de période laser) de l'harmonique

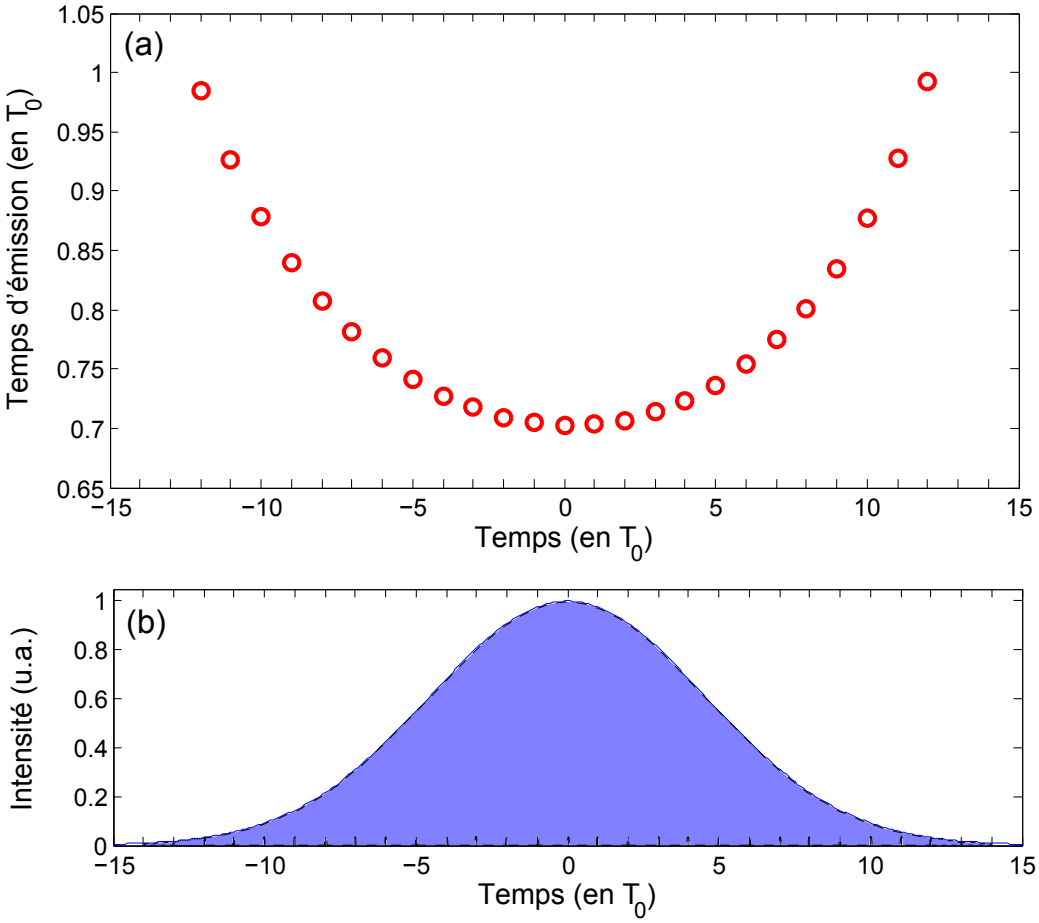

FIGURE 4.5 – *Temps d'émission de l'harmonique 8 pour une impulsion laser de 30 fs,* $a_0 = 0.4$ *et* $L = \lambda/100$. Les cercles rouges correspondent aux temps d'émission $\tau_n(\omega = H8)$, exprimés en période optique, de l'harmonique 8, pour chaque cycle optique n (a). Les temps d'émission sont élevés au début de l'impulsion laser, puis diminuent quand on s'approche du maximum, et finalement augmentent vers la fin de l'impulsion laser. L'harmonique 8 présente donc un chirp temporel négatif. L'enveloppe de l'intensité de l'impulsion laser est représentée en (b)

8 en fonction du numéro du cycle générateur. Les temps d'émission sont comptés à partir du temps d'arrachage du premier électron de Brunel. La simulation est faite pour une impulsion de 30 fs, a_0=0.4, une longueur de gradient de L=$\lambda/100$, et les temps d'émission correspondent à ceux de l'harmonique 8. On voit que le temps d'émission est d'autant plus long que l'amplitude du cycle optique générateur est faible. Ce sont donc les parties périphériques du train attoseconde qui s'écartent le plus de la périodicité. Comme l'écart temporel entre deux temps d'émission $\Delta^{(n)}\tau(\omega) = T_L + \tau^{(n+1)}(\omega) - \tau^{(n)}(\omega)$, augmente avec n, on parle de chirp femtoseconde (négatif) pour désigner la non-périodicité des temps d'émission.

La dépendance en éclairement et longueur de gradient

La forme de la courbe en U des temps d'émission, ou plutôt sa pente, quantifie le chirp femtoseconde. Cet écart à la périodicité, ainsi que l'enveloppe définissant les intensités relatives au sein du train (voir la partie suivante), influe sur la forme du spectre harmonique. Or cet écart dépend des conditions d'interaction, notamment de l'intensité du laser générateur et de la longueur de gradient.

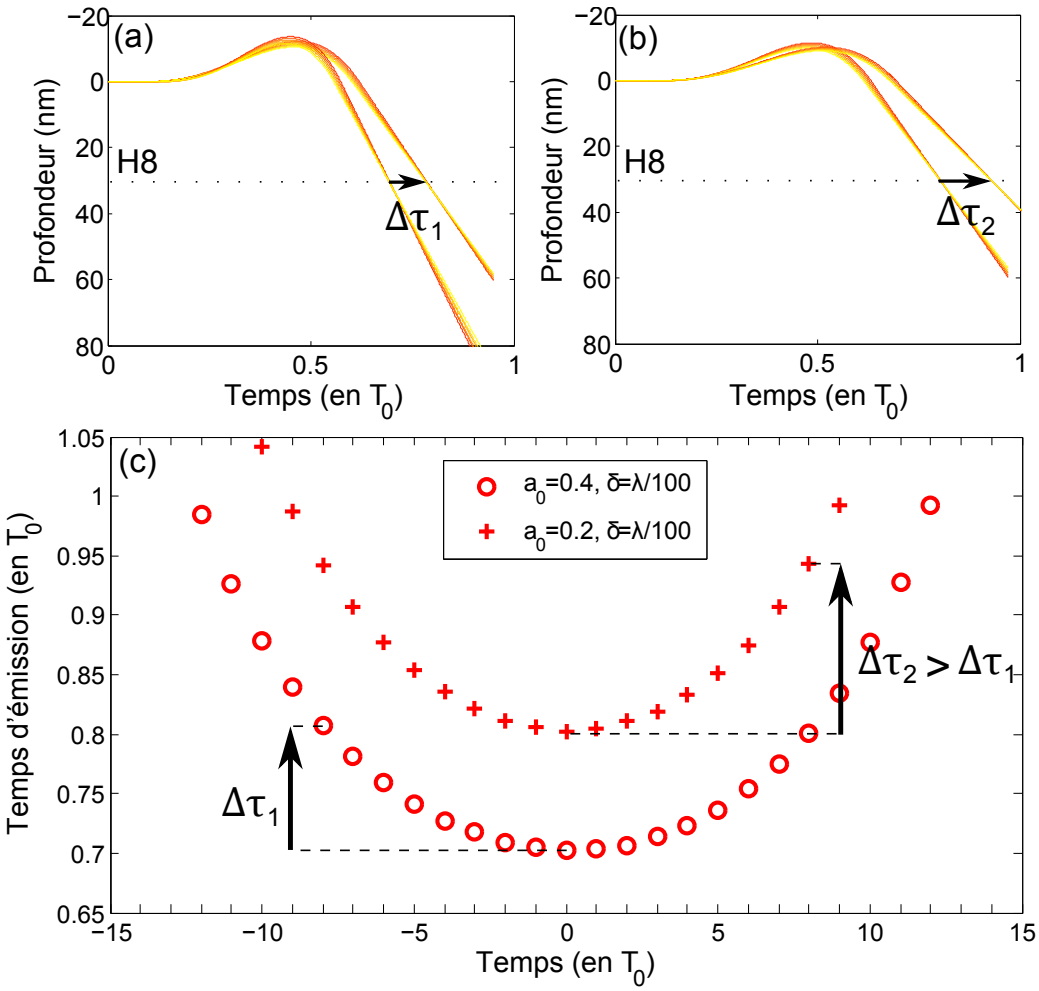

FIGURE 4.6 – *Dépendance de la courbe des temps d'émission avec l'intensité laser.* Différence de retard d'émission de l'harmonique 8 entre le maximum et la mi-hauteur de l'enveloppe laser, pour $a_0 = 0.4$ (a) et pour $a_0 = 0.2$ (b). Cette différence s'accentue ($\Delta\tau_2 > \Delta\tau_1$) quand l'intensité laser diminue. Courbes des temps d'émission du train attoseconde pour $a_0 = 0.4$ (rond) et pour $a_0 = 0.2$ (croix). La simulation est réalisée pour un gradient de $\lambda/100$.

La Figure 4.6(c) montre l'effet de l'intensité sur les temps d'émission. La courbe en « rond » correspond aux temps d'émission de l'harmonique 8 générée par une impulsion laser d'inten-

sité de a_0=0.4 et un plasma de longueur de gradient de $\lambda/100$ (conditions 1). La courbe en « croix » correspond à une intensité de a_0=0.2 et une longueur de gradient toujours de $\lambda/100$ (conditions 2). On observe déjà qu'au premier ordre, les temps d'émission sont tous allongés lorsque l'intensité est diminuée, ce qui entraine une translation de la courbe vers les temps plus longs. Mais plus précisément, l'allongement du temps d'émission est plus prononcé pour les zones périphériques que pour les zones centrales du train, i.e. $\Delta\tau_2 > \Delta\tau_1$, où $\Delta\tau_1$ et $\Delta\tau_2$ sont la différence de temps d'émission entre le centre de l'impulsion laser et sa mi-hauteur.

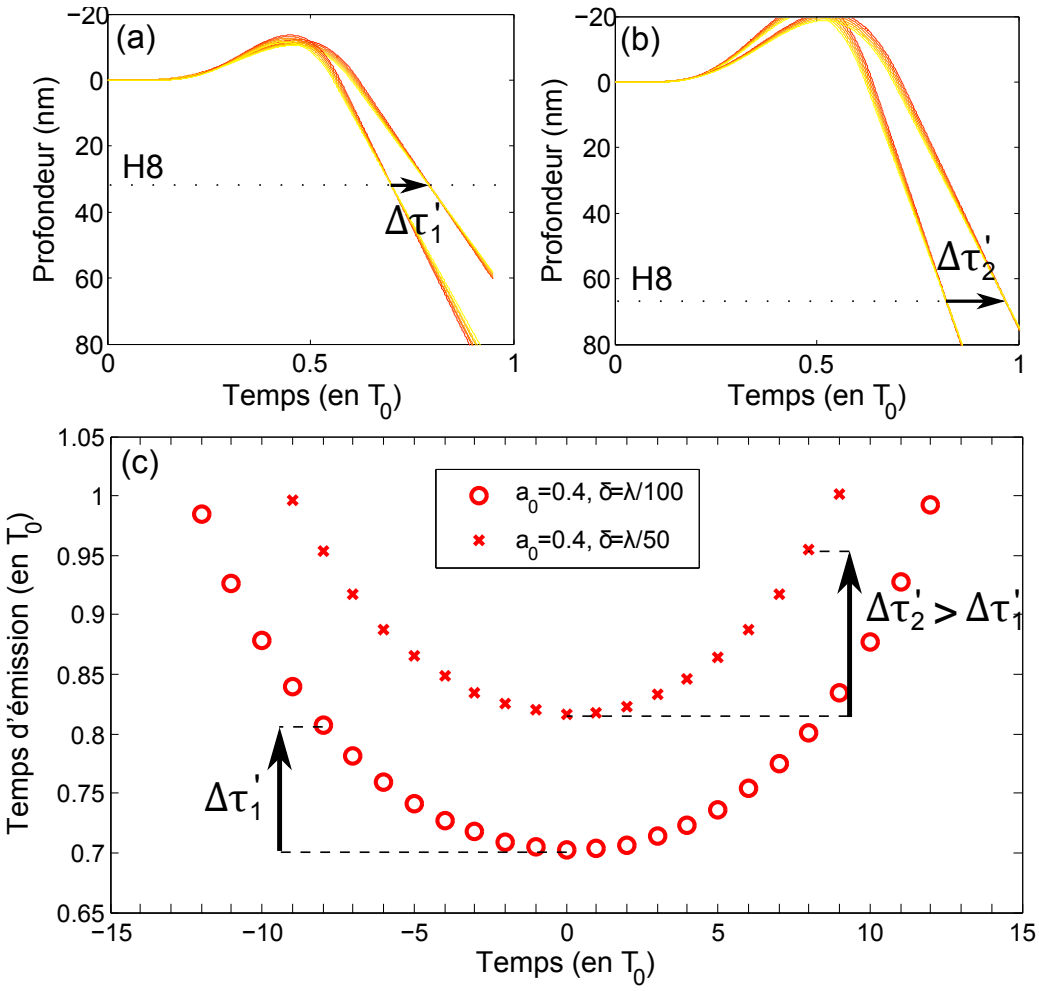

FIGURE 4.7 – *Dépendance de la courbe des temps d'émission avec la longueur de gradient.* Différence de retard d'émission de l'harmonique 8 entre le maximum et la mi-hauteur de l'enveloppe laser, pour $L = \lambda/100$ (a) et pour $L = \lambda/50$ (b). Cette différence s'accentue ($\Delta\tau_2' > \Delta\tau_1'$) quand la longueur de gradient augmente. Courbes des temps d'émission du train attoseconde pour $L = \lambda/100$ (rond) et pour $L = \lambda/50$ (croix). La simulation est réalisée pour une intensité laser $a_0 = 0.4$

Cet effet est illustré par les Figures 4.6(a) et (b) : les trajectoires des électrons de Brunel pilotées par le cycle optique situé au maximum de l'enveloppe (T=0) et le cycle optique situé à

mi-hauteur en intensité, sont représentées en (a) (condition 1) et (b) (condition 2). L'inégalité $\Delta\tau_2 > \Delta\tau_1$ y est illustrée. Ainsi, la pente de la courbe des temps d'émission est plus forte quand l'intensité est plus faible : le train attoseconde est d'autant plus apériodique que l'intensité laser est faible.

La Figure 4.7 montre quant à elle l'effet du gradient sur les temps d'émission. La courbe en « rond » correspond aux temps d'émission du train attoseconde généré par une impulsion laser d'intensité de $a_0 = 0.4$ et un plasma de longueur de gradient de $\lambda/100$. La courbe en « croix » correspond à une intensité identique de $a_0 = 0.4$ et une longueur de gradient deux fois plus grande, de $\lambda/50$. De la même façon, les temps d'émission sont tous augmentés lorsque le gradient est allongé, et la courbe en U est plus fermée : $\Delta\tau_2' > \Delta\tau_1'$. Ainsi, quand on augmente la longueur de gradient, on augmente le chirp femtoseconde de l'harmonique.

Effet de la non-périodicité du train attoseconde sur le spectre harmonique

Le spectre de l'émission est le résultat des interférences des composantes spectrales de chacune des impulsions attosecondes du train. Si chacune des impulsions attosecondes possède un spectre continu, qui s'étend de ω_L à $\omega_{max} = \sqrt{n_{e,max}e^2/m\epsilon_0}$, le spectre du train (celui que nous mesurons) est modulé par la superposition de ces spectres continus associés à chaque impulsion attoseconde ayant une phase propre. Dans le cas où ces phases sont identiques d'une impulsions attosecondes à l'autre ($\tau_n(\omega) = \tau_m(\omega)\ \forall n, m, \omega$), on observera un spectre avec des pics harmoniques dont la largeur spectrale sera inversement proportionnelle à la durée du train attoseconde. En revanche, dans le cas de l'émission cohérente de sillage, ces phases ne sont pas identiques, ce qui modifie la structure du spectre.

Pour comprendre l'effet de la structure temporelle du train attoseconde sur le spectre mesuré, il faut considérer l'effet de la non-périodicité du train ainsi que son enveloppe temporelle (voir Figure 4.8). La non-périodicité du train entraine un élargissement spectral des harmoniques, par rapport aux harmoniques d'un train périodique. On peut comprendre cela avec les mains en remarquant que si la partie centrale du train harmonique (la plus intense) bat à la période laser et définit la structure globale du spectre (notamment le fait que les harmoniques soient des multiples de la pulsation laser), les parties périphériques, qui battent à une période un peu inférieure (tête du train) et un peu supérieure (queue du train), contribuent au spectre en introduisant des pulsations supplémentaires autour des pics harmoniques. Ceci entraine un élargissement des pics harmoniques, cet élargissement est d'autant plus grand que l'ordre harmonique est élevé.

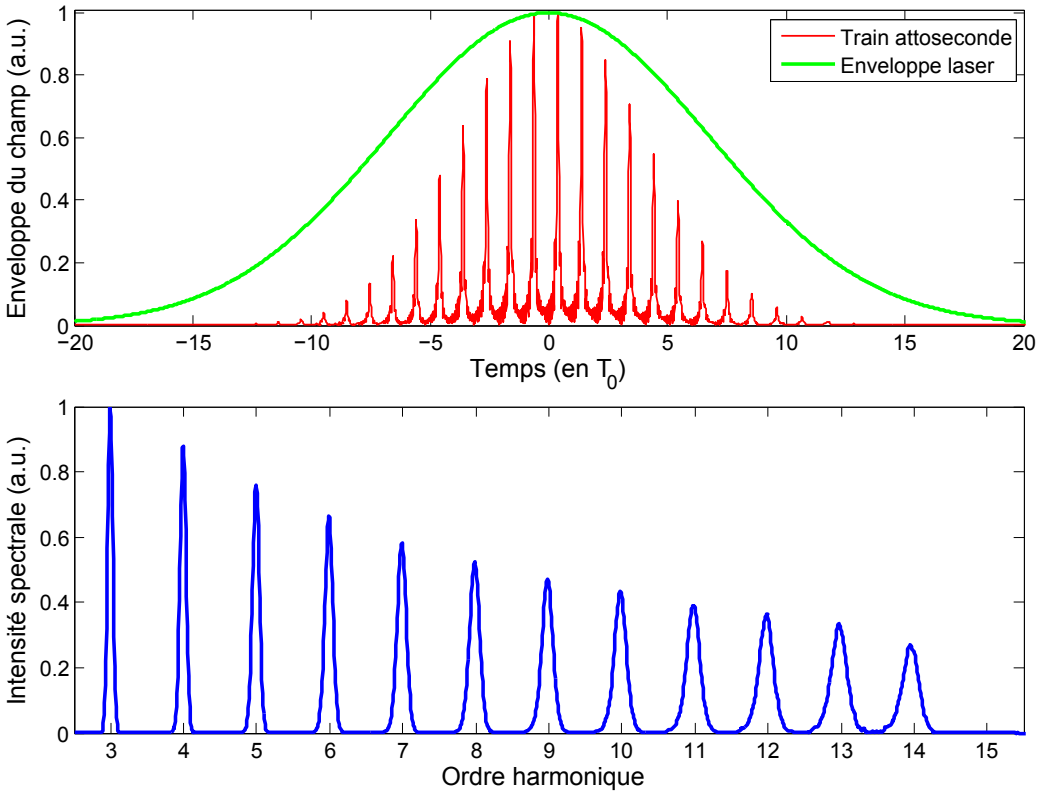

FIGURE 4.8 – *Chirp femtoseconde et élargissement des harmoniques.* La distorsion temporelle d'un train d'impulsions attosecondes ayant le même spectre entraine un élargissement des harmoniques, d'autant plus marqué que l'ordre harmonique est élevé. Par comparaison, un train régulier d'impulsions aurait des largeurs harmoniques plus faibles et constantes avec l'ordre.

La Figure 4.8 montre le train attoseconde généré par une impulsion de 30 fs d'intensité $a_0 = 0.4$, ainsi que son spectre, calculés par le modèle. Le gradient vaut $L = \lambda/100$ et le paramètre de non-linéarité, qui définit l'enveloppe du train par rapport à celle du laser (voir Partie 3.5), vaut $b = 3$. On observe sur cette simulation l'élargissement spectral des pics harmoniques, augmentant avec l'ordre harmonique, conformément à l'analyse qualitative précédente. Il faut noter ici l'importance du paramètre non-linéaire b. En effet, lorsque celui-ci est élevé, il va réduire l'intensité des zones périphériques du train par rapport à la zone centrale, et ainsi diminuer l'impact sur le spectre de la non-périodicité du train. L'« effet CWE » sera réduit.

En résumé, les paramètres importants de l'interaction, modulant la non-périodicité et l'enveloppe du train harmonique, sont l'intensité, le gradient et la paramètre non-linéaire b. Une intensité forte, un gradient court et une forte non-linéarité produiront un train presque périodique, et d'enveloppe temporelle courte : les harmoniques seront étroites. A l'inverse, une intensité plus faible, un gradient plus long et une faible non-linéarité produiront un train très apériodique, et des pics harmoniques larges, voire déstructurés.

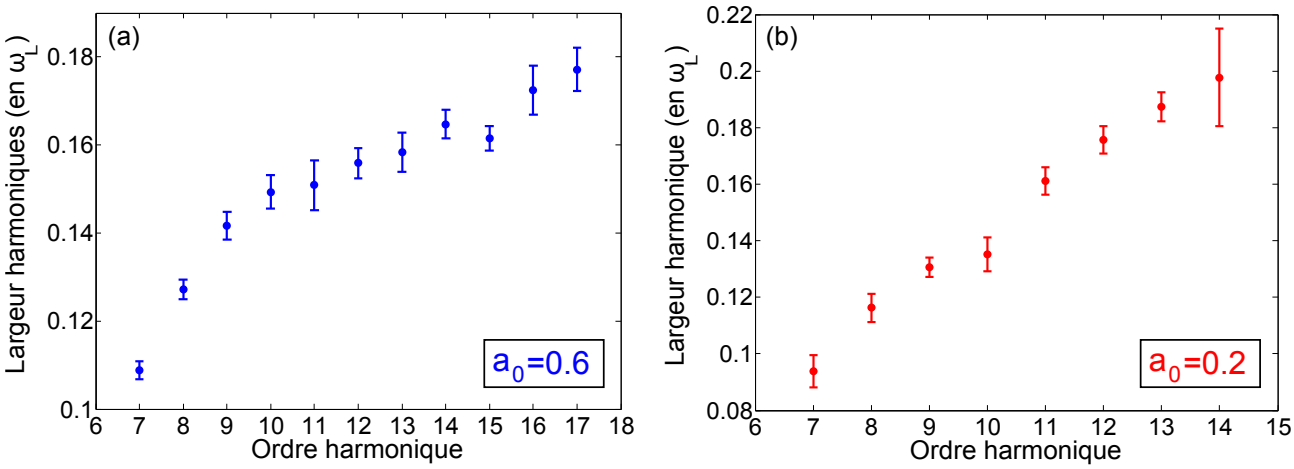

FIGURE 4.9 – *Mesure de la largeur harmonique en fonction de l'ordre harmonique pour* $a_0 = 0.6$ *(a) et* $a_0 = 0.2$ *(b).* Les largeurs harmoniques sont exprimées en fraction de ω_L.

4.2.2 Résultats expérimentaux

Pour éprouver la validité du modèle théorique, nous avons mené une série de mesures du spectre harmonique, dans les deux conditions de focalisation présentées précédemment. L'objectif est de pouvoir observer des variations de largeurs harmoniques avec les paramètres de l'interaction et valider l'idée selon laquelle le chirp femtoseconde des temps d'émission a un effet prépondérant sur la structure spectrale harmonique.

Largeur d'harmonique en fonction de l'ordre

La première manifestation de la non-périodicité des temps d'émission est l'élargissement des pics harmoniques en fonction de l'ordre. La Figure 4.9 présente la dépendance des largeurs harmoniques en fonction de l'ordre, pour deux conditions de focalisation laser différentes, $a_0 = 0.6$ et $a_0 = 0.2$. Les largeurs harmoniques sont exprimées en fraction de pulsation laser.

Comme le montre les résultats expérimentaux, on observe bien un net élargissement des pics harmoniques en fonction de l'ordre, pour les deux conditions d'intensité. On observe aussi que les largeurs harmoniques augmentent plus vite dans le cas où l'intensité est plus faible ($a_0 = 0.2$), passant de $0.1\,\omega_L$ pour H7 à $0.2\,\omega_L$ pour H14, alors qu'en focalisation forte, elles passent de $0.11\,\omega_L$ pour H7 à $0.16\,\omega_L$ pour H14. On peut attribuer ce comportement différent au fait que les intensités soient différentes. En effet, en supposant un gradient et une non-linéarité identiques dans les deux conditions, la focalisation forte génère un train attoseconde moins apériodique que pour la focalisation faible, ce qui explique pourquoi les largeurs harmoniques augmentent moins vite avec l'ordre harmonique.

Cependant, cette première explication n'est pas suffisante. En effet, on observe que pour H7, la largeur harmonique est plus faible ($0.1\,\omega_L$) pour $a_0 = 0.2$ que pour $a_0 = 0.6$, valant alors $0.11\,\omega_L$. Ceci invalide les hypothèses d'une longueur de gradient et d'une non-linéarité identique pour les deux conditions de focalisation. Cependant, on entrevoit ici que les degrés de liberté du modèle que sont la longueur de gradient et le paramètre non-linéaire (l'intensité, ainsi que la phase laser, sont supposés connus, avec l'aide de la métrologie laser adaptée) pourraient expliquer les comportements spectraux observés en salle d'expérience. Ceci fera l'objet de la Partie 4.2.3.

Largeurs d'harmoniques en fonction de l'intensité laser

Cette étude a pour objectif de mettre en lumière, à travers l'observation des largeurs harmoniques, la dépendance de la structure temporelle du train attoseconde en fonction de l'intensité laser. Pour cela, nous avons installé une lame demi-onde suivie d'un polariseur sur le trajet du faisceau, afin de pouvoir faire varier l'énergie laser indépendamment des conditions de compression et de focalisation.

Les résultats sont présentés sur la Figure 4.10, encore une fois pour les deux conditions de focalisation. Dans le cas de la focalisation forte (a), nous avons fait varier l'intensité de 1×10^{17} à $7 \times 10^{17}\,W.cm^{-2}$. Dans le cas de la focalisation faible, l'intensité a varié de 1×10^{16} à $6 \times 10^{16}\,W.cm^{-2}$. Les résultats concernent les largeurs de l'harmonique 8.

Encore une fois, on observe une forte dépendance des largeurs harmoniques aux paramètres d'interaction, ici lorsqu'on fait varier l'intensité laser par l'énergie : quand l'intensité laser augmente, les largeurs d'harmoniques décroissent. Ce comportement peut une fois de plus être expliqué par le modèle, car l'augmentation de l'intensité laser augmente la vitesse de retour des électrons de Brunel dans le plasma, et diminue par là-même les écarts de délais d'émission au sein du train attoseconde, réduisant ainsi son écart à la périodicité laser : en conséquence, les largeurs spectrales des pics harmoniques se réduisent.

Cette analyse qualitative est satisfaisante car elle explique le comportement général du spectre harmonique. Ainsi, augmenter l'intensité nivelle la non-périodicité du train attoseconde. Cependant, on peut penser que comme pour l'observation précédente, le gradient, et possiblement la non-linéarité du train attoseconde, varient selon les conditions de focalisation, et qu'ils jouent probablement un rôle dans l'analyse quantitative des résultats.

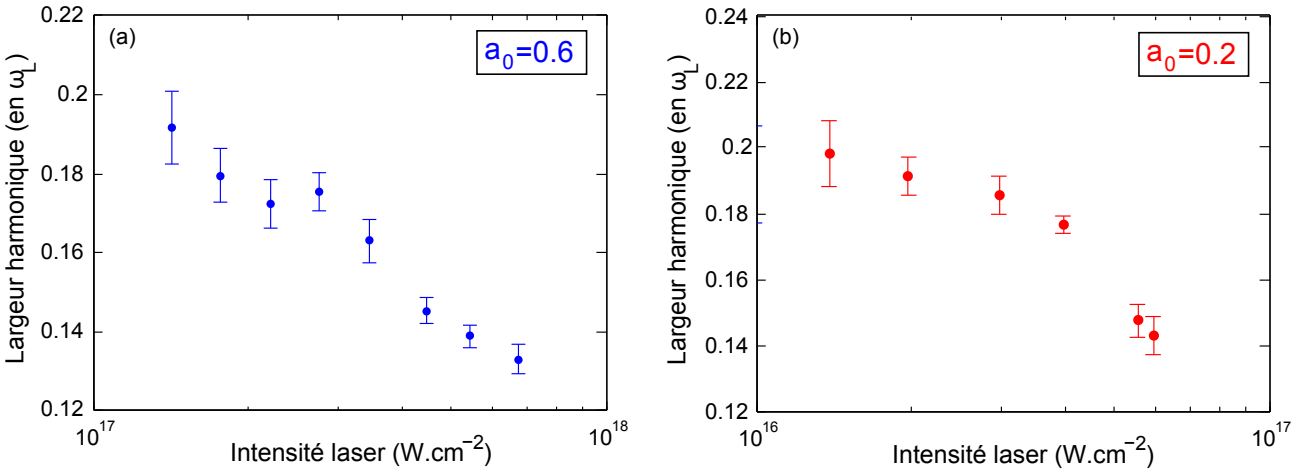

FIGURE 4.10 – *Mesure de la largeur spectrale de l'harmonique 8 en fonction de l'intensité laser pour* $a_0 = 0.6$ *(a) et* $a_0 = 0.2$ *(b).* Les largeurs harmoniques sont exprimées en fraction de ω_L.

Largeurs d'harmoniques en fonction du gradient

Pour éprouver l'influence du gradient sur les largeurs spectrales, et ainsi tenter de les interpréter à la lumière du modèle, nous avons mis en place un dispositif classiquement utilisé pour sonder les effets du gradient, à double impulsion, dont la première sert à déclencher l'ionisation du plasma ainsi que son expansion dans le vide, et la seconde, l'impulsion principale, vient interagir avec le plasma en expansion. L'écart temporel entre les deux impulsions, permettant de contrôler l'expansion du plasma, peut être choisi à l'aide d'une ligne à retard installée sur le trajet de la préimpulsion. Le dispositif expérimental est présenté dans le Chapitre 3

La Figure 4.11 présente la mesure de la largeur de l'harmonique 9 dans les deux cas de focalisation, forte et faible, en fonction du retard de l'impulsion principale par rapport à la préimpulsion. Ici, le retard temporel ne sera pas retranscrit en terme de longueur de gradient (voir pour cela la Partie 4.2.3), on considère seulement que la longueur de gradient augmente avec le retard, à cause de l'expansion du plasma dans le vide. Les données expérimentales montrent donc un net élargissement de l'harmonique 9 quand le retard entre les deux impulsions augmente. Ce résultat est une excellente confirmation de l'effet de la longueur de gradient sur la structure temporelle du train attoseconde. En effet, notre modèle prévoit une augmentation du chirp femtoseconde, c'est-à-dire une augmentation de la non-périodicité du train, lorsque le gradient s'allonge (voir Partie 4.2.1). Cette effet se traduit spectralement par un élargissement des harmoniques, ce qui est observé expérimentalement.

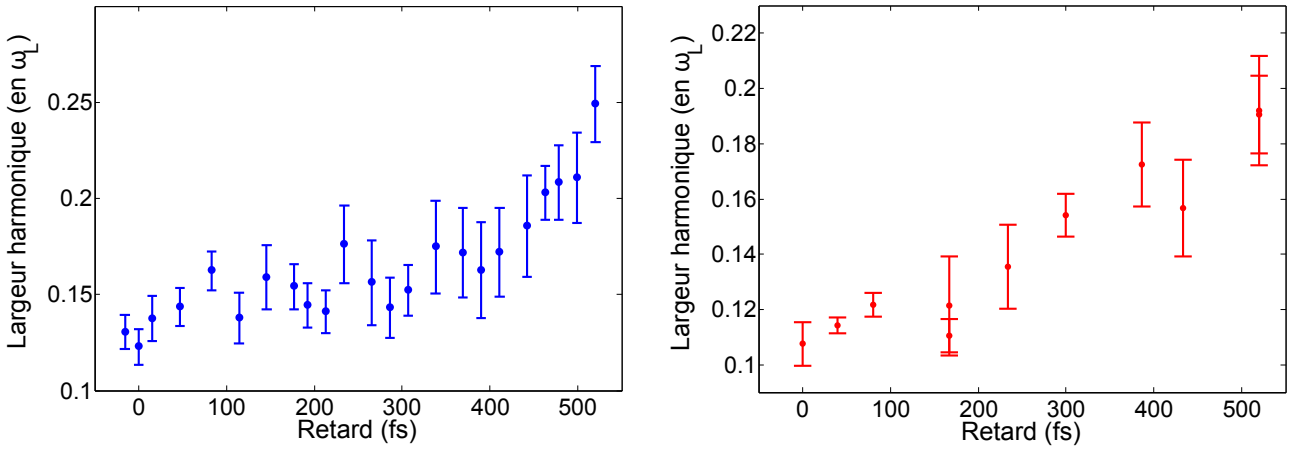

FIGURE 4.11 – *Mesure de la largeur spectrale de l'harmonique 9 en fonction du retard de l'impulsion sonde par rapport à l'impulsion pompe, pour* $a_0 = 0.6$ *(a) et* $a_0 = 0.2$ *(b).* Les largeurs harmoniques sont exprimés en fraction de ω_L.

Largeur d'harmonique en fonction du chirp laser

Un moyen très simple et direct a été proposé par Quéré et al (Quere *et al.*, 2008) pour illustrer le chirp femtoseconde du train attoseconde : utiliser le chirp du laser pour moduler le chirp femtoseconde des harmoniques. Contrairement aux expériences que nous avons proposées dans les parties précédentes, où nous jouions seulement sur le temps de croisement des électrons de Brunel dans le plasma, l'idée ici est de jouer sur le temps de lancement des électrons, en faisant varier la phase temporelle du laser. Comme le train attoseconde présente (au premier ordre) un chirp négatif (c'est-à-dire que les écarts entre les impulsions augmentent avec le temps), imposer un chirp positif au laser permettrait en théorie de compenser partiellement la non-périodicité du train, l'effet se traduisant sur le spectre par un rétrécissement des largeurs harmoniques. L'effet est forcement partiel, car moduler le chirp laser fait aussi varier l'amplitude des cycles optiques générateurs, ce qui aura pour conséquence de faire aussi varier les temps d'émission : l'effet de l'intensité s'ajoutera à l'effet de la phase temporelle laser.

Nous avons reproduit cette expérience, en mesurant la largeur de l'harmonique 8 en fonction du chirp ξ. Le contrôle du chirp laser s'est effectué à l'aide du Dazzler de la chaine. Les résultats sont présentés en Figure 4.12. Conformément aux résultats de (Quere *et al.*, 2008) et aux prédictions du modèle théorique, nous observons une dissymétrie de la largeur harmonique lorsque l'on varie le chirp laser : les harmoniques deviennent plus étroites lorsqu'on chirpe positivement, et plus larges lorsqu'on chirpe négativement. De plus, au delà d'une certaine valeur positive du chirp, les harmoniques s'élargissent de nouveau.

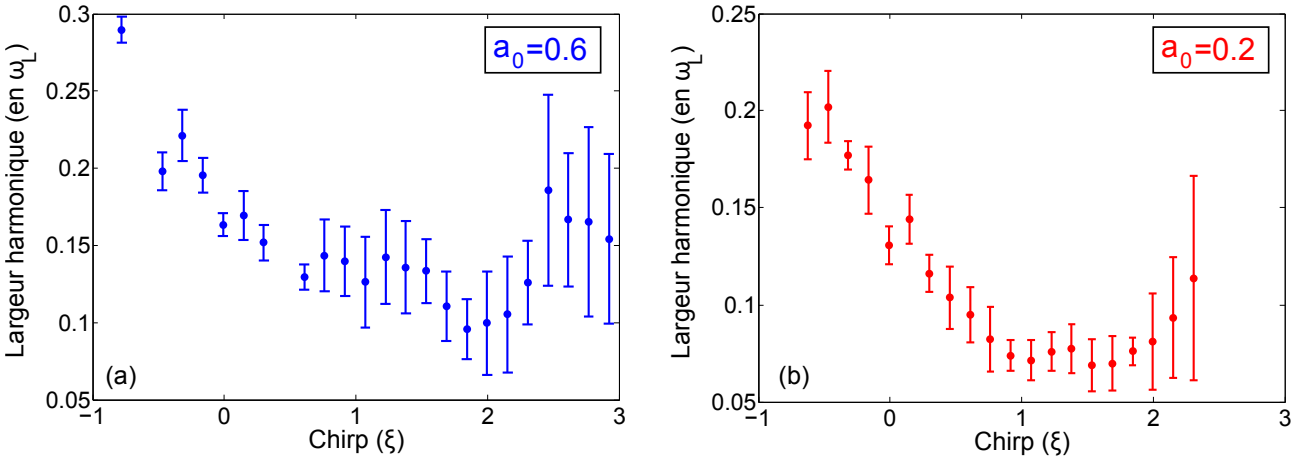

FIGURE 4.12 – *Mesure de la largeur spectrale de l'harmonique 8 en fonction de l'impulsion sonde par rapport à l'impulsion sonde, pour* $a_0 = 0.6$ *(a) et* $a_0 = 0.2$ *(b).* Les largeurs harmoniques sont exprimées en fraction de ω_L.

On assiste donc ici à une augmentation du chirp femtoseconde de l'harmonique 8 pour $\xi < 0$, une diminution pour $0 < \xi < 1.5$, un minimum du chirp harmonique pour $\xi \approx 1.5$, compensé par le chirp laser, puis de nouveau une augmentation pour $\xi > 1.5$, résultant alors d'un chirp harmonique positif. Cette analyse qualitative rend compte du comportement global du train attoseconde, même si on omet ici de prendre en considération l'effet de l'allongement de l'impulsion laser, qui a plusieurs conséquences : tout d'abord le nombre d'impulsions du train attoseconde augmente pour des valeurs non-nulles du chirp, ce qui diminue la largeur harmonique, mais aussi la diminution de l'intensité pic, qui aurait tendance à augmenter l'effet CWE, et donc faire varier les largeurs harmoniques ainsi que la valeur du chirp pour laquelle elles sont minimales. Effectuer une expérience « à un paramètre », où seule la phase temporelle du laser varie, sans que l'intensité ni la durée de l'impulsion ne change, présenterait de grosse difficultés, car il serait alors indispensable de modifier le spectre du laser pour chaque nouvelle valeur de phase temporelle laser.

4.2.3 Confrontation avec les résultats du modèle, mesure de longueur de gradient et de la température électronique du plasma

Cette série d'observations expérimentales dévoile de très nettes tendances en ce qui concerne la dépendance du spectre harmonique en fonction des paramètres de l'interaction que sont l'intensité laser, le chirp laser ainsi que le gradient de densité plasma. On a aussi noté en Partie 4.2.1 l'importance du paramètre non-linéaire qui lie l'enveloppe laser à l'enveloppe du train attoseconde.

Comme les résultats expérimentaux confirment toutes les tendances proposées par le modèle, celui-ci peut légitimement être utilisé pour proposer une analyse plus quantitative de la complexité de la génération d'harmonique. Plus encore, il peut apporter des réponses sur la dynamique compliquée de l'interaction laser-plasma à haute intensité, par l'extraction des trajectoires électroniques, mais aussi sur des paramètres cruciaux de l'interaction, comme la longueur de gradient plasma. C'est l'objet de cette partie.

Confrontation modèle/expérience et mesure de la longueur de gradient

L'émission cohérente de sillage (tout comme la génération d'harmonique dans les milieux gazeux) présente la particularité très intéressante d'avoir une « relation de phase cohérente » avec le champ laser générateur. En effet, la structure temporelle du train d'impulsions attosecondes de l'émission cohérente de sillage est directement liée aux temps de retour des électrons de Brunel, dont les trajectoires sont dictées par le champ laser. Ainsi, en analysant l'émission, on peut remonter à la dynamique des trajectoires électroniques générées par l'interaction. Mais ce n'est pas tout : l'émission cohérente de sillage trouvant son origine au sein du gradient plasma, le temps de retour des électrons de Brunel dépend aussi de la longueur de gradient. De cette manière, ce paramètre crucial pour l'interaction qu'est la longueur de gradient plasma se trouve encodé dans le spectre de l'émission harmonique. Nous nous proposons donc ici de remonter à la longueur de gradient en tentant d'ajuster les paramètres du modèle aux résultats expérimentaux.

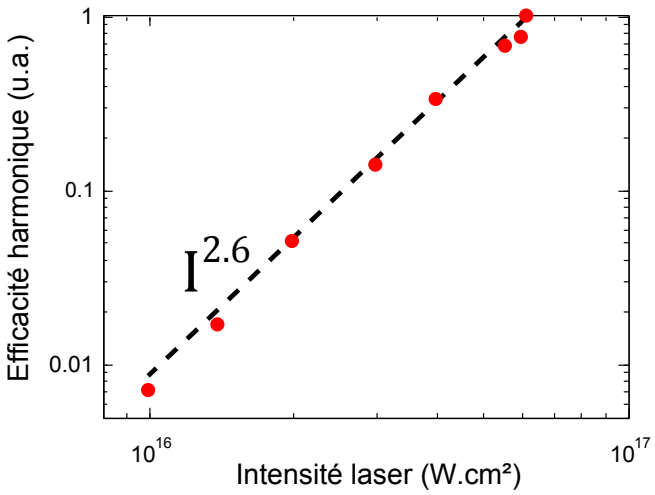

FIGURE 4.13 – *Mesure d'énergie contenue dans l'harmonique 8 en fonction de l'intensité laser.* Les points rouges correspondent à l'énergie harmonique (en unité arbitraire) mesurée expérimentalement. Le fit en pointillé donne une réponse non-linéaire d'ordre 2.6 de l'énergie harmonique.

Le modèle nécessite trois « inputs » : le champ électrique laser $E_L(t)$, la longueur de gradient L, et le paramètre de non-linéarité b. Le champ électrique pouvant être relativement précisément déterminé expérimentalement : (1) un appareil permettant de remonter à la forme du champ, le WIZZLER (Moulet *et al.*, 2010) dans notre cas, (2) un puissance-mètre mesurant de l'énergie laser et (3) un système d'imagerie adapté (voir Chapitre 3) pour mesurer la répartition de cette énergie au foyer. Les conditions expérimentales le jour de la mesure sont $a_0 = 0.2$, $\tau_L = 28\,fs$ et $\xi = 0$ (sauf lors de la simulation de la variation de la largeur harmonique en fonction du chirp, voir plus bas). $a_0 = eE_0/m_e c\omega_L$ est le potentiel vecteur normalisé, τ_L la durée de l'impulsion à mi-hauteur en intensité pour une phase plate, et $\xi = 4\log(2)\phi^{(2)}/\tau_L$ est le chirp sans dimension ($\phi^{(2)}$ est la phase spectrale d'ordre deux). En revanche, les inconnus sont la longueur de gradient δ et l'indice non-linéaire b. Mesurer l'indice b, qui définit la non-linéarité de la conversion du signal harmonique que nous utilisons dans le modèle pour évaluer l'enveloppe du train attoseconde, ne peut être fait directement. Cependant, on peut faire la supposition que la non-linéarité b (c'est-à-dire la non-linéarité de génération de chaque cycle optique) peut être estimée indirectement en mesurant la non-linéarité intégrée de l'énergie harmonique en fonction de l'intensité laser. Ceci est valable si la non-linéarité b est identique pour chaque cycle optique, ce qui semble raisonnable, en particulier parce que l'impulsion laser est suffisamment courte pour que le gradient soit considéré comme identique pour chaque cycle optique. Pour cela, nous avons mesuré l'évolution de l'énergie de l'harmonique 8 en fonction de l'intensité laser, que nous avons fait varier à l'aide d'une lame demi-onde suivie d'un polariseur sur le trajet du faisceau : les résultats sont présentés sur la Figure 4.13. Nous avons mesuré une non-linéarité de $b = 2.6$.

Une fois la non-linéarité déterminée expérimentalement, le seul paramètre « libre » du modèle est la longueur de gradient. L'idée de notre démarche est ici de d'ajuster la valeur du gradient dans le modèle de façon à fitter au mieux les résultats expérimentaux. De façon à asseoir la robustesse à la fois du modèle et des résultats expérimentaux, nous avons souhaité valider cette démarche en confrontant les résultats du modèle donnés pour une valeur de gradient, à tous les résultats d'expérience présentés plus tôt (voir Partie 4.2.2), c'est-à-dire la variation de la largeur harmonique avec l'ordre harmonique, l'intensité laser et le chirp laser.

Les résultats comparés du modèle et de l'expérience, présentés sur la Figure 4.14 donnent un très bon accord pour toutes les dépendances de largeurs harmoniques mesurées, pour un gradient compris entre $\lambda/150$ et $\lambda/250$, avec un meilleur fit pour $\delta = \lambda/200$. Non seulement les tendances sont respectées, mais les largeurs harmoniques sont quantitativement très bien reproduites pour cette valeur de longueur de gradient. Ce résultat très encourageant constitue la première validation du modèle théorique vis à vis de l'expérience, et permet ainsi de remonter

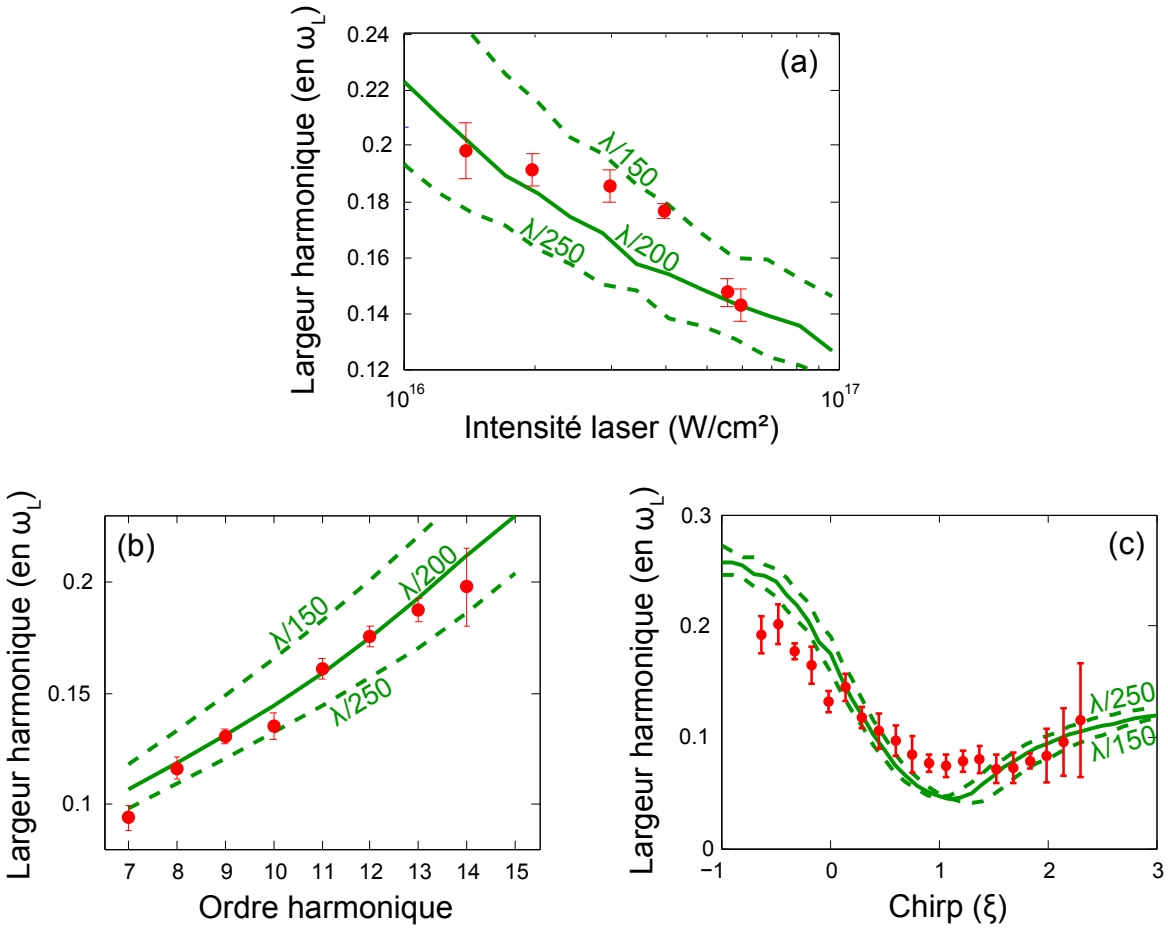

FIGURE 4.14 – *Mesure de dépendance de la largeur harmonique avec l'intensité laser (a), avec l'ordre harmonique (b), et avec le chirp laser (c), et confrontation avec le modèle pour différentes valeurs du gradient.* Les résultats expérimentaux sont indiqués en rouge (harmonique 8), et les résultats du modèle en vert, avec en trait plein le meilleur fit obtenu pour $L = \lambda/200$, et en pointillé deux valeurs de gradient encadrantes, $L = \lambda/250$ et $L = \lambda/150$.

à une information très importante concernant les conditions d'interaction, à savoir la longueur de gradient, que nous estimons ici à $\delta = \lambda/200$.

Le fit des données expérimentales repose sur certaines hypothèses. La première concerne la Figure 4.14(a), où nous cherchons à fitter les variations de largeurs d'harmoniques avec l'intensité laser, pour une valeur donnée du gradient. Nous avons ici supposé que le gradient était le même pour toutes les intensités, de 1×10^{16} à $6 \times 10^{16}\, W.cm^{-2}$. Ceci parait valable si le plasma est formé par le front montant de l'impulsion, zone dans laquelle l'intensité varie sur plusieurs ordres de grandeur en une centaine de femtoseconde : ainsi, une variation d'un facteur 6 de l'intensité déplace à peine le temps auquel le plasma est formé, ce qui n'affecte pas la longueur de gradient lorsque l'impulsion principale arrive. Une autre hypothèse est aussi de prendre un gradient constant lorsque le chirp laser est varié (Figure 4.14(c)). De même, le temps de formation du plasma par le front montant de l'impulsion varie probablement très peu quand on chirpe l'impulsion, ce qui autorise de prendre un gradient constant dans la simulation. La dernière hypothèse est de considérer le paramètre non-linéaire b comme constant, notamment avec l'ordre harmonique et l'intensité.

En ce qui concerne la Figure 4.14(c), si la tendance générale, c'est-à-dire un comportement asymétrique et un minimum des largeurs harmoniques pour une valeur positive du chirp laser, est tout à fait reproduite, la courbe de la dépendance des largeurs harmoniques en fonction du chirp présente un moins bon accord entre l'expérience et le modèle. Nous expliquons cela par le fait que nous faisons varier le chirp expérimentalement à l'aide du Dazzler installé en milieu du premier étage d'amplification de notre système laser. Aussi, l'intégrale B de notre chaine étant plutôt élevée, l'intensité et la phase laser se retrouvent liées, et il est impossible de n'introduire que de la phase du deuxième ordre sans toucher aux phases d'ordre supérieurs. La simulation ne considérant qu'une variation de $\phi^{(2)}(\omega)$, ceci pourrait expliquer cet écart entre l'expérience et le modèle.

Ainsi, cette confrontation entre le modèle et l'expérience, où l'on ajuste un unique paramètre pour fitter trois résultats indépendants, donne satisfaction. Comme la mesure directe de gradient court comme la Frequency Domain Interferometry (FDI) (Blanc *et al.*, 1996; Gauthier *et al.*, 1997; Geindre *et al.*, 1994), est très difficile à réaliser et repose sur des hypothèses fortes notamment en ce qui concerne la constante diélectrique du plasma, on pourrait considérer cette technique basée sur l'étude des largeurs harmoniques comme un complément, voire une alternative à la FDI.

Observation de l'expansion plasma et mesure de la température électronique du plasma

Dans cette partie, nous proposons d'utiliser cet outil de mesure du gradient pour observer l'expansion du plasma dans le vide, qui suit sa formation par l'interaction du laser intense avec la matière. En effet, comme nous l'avons présenté dans le Chapitre 2, si le plasma est infiniment raide lors de sa formation, il se met ensuite à s'entendre dans le vide sous l'effet du champ induit par le déplacement des électrons du plasma. Ayant maintenant un outil pour estimer la longueur de gradient à l'aide des largeurs harmoniques, nous pouvons donc suivre l'évolution de cette longueur de gradient au cours de son expansion. Pour cela, nous reprenons les résultats présentés en Figure 4.11, où nous observions expérimentalement l'effet sur les largeurs harmoniques de la formation anticipée du plasma à l'aide d'une préimpulsion. Ici, nous nous proposons d'associer à ces largeurs harmoniques une longueur de gradient à l'aide du modèle : le résultat de cette analyse est présenté en Figure 4.15.

Sur ce graphe sont présentés les résultats de la Figure 4.11, en rouge, ainsi qu'un fit linéaire, en vert, de ces données expérimentales. Nous avons ensuite utilisé le modèle pour déterminer les largeurs d'harmoniques correspondantes à différentes longueurs de gradient (en prenant les valeurs déterminées plus haut en ce qui concerne les autres paramètres de simulation), que nous avons ensuite apposé sur le fit. On mesure ainsi une longueur gradient qui s'étend de $\lambda/200$ à $\lambda/80$ sur environ $500\,fs$.

Ce résultat, qui propose une mesure quantitative indirecte de l'expansion de la longueur de gradient, peut être analysé à la lumière du modèle d'expansion proposé par Kruer (Kruer, 1988), et dont les grandes lignes sont reprises dans la partie 2.1.1. En effet, à partir de ces données expérimentales, on peut calculer la vitesse d'expansion c_s de la longueur de gradient, en effectuant un fit linéaire de la variation de la longueur de gradient en fonction du retard. On obtient ainsi une vitesse d'expansion $c_s = 0.0156\,nm.fs^{-1}$. En utilisant l'équation $c_s = \sqrt{Zk_bT_e/m_i}$, on peut relier la vitesse d'expansion du plasma à sa température électronique :

$$c_s = \sqrt{\frac{Zk_bT_e}{m_i}} \tag{4.1}$$

avec Z l'état de charge des ions, k_b la constante de Boltzmann, T_e la température des électrons et m_i la masse des ions.

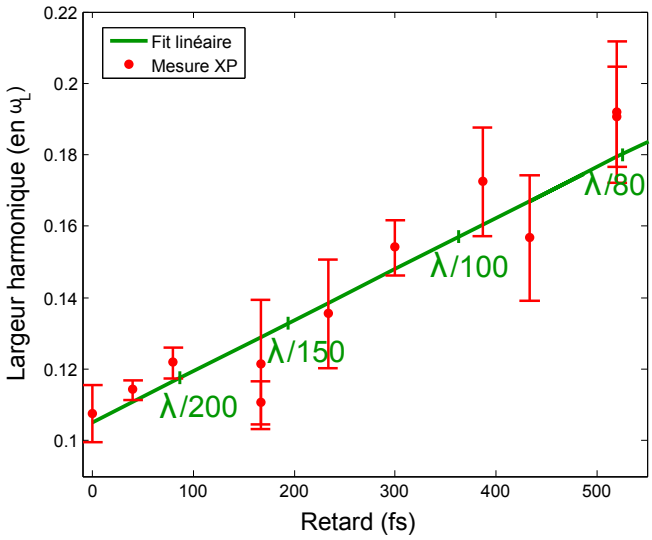

FIGURE 4.15 – *Mesure de l'évolution de la largeur de l'harmonique 8 en fonction du retard entre l'impulsion pompe et l'impulsion sonde, et association des valeurs de gradient correspondantes données par le modèle.* Le fit linéaire des données est indiqué en vert, et les valeurs correspondantes du gradient calculées par le modèle en association avec les largeurs expérimentales sont indiquées sur le graphe.

En prenant un ion oxygène totalement ionisé pour le calcul (la cible est en silice), on obtient une température électronique de $5\,eV$. Cette valeur, qui est un peu plus faible que ce que donnent les simulations hydrodynamiques (plutôt de l'ordre de quelques dizaines d'eV), peut se comprendre par le fait que la préimpulsion utilisée pour former le plasma est de très faible intensité (à peine $1 \times 10^{15}\,W.cm^{-2}$), ce qui justifie cette valeur relativement faible de T_e, d'autant plus que nous avons calculé T_e en considérant que la cible était totalement ionisée, ce qui n'est probablement pas le cas à ces intensités, conduisant à une probable sous-estimation de la température électronique.

Pour renforcer la validité de cette démarche, nous avons reproduit l'expérience, mais cette fois avec un faisceau pompe plus intense, de $1 \times 10^{16}\,W.cm^{-2}$, en utilisant une optique de focalisation plus courte pour la préimpulsion. Cette expérience a été menée avec le faisceau sonde en focalisation forte, afin de conserver un rapport de diamètre d'environ 6 entre l'impulsion pompe et l'impulsion sonde. Les résultats expérimentaux et du modèle, destinés à déterminer la non-linéarité et à confirmer l'accord modèle/expérience (c'est-à-dire sans la préimpulsion), sont regroupés sur la Figure 4.16.

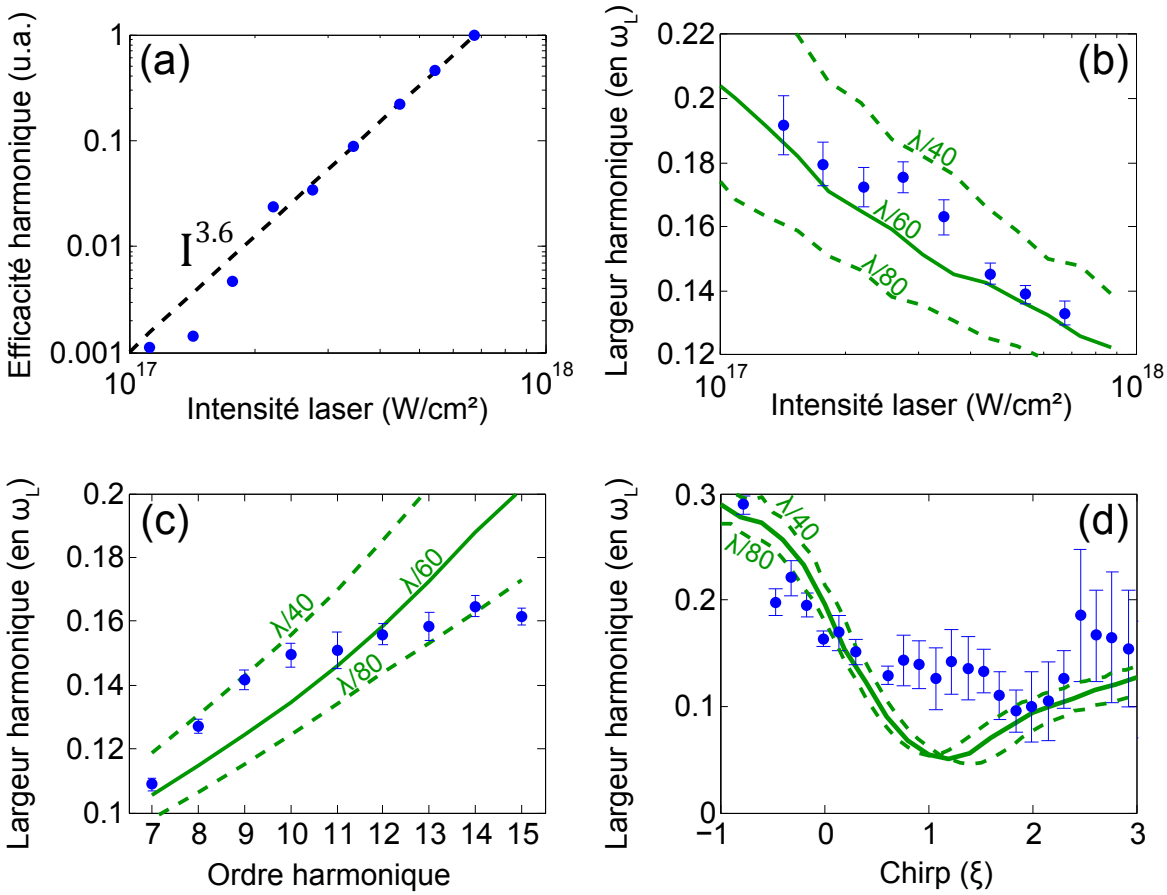

FIGURE 4.16 – *Mesure de l'énergie harmonique en fonction de l'intensité laser (a), mesure de la dépendance de la largeur harmonique avec l'intensité laser (b), avec l'ordre harmonique (c), et avec le chirp laser (d), et confrontation avec le modèle pour différentes valeurs du gradient.* Les résultats expérimentaux sont indiqués en bleu (harmonique 8), et les résultats du modèle en vert, avec en trait plein le meilleur fit obtenu pour $L = \lambda/200$, et en pointillé deux valeurs de gradient encadrantes, $L = \lambda/250$ et $L = \lambda/150$.

Cette fois, l'analyse fait état d'un gradient plus long, avec une valeur comprise entre $\lambda/40$ et $\lambda/80$, et un gradient optimale de $\delta = \lambda/60$. Ce résultat est tout à fait cohérent, dans le sens où nous utilisons ici une focale plus courte, et une intensité plus élevée que dans l'étude précédente, de l'ordre de $8 \times 10^{17}\, W.cm^{-2}$. Il est donc tout à fait logique qu'en utilisant la même impulsion laser à une intensité dix fois plus élevée, la partie du front montant de l'impulsion responsable de la formation du plasma se situe plus en amont du pic principale, laissant ainsi plus de temps au plasma pour s'étendre avant l'arrivée de l'impulsion principale. Ainsi, le pic interagit avec un plasma plus long.

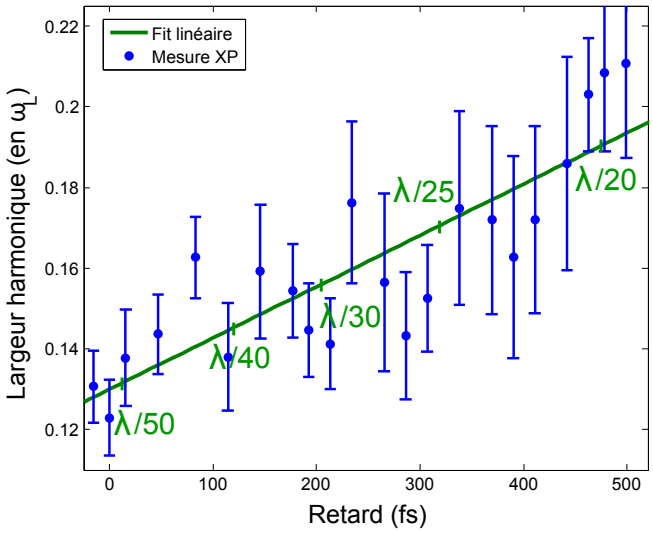

FIGURE 4.17 – *Mesure de l'évolution de la largeur de l'harmonique 8 en fonction du retard entre l'impulsion pompe et l'impulsion sonde, et association des valeurs de gradient correspondantes données par le modèle.* Le fit linéaire des données est indiqué en vert, et les valeurs correspondantes du gradient calculées par le modèle en association avec les largeurs expérimentales sont indiquées sur le graphe.

Voici maintenant les détails de l'expérience pompe-sonde, réalisée avec une pompe plus intense ($1 \times 10^{16}\, W.cm^{-2}$) et dont les résultats sont présentés sur la Figure 4.17. En effectuant une régression linéaire des données expérimentales, et associant par le modèle les largeurs d'harmoniques mesurées aux longueurs de gradient, on obtient une longueur de gradient variant de $\lambda/50$ à $\lambda/20$ au bout de $500\, fs$ d'expansion. En ce qui concerne la vitesse d'expansion de la longueur de gradient, nous mesurons $c_s = 0.0591\, nm.fs^{-1}$, et une température électronique de 73 eV. Il est tout à fait satisfaisant de trouver une température électronique plus élevée que celle déterminée précédemment, pour une pré-impulsion moins intense. En effet, nous nous attendions à observer une expansion plus rapide au vu de l'intensité plus élevée de la pré-impulsion. Ce résultat conforte l'analyse que nous proposons de l'étude d'un gradient en expansion par l'analyse de la variabilité de la structure spectrale du signal harmonique.

4.3 Conclusion

Ce chapitre décrit donc les caractéristiques de la source harmonique sur miroir plasma haute cadence obtenue par l'interaction avec une impulsion laser de 10 cycles optiques, ainsi que les résultats de la première campagne d'expérience que nous avons menée dès que la source fut fiabilisée.

Nous démontrons donc une source harmonique présentant un spectre typique de l'émission cohérente de sillage, de profil exponentiellement décroissant, avec une coupure correspondant à la pulsation plasma maximum (harmonique 19), et une efficacité de conversion totale supérieure à $10^6\,W.cm^{-2}$, correspondant à une puissance moyenne de $3\,\mu W$. Un point qui aura son importance lors de l'expérience décrite dans le Chapitre 5, la divergence harmonique est plutôt faible par rapport à la divergence laser, de l'ordre de 10% de la divergence laser.

Nous présentons ensuite une série d'études paramétriques des largeurs spectrales harmoniques, de façon à étudier la dépendance de la phase harmonique avec les paramètres de l'interaction. Ce travail se situe dans le prolongement de l'étude réalisée par Quéré *et al* (Quere *et al.*, 2006; Quere *et al.*, 2008) de la phase harmonique en fonction du chirp et de la divergence laser. Ici, nous démontrons la dépendance de la phase harmonique avec l'intensité laser ainsi qu'avec la longueur de gradient plasma, par une expérience de type pompe-sonde. Puis, en comparant les résultats de largeurs spectrales expérimentales à celles fournies par le modèle théorique, nous proposons une estimation de la longueur de gradient (nous mesurons $L = \lambda/200$ et $\lambda/60$ selon les conditions de focalisation). Enfin, en déclenchant l'expansion du plasma avec une pré-impulsion, nous mesurons l'évolution de L dans le temps, et en déduisons la vitesse d'expansion du plasma, à l'aide de l'émission harmonique.

Chapitre 5

Contrôle attoseconde de la dynamique d'un plasma surdense par une impulsion de deux cycles optiques

L'interaction laser-matière à champ fort repose en premier lieu sur le guidage par le champ laser de la dynamique des électrons du milieu. Quelque soit l'objectif scientifique de l'expérience (de la génération de source secondaire à la mise en forme de faisceau laser, en passant par l'étude de l'interaction), c'est la réaction des électrons du milieu à l'influence du champ laser qui est la clef de l'interaction. Pour bon nombre d'expériences (comme celle présentée dans le Chapitre 4), il est suffisant pour contrôler cette dynamique de connaitre précisément l'amplitude de l'enveloppe, ainsi que la pulsation instantanée $\omega(t)$ du champ laser, sans se soucier de la phase absolue ϕ_0. Cette attitude se justifie lorsque la fluctuation tir à tir de ϕ_0 n'affecte que très peu les propriétés de l'interaction, ce qui est le cas pour les impulsions contenant beaucoup de cycles optiques : la dynamique de l'interaction est alors résolue à une échelle temporelle supérieure au cycle optique, donc de l'ordre de quelques femtosecondes.

En revanche, depuis une dizaine d'années, les progrès effectués sur la compression temporelle des impulsions laser, ont révélé l'importance du contrôle de la phase absolue ϕ_0 : une impulsion dont la durée se rapproche de celle du cycle optique voit son champ électrique dépendre très fortement de la phase absolue. Aujourd'hui, la stabilisation et le contrôle de la phase absolue est technologiquement réalisable, ce qui a permis la démonstration du contrôle à l'échelle attoseconde par le champ laser des trajectoires électroniques dans un gaz neutre (Baltuska *et al.*, 2003) et la génération reproductible d'impulsions attosecondes uniques (Baltuska *et al.*, 2003; Sansone *et al.*, 2006; Ferrari *et al.*, 2010), qui, utilisés comme appareil de mesure ultra-rapide, a permis d'observer des processus atomiques fondamentaux, comme l'ionisation par effet tunnel (Uiberacker *et al.*, 2007).

Tout naturellement, l'objectif est maintenant de démontrer ce contrôle sub-femtoseconde des trajectoires électroniques, mais cette fois dans un plasma. Jusqu'à présent, ce résultat était inaccessible, car les dispositifs de génération d'harmoniques sur miroir plasma ne fonctionnaient qu'avec des impulsions longues ($> 30\,fs$), qui a priori ne permettent pas d'observer d'effets de phase à des échelles de temps aussi courtes. C'est donc l'ambition de notre groupe de recherche que de générer une source harmonique sur miroir plasma avec des impulsions laser de deux cycles optiques contrôlées en phase absolue, afin de clairement identifier la dépendance de l'émission harmonique à la forme du champ laser sur une échelle de temps d'une centaine d'attosecondes.

5.1 La génération d'harmoniques comme sonde attoseconde du plasma

5.1.1 La stabilisation de la phase absolue

Le champ électrique d'une impulsion laser est complètement déterminé par son enveloppe $A(t)$, sa pulsation instantanée $\omega(t)$ et sa phase absolue ϕ_0 (la Carrier-Envelope Phase ou CEP en anglais), c'est-à-dire la phase de la porteuse par rapport au maximum de l'enveloppe. On peut ainsi l'écrire $E(t) = A(t)\exp(i(\omega(t)t+\phi_0)$. Pour prétendre contrôler la dynamique des électrons du plasma avec un laser ultra-intense, il est indispensable de pouvoir stabiliser la phase absolue ϕ_0 du champ. En effet, si aucune précaution n'est prise, la phase absolue du laser prend une valeur aléatoire d'une impulsion sur l'autre. Cette variation tir-à-tir de la phase absolue trouve son origine dans la moindre vibration mécanique ou la moindre variation d'indice du milieu tout au long de la chaine laser. Par exemple, pour illustrer l'extrême sensibilité de la phase absolue, une petite variation de température qui déplacerait de quelques centaines de nanomètre une optique du système suffirait à engendrer une variation de 50% de la phase absolue. Or, si la phase absolue n'est pas stabilisée pour chaque tir consécutif, alors il est impossible d'affirmer que le champ électrique qui pilote l'interaction est identique d'un tir à l'autre, et que le guidage des électrons par le champ du laser est reproductible. La stabilisation de la phase absolue, et le contrôle qui en découle naturellement (il est très aisé de la faire varier une fois qu'elle est stabilisée), assure en revanche que l'on dispose d'un champ électrique identique d'une impulsion à l'autre, ce qui autorise alors l'étude systématique de la dynamique ultrarapide de l'interaction.

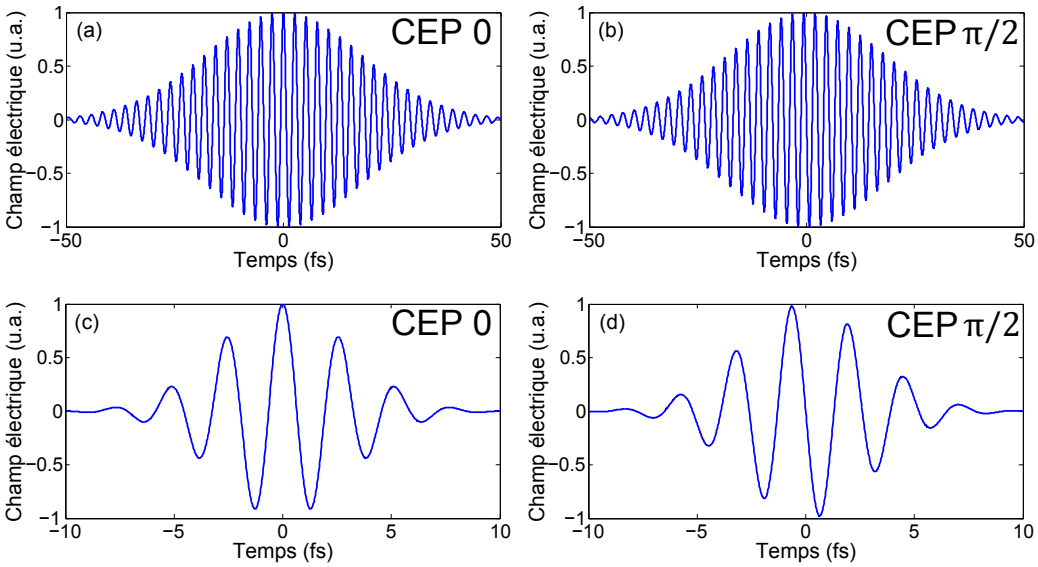

FIGURE 5.1 – **Effet de la phase absolue sur le champ électrique du laser**. Cas d'une impulsion de 30 fs pour une CEP de 0 (a) et $\pi/2$ (b), et de 5 fs pour une CEP de 0 (c) et $\pi/2$ (d).

5.1.2 La nécessité d'utiliser une impulsion courte

Cependant, si le contrôle de la CEP est une condition nécessaire au contrôle de la dynamique ultrarapide de l'interaction, il faut noter que l'enveloppe de l'impulsion laser soit suffisamment courte pour que les changements de CEP aient un effet conséquent sur le champ électrique. En effet, pour une impulsion dont l'enveloppe est significativement plus longue que le cycle optique, un changement de π de la phase absolue n'aura quasiment aucun effet sur le champ (voir Figure 5.1(a) et (b)). En effet, l'enveloppe ne varie que très peu à l'échelle du cycle optique dans ce cas. En revanche, lorsque la durée de l'impulsion est de l'ordre de la période optique, l'amplitude du champ varie alors très rapidement, et un changement de CEP entraine une très forte variation de la forme du champ électrique (voir Figure 5.1(c) et (d)).

Ainsi, on voit qu'un changement de CEP n'a de réelle influence sur la forme du champ électrique que si l'impulsion a une durée qui est de l'ordre de la période optique. Or, il est essentiel que la structure du champ dépende sensiblement de la CEP, sans quoi la dynamique du plasma ne sera pas affectée de façon visible par les changements de phase absolue.

5.1.3 L'émission cohérente de sillage comme témoin de la dynamique plasma

Une fois que l'on dispose du bon outil, c'est-à-dire d'une impulsion de quelques cycles seulement et stabilisée en phase absolue, il s'agit de prouver que le contrôle du champ électrique par la phase absolue permet bien de piloter la dynamique ultra-rapide de l'interaction avec une précision comparable à celle que l'on exerce sur la forme du champ. Il faut donc trouver une manifestation physique qui puisse témoigner du contrôle que nous avons de la dynamique de l'interaction, c'est-à-dire une émission du plasma dont les propriétés dépendent significativement de la variation de la forme du champ électrique du laser lorsqu'on change sa phase absolue.

Dans la partie précédente, nous avons montré que le spectre de l'émission harmonique était un excellent témoin de la dynamique du plasma lors de l'interaction avec le laser. En effet, la structure du spectre se révèle être entièrement conditionnée par la dynamique des électrons de Brunel accélérés par le champ électrique du laser, ainsi que par la forme du gradient de densité plasma. Cette étude, menée avec des impulsions laser de 30 fs, nous a permis de constater que le spectre de l'émission cohérente de sillage montrait une grande sensibilité à la forme du champ électrique (dépendance en intensité, en chirp laser, etc). On peut donc raisonnablement penser que l'émission cohérente de sillage est un bon candidat pour témoigner de la dynamique ultra-rapide que nous souhaitons démontrer. En effet, la très forte variabilité de la forme du champ avec la phase absolue laisse penser que même de très faibles changements de phase absolue pourraient suffire à faire varier la structure du spectre. C'est ce que nous nous proposons de vérifier expérimentalement.

5.2 Dispositif expérimental

La configuration laser utilisée est celle décrite dans la Partie 3.1.2. La mesure de la CEP est effectué à l'aide d'un interféromètre f-2f, et la stabilisation se fait en rétroaction sur l'intensité du laser de pompe de l'oscillateur à l'aide d'un cristal acousto-optique (voir Partie 3.1.1). La compression est optimisée à l'aide d'une paire de prismes mis à l'angle de Brewster pour minimiser les pertes, et montés sur des platines de translation micrométriques. Chaque déplacement de 500 μm correspond à une variation de 1.5 fs^2 de la phase spectrale. On effectue ensuite les mesures spectrales en accumulant sur 300 tirs consécutifs, pour des valeurs de CEP variant sur deux cycles complets, de -2π à 2π, avec des paliers tous les 300 mrad. La stabilité typique de la CEP est de 200 mrad rms.

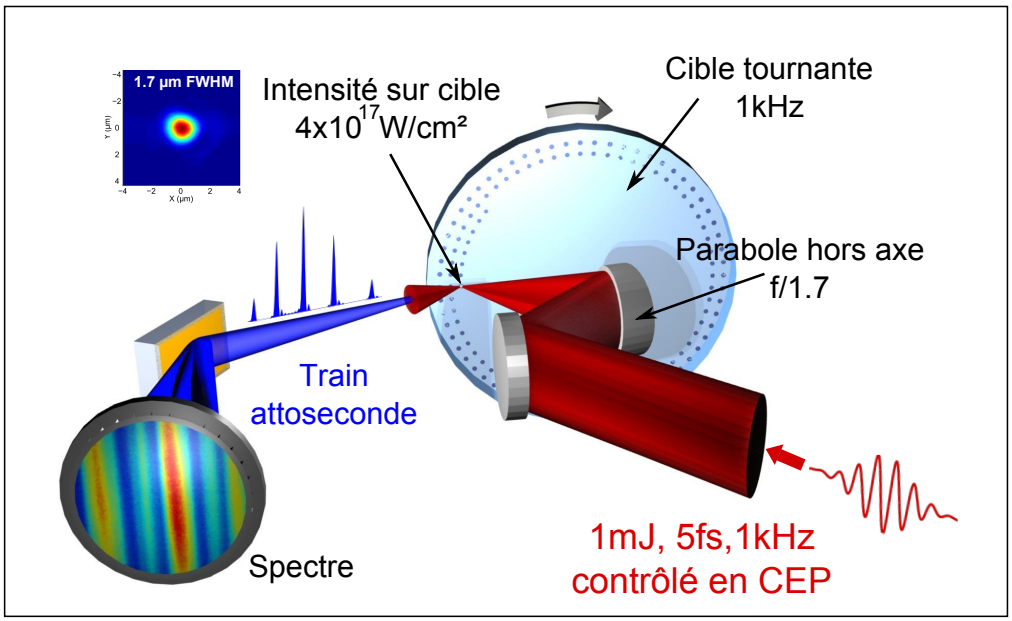

FIGURE 5.2 – **Setup expérimental.** L'impulsion laser d'1 mJ, 5 fs à 1 kHz et stabilisée en phase est focalisée à une intensité de $4\times10^{17}\,W/cm^2$ sur la cible tournante. Le train d'impulsion attoseconde est ensuite analysé dans le spectromètre non-imageur

5.3 Effet de la forme du champ laser sur l'émission

Cette partie présente les résultats expérimentaux que nous avons obtenus durant cette campagne expérimentale. La Figure 5.3(b) présente le type de structure spectrale que nous avons observé quand la CEP est stabilisée. Le spectre, compris entre $7.5\,\omega_L$ et $10\,\omega_L$ et accumulé sur 300 tirs consécutifs, présente de très larges pics, peu contrastés, et séparés spectralement d'une pulsation laser ω_L. Or, lorsque nous avons effectué un changement de $2\pi/3$ puis de $4\pi/3$ de la phase absolue de l'impulsion laser, nous avons alors observé un décalage fréquentiel de ces structures spectrales, la structure « en pics » étant par ailleurs conservée lors du changement de CEP. Ce comportement est présenté sur les Figures 5.3(b), (c) et (d).

Même si l'observation d'une dépendance du spectre harmonique avec la phase absolue est un premier résultat très positif, car il est la confirmation que l'émission cohérente de sillage est un outil capable de sonder la dynamique ultra-rapide du plasma, nous ne nous attendions pas à observer un tel comportement. En effet, dans le sillage des expériences de génération d'harmoniques dans les gaz avec un laser ultra-court stabilisé en phase, nous pensions plutôt observer une variation de la largeur des harmoniques, conséquence de la variation du nombre d'impulsions attoseconde dans le train, en fonction de la phase absolue. Ce n'est pas le cas ici, où l'effet de la phase absolue sur le spectre est donc à chercher ailleurs que dans des effets

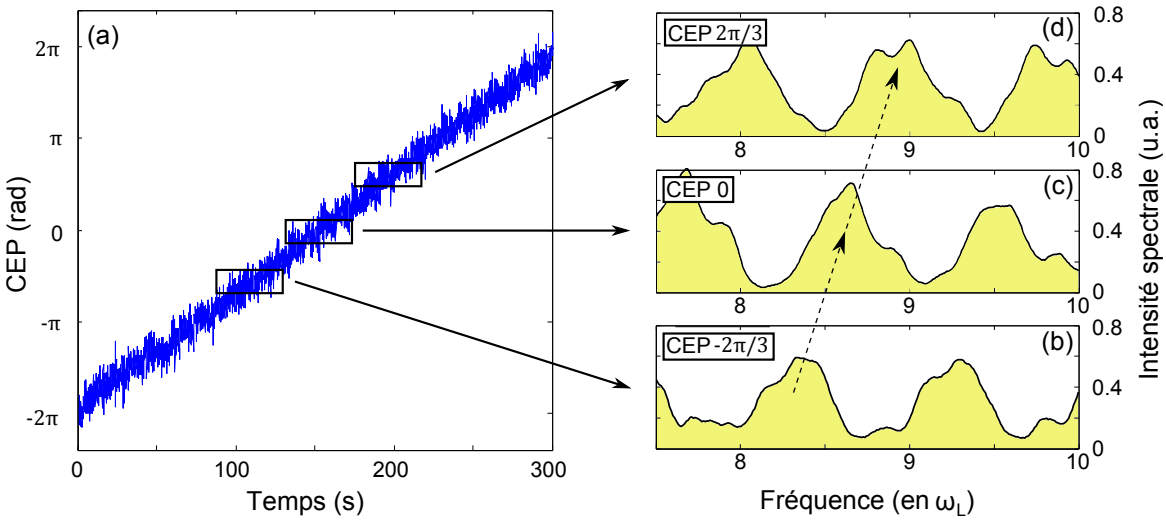

FIGURE 5.3 – **Rampe de CEP et spectres associés**. (a) Rampe de CEP de -2π à 2π effectuée sur 300 s. Mesures expérimentales du spectre CWE pour des CEP de $-2\pi/3$ (b), 0 (c) et $2\pi/3$ (d), où l'on observe un décalage des pics spectraux vers les hautes fréquences. La stabilité de la rampe de CEP est de 200 mrad rms

d'efficacité de conversion dus à l'intensité.

La Figure 5.4 présente cette fois un scan complet du spectre en fonction de la phase absolue. L'expérience est menée en effectuant une rampe de CEP (voir Figure 5.3(a)) sur deux cycles complets pendant une durée de 300 s. Les mesures spectrales sont chacune accumulées sur 300 tirs, pour des valeurs de CEP échelonnées tous les 300 mrad (la stabilité de la phase absolue du laser est de 200 mrad rms). La Figure 5.4 comporte donc environ 64 spectres concaténés sur le même graphe, ce qui correspond à environ 20000 tirs. Les spectres sont représentés en énergie photon (de 11 à 15.5 eV) et en pulsation laser (de 7 à 10 ω_L). Il faut noter ici que la valeur absolue de la CEP est inconnue, les ordonnées du graphe sont donc données en valeur relative.

Cette mesure continue du spectre en fonction de la CEP confirme le comportement esquissé par les mesures précédentes effectuées pour des valeurs discrètes de la CEP. Premièrement, on ne peut plus parler de spectre harmonique, dans le sens où les maximums du spectre ne se situent plus autour des multiples de la pulsation laser ω_L. Deuxièmement, ces pics présentent une dérive spectrale linéaire continue lorsque l'on fait varier linéairement la phase absolue du laser. La pente de cette dérive est d'environ $-\omega/2\pi$. Ainsi, un pic spectral est décalé de $-\omega_L$ lorsque qu'on ajoute 2π à la phase absolue du laser.

Au delà du comportement spectral inattendu, le premier résultat de cette mesure est que

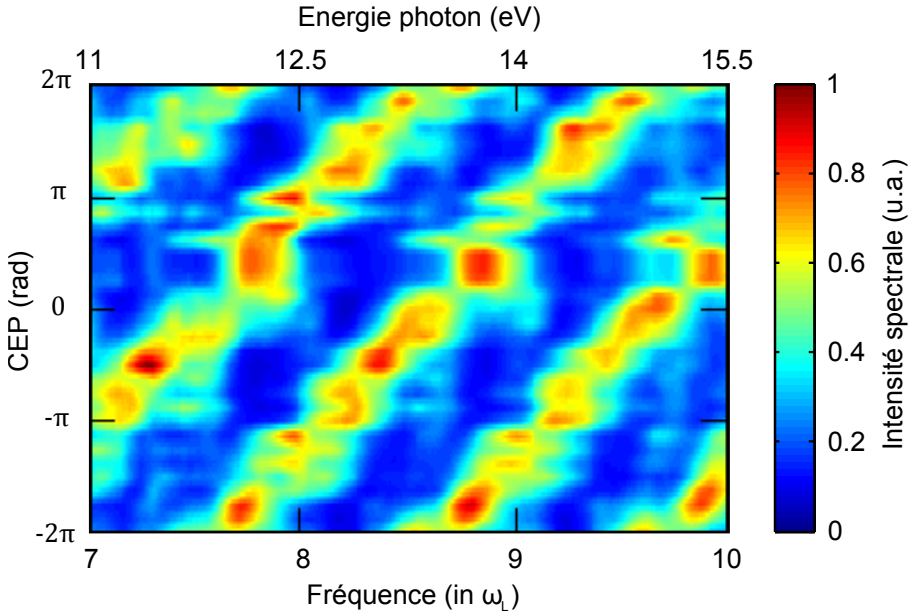

FIGURE 5.4 – **Mesure expérimentale de l'intensité spectrale en fonction de la CEP laser**. Le spectre est mesuré sur l'intervalle $7\,\omega_L - 10\,\omega_L$ (correspondant à des énergies photons de $11\,eV - 15.5\,eV$), pour 63 valeurs de la CEP, réparties sur $-2\pi/2\pi$ et espacées de 200 mrad. Chaque spectre est intégré sur 300 tirs. Les pics spectraux dérivent avec une pente $\omega/2\pi$ en fonction de la CEP

l'émission cohérente de sillage générée par un laser de deux cycles optiques stabilisé en phase se révèle être un excellent témoin de la dynamique attoseconde du plasma. En effet, le spectre CWE présente un très forte sensibilité à la phase absolue : on peut mesurer expérimentalement un changement dans le spectre généré par une variation de seulement $\pi/10$ de la phase absolue, ce qui signifie que l'on contrôle le temps d'arrachage des électrons de Brunel avec une précision d'environ $\omega_L/20 \approx 130\,as$, ce temps étant à peine supérieur à la stabilité de la phase absolue du laser ($\approx 80\,as$). Ainsi, dans le sillage des expériences de contrôle des trajectoires électroniques dans les atomes ou molécules à intensité modérée, ce résultat apporte la preuve expérimentale qu'il est maintenant possible de contrôler la dynamique sub-femtoseconde des électrons d'un plasma par laser, à très haute intensité (**?**).

Nous avons également reproduit ce scan de l'intensité spectrale en fonction de la phase absolue du laser, mais cette fois en chirpant l'impulsion laser. Ce chirp est introduit en faisant varier l'épaisseur de verre traversée par le faisceau en sortie de fibre, à l'aide de la paire de prisme. La Figure 5.5 présente les résultats de ces mesures, effectuées pour trois autres valeurs du chirp, $\xi = -1$ (a), $\xi = 0.75$ (c) et $\xi = 1$ (d), et comparées au scan effectué sans chirp laser (b). Le scan avec chirp négatif $\xi = -1$ présente un comportement similaire à celui sans chirp, c'est-à-dire un décalage fréquentiel des pics du spectre, avec une pente visiblement un peu plus

forte, et des pics spectraux plus étroits que dans le cas $\xi = 0$. Le scan avec chirp positif $\xi = 0.75$ montre un décalage fréquentiel moins prononcé, avec une pente plus faible (les pics spectraux ne se décalent plus de ω_L lorsque la CEP varie de 2π), et présente donc une discontinuité dans le décalage spectrale au milieu du scan. Quand au scan effectué pour un chirp positif $\xi = 1$, on observe que le spectre ne présente presque plus aucune dépendance en phase absolue, les maxima du spectre ne subissant plus le décalage observé précédemment.

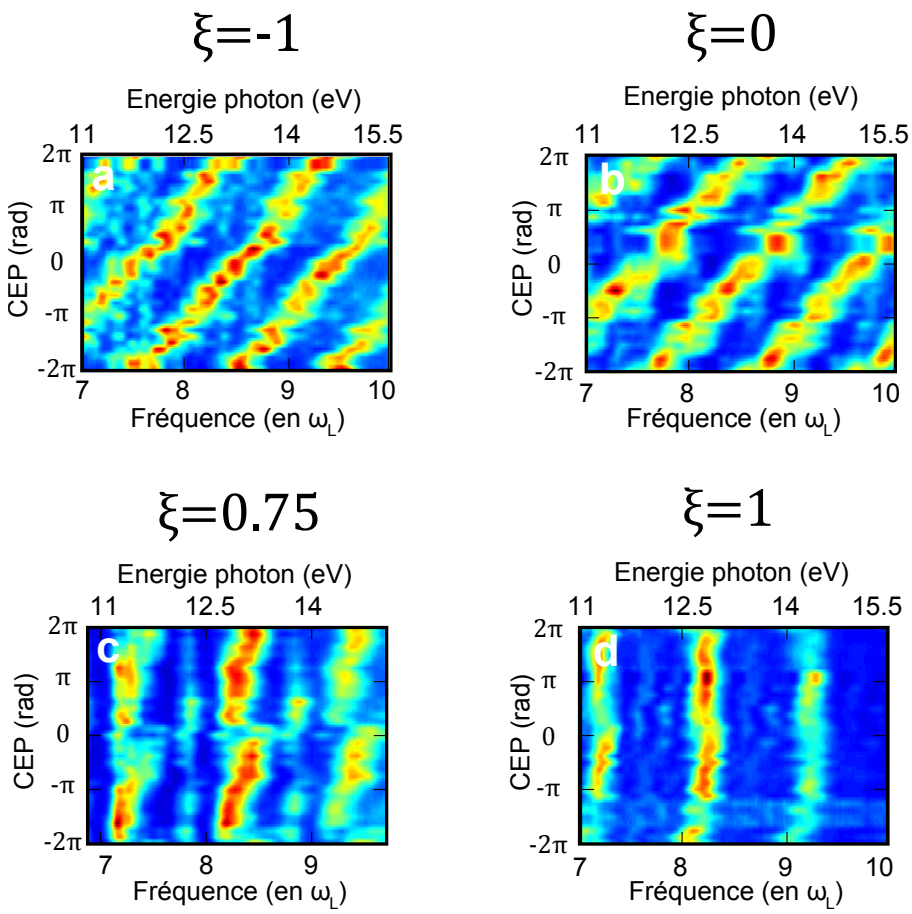

FIGURE 5.5 – **Mesures expérimentales de l'intensité spectrale en fonction de la CEP laser pour différentes valeurs de chirp laser**, (a) pour $\xi = -1$, (b) $\xi = 0$, (c) $\xi = 0.75$ et (d) $\xi = 1$. Les conditions de mesure sont celles décrites dans la Figure 5.4

De façon analogue à ce que nous avons observé avec des impulsions longues (voir Partie 4.2.2), le comportement du spectre avec le chirp est asymétrique : pour un chirp négatif ou nul, la phase absolue a un effet remarquable sur le spectre de l'émission, alors que si l'on augmente progressivement le chirp laser, on « tue » l'effet de la phase absolue, qui n'a alors plus aucun effet sur le spectre. On peut d'ores et déjà suspecter les délais d'émission du train attoseconde d'être responsables de ce comportement. En effet, on sait que faire varier la phase absolue d'une impulsion de deux cycles optiques engendre de gros changements sur la forme du

champ électrique (voir Figure 5.1(c) et (d)), ce qui va directement affecter la non-périodicité du train attoseconde généré. Dans le cas d'une impulsion de chirp nul ou négatif, cette non-périodicité sera fortement modulée par le changement de CEP. En revanche, si l'on applique la bonne valeur de chirp positif, on peut annuler, par la phase temporelle du laser, l'effet de retard relatif à la variation d'amplitude des cycles générateurs. Ainsi, la modulation d'amplitude du champ laser imposé lors de la variation de la phase absolue n'a plus d'effet sur le train attoseconde, qui reste presque périodique, quelque soit la phase absolue du laser.

En conclusion de cette partie expérimentale, ce résultat « brut », avant toute analyse physique, est déjà un aboutissement très important de notre groupe de recherche, car tout le développement laser qui a été mené jusqu'à présent pour obtenir une source de deux cycles optiques, énergétique, d'excellente qualité spatiale, et stabilisée en phase absolue, avait pour objectif de prouver que l'on pouvait contrôler, à l'instar de ce qui a été fait jusqu'à présent dans les atomes et les molécules, la dynamique ultra-rapide des électrons avec un laser, mais cette fois dans un plasma. L'importance de ce résultat provient du fait qu'il rassemble deux thématiques de recherche qui ont évoluées séparément jusqu'à maintenant : d'un coté la physique des très hautes intensités, capable d'accélérer les électrons plasma à des énergies de l'ordre du giga-électronVolt (Faure *et al.*, 2004; Leemans *et al.*, 2006), et d'autre part la physique de l'étude de la dynamique des mouvements électroniques, effectuée à intensité modérée, permettant de contrôler les trajectoires électroniques avec une précision attoseconde à l'aide de lasers de quelques cycles dont le champ électrique est stabilisé (Krausz & Ivanov, 2009).

5.4 Distorsion temporelle du train attoseconde et effet de moiré spectral

Cette partie se propose d'analyser les résultats expérimentaux à l'aide du modèle. La Figure 5.6 confronte les résultats expérimentaux précédemment exposés à ceux du modèle, effectués avec les conditions de l'expérience en terme de champ laser, avec un gradient $\delta = \lambda/100$ et une non-linéarité $b = 1.2$ (choisie de façon à reproduire les résultats obtenus en simulation PIC). Les données théoriques sont en excellent accord avec les données expérimentales, reproduisant le décalage fréquentiel linéaire de pente $\approx \omega/2\pi$ observé en laboratoire. Cette confrontation conforte à la fois la validité du modèle, ainsi que les résultats expérimentaux, qui ont été obtenus dans des conditions difficiles, puisqu'il a fallu obtenir plus de 60 spectres, en maintenant les conditions expérimentales, en particulier en conservant le contrôle de la phase absolue du laser sur un laps de temps élevé.

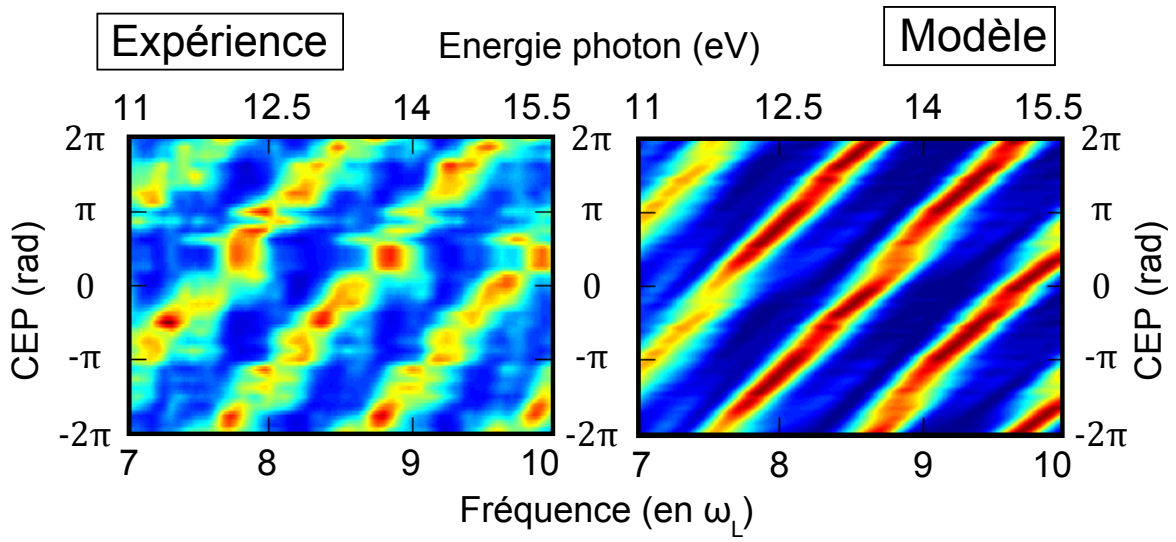

FIGURE 5.6 – **Variation de l'intensité spectrale en fonction de la CEP laser**, expérimentale (gauche) et modélisée (droite)

Au vu de la capacité du modèle à reproduire le comportement de l'interaction dans les conditions de l'expérience, nous pouvons nous appuyer dessus pour analyser la dynamique de l'interaction, et tenter d'expliquer la dépendance du spectre avec la phase absolue du laser. Si les conditions expérimentales ne nous permettent que d'observer la fenêtre spectrale $7\omega_L - 10\omega_L$, on peut en revanche étudier l'ensemble du spectre théorique, présenté sur la Figure 5.7. On observe une zone contrastée (a), correspondant à la fenêtre spectrale expérimentale, où l'on retrouve le décalage fréquentiel des pics spectraux, mais aussi des zones beaucoup moins contrastées (b), situées dans le spectre autour de la zone (a).

On peut propose une interprétation très simple de cette observation, expliquant à la fois les différentes zones de contraste, ainsi que le décalage fréquentiel des pics spectraux : il s'agit d'un effet de moiré (de l'arabe *mohair*, une laine d'Asie Mineure). L'effet de moiré est un phénomène physique omniprésent dans la nature, qui apparait par exemple lorsqu'on regarde à travers deux grilles dont les pas respectifs sont légèrement différents. On observe alors une succession de zones claires (où les barreaux des deux grilles se superposent) et de zones foncées (où les barreaux sont décalés les uns par rapport aux autres). C'est exactement ce que nous observons ici, dans le domaine spectral.

Pour préciser cela quantitativement, considérons le train attoseconde généré par une impulsion de deux cycles de phase absolue $\pi/2$ (voir Figure 5.8(a)). Ce train est constitué de trois impulsions principales, et on définit comme Δt_1 et Δt_2 les temps qui les séparent. Si on cherche à déterminer de façon schématique le comportement spectral qui résulte de l'interférence de ces trois impulsions séparées dans le temps, on peut tout d'abord considérer la figure d'interférence

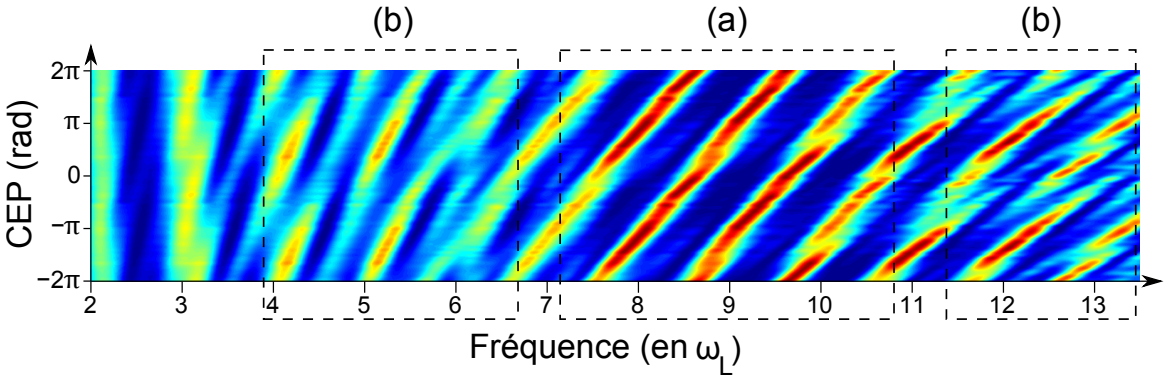

FIGURE 5.7 – **Modélisation de la dépendance du spectre avec la CEP laser.** On distingue deux zones dans le spectre : (a) une zone contrastée, correspondant à la plage de mesure expérimentale où l'on retrouve le décalage des pics spectraux vers les hautes fréquences avec la CEP, et (b) une zone peu contrastée, de part et d'autre de la zone (a), où le décalage spectral n'est plus continu.

générée par l'interaction des deux impulsions séparées de Δt_1, c'est-à-dire une modulation spectrale de période $2\pi/\Delta t_1$ (en vert sur la figure), puis l'interaction des deux autres impulsions qui crée une modulation de période $2\pi/\Delta t_2$ (en bleu sur la figure), légèrement inférieure à celle de l'autre modulation. Le spectre total résultant de la somme de ces deux modulations de pulsations proches forme un battement, représenté en violet, constitué d'une zone d'interférences constructives, là où les modulations sont en phase, et d'une zone d'interférences destructives, où les modulations sont en opposition de phase. On retrouve le comportement observé sur la Figure 5.7.

Pour expliquer maintenant le décalage spectral des pics vers les hautes fréquences avec la phase absolue, il faut noter que lorsque l'on augmente la phase absolue du laser, les cycles optiques laser se déplacent vers l'avant de l'impulsion, ce qui a pour effet de réduire l'écart temporel entre les impulsions attosecondes du train généré. En effet, la courbe des temps d'émission a une pente qui croît (voir Figure 4.4), ce qui signifie que l'écart temporel entre deux impulsions attosecondes consécutives diminue avec la CEP. Considérons par exemple le train attoseconde obtenu pour une phase absolue augmentée de π par rapport au cas précédent (voir Figure 5.8(b)). Les deux premières impulsions attosecondes du train sont maintenant séparées temporellement de $\Delta t'_1 < \Delta t_1$, et les deux suivantes sont séparées de $\Delta t'_2 < \Delta t_2$. Ainsi, les deux modulations spectrales, de périodes $2\pi/\Delta t'_1$ et $2\pi/\Delta t'_2$ vont interférer constructivement plus loin dans le spectre. Ceci explique très simplement pourquoi on observe expérimentalement un décalage des pics spectraux vers les hautes fréquences lorsqu'on augmente la valeur de la phase absolue. C'est l'augmentation de la période de la porteuse $\pi(1/\Delta t_1 + 1/\Delta t_2)$ avec la CEP qui est responsable du décalage fréquentiel.

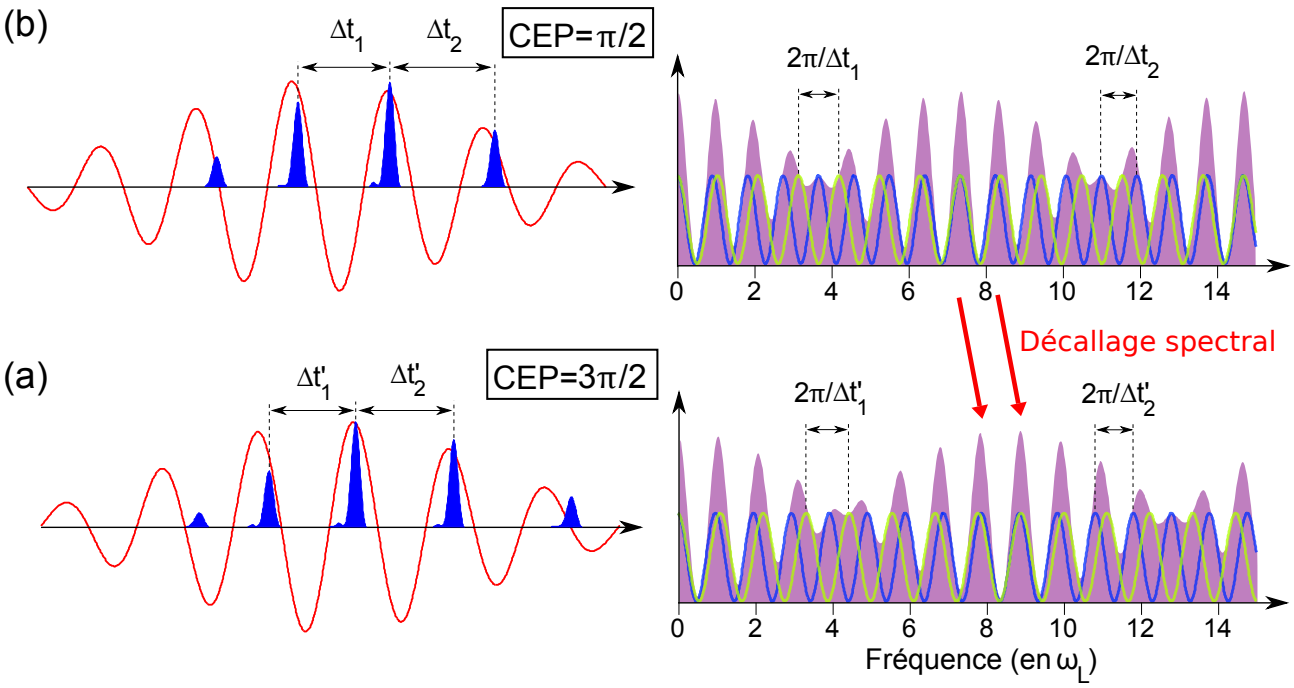

FIGURE 5.8 – **Effet de moiré dans le domaine spectral et décalage des pics spectraux**. (a) montre le train attoseconde (modélisé) généré pour une CEP de $\pi/2$. Les trois impulsions principales, dont les écarts temporels varient, interfèrent spectralement sous la forme de deux oscillations de fréquences différentes (courbes bleue et verte), dont le battement (courbe violette) est à l'origine des différentes zones de contraste observées dans la simulation. Les pics spectraux ne sont donc pas des harmoniques. (b) montre le train attoseconde généré en ajoutant π à la CEP laser. Les écarts temporels sont réduits au sein du train, ce qui augmente la période de la porteuse du battement spectral, et décale les pics spectraux vers les hautes fréquences.

En ce qui concerne les scans en phase absolue réalisés pour différentes valeurs du chirp laser (voir Figure 5.9), nous avons également souhaité les confronter aux résultats du modèle, afin de proposer une explication physique aux mesures expérimentales. Les résultats théoriques et expérimentaux sont mis en parallèle sur la Figure 5.5. La très grande similarité que l'on observe est frappante. On observe, à la fois dans les résultats expérimentaux et théoriques, le décalage fréquentiel ainsi qu'un rétrécissement spectrale des pics pour $\xi = -1$ (Figure 5.5(a) et (e)), une diminution de la pente du décalage spectral pour $\xi = 0.75$ (Figure 5.5(c) et (g)), et une annulation de la pente pour $\xi = 1$ (Figure 5.5(d) et (h)).

Comme précédemment, au vu de l'excellente concordance entre le modèle et l'expérience, nous pouvons appuyer notre interprétation des spectres expérimentaux sur le comportement temporel du train attoseconde fourni par le modèle. La Figure 5.10 (d-f) montre le profil temporel d'intensité du train attoseconde prédit par le modèle, en fonction de la phase absolue du

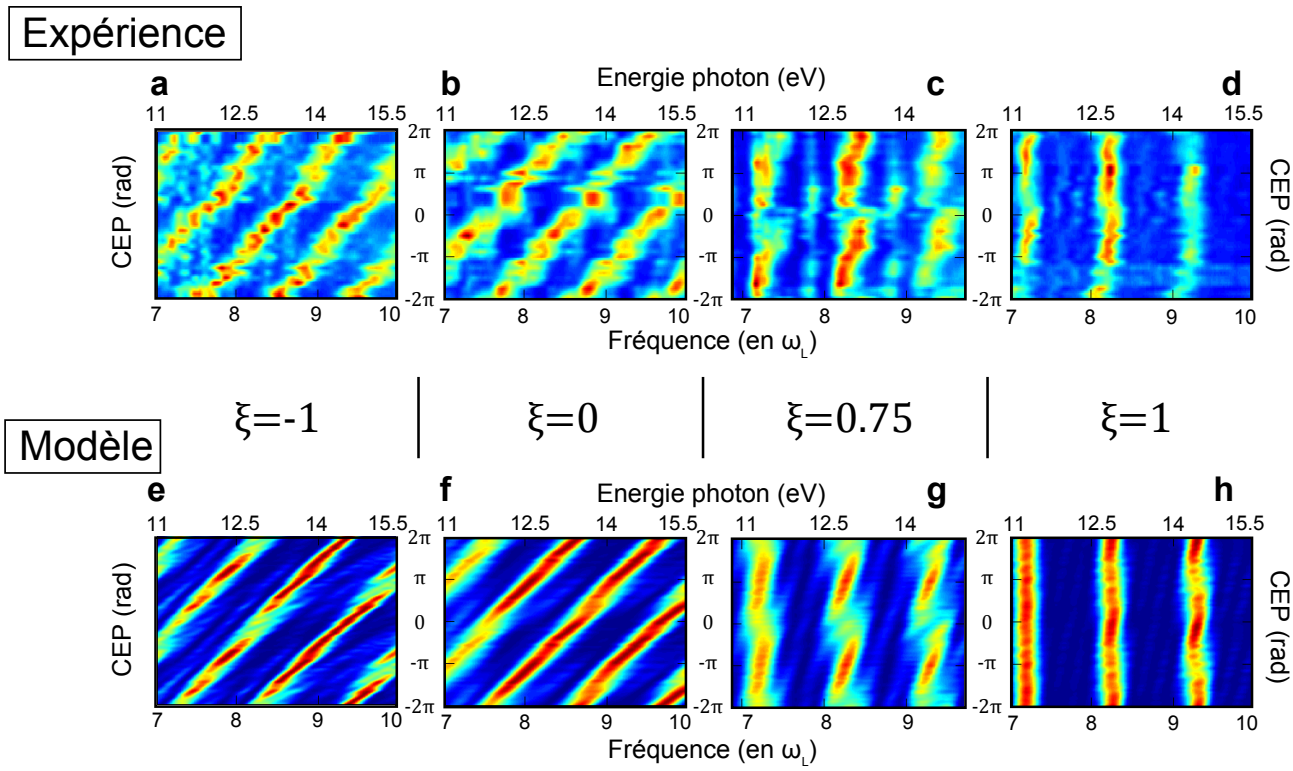

FIGURE 5.9 – **Mesures expérimentales (haut) et simulations (bas) de l'intensité spectrale en fonction de la CEP laser pour différentes valeurs de chirp laser**, $\xi = -1$ (a) et (e), $\xi = 0$ (b) et (f), $\xi = 0.75$ (c) et(g) et $\xi = 1$ (d) et (h)

laser, pour différentes valeurs du chirp laser, $\xi = -1$ ((d), $\xi = 0$ (e) et $\xi = 1$ (f). L'intensité du train est tracé en fonction de $t/T_L + \phi_0/2\pi$: nous avons choisi cette unité temporelle car dans ce référentiel, les maxima locaux du champ électrique du laser sont constants, et l'enveloppe se translate. Cette représentation permet de voir plus aisément les variations des écarts temporels entre les impulsions du train lorsque la CEP du laser varie. Au dessus des profils temporels d'intensité, nous avons représenté, dans les mêmes unités, le champ électrique laser, de façon à illustrer son effet sur la structure temporelle du train attoseconde.

Le cas $\xi = 0$ a déjà été commenté dans le précédent paragraphe, seulement la Figure 5.10(e) décrit l'évolution temporelle du train pour une variation continue de la CEP. Lorsqu'on augmente la valeur de la CEP, l'écart temporel entre les impulsions du train décroit, ce qui est à l'origine de décalage fréquentiel des maxima du spectre. Le comportement est identique pour $\xi = -1$. Le cas le plus intéressant ici est le cas $\xi = 1$. En effet, le chirp laser (voir Figure 5.10(c)) est tel que la non-périodicité du train est compensée : les écarts temporels entre les impulsions du train sont quasiment constantes, et cela pour toute valeur de la phase absolue du laser. Faire varier la CEP n'a donc presque plus d'effet sur le train attoseconde, ce qui explique que le spectre ne dépende presque plus lui non plus de la CEP (Figure 5.5(d) et (h)). On peut par

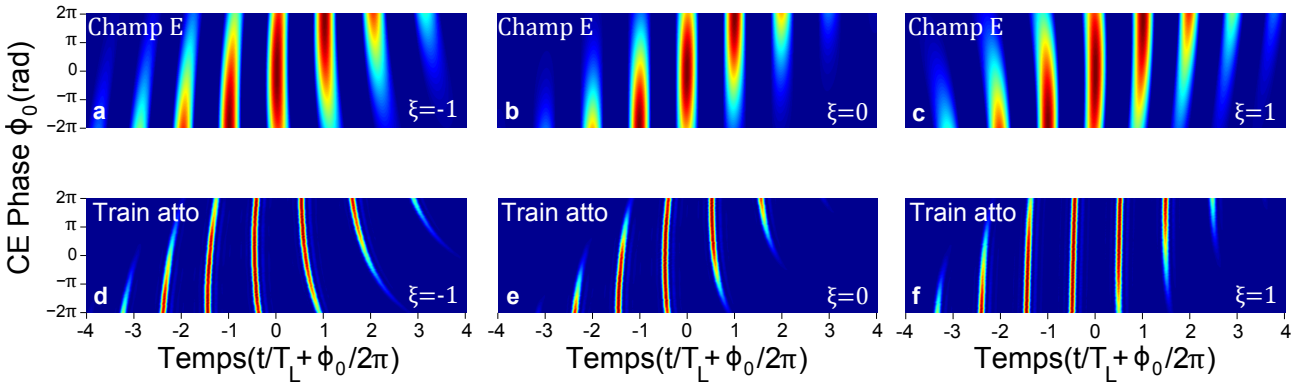

FIGURE 5.10 – **Simulation de l'évolution du profil temporel de l'intensité du train attoseconde en fonction de la CEP et du chirp laser**. En haut sont tracés les champs laser pour $\xi = -1$ (a), $\xi = 0$ (b), $\xi = 1$ (c) : pour plus de lisibilité, la partie négative du champ est tracée en bleu foncé. En bas sont tracées les intensités du train correspondantes. Le champ laser et le profil d'intensité du train attoseconde (d-e) sont tracés en fonction de $\bar{t} = t/T_L + \phi_0/2\pi$, où ϕ_0 est la CEP laser. On constate qu'un chirp laser négatif (a) augmente la non-périodicité du train attoseconde (d), tandis qu'un chirp positif rend le train attoseconde presque périodique, annulant presque totalement l'effet de la CEP sur le train

ailleurs parler ici de nouveau d'harmoniques et non plus seulement de pics spectraux.

Plus précisément, la seule variation qu'impose le changement de CEP sur le train attoseconde dans le cas $\xi = 1$ est la variation de l'intensité des impulsions lorsqu'elles glissent sous l'enveloppe. Au vu des spectres expérimentaux et théoriques, cet effet sur le spectre est très faible. Cette information est très intéressante, puisqu'elle confirme une de nos hypothèses théoriques, à savoir que la forme du spectre des impulsions attosecondes prises individuellement ne dépend pas de l'intensité du cycle optique générateur, ou alors de façon peu significative. La structure spectrale semble bien uniquement dépendre des temps d'émission au sein du train.

5.5 Conclusion

Les résultats présentés dans ce chapitre sont ainsi un aboutissement certain de l'approche inédite choisie par le groupe Physique du Cycle Optique, à savoir parvenir à générer des harmoniques sur miroir plasma à très haut taux de répétition. Grâce à cela, nous avons pu pour la première fois utiliser des impulsions de deux cycles optiques stabilisées en phase absolue pour générer des harmoniques sur cible solide, malgré une énergie laser bien inférieure à celle utilisée d'habitude pour l'interaction laser-matière à haute intensité.

Le premier résultat, purement expérimental, qui sort de cette étude est la très forte dépendance du spectre harmonique avec la phase absolue du laser. On observe, avec une résolution

de $\pi/10\,rad$, un décalage continu de la position des pics spectraux, qui ne correspond plus aux harmoniques de la fréquence laser. Comme l'émission cohérente de sillage est intimement liée à la dynamique des électrons de Brunel sous l'effet du champ laser, cette observation nous permet d'affirmer que nous contrôlons, avec une résolution temporelle sub-200 attosecondes, le mouvement collectif des électrons du plasma avec la phase absolue du laser (elle-même stabilisée avec une précision de 80 as).

De plus, grâce à la très bonne reproductibilité du modèle, nous avons pu attribuer ce comportement spectral à la très grande distorsion du train attoseconde due à la brièveté de l'impulsion génératrice : comme l'amplitude du champ laser varie très violemment en seulement deux cycles, les écarts temporels entre les impulsions attosecondes varient fortement le long du train. Il n'a plus lieu alors de parler d'harmoniques : les pics spectraux que nous observons sont dûs au premier battement de ces écarts temporels, dans le domaine spectral. C'est l'effet de moiré.

Enfin, cette interprétation est confirmée par le comportement asymétrique avec le chirp laser des scans en phase absolue. En particulier, nous parvenons à annuler les écarts temporels entre les impulsions attoseconde en imposant un chirp positif à la phase laser, ce qui annule l'effet de la phase absolue sur les spectres d'émission : on observe de nouveaux les harmoniques laser.

Chapitre 6

L'effet phare attoseconde : génération d'impulsions attosecondes isolées

Les impulsions laser traditionnellement utilisées pour générer des impulsions attosecondes possèdent plusieurs cycles optiques, ce qui entraine l'émission non pas d'une impulsion mais d'un train d'impulsions attosecondes. Or, si un train d'impulsions permet de sonder des phénomènes ayant la même périodicité que celle du train (Remetter *et al.*, 2006; Mauritsson *et al.*, 2008), sonder un phénomène qui ne présente pas cette périodicité nécessite d'utiliser une impulsion isolée. Les solutions proposées jusqu'à présent pour générer une attoseconde unique, comme les techniques de « temporal gating » (Tsakiris *et al.*, 2006), « polarisation gating » (Sansone *et al.*, 2011) ou « ionisation gating » (Lan *et al.*, 2007) tendent à utiliser des portes temporelles pour limiter (typiquement à un temps de l'ordre du cycle optique laser) l'intervalle de temps pendant lequel l'émission est efficace.

En 2011, Henri Vincenti et Fabien Quéré du groupe de Saclay, avec qui nous travaillons en proche collaboration, ont proposé un mécanisme de génération d'impulsions attosecondes uniques tout à fait original (Vincenti & Quéré, 2012), qui consiste cette fois à séparer angulairement chaque impulsion du train pour les isoler les unes des autres. Ils ont baptisé ce mécanisme « l'effet phare attoseconde ». Contrairement aux techniques précédemment utilisées pour générer des impulsions attosecondes uniques, ce mécanisme fournirait non pas une mais un groupe d'impulsions isolées, qui pourraient alors être directement utilisées pour des expériences de type pompe-sonde XUV-XUV, avec une source unique, synchronisée et dans une configuration très simple. Ce chapitre présente les premiers résultats, que nous avons obtenus en Salle Noire, visant à démontrer expérimentalement l'effet phare attoseconde. Ces résultats sont le fruit du travail commun du groupe PCO du LOA et du groupe PHI du CEA-Saclay.

Dans une première partie, nous présentons les résultats obtenus en appliquant une séparation angulaire modérée au train attoseconde, en travaillant en impulsions longues ($30\,fs$) et en

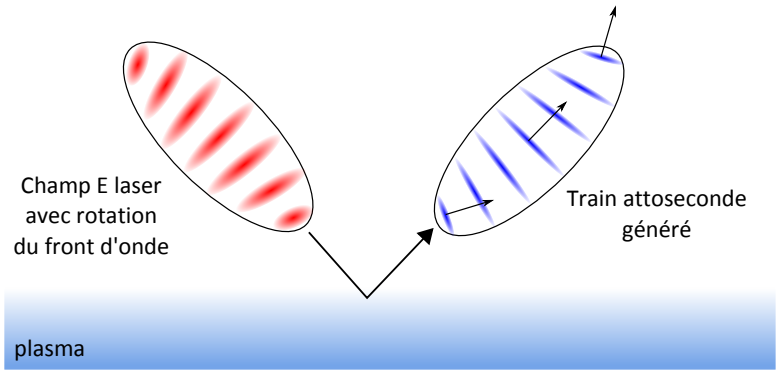

FIGURE 6.1 – *Phare attoseconde.* Une impulsion laser présentant une rotation de front d'onde (en rouge) génère un train d'impulsions attosecondes dispersé angulairement (en bleu).

focalisation faible. Nous montrons comment cette configuration peut être utilisée pour recueillir des informations sur la structure temporelle du train attoseconde, simplement en observant le spectre résolu dans la direction de la séparation des impulsions attosecondes.

Dans une seconde partie, nous modifions les conditions d'interaction en utilisant les impulsions courtes ($5\,fs$) contrôlées en CEP et en conditions de focalisation forte, ce qui nous permet d'augmenter sensiblement la séparation angulaire du train, que nous démontrons en observant le profil spatial de l'émission. Puis nous présentons la dépendance en phase absolue de la structure spatiale et spectrale de l'émission.

6.1 L'effet phare attoseconde

6.1.1 Dispersion angulaire du train attoseconde

Cette partie présente les éléments nécessaires à l'appréhension de l'effet phare attoseconde. Les détails des calculs analytiques, développés dans (Vincenti & Quéré, 2012), ne sont pas repris ici.

L'idée du phare attoseconde est très simple : il s'agit, plutôt que de générer un train d'impulsions attosecondes ayant toutes la même direction de propagation, de les séparer angulairement lors de la génération. Comme la direction de propagation de chaque impulsion du train est définie par la configuration spatiale du front d'onde du cycle générateur, l'idée consiste à imposer une rotation dans le temps des fronts d'onde laser au foyer. Cette rotation des fronts d'onde laser entrainera ainsi une dispersion angulaire des impulsions attosecondes du train (voir Figure 6.1). Un filtrage spatial permettrait alors, sous certaines conditions concernant la vitesse de rotation des fronts d'intensité du train ainsi que la divergence, d'isoler une impulsion attoseconde unique.

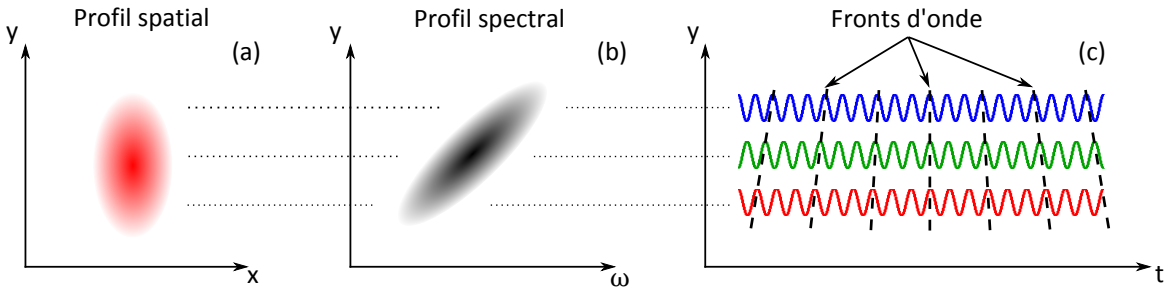

FIGURE 6.2 – *Chirp spatial au foyer et rotation des fronts d'onde.* En (a) est représenté le profil spatial de la tache focale soumis à un chirp spatial dans la direction y. Le spectre résolu en y est représenté en (b), les hautes fréquences du spectre d'un côté et les basses de l'autre. La représentation temporelle (c) montre que la répartition du spectre entraine la rotation des fronts d'onde laser au foyer.

6.1.2 Rotation des fronts d'onde et propagation

Il s'agit donc d'introduire une rotation des fronts d'onde au point focal du laser. D'un point de vue spectral, c'est équivalent à distribuer spatialement au point focal les composantes du spectre laser, autrement dit d'introduire du chirp spatial au foyer dans une direction (ce qui a pour effet d'étirer spatialement la tache dans cette direction), tout en maintenant une phase temporelle plate. En effet, le long de la direction du chirp spatial (y), la pulsation laser varie linéairement, faisant ainsi tourner les fronts d'onde résultants. La Figure 6.2 illustre cet effet.

On voit donc qualitativement que la répartition linéaire du spectre le long de la direction y du point focal entraîne une rotation des fronts d'onde en fonction du temps autour de l'autre axe spatial x. Si on définit la vitesse de rotation des fronts d'onde v_{rot} comme la variation de l'orientation angulaire en fonction du temps, et θ_n comme la divergence des impulsions attosecondes générées, on voit que si $v_{rot}T_L > \theta_n$, avec T_L la période moyenne entre les impulsions attosecondes, alors les impulsions sont séparées angulairement. On peut donc envisager, sous les conditions précédentes, de séparer angulairement les impulsions attosecondes générées par une impulsion laser présentant une rotation de ses fronts d'onde.

Il faut noter que la rotation des fronts d'onde laser est désirée au foyer du laser. Comme ni l'implémentation de ce couplage spatio-temporel ni la détection de l'effet sur l'émission XUV ne se fait au foyer (champ lointain), il est nécessaire de comprendre ce qu'il se passe après propagation du faisceau (champ proche), qu'il soit laser ou harmonique. En champ proche (c'est-à-dire à des distances du focus très supérieures à la longueur de Rayleigh), la rotation des fronts d'onde prend une forme bien connue, appelée pulse front tilt en anglais, où l'enveloppe

spatiale du laser est inclinée par rapport à la direction de propagation [1]. Ainsi, comme le montre la Figure 6.3, en plaçant un système de détection du profil spatial après propagation, on observe les profils d'intensité des faisceaux XUV, plus ou moins séparés selon l'intensité de la rotation des fronts d'onde générateurs.

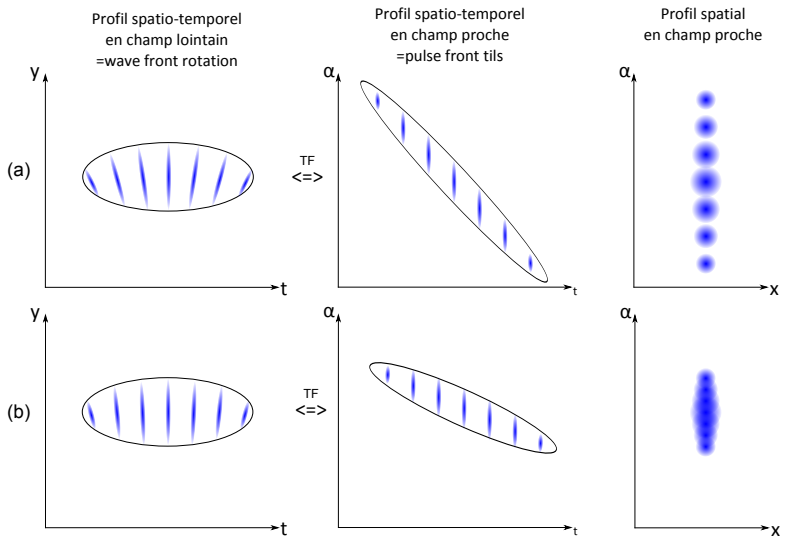

FIGURE 6.3 – *Rotation des fronts d'onde, pulse front tilt et profils spatiaux.* On représente ici le profil spatio-temporel en champ lointain d'une impulsion présentant une rotation de ses fronts d'onde (à gauche), sa représentation en champ proche, prenant la forme d'un pulse front tilt (au milieu) et le projeté spatial du faisceau en champ proche (à droite). En (a), le couplage spatio-temporel est prononcé, et en champ proche, les impulsions sont séparées spatialement. En (b), le couplage est plus modéré, et les impulsions se chevauchent spatialement.

6.1.3 Mesure spectrale du train faiblement dispersé

L'objectif principal du phare attoseconde est évidemment de séparer complètement les impulsions du train pour obtenir un groupe d'impulsions attosecondes uniques. Cependant, disposer d'un train légèrement dispersé peut se révéler aussi intéressant pour connaitre la structure temporelle du train. En effet, l'effet phare attoseconde réside dans le fait que la dispersion angulaire du train d'impulsions attosecondes permet en principe de discriminer spatialement l'évolution temporelle de l'émission. Le phare attoseconde se comporte donc comme une streak caméra ultra-rapide (Itatani *et al.*, 2002), qui transforme le profil temporel en profil spatial. Il y a donc une correspondance directe entre l'angle d'émission α et un instant τ au sein du train.

1. Le pulse front tilt est souvent utilisé, par exemple lors de couplage non-linéaire à trois ondes, lorsque les conditions d'accord de phase imposent un angle entre les faisceaux : pour maximiser le recouvrement spatial tout au long de la propagation dans le cristal, il est alors intéressant d'introduire un pulse front tilt au bon angle sur l'un des faisceaux.

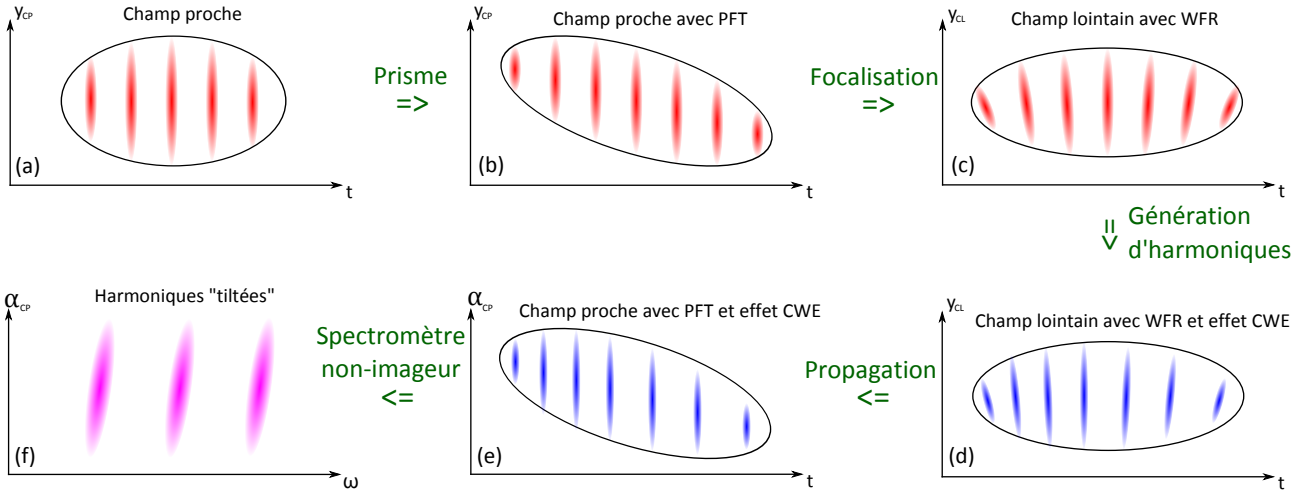

FIGURE 6.4 – *Emission cohérente de sillage avec rotation des fronts d'onde laser.* En champ proche (a), la paire de prismes non-parallèles introduit une dispersion angulaire des fréquences du spectre, plus connue sous le nom de « pulse front tilt« (b). En champ lointain (au foyer de la parabole), la propagation transforme le pulse front tilt en rotation de fronts d'onde (c). Lors de l'émission, la rotation des fronts d'onde se répercute sur les front d'onde des impulsions XUV, avec en plus l'effet de retard temporel de l'émission cohérente de sillage dû à la variation de l'intensité de l'enveloppe (d). Après propagation, on retrouve le pulse front tilt sur le train attoseconde combiné avec l'effet de retard (e). L'analyse résolue en espace du spectre de l'émission CWE équivaut alors à un spectrogramme du train attoseconde (f)

C'est ce que nous essayons d'exploiter ici. Cet effet est illustré dans la Figure 6.4 : dans le cas présenté, le début du train attoseconde est envoyé vers les α positifs, alors que la queue du train est envoyée vers les α négatifs. Ainsi, si l'on connait la vitesse de rotation v_{rot} des fronts d'onde laser, chaque angle d'émission α peut alors être associé à un temps τ (voir Figure 6.5), avec $\tau = \alpha/v_{rot}$. L'idée est donc d'exploiter le fait que notre spectromètre soit non-imageur pour mesurer le spectre résolu spatialement du train dispersé. On réalise ainsi un spectrogramme du train attoseconde (voir Figure 6.5) :

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t) G(t-\tau) e^{j\omega t} dt \right|^2,$$

où $S(\omega, \tau)$ est le spectrogramme du train attoseconde, $E(t)$ est le champ électrique associé au train, et $G(t-\tau)$ est la porte temporelle induite par le degré de superposition spatiale des impulsions attosecondes.

Ainsi, lorsqu'on mesure le spectre de l'émission en α, la porte temporelle G du spectrogramme est centrée en $\tau = \alpha/v_{rot}$, et sa largeur dépend de la vitesse de rotation v_{rot} et de la divergence des impulsions attosecondes θ_n. En effet, une grande vitesse de rotation va rétrécir la

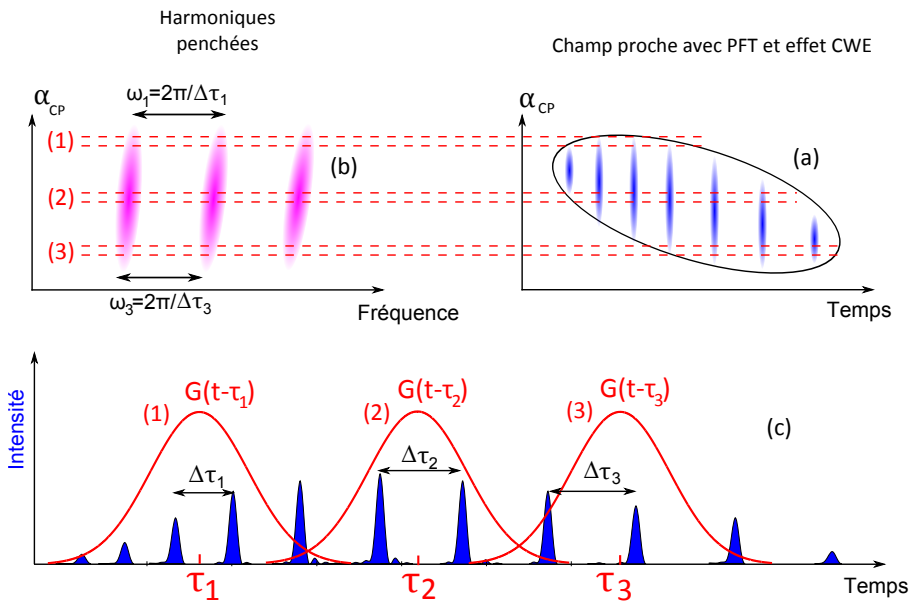

FIGURE 6.5 – *L'effet phare attoseconde comme spectrogramme du train attoseconde.* En (a) est représenté le profil spatio-temporel du train attoseconde généré par émission cohérente de sillage avec une rotation modérée des fronts d'onde laser. Le spectre résolu en espace (b) comporte la signature de la dispersion spatiale du profil temporel du train. Les positions (1), (2) et (3) mesurent le spectre respectivement du début (τ_1), du milieu (τ_2) et de la fin (τ_3) du train, avec une porte temporelle $G(t-\tau)$ dont la largeur dépend de la vitesse de rotation des fronts d'onde laser et de la divergence des impulsions attosecondes (c). Dans le cas où la dispersion angulaire du train est modérée, les harmoniques sont « penchées ».

porte G (les impulsions seront mieux séparées), tandis qu'une grande divergence des impulsions attosecondes va élargir la porte (les impulsions vont d'avantage se superposer). La largeur de la porte dépend elle de la vitesse de rotation et de la divergence des impulsions attosecondes θ_n. En faisant l'hypothèse que la divergence a un profil gaussien, est identique pour chaque impulsion attoseconde et ne varie pas le long du spectre XUV, on peut écrire la porte temporelle de la façon suivant :

$$G(t-\tau) = \exp\left(-\left(\frac{v_{rot}}{\theta_n}\right)^2 (t-\tau)^2\right) \tag{6.1}$$

où θ_n est la largeur angulaire à 1/e en champ des impulsions attosecondes.

Ainsi, dans le cas où le rapport v_{rot}/θ_n n'est pas favorable à la séparation angulaire complète du train attoseconde, la porte temporelle du spectrogramme s'étale sur plusieurs impulsions attosecondes (voir Figure 6.5(c)) . Ainsi, en mesurant le spectre de ce groupe d'impulsions attosecondes, dont l'écart temporel moyen est noté $\Delta\tau$, on peut remonter, en mesurant la

fréquence de battement harmonique du spectre $\omega = 2\pi/\Delta\tau$, au délai entre les impulsions du groupe analysé par la porte temporelle (il faut tout de même que la porte temporelle ne soit pas trop large, l'idéal étant d'isoler deux impulsions attosecondes). Comme $\Delta\tau$ varie le long du train (dans le cas de l'émission cohérente de sillage, on peut ainsi espérer remonter à la structure temporelle complète du train. De plus, grâce à notre spectromètre non-imageur, nous pouvons déterminer en une seule mesure le spectre harmonique résolue en angle, ce qui donne en principe accès à la structure temporelle du train. Dans le cas de l'émission cohérente de sillage, comme l'écart temporel entre les impulsions attosecondes augmente le long de l'impulsion (chirp femtoseconde négatif), on s'attend à observer des harmoniques « penchées », dû au fait que la fréquence harmonique $\omega = 2\pi/\Delta\tau$ variant le long du train soit répartie spatialement (voir Figure 6.5(b)).

6.1.4 L'effet phare attoseconde dans nos conditions expérimentales

Nous avons évidemment souhaité étudier expérimentalement cet effet avec notre dispositif expérimental. On peut démontrer (Vincenti & Quéré, 2012) que pour une durée d'impulsion et une focalisation donnée, la vitesse de rotation maximale que l'on peut obtenir vaut $v_{rot}^{max} = \theta_L/nT_L$, où θ_L est la divergence laser, n est le nombre de cycles laser et T_L la période laser. Comme il faut maximiser le rapport $v_{rot}T_L/\theta_n$ (θ_n étant la divergence des impulsions attosecondes) pour avoir la meilleure séparation angulaire, il faut donc minimiser le rapport $n\theta_n/\theta_L$. Pour cela, nous avons à notre disposition différentes paramètres expérimentaux sur lesquels nous pouvons jouer. Tout d'abord la durée de l'impulsion laser, qui conditionne le nombre n d'impulsions attosecondes : à 5 fs, nous disposons d'un train composé de seulement deux ou trois impulsions XUV, alors qu'à 30 fs, le train comprend une dizaine d'impulsions. La séparation sera donc meilleure à 5 fs. Ensuite, le degré de focalisation laser : plus la focalisation est forte, plus la vitesse de rotation des fronts de phase sera élevée. Evidement, la divergence θ_n des impulsions attosecondes augmentera également, mais les mesures expérimentales (voir Partie 4.1.3) montrent que l'augmentation de la divergence attoseconde est plus faible que celle du laser [2], de telle sorte que le rapport θ_n/θ_L diminue en focalisation forte. La meilleur séparation angulaire doit donc avoir lieu en tirant à 5 fs en focalisation forte. Une comparaison des valeurs numériques de $n\theta_n/\theta_L$ est donnée dans le Tableau 6.6.

2. Cet effet est caractéristique de l'émission cohérente de sillage : plus l'intensité laser sur cible est élevée, plus le front de phase des impulsions attosecondes, naturellement courbé par les retards d'émission le long de la tache focale, sera plat, ce qui aura pour effet de réduire la divergence des impulsions XUV.

	focalisation faible	focalisation forte
30 fs	2,2	1,6
5 fs	0,4	0,3

FIGURE 6.6 – *Rapport $n\theta_n/\theta_L$ dans nos différentes conditions expérimentales*

Ainsi, travailler à 5 fs en focalisation forte semble être la meilleur option. Cependant, l'effet phare attoseconde présente aussi de l'intérêt lorsque les impulsions XUV ne sont pas complètement séparées angulairement, car, comme nous le préciserons dans la partie suivante, cette configuration permet potentiellement d'obtenir des informations précieuses sur la structure temporelle du train attoseconde. C'est pourquoi nous avons menés deux études du méchanisme dans deux configurations différentes : à 30 fs en focalisation faible (Partie 6.3) et à 5 fs en focalisation forte (Partie 6.4)

6.2 Dispositif expérimental

Pour obtenir la rotation des fronts d'onde au foyer du laser, nous avons vu qu'il fallait répartir correctement le spectre de l'impulsion le long d'une direction de la tache focale (voir Figure 6.2). En somme, il s'agit de monter un spectromètre. Cependant, il est essentiel de pouvoir contrôler son pouvoir de diffraction. En effet, si le spectre est peu diffracté le long de la tache, la rotation du front d'onde sera faible. Si le spectre est trop diffracté, alors la tache focale sera fortement allongée dans la direction de diffraction, ce qui finira par réduire également la rotation des fronts de phase.

Nous avons donc choisi d'utiliser deux prismes en BK7 de 0.5^o d'angle, dont l'un est monté sur une platine de rotation qui permet de faire varier l'angle d'incidence du faisceau et ainsi le pouvoir de diffraction (voir Figure 6.7). Ce dispositif va permettre d'introduire un angle variant linéairement (au premier ordre) avec la longueur d'onde. La parabole fera office d'optique focalisante du spectromètre. Nous avons également opté pour un dispositif permettant la mesure spatiale et spectrale du train attoseconde. En plus du spectromètre XUV décrit dans la Partie 3.4.1, nous avons monté une Multi-Channel Plate (MCP) sur une platine de translation permettant de mesurer le profil spatial de l'émission. Nous avons également utilisé une alimentation haute tension en créneau, fournissant des portes de tension de 10 ns synchronisé avec la fréquence laser. En jouant sur le délai de la porte par rapport à l'impulsion, nous avons pu améliorer de façon conséquente la qualité du signal. Il faut également préciser que nous n'avons ici utilisé aucun filtre, la MCP étant placée directement sur le trajet du faisceau réfléchi. En effet, nous n'avions pas de filtre métallique de diamètre suffisant pour couvrir toute la surface du détecteur, nous empêchant ainsi d'observer l'ensemble du profil spatial XUV. A posteriori,

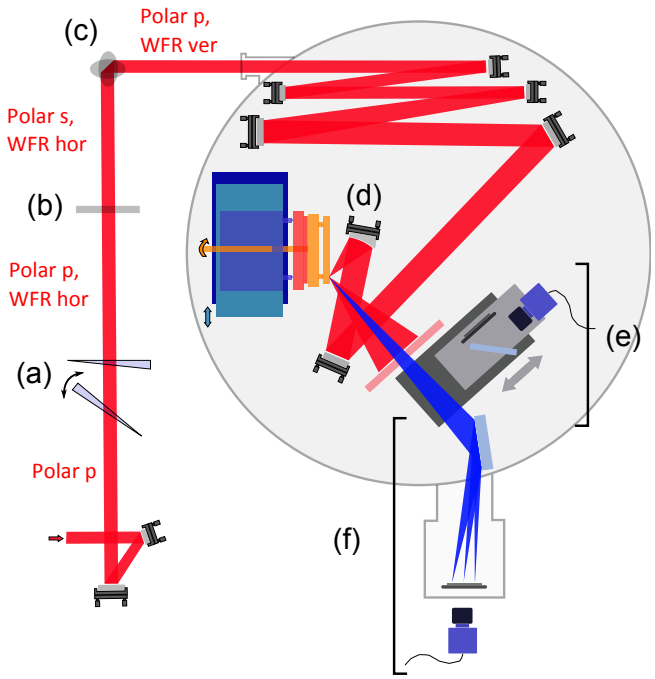

FIGURE 6.7 – *Dispositif de génération et de détection de l'effet phare attoseconde.* Les fréquences du laser polarisé p sont dispersées horizontalement par une paire de prisme non-parallèles (a), puis la polarisation est passée en s par une lame demi-onde (b). La dispersion des fréquences et la polarisation du laser sont tournées de 90° dans un ascenseur croisé (c) avant d'être focalisé par la parabole hors-axe (d). Une MCP placée sur le chemin du faisceau mesure le profil spatial (e), et peut être translaté pour analyser l'émission dans le spectromètre XUV (f)

l'absence de filtre ne s'est pas révélée préjudiciable, car le faisceau laser s'est trouvé être trop peu intense (à cause de sa très forte divergence) pour être détecté par la MCP. Nous avons également placé une paire d'aimants devant le détecteur pour s'affranchir des particules émises par le plasma : cela s'est révélé être sans effet. Ainsi, la gamme spectrale détectée s'étale de $100\,nm$ (harmonique 8 du laser) vers les plus hautes fréquences. Au vue de la décroissance du spectre typique de l'émission cohérente de sillage, on peut donc penser que le signal détecté se situe autour de l'harmonique 8 ou 9.

Le spectromètre diffractant dans le plan sagittal, il était donc nécessaire de réaliser la dispersion angulaire dans le plan tangentiel. De façon à éviter de mettre la paire de prisme en position vertical au mépris des règles de sécurité, nous les avons maintenu dans le plan horizontal, avant de changer la polarisation laser de p à s à l'aide d'une lame demi-onde à large bande. Enfin nous avons tourné la polarisation une nouvelle fois, ainsi que la direction de la rotation de front de phase avec un ascenseur croisé, de façon à avoir sur cible une rotation des fronts d'onde dans le plan vertical et une polarisation p.

Pour mesurer le degré de rotation des fronts d'onde laser, nous imageons le point focal sur la fente d'entrée d'un spectromètre résolu en espace sur une direction (celle sur laquelle nous dispersons le spectre laser). Pour avoir une résolution spatiale suffisante, nous effectuons un grandissement de 300 environ à l'aide d'un objectif de microscope.

6.3 L'effet phare attoseconde comme spectrogramme de l'émission

Cette partie présente les résultats expérimentaux obtenus en introduisant une rotation des fronts d'onde d'amplitude modérée. L'objectif est ici de démontrer qu'une mesure spectrale résolue le long de la direction de dispersion angulaire du train attoseconde permet d'obtenir des informations sur la structure temporelle du train.

6.3.1 Obtention et mesure de la rotation du front d'onde

Pour étudier expérimentalement la possibilité de réaliser un spectrogramme du train attoseconde, nous nous sommes placés dans des conditions expérimentales où les impulsions attosecondes ne sont pas complètement séparées angulairement : en impulsions longues et en focalisation faible.

La mesure de la rotation des fronts d'onde au foyer du laser est effectuée en imageant le foyer sur la fente d'entrée d'un spectromètre. Les Figures 6.8(a1) et (b1) montrent la mesure de la répartition du spectre au foyer respectivement sans rotation de front d'onde (avec les deux prismes parallèles) et avec rotation du front d'onde (avec un angle de 60° entre les prismes). On voit que dans le premier cas, le spectre est relativement homogène le long de la tache, alors que dans le deuxième cas, les composantes du spectre sont réparties le long de la direction verticale de la tache focale. Les Figures 6.8(a2) et (b2) présentent les champs électriques obtenus en appliquant une phase plate aux mesures spectrales (a1) et (b1). Le champ électrique (a2) présente des front d'onde parallèles (on observe tout de même une légère rotation de ses front d'onde, montrant la présence d'un léger pulse front tilt intrinsèque en champ proche, probablement dû à l'alignement des réseaux du compresseur). En revanche, le champ électrique (b2) présente une rotation de ses fronts d'onde prononcée, avec une vitesse de rotation mesurée de $v_{rot} = 0.8\, mrad.fs^{-1}$. On observe également l'allongement de la tache focale dans la direction de la répartition du spectre.

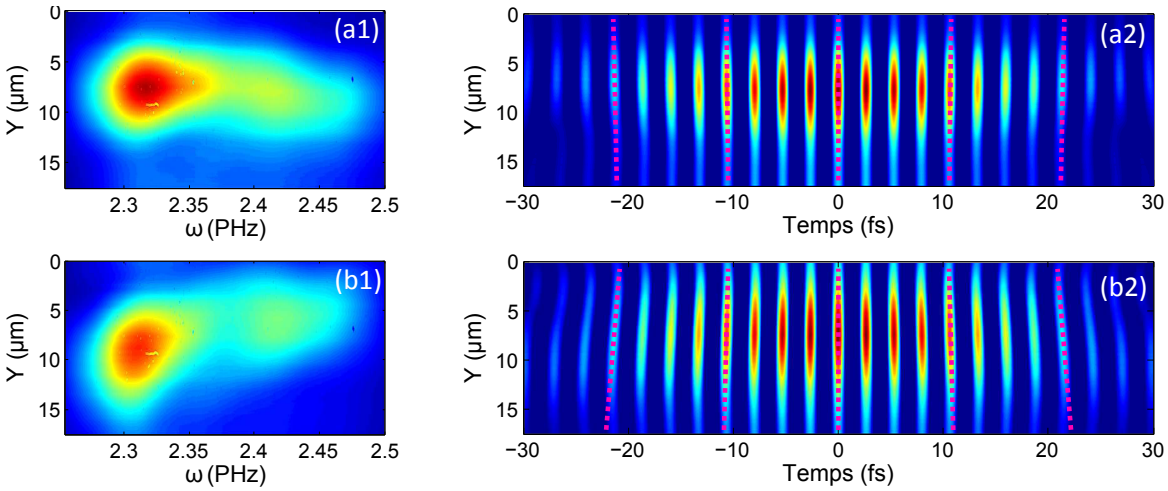

FIGURE 6.8 – *Chirp spatial au foyer et rotation des fronts d'onde laser pour une impulsion de 30 fs.* En (a1) est montrée la mesure du spectre de la tache focale sans dispositif de rotation de front d'onde (on observe un léger chirp spatial intrinsèque au laser). Les fronts d'ondes laser calculés en prenant une phase spectrale plate (a2) sont plutôt parallèles ($v_{rot}^{(a)} = -0.3\,mrad.fs^{-1}$). En (b1) est présenté le spectre obtenu lorqu'un des deux prismes est tourné de 60°, ainsi que le champ laser associé (b2), qui présente une rotation marquée de ses fronts d'onde ($v_{rot}^{(b)} = 0.8\,mrad.fs^{-1}$). Les traits pointillés rouges suivent la direction des fronts d'onde et aident la lecture

Ces mesures laissent donc penser que lorsque l'impulsion est comprimée sur cible, on applique une dispersion angulaire au train attoseconde. Pour le vérifier, nous avons mesuré le spectre de l'émission. Les résultats sont présentés sur la Figure 6.9.

6.3.2 Mesures spectrales résolues en angle

La Figure 6.9 montre le champ électrique au foyer calculé à partir des mesures spectrales au foyer du laser ainsi que le signal harmonique mesuré dans ces conditions (harmonique 11 à 13). Les configurations expérimentales sont les suivantes : sans prismes (a), avec un des prismes tourné de 30° (b), avec un des prismes tourné de 60° (c). Les vitesses de rotation des fronts sont respectivement $v_{rot}^{(a)} = -0.3\,mrad.fs^{-1}$, $v_{rot}^{(b)} = 0.03\,mrad.fs^{-1}$ et $v_{rot}^{(c)} = 0.8\,mrad.fs^{-1}$. Les harmoniques sont quant à elles légèrement penchées dans un sens (a2), droites (b2) et plus fortement penchées dans l'autre sens (c2). Cette observation qualitative va dans le sens de l'explication théorique présentée plus haut : en fonction du signe et de l'amplitude de la vitesse de rotation des fronts d'onde laser au foyer, les harmoniques présentent une certaine inclinaison, qui peut être expliquée par la dispersion angulaire des impulsions attosecondes du train. Dans le cas (c) par exemple, qui présente la vitesse de rotation la plus élevée, les impulsions attosecondes situées à l'avant du train, qui présentent un écart temporel plus faible, sont

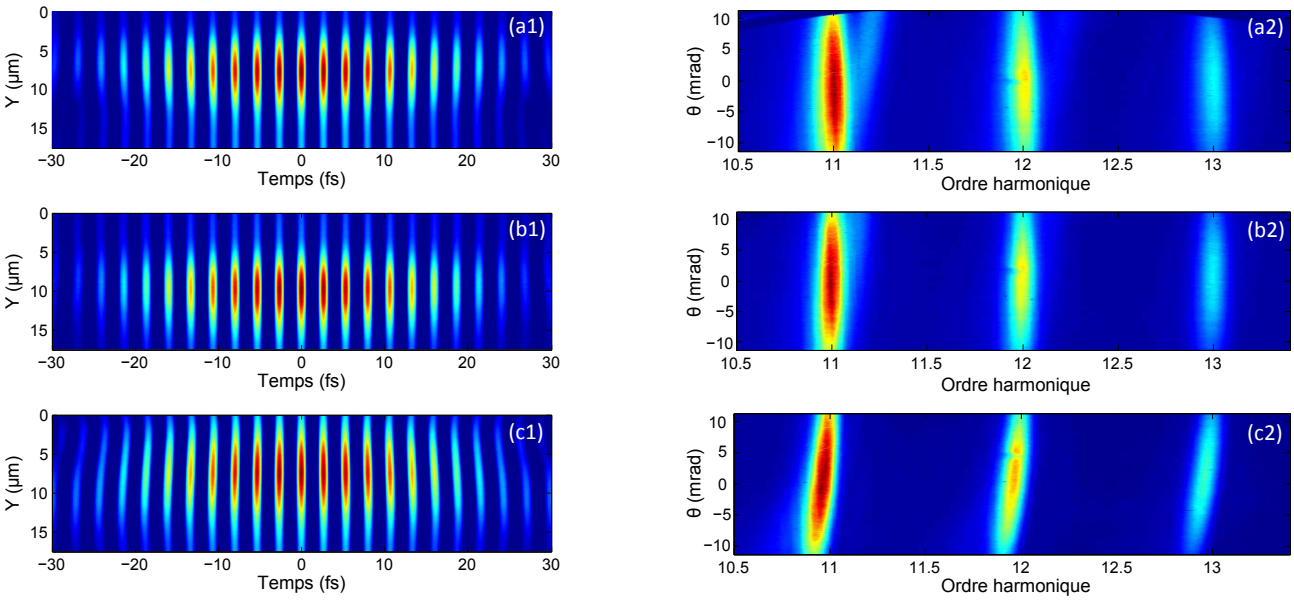

FIGURE 6.9 – *Rotation des fronts d'onde laser et spectres harmoniques associés.* Les mesures (a), (b) et (c) ont été effectuées respectivement sans prisme, avec prismes dont un à 30°, et avec prismes dont un à 60°. Dans le cas (a), on a $v_{rot}^{(a)} = -0.3\,mrad.fs^{-1}$ et on mesure des harmoniques légèrement penchées d'un côté (a2). Dans le cas (b), où on a $v_{rot}^{(b)} = 0.03\,mrad.fs^{-1}$, les harmoniques sont droites. Dans le cas (c), on a $v_{rot}^{(c)} = 0.8\,mrad.fs^{-1}$ et on observe des harmoniques nettement penchées de l'autre coté.

dirigées vers les angles α positifs et produisent des harmoniques de fréquence fondamentale plus élevée, alors que celles situées à la fin du train sont dirigées vers les α négatifs et génèrent des harmoniques de fréquence fondamentale plus faible. Dans le cas où le champ laser ne présente pas de rotation des fronts d'onde, les harmoniques sont droites. Le comportement du profil harmonique est donc cohérent avec l'analyse précédente.

Pour pouvoir faire une analyse plus quantitative de ces résultats expérimentaux, il faut donner une estimation de la forme de la porte temporelle appliquée au train par la rotation des fronts d'onde.

Dans nos conditions expérimentales, on a $\theta_n \approx 10\,mrad$ (cette valeur est approximative, car elle correspond à la divergence attoseconde mesurée sans rotation de front d'onde, voir Figure 4.3) et $v_{rot} = 0.8\,mrad.fs^{-1}$ (dans le cas c), ce qui signifie que la largeur à 1/e de la porte temporelle est de l'ordre de $25\,fs$. La durée de l'impulsion étant de $33\,fs$ (en champ), il est clair que nos paramètres expérimentaux ne nous permettent pas de tirer des conclusions directes sur la structure temporelle du train à partir de l'inclinaison des harmoniques. En effet, la largeur idéale de la porte serait d'environ $5\,fs$, afin de ne sélectionner que deux impulsions attosecondes par mesure spectrale (voir Figure 6.5). Dans nos conditions expérimentales, non seulement la

porte sélectionne dix impulsions, mais en plus le produit de la fonction porte centrée en τ avec l'impulsion centrée elle en 0 n'est plus centré en τ mais entre 0 et τ, ce qui empêche de faire la conversion directe $\theta \Rightarrow \tau$ pour remonter à la fréquence de battement locale du train attoseconde. L'approche simple qui consiste à dire que la fréquence d'oscillation harmonique locale permet de remonter directement au délai entre les quelques impulsions attosecondes sélectionnées par la porte temporelle G n'est donc pas applicable dans ces conditions expérimentales. Il est cependant probablement possible d'exploiter ces résultats (par exemple, les spectrogrammes utilisés dans la technique FROG classique possèdent en général une porte de la même durée que celle de l'impulsion à analyser), mais cela implique de développer un algorithme plus complexe pour extraire l'information temporelle contenue dans les données spectrales. Cela reste encore à faire.

Une autre solution consisterait à réduire la largeur de la porte temporelle pour ne sélectionner que deux impulsions attosecondes. Dans le régime de l'émission cohérente de sillage, cela est possible en réduisant la taille du foyer laser, puisque la divergence des impulsions attosecondes augmente moins vite que la vitesse de rotation. Cependant, il faut en parallèle augmenter le cône de collection du spectromètre puisque le faisceau XUV est plus divergent. Cela devient malheureusement impossible dans nos conditions expérimentales, car nous atteignons la limite d'acceptance angulaire de notre détecteur. Deux solutions sont envisagées pour réaliser cette expérience : l'acquisition d'un réseau concave et d'une MCP de plus grande dimension, ou alors le raccourcissement de l'impulsions laser, ce qui permettrait d'augmenter sensiblement la vitesse de rotation des fronts d'onde laser.

6.4 Génération d'impulsions attosecondes isolées

Outre la possibilité de recueillir des informations sur la structure temporelle du train d'impulsions XUV, l'effet phare attoseconde a pour objectif principal de fournir une solution efficace et simple à implémenter pour générer des impulsions attosecondes isolées. Comme nous l'avons vu dans la Partie 6.3, il s'agit d'introduire un angle $v_{rot}.T_L$ entre les fronts de phase laser qui soit supérieur à la divergence θ_n des impulsions attosecondes. Pour tenter d'atteindre ces conditions, nous sommes passés en impulsions courtes (durée de 5 fs) et en focalisation forte (tache focale inférieure à $2\,\mu m$). En effet, en élargissant sensiblement le spectre (d'un facteur cinq) et en diminuant la tache focale (d'un facteur trois), on augmente potentiellement d'un facteur 15 la vitesse de rotation des fronts de phase.

Nous avons donc utilisé le laser en impulsion courtes (voir Partie 3.1.2) stabilisée en CEP. La stabilisation en CEP est ici indispensable (voir Figure 6.11), car les directions de l'émission des impulsions attosecondes varie très fortement avec la phase absolue. L'énergie sur cible est

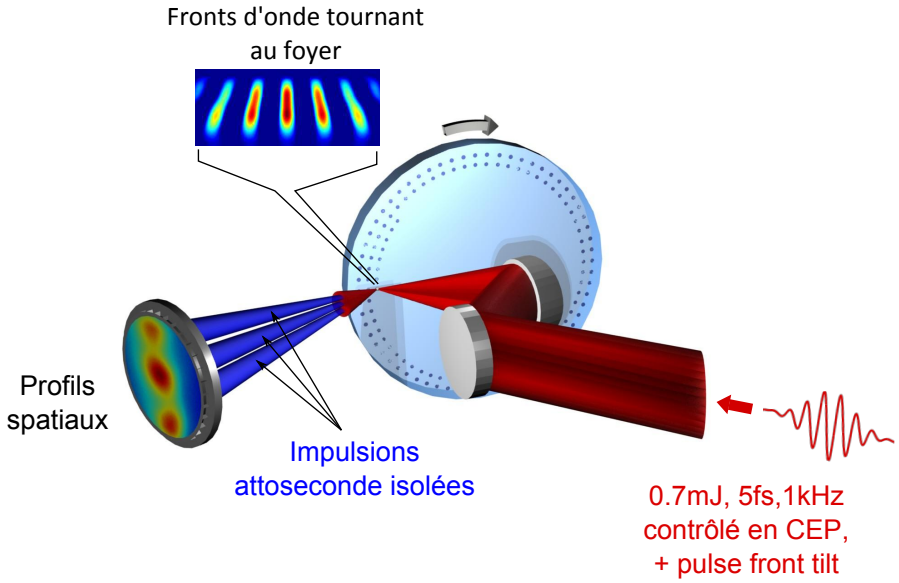

FIGURE 6.10 – *Schéma du dispositif expérimental de séparation angulaire du train par effet phare attoseconde.* Une impulsion de large spectre (5 fs) stabilisée en CEP et ayant un pulse front tilt contrôlé est focalisée sur une cible solide au kHz. Les front d'onde tournants au foyer génèrent un ensemble d'impulsions attosecondes séparées angulairement. On détecte les profils spatiaux sur une Micro Channel Plate.

de 700 μJ, et le chirp spatial est orienté dans la direction verticale. La Figure 6.10 schématise le dispositif expérimental.

6.4.1 Optimisation de la vitesse de rotation des fronts d'onde laser et séparation angulaire des impulsions attosecondes

L'optimisation de l'amplitude de la rotation des fronts au foyer du laser se fait une nouvelle fois à l'aide d'une paire de prismes dont l'un est monté sur une platine de rotation pour faire varier l'angle d'incidence du laser. Ce dispositif est également utilisé pour optimiser la compression de l'impulsion sur cible (voir Partie 5.2).

La Figure 6.11 présente les mesures du spectre au foyer pour différents angles du prisme. Les spectres (a1), (b1) et (c1) correspondent respectivement à des angles de 0°, 50° et 55°. En regard sont présentés les fronts d'onde du champ électrique dans les trois conditions expérimentales. Encore une fois, on observe un chirp spatial résiduel malgré un angle nul entre les prismes, qui conduit à une légère rotation des fronts d'onde laser de $v_{rot}^{(a)} = 3.4\, mrad.fs^{-1} = 8.6\, mrad/cycle$. Dans le cas (b), le chirp spatial est plus conséquent, correspondant à $v_{rot}^{(b)} = 8\, mrad.fs^{-1} = 20.8\, mrad/cycle$. Enfin, la meilleure vitesse de rotation est atteinte dans le cas

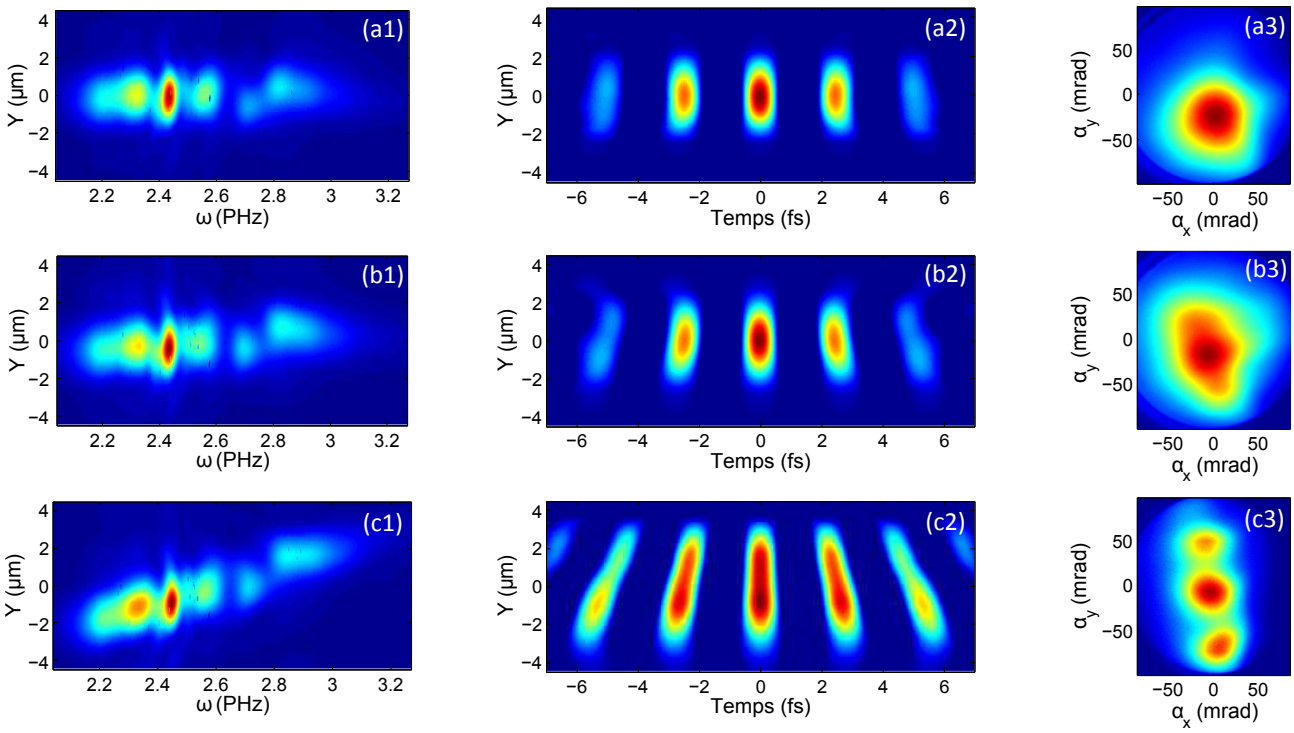

FIGURE 6.11 – *Chirp spatial au foyer, rotation des fronts d'onde laser et profils spatiaux mesurés pour une impulsion de 5 fs.* Les colonnes 1, 2 et 3 donnent respectivement le spectre résolu de la tache focale, les fronts d'onde laser associés et les profils spatiaux mesurés 20 cm après l'interaction. Le cas (a), (b) et (c) présentent une vitesse de rotation de plus en plus grande, et on observe que le profil spatial présente un seul pic dans le cas (a), puis deux satelittes commencent à apparaitre dans le cas (b). Enfin, on observe trois pics parfaitement séparés dans le cas (c). La CEP est stabilisée dans les trois cas, qui sont intégrés sur 300 tirs laser.

(c), avec $v_{rot}^{(c)} = 15\,mrad.fs^{-1} = 39\,mrad/cycle$.

Au vu des divergences mesurées dans ces conditions de focalisation sans rotation des fronts d'onde (voir Figure 4.3), de l'ordre de $\theta_n \approx 25\,mrad$, le cas (b) semble insuffisant pour séparer complètement les différents faisceaux harmoniques. En revanche, le cas (c), où les fronts d'onde tournent de 39 $mrad$ par cycle, remplit les critères. La troisième colonne de la Figure 6.11 montre les profils spatiaux de l'émission mesurés 200 mm derrière le foyer, lorsque la phase absolue du laser est stabilisée. Le cas (a3) présente un profil spatial typique, d'un unique faisceau collimaté. Dans le cas (b3), le profil spatial est déformé verticalement et on commence à entrevoir l'apparition de deux satellites autour du pic maximum. Dans le cas (c3), on distingue clairement trois faisceaux distincts, séparés angulairement d'environ 50 $mrad$. L'angle entre les impulsions est bien de l'ordre de grandeur de l'angle mesuré entre les front de phase laser dans le cas (c).

6.4.2 Contrôle du phare attoseconde par la phase absolue du laser

Ces premières observations, en particulier la très bonne correspondance entre les angles de séparation entre les supposées impulsions attosecondes uniques et les angles entre les fronts de phases laser au foyer, laissent penser qu'il s'agit bien de l'effet phare attoseconde que nous observons, et que les pics observés sont l'empreinte spatiale des trois impulsions attosecondes du train. Ce résultat est très satisfaisant puisqu'il fait suite aux mesures spectrales que nous avons présentées dans le chapitre précédent (voir Chapitre 5), où c'était au travers des seules mesures spectrales que nous avions conclu de la présence d'un train de trois ou quatre impulsions attosecondes, dont nous contrôlions les temps d'émission à l'aide de la phase absolue du laser. Pouvoir ici les identifier de façon aussi claire, après les avoir analysées par une mesure indirecte, présente donc un goût particulier.

Un moyen très simple de confirmer cela consiste à faire varier la phase absolue du laser et à observer la dépendance de la position des impulsions attosecondes. La Figure 6.12 présente les résultats de la mesure de la dépendance en phase absolue laser du profil spatial de l'émission, dans les conditions de rotation maximales des fronts d'onde laser. L'expérience est menée en effectuant une rampe sur deux cycles de phase absolue (de -2π à 2π), et chaque profil spatial est une intégration sur 300 tirs consécutifs. Les profils, enregistrés avec un écart de $\pi/10$ de CEP, sont présenté sur la Figure 6.12 ; la lecture des 41 profils se fait de gauche à droite et de haut en bas. Les principales valeurs de CEP sont indiquées en blanc sur quelques profils. Enfin, on montre sur la dernière figure un profil spatial intégré sur 300 tirs sans contrôle de la CEP.

On constate que les pics, au nombre de trois ou quatre selon la valeur de la CEP, se décalent verticalement quand la CEP augmente et voient leur amplitude varier selon qu'ils s'approchent ou s'éloignent du maximum de l'« enveloppe ». Ce comportement est celui attendu : lorsque la CEP augmente, les fronts de phase laser se déplacent vers l'avant de l'enveloppe, ce qui a pour effet (i) d'augmenter l'angle de chaque front de phase, de qui change la direction d'émissions des impulsions attosecondes, et (ii) de réduire ou d'augmenter leur amplitude selon s'ils se trouvent à l'avant ou à l'arrière du maximum de l'enveloppe laser. Finalement, le comportement spatial (positions et intensités) reproduit le comportement temporel du train attoseconde généré, à la manière d'une « streak »caméra. On note également la périodicité de ce comportement avec la phase absolue, et le brouillage du signal lorsque la mesure est faite sans stabilisation de la CEP (voir dernier profil de la Figure 6.12).

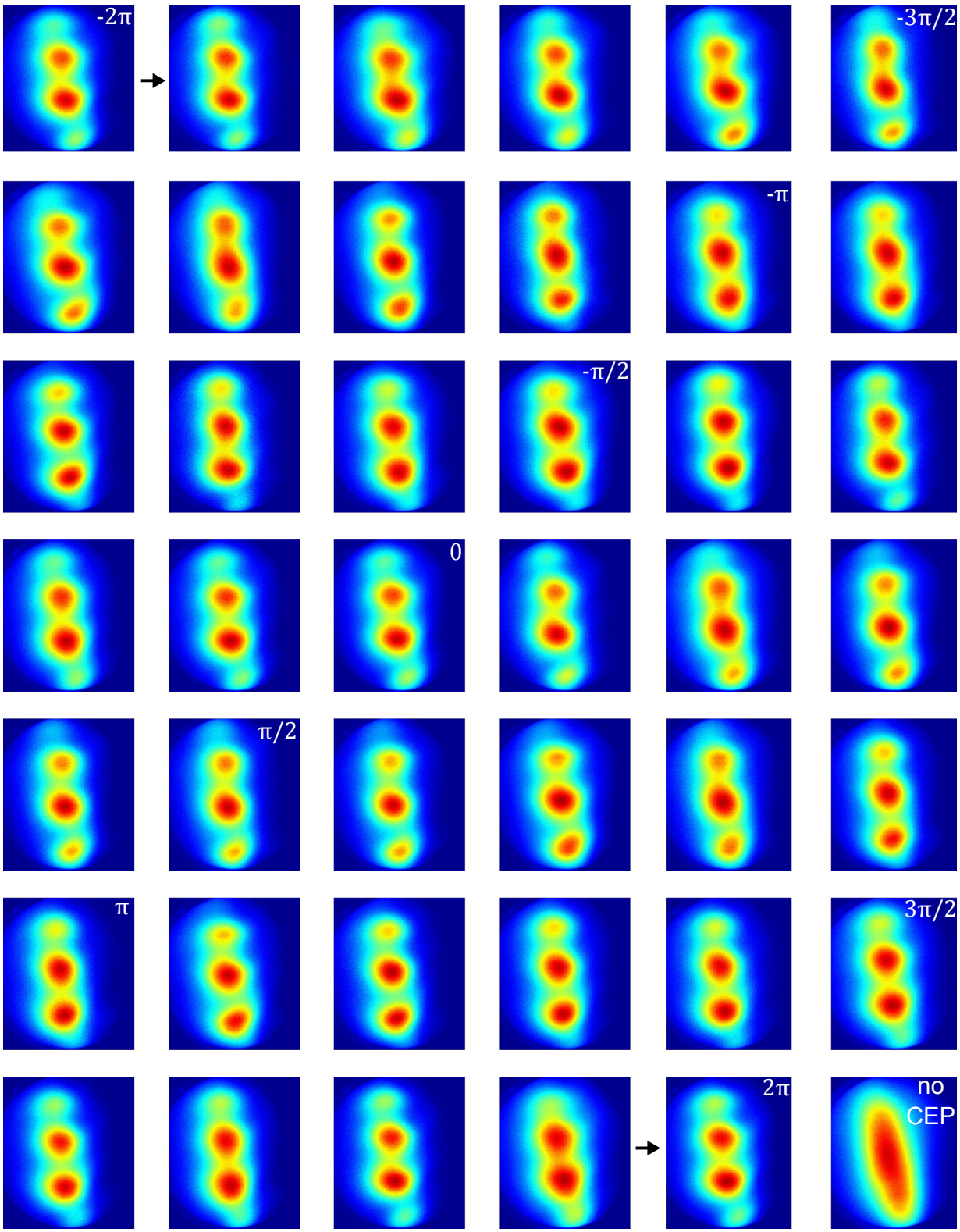

FIGURE 6.12 – *Variation avec la phase absolue de la position et de l'amplitude des impulsions attosecondes séparées angulairement.* De gauche à droite et de haut en bas, la CEP varie de -2π à 2π avec des échelons de $\pi/10$. La CEP n'est pas stabilisée sur la dernière figure. Les profils sont intégrés sur 300 tirs consécutifs.

6.4.3 Mesures spectrales

Nous avons également mesuré le spectre de l'émission. Cependant, comme l'extension spatiale de l'émission est beaucoup plus élevée que le cône de collection du spectromètre, il n'était pas possible de mesurer le spectre tout le long du train attoseconde dispersé. Les spectres présentés ne sont donc pas résolus en θ_y comme dans la partie précédente, mais sont mesurés en $\theta_y = 0$.

La Figure 6.13(a) compare deux spectres mesurés respectivement avec et sans rotation de front d'onde, pour des énergies photon s'étalant de 15 à 22 eV (harmonique 10 à 14). On constate tout de suite que les oscillations de période ω_L (courbe bleue) dues aux interférences des impulsions attosecondes du train disparaissent lorsqu'on applique une rotation des fronts d'onde suffisante au laser (courbe rouge). Cela laisse fortement penser que nous parvenons à isoler les impulsions attosecondes du train. La Figure 6.13(b) montre un scan du spectre mesuré en $\theta_y = 0$ en fonction de la CEP. La mesure est effectuée sur deux cycles complets de CEP, de -2π à 2π.

Le scan montre tout d'abord une modulation générale d'intensité spectrale de période égale à un cycle de CEP. Cela est naturellement attribué au déplacement spatiale avec la CEP des impulsions attosecondes dispersées : les maxima d'intensité spectrale apparaissent quand une impulsion attoseconde rentre dans la fente d'entrée du spectromètre, et les minima sont observés quand on mesure le spectre entre deux impulsions attosecondes (voir Figure 6.13(b)). Cette observation basique nous permet donc de dire que les maxima d'intensité spectrale que nous mesurons correspondent bien aux spectres des impulsions attosecondes isolées. De plus, on n'observe pas d'interférences quand on mesure le spectre entre deux impulsions (CEP=0), ce qui confirme le fait que les impulsions sont bien séparées spatialement. On peut remarquer que la séparation des impulsions diffère selon la composante spectrale observée : la séparation est meilleure pour les hautes fréquences car elles divergent moins que les plus basses. C'est la raison pour laquelle les profils spatiaux mesurés sur la MCP, principalement dûs à l'harmonique 8 dont l'intensité est supérieure à celle des harmoniques plus hautes, sont moins bien séparés que ce que l'on observe dans le spectromètre pour les harmoniques 10 à 14.

Il faut tout de même noter la présence d'oscillations rapides dans le spectre des impulsions attosecondes isolées, de période supérieure à la fréquence laser ($\approx 4.5\omega_L$). Cette période rapide est également présente dans le spectre du train. Notre hypothèse aujourd'hui est que ces oscillations pourraient venir d'une compression imparfaite de l'impulsions laser. En effet, les mesures FROG montrent la présence possible d'un satellite de l'impulsion principale, d'intensité suffisante pour générer un pre-train d'impulsions avant le train principal. La période des oscillations laisserait penser que le pre-train se situerait 12 fs, et qu'il subit également l'effet phare

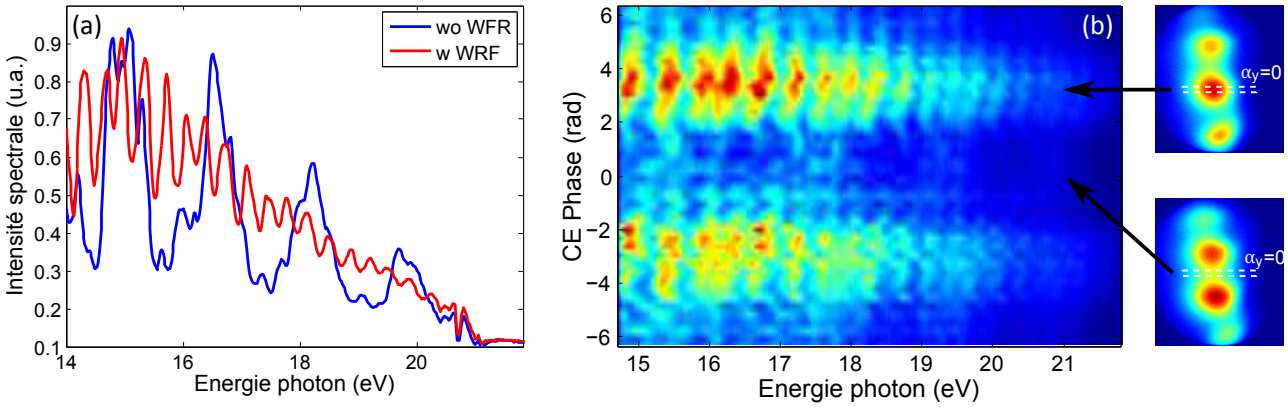

FIGURE 6.13 – *Mesure spectrale des impulsions attosecondes isolées et dépendance du spectre avec la phase absolue laser.* Les spectres sont mesurées en $\theta_y = 0$. En (a), on compare un spectre sans rotation de fronts d'onde (bleu) avec un spectre d'une impulsions isolée. On observe la disparition des oscillations harmoniques. En (b), on presente le spectre du phare attoseconde en fonction de la phase laser variant de -2π à 2π. Ainsi, selon la valeur de la CEP, le spectre est centré sur une impulsion attoseconde ou entre deux impulsions.

attoseconde (ces oscillations sont observées sur tous les angles de collections du spectromètre).

6.5 Conclusion

Cette partie présente donc les premiers résultats de la campagne « phare attoseconde » que nous avons obtenus en Salle Noire. Tout d'abord, nous avons caractérisé l'intensité de la rotation des fronts d'onde en mesurant le spectre du foyer laser résolu dans la direction du chirp spatial. Ensuite, en utilisant le faisceau en impulsions longues, nous avons illustré expérimentalement que l'effet phare attoseconde pouvait être utilisé pour réaliser un spectrogramme du train d'impulsions attosecondes, et donner ainsi accès à la structure temporelle du train. Enfin, en passant en impulsions courtes et en réduisant la taille de la tache focale, nous avons multiplié par 15 la vitesse de rotation des fronts d'onde laser, ce qui nous a permis d'observer la séparation spatiale complète des différentes impulsions du train. Pour valider cette analyse, nous avons montré que nous pouvions contrôler la position et l'amplitude des faisceaux attosecondes isolés avec la phase absolue du laser. Nous avons également comparé les spectres avec et sans séparation des impulsions attosecondes, et nous avons constaté que les modulations harmoniques caractéristiques du train d'impulsions étaient absentes dans le spectre des impulsions attosecondes séparées angulairement.

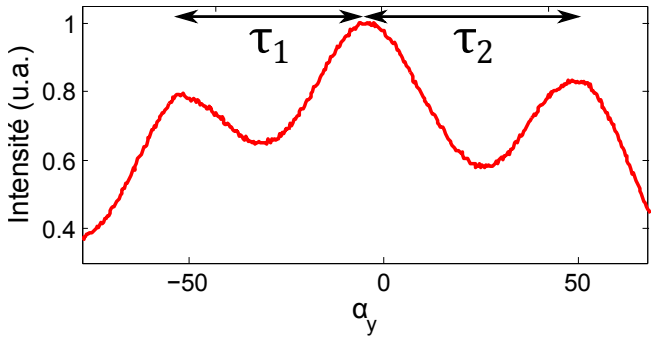

FIGURE 6.14 – *Coupe du profil spatial du train dipersé.* L'écart angulaire entre les impulsions du train n'est pas constant, ce qui pourrait être une manifestation de la structure temporelle du train.

Nous avons donc démontré que l'idée simple et élégante d'Henri Vincenti et Fabien Quéré pour générer plusieurs impulsions attosecondes isolées était réalisable avec un laser de quelques cycles générant des impulsions attosecondes sur cible solide dont la divergence est de l'ordre de $10 - 20\%$ de la divergence laser. Il reste cependant encore beaucoup d'informations à extraire de ces données. En particulier, il est possible que la position des impulsions attosecondes reflète la non-périodicité du train. Si on regarde les données de plus près (voir Figure 6.14), on peut noter que l'écart angulaire entre les faisceaux XUV n'est pas constant : il augmente sensiblement vers les α_y négatifs. Or, compte tenu du sens que nous avons imposé au chirp spatial au foyer du laser, nous pouvons affirmer que les impulsions attosecondes situé vers les α_y positifs sont celles qui sont à l'avant du train. Ainsi, les impulsions situé à l'avant du train sont moins bien séparées que celle situées à l'arrière du train. On peut raisonnablement penser que cette distorsion spatiale est le reflet de la distorsion temporelle typique de l'effet CWE. Cet effet reste encore à éclaircir.

Chapitre 7

Conclusions et perspectives

Nous avons présenté dans ce manuscrit la mise en place d'un dispositif expérimental de génération d'impulsions attosecondes sur cible solide à très haute cadence. Ce dispositif inédit a été conçu dans l'objectif de pouvoir se libérer des contraintes liées à l'utilisation de système laser TW ou multi-TW, et de pouvoir réaliser l'interaction avec des lasers à très haute cadence moins énergétiques et à champ électrique contrôlé. Une fois cette approche démontrée et fiabilisée, nous avons pu exploiter pleinement le contrôle du champ électrique que permettent de telles systèmes laser en démontrant pour la première fois un contrôle de la dynamique d'un plasma à l'échelle attoseconde (contrôle temporel) et la génération d'impulsions attosecondes isolées (contrôle spatial).

La première phase de ce travail expérimental a donc été de concevoir l'expérience d'interaction laser-solide à haute intensité en tenant compte des contraintes imposées par le système laser : une énergie relativement modeste de l'ordre du milliJoule, et un taux de répétition très élevé. La réussite de cette approche repose sur trois points : l'accès aux hautes intensités par la compression temporelle et spatiale, la conception d'une cible d'interaction permettant l'interaction laser-solide à très haute cadence, et l'accumulation du signal lors de la mesure. Ainsi, nous avons tout d'abord compensé le manque d'énergie laser en focalisant le plus fortement possible pour atteindre les intensités requises pour l'interaction. Puis l'effort s'est porté sur la conception d'une cible solide stabilisée en position par interférométrie permettant de mener cette interaction au taux de répétition du laser, c'est-à-dire au kHz. Enfin, les diagnostiques permettant la caractérisation spectrale et spatiale à haute cadence de l'impulsion ont été mis en place.

Après l'observation du premier signal harmonique, nous nous sommes attelés à fiabiliser et caractériser la source en utilisant les impulsions longues de 30 fs. Ces mesures montrent que nous disposons d'une source de photons dont l'énergie s'étend jusqu'à l'harmonique 19, fonctionnant au kHz et délivrant une puissance moyenne de $3\,\mu W$, pour une efficacité de conversion

photon-photon de quelques 10^{-6}. La divergence est de l'ordre de 10% de la divergence laser. Une fois les caractéristiques de la source déterminées, ainsi que le mécanisme de génération (l'émission cohérente de sillage), nous avons étudié la dépendance des temps d'émission des harmoniques du spectre en fonction des paramètres de l'interaction (intensité laser, chirp laser, gradient plasma) en observant les largeurs harmoniques. Cela nous a permis de valider un modèle théorique permettant de recontruire le signal harmonique à partir des trajectoires des électrons de Brunel sous l'effet du champ laser. Ce modèle nous a permis, en confrontant ses prédictions aux résultats expérimentaux, de proposer une méthode de mesure de la longueur de gradient à l'aide du spectre de l'émission cohérente de sillage. En déclenchant la formation du plasma à l'aide d'une préimpulsion contrôlée, nous avons ainsi pu suivre son expansion en mesurant le signal harmonique généré.

Puis nous nous sommes lancés dans l'étude de la génération d'harmoniques avec des impulsions de deux cycles optiques contrôlés en phase. Cette expérience a une position centrale car c'est elle qui sanctionne notre démarche qui consiste à adapter l'interaction pour fonctionner à haute cadence, afin de pouvoir bénéficier du contrôle attoseconde du champ que nous offre notre système laser. Cette étude nous a permis d'observer une très forte dépendance du spectre de l'émission avec la phase absolue laser, avec une sensibilité supérieure à $200\,as$. Cette dépendance consiste en une délocalisation des pics spectraux qui se décalent d'une pulsation laser ω_L par cycle de phase absolue. Nous attribuons ce comportement à la très forte non-périodicité du train attoseconde qui induit un effet de moiré dans le spectre, c'est-à-dire une alternance de franges contrastées et de franges brouillées. Ceci est une conséquence du battement dans le domaine spectral dû aux différents délais existants entre les impulsions attosecondes du train, et qui rend caduque la notion d'harmoniques, intimement liée à la périodicité temporelle du train. Nous avons confirmé cette interprétation en faisant varier la phase temporelle du laser, ce qui a pour effet principal d'augmenter ou de réduire la non-périodicité du train, et par conséquent de faire varier la période du battement. En particulier, l'introduction d'une quantité adaptée de chirp positif rend le train presque périodique, ce qui annihile l'effet de la phase absolue laser sur le spectre redevenu harmonique. Cette expérience nous a donc permis de démontrer, par l'observation du comportement spectrale de l'émission cohérente de sillage, qu'il était possible, à l'instar de ce qui a été montré dans les gaz, de contrôler la dynamique d'un plasma à l'échelle attoseconde.

Enfin, après avoir démontré la possibilité de contrôler la dynamique ultra-rapide du plasma avec la phase laser (contrôle temporel), nous nous sommes attelés à la démonstration d'un mécanisme de séparation angulaire des impulsions attosecondes du train, en ajoutant au contrôle temporel de la phase laser le contrôle spatial de l'orientation des fronts d'onde. Cette technique, baptisée « phare attoseconde », propose d'appliquer une rotation des fronts d'onde laser dans

la zone de génération, permettant ainsi d'isoler spatialement les impulsions attosecondes qui composent le train généré, et de disposer ainsi de plusieurs impulsions attosecondes isolées et synchronisées. Mais en plus de la perspective de la génération d'impulsions attosecondes isolées, l'effet phare attoseconde consiste à balayer spatialement l'évolution temporelle de l'émission, à l'image d'une caméra streak. Ainsi, dans un premier temps, nous avons effectué un spectrogramme de l'émission, dans un régime de rotation des fronts d'onde modérée où les impulsions « se chevauchaient » spatialement, afin de les faire interférer dans le spectromètre, et pouvoir ainsi remonter aux délais séparant les impulsions consécutives du train. Dans un second temps, en utilisant les impulsions de 5 fs, nous avons considérablement augmenté la vitesse de rotation des fronts d'onde laser afin de complètement séparer spatialement les impulsions. Nous avons également contrôlé leurs positions et amplitudes respectives en faisant varier la phase absolue du laser. Des mesures spectrales nous ont permis de constater la disparition des oscillations harmoniques dans le spectre, prouvant ainsi la séparation totale du train d'impulsions. Ces résultats, encore en cours d'analyse, nous permettent cependant de penser que nous avons mis au jour une technique de génération d'impulsions attoseconde isolées très efficace, plutôt simple à mettre en place, et qui se présentera en alternative crédible aux techniques déjà existantes. De plus, beaucoup d'informations, en particulier sur la structure temporelle du train, sont certainement encodées dans les mesures spatiales et spectrales de l'émission, et attendent d'être extraites.

Ces résultats obtenus par notre groupe de recherche constituent donc la première démonstration de la génération de trains d'impulsions attosecondes sur cible solide au kHz, ce qui nous a permis d'exploiter le contrôle attoseconde du champ électrique laser pour étudier la dynamique ultra-rapide d'un plasma.

Ce travail ouvre ainsi la voie à plusieurs perspectives :

La première, d'ordre purement technique, concerne la cible d'interaction. Plusieurs améliorations peuvent être implémentés : tout d'abord le remplacement des cibles usagées, qui nécessite aujourd'hui un réalignement un peu fastidieux. En effet, les points de références de la nouvelle cible par rapport à la précédente se situent sur la face arrière, comme sur la plupart des montures de miroirs. A cause du fait que les cibles sont à faces non parallèles (ce qui est nécessaire pour éviter les franges parasites dans le système interférométrique), la cible nécessite alors d'être réaligné. L'idée serait alors déplacer les points de référence sur la face avant de la cible, quitte à perdre un peu de surface utile. Le deuxième point consiste à améliorer encore la stabilité du positionnement de la surface en mode actif. Les performances actuelles ($\approx 50\,nm$ rms, ce qui correspond à un jitter temporel $300\,as$) ne sont pas encore suffisantes pour profiter pleinement de la brièveté potentielle de la source (sauf évidemment dans le cas d'une utilisation

avec une autre source générée également par l'interaction, et donc naturellement synchronisée). Les performances actuelles peuvent être facilement améliorées, en particulier en utilisant un système de détection des franges plus rapides, avec une caméra à plus haut taux de répétition ou une matrice de diodes adaptée, afin de faire descendre le jitter de la source en dessous des $100\,as$. Enfin, un travail sur la compacité est à envisager.

En ce qui concerne l'analyse de l'émission, il manque évidemment une mesure temporelle directe du train attoseconde. Si la très bonne concordance entre les résultats expérimentaux et le modèle nous laisse penser que nos mesures indirectes du profil temporel du train sont correctes, il est naturellement nécessaire de confirmer cela par une mesure directe. Cela peut être fait en effectuant une corrélation croisée entre le train attoseconde et le champ générateur, de type FROG-CRAB (Mairesse & Quéré, 2005; Kim *et al.*, 2010). Ces mesures, plus aisées en impulsions courtes car nécessitant moins de résolution spectrale de la part du spectromètre à électrons, permettrait de valider notre approche théorique consistant à remonter à la structure du spectre du train uniquement à l'aide des trains d'émission des harmoniques du train, en considérant un spectre identique pour chaque impulsion attoseconde. Cette approche a d'ailleurs été confortée par les mesures spectrales effectuées en séparant spatialement les impulsions du train, qui laissent penser que le spectre de chaque impulsion est identique.

Egalement, un prolongement direct de ce travail sera d'étendre le contrôle de la dynamique attoseconde du plasma au régime relativiste. En augmentant l'énergie laser et en réduisant la taille de la tache focale, nous prévoyons, dans un future proche, de générer avec l'impulsion $5\,fs$ contrôlée en phase absolue des harmoniques dans le domaine relativiste. Nous espérons pouvoir ainsi profiter de la forte non-linéarité de la génération pour réduire la durée du train, et peut être produire une impulsions unique en régime colinéaire. C'est pourquoi nous lançons dès le début de l'année 2012 une campagne d'amélioration des performances laser, qui consiste en la mise en place d'un double CPA avec amélioration de contraste par XPW, afin d'obtenir un faisceau haut-contraste $5\,mJ$, $5\,fs$, stabilisé en phase, qui nous permettra d'explorer le régime relativiste avec un contrôle attoseconde du plasma.

Enfin, la démonstration de l'effet phare attoseconde que nous présentons dans le manuscrit ouvre la porte à de nombreuses perspectives, dont la principale est la génération d'impulsions attosecondes uniques sur cible solide. En effet, d'autres techniques, comme le « polarization gating », l'« ionisation gating » ou le « temporal gating », existent, et permettent de produire en routine des impulsions attosecondes uniques issues de l'interaction avec un gaz. Cependant, au moins deux de ces techniques ne paraissent pas adaptées à la génération sur cible solide (en tout cas dans le régime de l'émission cohérente de sillage). D'une part, un technique similaire à l'« ionisation gating » nécessiterait d'avoir un phénomène de génération à seuil, ce qui n'est pas le cas pour la génération sur cible solide. D'autre part, le « polarization gating » néces-

site une bonne extinction du signal harmonique en polarisation elliptique : celle-ci se révèle être insuffisante dans le régime de l'émission cohérente de sillage (extinction seulement d'un facteur 5 par rapport au signal obtenu en polarisation p (Heissler *et al.*, 2010). Une solution serait peut être de concevoir des portes en polarisation de la forme s-p-s). Enfin, le « temporal gating », comme nous l'avons dit dans le paragraphe précédent, nécessiterait une non-linéarité bien supérieure, que nous pourrions éventuellement atteindre dans le régime relativiste. Ainsi, l'effet phare attoseconde pourrait bien se révéler être la meilleure technique de génération d'impulsions attosecondes uniques sur cible solide, avec évidemment en perspective un nombre de photons XUV bien supérieur aux sources gaz conventionnelles.
L'effet phare attoseconde présente également d'autres avantages par rapport aux autres techniques :

- la génération de plusieurs impulsions attosecondes isolées, et synchronisées, permettant très facilement la mise en place d'expériences pompe-sonde XUV-XUV avec une résolution attoseconde
- la séparation spatiale des impulsions fait qu'aucun filtrage spectral n'est nécessaire pour générer une impulsions isolée. Ainsi, on peut librement, à l'aide d'un jeu de filtre spectraux, choisir la longueur d'onde centrale ainsi que la durée de l'impulsion pompe et de l'impulsion sonde. Cette liberté permettrait de cibler spectralement et temporellement le phénomène à déclencher ainsi que la façon de sonder sa dynamique.

En conclusion, la démonstration de la génération d'impulsions attosecondes sur miroir plasma à très haut taux de répétition permettra certainement, dans un futur proche, de franchir le cap de la démonstration et de la caractérisation du phénomène, et de commencer à envisager les expériences applicatives grâce à la haute cadence, en exploitant pleinement les caractéristiques uniques en terme de durée, de spectre et d'efficacité que laissent entrevoir la génération d'impulsions attosecondes sur miroir plasma.

Annexe A

Miroir plasma à haute cadence

La génération d'impulsions attosecondes sur miroir plasma impose que l'impulsion laser incidente interagisse avec un gradient plasma raide. Or, si le plasma est déclenché trop tôt avant l'arrivé du pic de l'impulsion laser, il a le temps de s'étendre dans le vide et de dégrader la qualité optique de la surface d'interaction. C'est pourquoi il est indispensable de pouvoir quantifier et contrôler la raideur du front montant de l'impulsion laser, c'est-à-dire son contraste temporel, qui conditionne la forme du plasma avec lequel le maximum de l'impulsions va interagir.

De nombreuses solutions existent pour améliorer le contraste des lasers. A l'échelle nanoseconde, les cellules de Pockels permettent de nettoyer l'impulsion du piédestal d'ASE (Amplified Spontaneous Emission) et des résidus du train mégahertz de l'oscillateur. Plus près du pic principal, d'autres techniques, comme la génération de polarisation croisée (Jullien *et al.*, 2005) ou l'utilisation d'absorbant saturable, permet d'améliorer le contraste à quelques dizaines de picosecondes. Cependant, la seule méthode qui permet d'améliorer le ratio d'intensité de l'impulsion à l'échelle picoseconde est appelé effet miroir plasma (Dromey *et al.*, 2004; Doumy *et al.*, 2004), et fait l'objet de ce chapitre.

Au cours de ma thèse, j'ai eu l'opportunité de travailler pendant deux mois au Laboratory of Attosecond Physics, dans l'équipe High Field Interaction (HFI) de Georges Tsakiris et Laszlo Veisz, au Max-Planck-Institut für Quantenoptik à Garching (Allemagne), afin d'installer un dispositif d'amélioration de contraste à haute cadence par miroir plasma (Nomura *et al.*, 2007). L'objectif de cette campagne était d'améliorer le contraste de la chaine laser Light Wave Synthesizer 20 TW (LWS20) à l'échelle picoseconde. J'ai été plus particulièrement chargé du codage de l'interface utilisateur permettant le fonctionnement du miroir plasma haute cadence, ainsi que de la réalisation des expériences. Ce chapitre rapporte les résultats principaux de cette campagne expérimentale (Mikhailova *et al.*, 2011).

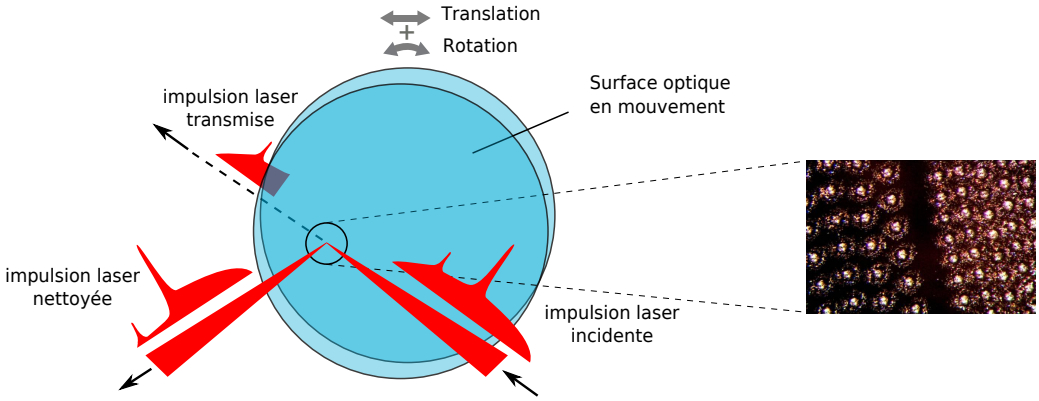

FIGURE A.1 – *Schéma de fonctionnement d'un améliorateur de contraste par miroir plasma à haute cadence.* On focalise une impulsion laser présentant un profil temporel à améliorer sur une cible transparente. En ajustant la fluence sur cible, l'énergie située avant le pic principale est transmise par l'interface, mais le front montant possède une fluence suffisante pour ioniser fortement la surface et générer très rapidement un plasma surdense, qui réfléchit alors le faisceau. L'avant de l'impulsion est « nettoyée ». Pour permettre un fonctionnement à haute cadence, la surface est rafraichie entre chaque impulsion consécutive.

A.1 Principe de l'effet miroir plasma

Comme nous l'avons évoqué plus haut, une impulsion laser « réelle » comporte, en plus du pic principal, de l'énergie répartie temporellement autour de celui-ci. Cette énergie consiste généralement en un piédestal nanoseconde dû à la fluorescence des cristaux amplificateurs après le passage du laser de pompe, lui-aussi de durée nanoseconde, d'éventuels pre et post-impulsions, dues par exemple aux réflexions internes dans les optiques du système, et d'un piedestal picoseconde cohérent dû à la recompression imparfaite de l'impulsion. L'amélioration du contraste, quantifié comme étant le ratio d'intensité entre le maximum du pic laser ($t = 0$) et le niveau d'intensité laser à un temps donné en amont de l'impulsion ($t' < 0$), consiste donc à réduire le niveau de signal situé avant l'impulsion principale.

L'idée derrière l'amélioration du contraste par effet miroir plasma est très intuitive. Elle repose sur le fait qu'un matériau transparent puisse devenir réfléchissant en moins d'une picoseconde lorsqu'il est ionisé très rapidement et passe sous l'état de plasma dense (Kapteyn *et al.*, 1991). On focalise donc un laser ultra-court sur un matériau transparent en ajustant l'intensité de telle sorte que le piédestal et les pre-impulsions soient transmis par l'interface, mais que le front montant de l'impulsion suffise pour créer un plasma dense et réfléchisse le reste de l'impulsion.

A.2 Dispositif expérimental et résultats

Le système laser LWS-20 (Herrmann *et al.*, 2009), premier laser au monde combinant des impulsions de plusieurs dizaines de TW avec des durées inférieures à 10 fs, possède une architecture OPCPA, c'est-à-dire qu'il combine l'amplification paramétrique avec l'amplification par dérive de fréquence. Un oscillateur Titane-Saphire fournissant un train d'impulsions de $6\,fs$ centrées à $800\,nm$ est amplifié au kHz dans un amplificateur multipassages jusqu'au mJ, avant de voir son spectre élargi dans un fibre creuse remplie de Neon. L'impulsion est ensuite étiré avec une dérive négative par l'effet combiné d'un étireur à grisme et d'un Dazzler, avant d'être injectée dans deux étages successifs d'amplification paramétrique dans deux cristaux de BBO, pour une énergie totale de pompe de $1\,J$, pour une durée de $80\,ps$ à $532\,nm$. L'énergie de l'impulsion est élevée à $170\,mJ$ en conservant un spectre large ($700-1000\,nm$). L'impulsion est recomprimée jusqu'à $8\,fs$ dans un bloc de verre à dispersion positive et un ensemble de 4 miroirs chirpés.

Le miroir plasma est installé dans la chambre de compression, juste après le dernier miroir chirpé. Le faisceau de $130\,mJ$ est focalisé par une parabole hors-axe de longue focale ($70\,mm$, 7° d'incidence) sur une cible en silice possédant un traitement anti-reflet adapté à la bande spectrale du laser. La cible, en forme de disque, est montée sur une platine de rotation elle-même placée sur une platine de translation (à la manière de ce qui est fait sur notre expérience, mais avec beaucoup moins de contraintes sur le positionnement de la cible, la longueur de Rayleigh faisant plusieurs centaines de microns), programmées pour permettre une utilisation du miroir plasma au taux de répétition du laser. La cible, de $15\,cm$ de diamètre, peut être en opération pendant plus de 4 heures d'affilée à $10\,Hz$, en imposant $0.3\,mm$ entre chaque tir. La fluence au foyer est de $\approx 10^4\,J.cm^{-2}$. Le faisceau nettoyé est ensuite recollimaté par une parabole hors-axe identique à celle utilisée par la focalisation, et envoyé vers les différents diagnostiques : spectre, puissance, durée, contraste, profil spatial.

Pour optimiser la fluence du laser sur cible, nous avons effectué une mesure de la réflectivité du miroir plasma en fonction de la position de la cible par rapport au foyer. Les résultats sont présentés sur la Figure A.2, où sont représentés la dépendance de la réflectivité intégrée avec la position de la cible, que nous avons transposé en fluence sur le deuxième graphe. On observe l'augmentation de la réflectivité avec la fluence, jusqu'à une valeur de $70-80\%$. Les mesures faites pour des faibles fluences (non-indiquées sur la figure) montrent une réflectivité inférieure à 1% grâce au traitement anti-reflet. On peut donc espérer une augmentation du contraste d'un facteur supérieur à 100.

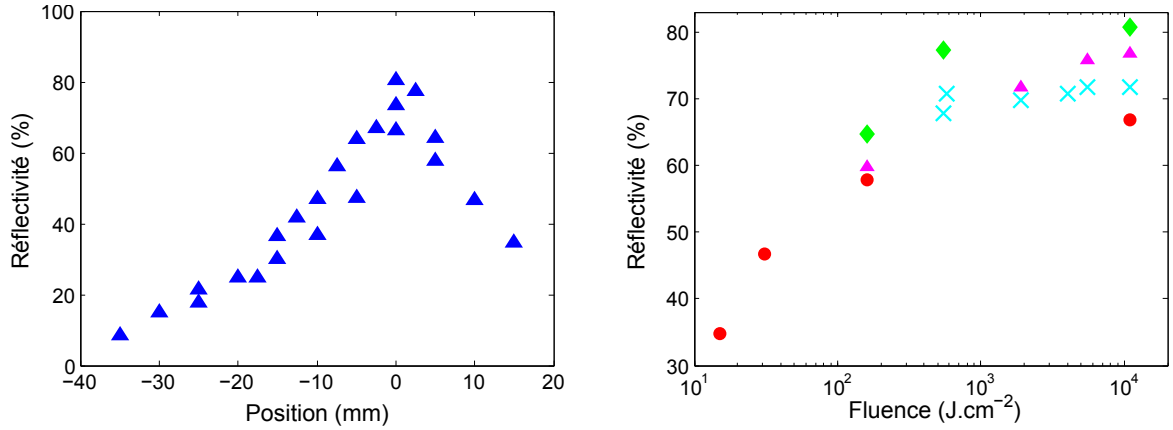

FIGURE A.2 – *Mesure de réflectivité intégrée en fonction de la position de la cible par rapport au foyer laser, et de la fluence.*

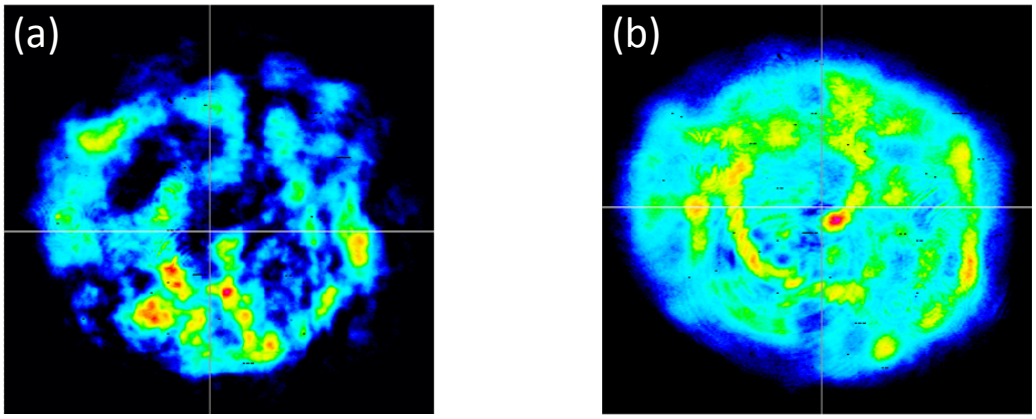

FIGURE A.3 – *Mesure du profil spatial du laser en champ proche, sans (a) et avec (b) miroir plasma.* On constate une nette homogénéisation du profil, dû au filtrage spatial de l'effet miroir plasma au foyer du laser.

Nous avons également effectué des mesures du profil spatial en champ proche avec et sans le miroir plasma. On observe une nette amélioration du faisceau après miroir plasma, qui présente un profil spatial beaucoup plus homogène que celui sans miroir plasma. Ce filtrage des hautes fréquences spatiales peut être attribué au fait que la miroir plasma est déclenché au foyer du laser, et permet de filtrer les hautes fréquences, qui ne présentent pas de fluence suffisante pour déclencher le miroir plasma. Un miroir plasma au foyer du laser se comporte donc comme un filtre dans le plan de Fourier de la parabole, ce qui se manifeste par une réduction des variations rapide du profil d'intensité en champ proche.

Nous avons également souhaité vérifier que la durée de l'impulsion était bien conservée après le miroir plasma. Pour cela, nous avons utilisé un autororrélateur du second ordre monocoup adapté à la mesure d'impulsions de moins de 10 fs (Herrmann *et al.*, 2010), afin de mesurer la

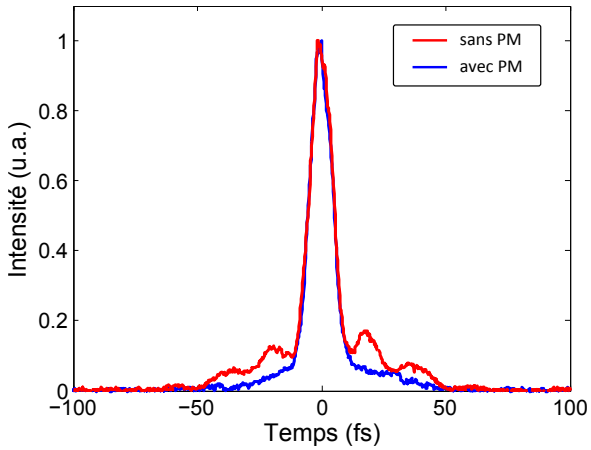

FIGURE A.4 – *Autocorrélation du seconde ordre de l'impulsion sans (courbe rouge) et avec (courbe bleue) miroir plasma.* On constate que l'on conserve la durée de l'impulsion.

durée de l'impulsion avec et sans miroir plasma. Les résultats de ces mesures sont présentés sur la Figure A.4. On constate que la durée, autour de 8 fs, est bien conservée. L'impulsion parait même mieux comprimée avec miroir plasma, mais cette différence est plus probablement due à un moins bon ajustement de la phase spectrale (en utilisant le Dazzler de la chaine) dans le cas sans miroir plasma.

Enfin, nous avons effectué une mesure de contraste afin d'évaluer l'impact du miroir plasma sur le profil temporel de l'impulsion. La mesure est faite à l'aide d'un autocorrelateur du troisième ordre adapté à la bande spectrale très large (Tavella *et al.*, 2005). En particulier, le système d'atténuation destiné à éviter la saturation du signal autour du pic principal est uniquement constitué d'optiques réflectives, avec différents traitements pour adapter le coefficient de réflexion. La mesure a été mené à $10\,Hz$, ce qui permet d'avoir une excellente résolution temporelle tout en intégrant chaque mesure sur plusieurs tirs.

La Figure A.5 compare la mesure du profil temporel laser sans (courbe rouge) et avec miroir plasma (courbe bleu) sur une plage temporelle allant de $-8\,ps$ à $5\,ps$. Les temps négatifs correspondent à l'avant de l'impulsion. Le niveau de bruit de l'appareil est mesuré à quelques 10^{-9} de l'intensité pic. Les deux pics d'intensité sont ramené au même niveau pour faciliter la lecture. On montre également sur la droite de la figure le rapport d'intensité entre le faisceau nettoyé et le faisceau incident.

On observe donc une amélioration conséquente du profil temporel laser, d'un facteur 300 environ. De plus, l'amélioration du contraste est visible très tôt avant le pic de l'impulsion, à partir que quelques centaines de femtosecondes seulement, et est observée jusqu'à $5\,ps$ après quoi le niveau de bruit de l'autocorrelateur est atteint. Ces performances sont tout à fait cohé-

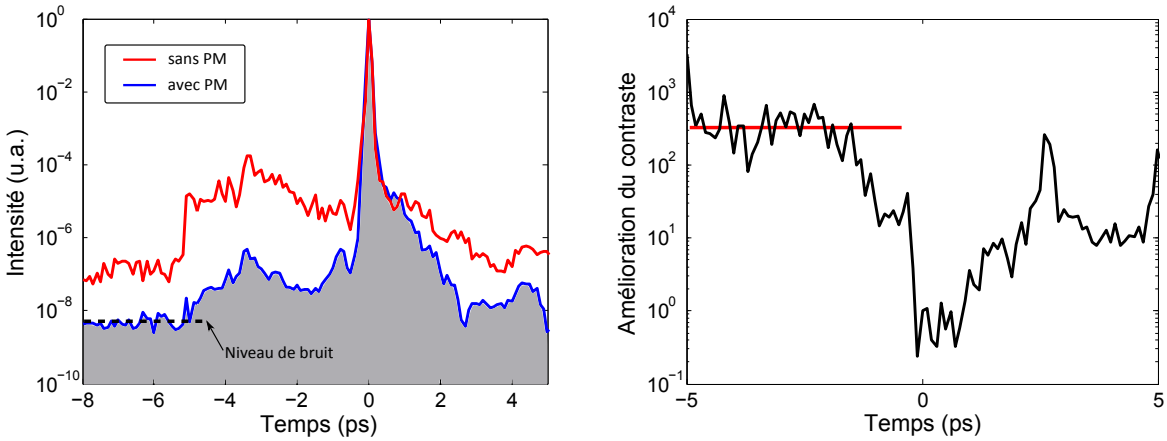

FIGURE A.5 – *Autocorrélation du troisième ordre de l'impulsion sans (courbe rouge) et avec (courbe bleu) miroir plasma.* Le contraste temporel est amélioré d'un facteur 300. On présente également le rapport d'intensité des deux mesures.

rentes avec l'amélioration de contraste prévue en faisant le rapport entre l'efficacité de réflexion du miroir plasma (80%) et le coefficient de réflexion du traitement antireflet (0.3%), qui prévoit une amélioration d'un facteur 300.

Nous présentons donc un dispositif d'amélioration de contraste par miroir plasma fonctionnant à 10 Hz, avec une efficacité de 80%. Les mesures indiquent une amélioration d'un facteur 300, dont les effets commencent seulement quelques centaines de fs avant l'impulsion principale.

Annexe B

Détails expérimentaux

B.1 Effet non-linéaire vs dispersion

Travailler avec des impulsions de deux cycles optiques présentent de grosses difficultés quant à la gestion de la compression sur cible. En effet, la largeur du spectre est telle que la propagation de ces faisceaux dans $1\,mm$ de verre ou $1\,m$ d'air suffit pour chirper de façon conséquente le spectre de l'impulsion. Il est ainsi très difficile d'affirmer que l'impulsion est comprimée lors de l'interaction avec le plasma : en effet, si l'on peut constater que l'impulsion est comprimée lorsqu'on la caractérise (à l'aide d'un FROG par exemple), rien n'assure que celle-ci le restera tout le long du trajet qui lui reste à parcourir avant d'atteindre la cible d'interaction. Ce trajet étant composé d'éléments dispersifs (et même pouvant engendrer des effets non-linéaires conséquents si des précautions ne sont pas prises), comme l'air, la fenêtre d'entrée de la chambre d'interaction ou d'éventuelles lames séparatrices, la procédure est (1) d'optimiser la phase et le spectre de l'impulsion de façon à avoir la meilleur impulsion possible au FROG, (2) de s'assurer qu'aucun élément restant sur le trajet du faisceau entre le FROG et la cible n'engendre d'effets non linéaires, qui ne pourront pas être compensés, et (3) d'utiliser un élément dispersif « réglable », comme une paire de prismes montés tête-bêche sur le trajet du faisceau, permettant la compensation a priori de la phase du deuxième ordre introduite entre le détecteur et la cible.

Même si l'étalement en fréquence de l'impulsion peut être pré-compensé, de façon à être comprimé sur cible, il faut tout de même limiter au maximum l'introduction d'éléments positivement dispersifs sur le trajet du faisceau. En effet, le set de miroir chirpés utilisé en sortie de fibre constitue le seul élément apportant une dispersion négative au faisceau et doit donc compenser le chirp introduit par la dispersion dans la fibre et précompenser les éléments positivement dispersifs restant jusqu'à la cible.

Un élément dispersif qu'on ne peut éviter est la fenêtre d'entrée de la chambre d'interaction. Cette fenêtre d'entrée étant soumise à la force de pression lorsque on fait le vide dans l'enceinte (cette force étant proportionnelle à son aire), minimiser son épaisseur implique d'utiliser une fenêtre de petite taille, et ainsi un faisceau de petit diamètre. On se trouve alors face au problème des effets non-linéaire dû à l'intensité. Il s'agissait donc ici de déterminer le plus petit diamètre de fenêtre utilisable avant de dégrader l'impulsion. On évalue donc la phase non-linéaire générée par l'automodulation de phase (Self-Phase Modulation en anglais, SPM) dans le matériau par :

$$\psi_{SPM} = \frac{2\pi}{\lambda} n_2 \int_0^L I(t,z)dz \tag{B.1}$$

où n_2 l'indice de refraction non linéaire de second ordre, L l'épaisseur de la fenêtre et $I(t,z)$ l'intensité en z.

Rigoureusement, il faudrait tenir compte ici de la variation de l'intensité I au fur et à mesure de la propagation dans le matériau due à la dispersion (en particulier pour une impulsion de quelques cycles), ce qui aura pour effet de diminuer les effets non-linéaires, mais considérer l'intensité comme constante donne ici un bonne ordre de grandeur de la phase non-linéaire accumulée.

Le compromis que nous avons fait entre la minimisation des effets non-linéaire (en grandissant le diamètre du faisceau, et donc celui de la fenêtre, ainsi que son épaisseur) et celle de la dispersion nous amène à choisir une fenêtre de $20mm$ de diamètre pour une épaisseur d'$1mm$. Le faisceau est élargi une fois et demi en sortie de fibre pour l'ajuster à la taille de la fenêtre, atteignant une intensité (une fois comprimé) de $1.6\times10^{10}\,W/cm^2$, ce qui donne une limite supérieure pour la phase non-linéaire accumulée $\psi_{SPM} = 75\,mrad$, en prenant $n_2 = 3\times10^{-16}\,cm^2/W$, pour la silice. Cette valeur, très inférieure à 1, nous assure des effets non-linéaires négligeables. Quant à la phase non-linéaire due à la propagation dans l'air, elle est inférieur à celle accumulée dans la fenêtre, bien que le trajet dans l'air soit plus long (environ un mètre), car l'indice de réfraction n_2 est trois ordre de grandeur en dessous de celui du verre, et que l'impulsion n'est pas comprimé lorsqu'elle se propage (elle finit sa compression dans la fenêtre).

En ce qui concerne la dispersion introduite, la phase spectrale d'ordre deux ($\phi_{(2)}$) introduite est de l'ordre de $36\,fs^2$ ($360\,fs^2/cm$ dans la silice). La durée de l'impulsion ΔT étant reliée à $\phi_{(2)}$ et la durée de l'impulsion comprimée ΔT_0 par :

$$\Delta T = \Delta T_0 \sqrt{1 + \left(4\ln 2 \frac{\phi_{(2)}}{\Delta T_0^2}\right)^2} \tag{B.2}$$

L'impulsion de $5\,fs$ en entrée de fenêtre en fait 22 à la sortie. On voit donc bien à quel point la dispersion est délicate à gérer lorsque le spectre est aussi large.

B.2 Mise en forme spatiale

Une fois le faisceau à l'intérieur de l'enceinte, il s'agit de mettre en forme le faisceau spatialement, afin de pouvoir le focaliser sur une tache la plus petite possible. Pour cela, il faut d'abord s'assurer (1) d'avoir la phase spatiale la plus plate possible (et dans le cas contraire, d'utiliser des techniques d'optiques adaptatives pour la corriger) et (2) d'avoir un profile radiale d'intensité propice à la focalisation, c'est-à-dire proche d'un profile gaussien, afin de maximiser l'énergie dans la tach.. Pour cela, nous avons effectué une mesure de profile radiale d'intensité et une mesure de front d'onde en sortie de fibre (présentés en Figure B.1, donnant un profil spatial proche d'une gaussienne et une planéité de $\lambda/19$ (ce qui correspond quasiment à la limite de résolution du mesureur de front d'onde utilisé). Il est donc complètement inutile d'envisager l'utilisation d'un miroir déformable, sauf en cas de distorsion de front de phase pouvant être introduite juste avant l'interaction, en particulier par l'optique de focalisation. Or, au vu de l'énergie relativement faible de notre laser (de l'ordre du millijoule) nous contraint à utiliser des optiques de focalisation très ouvertes pour atteindre les intensités souhaitées, la question de la déformation du front de phase du laser par cette optique se pose : en effet, il est très difficile pour les fabricants d'optiques de polir une parabole très ouverte dont l'écart à la parabole parfaite soit satisfaisant (c'est-à-dire très inférieur à la longueur d'onde). Nous avons donc ici deux options : soit combiner une parabole de piètre qualité et de corriger les défauts introduits à l'aide d'un miroir déformable, soit d'utiliser une parabole de très bonne qualité, forcement beaucoup plus chère. Au vu de la planéité de notre front d'onde, filtré par la propagation dans la fibre creuse, la deuxième solution, beaucoup plus simple dans l'utilisation et économe en énergie laser, est adoptée.

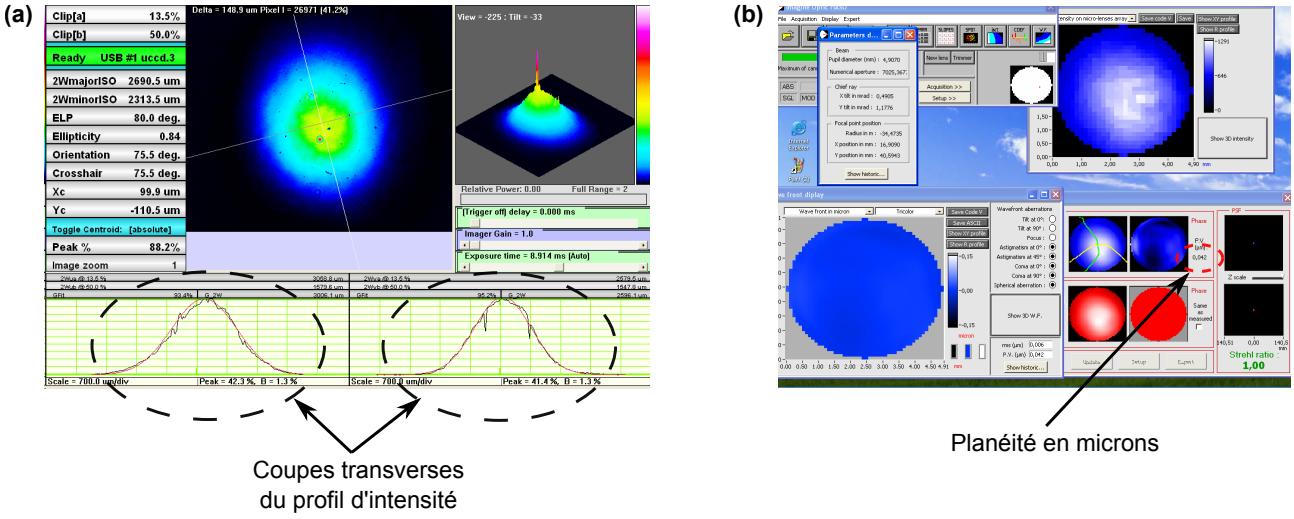

FIGURE B.1 – Coupe transverses du profil d'intensité et mesure de la planéité du front d'onde

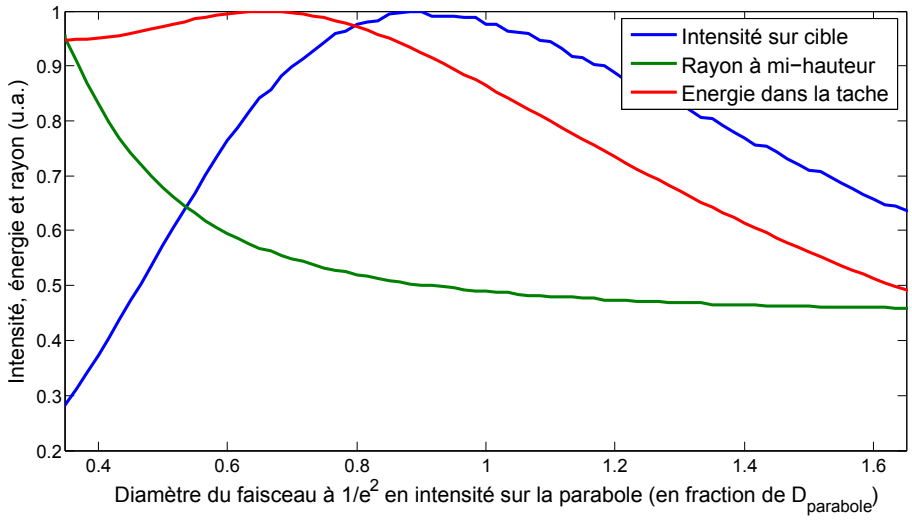

FIGURE B.2 – Intensité sur cible (bleu), rayon à mi-hauteur (vert) et energie dans la tache(rouge) en fonction du rapport entre le diamètre du faisceau et le diamètre de la parabole

Atteindre les régimes d'interaction de haute intensité avec des énergies de l'ordre du millijoule et des durées d'impulsions femtosecondes (entre 5 et 30 fs dans notre cas) nécessite une très forte focalisation. Nous avons donc opté pour des paraboles hors-axe les plus ouvertes possible, toute en assurant les exigences de planéité (i.e. d'écart à la parabole parfaite). Les contraintes liés au polissage de telles optiques et aux problèmes d'encombrement nous ont guidé vers des paraboles hors-axe (fournies par Winlight Optics) d'ouverture 1.7, avec un diamètre utile de 40 mm et une longueur focale de 70 mm. La planéité est maintenue en dessous de $\lambda/20$ rms, et la rugosité autour du nanomètre, ce qui assure une bonne qualité de focalisation et une minimisation des pertes par diffusion.

La question du diamètre du faisceau à utiliser sur la parabole pour maximiser l'intensité sur cible se pose alors : un diamètre trop petit limiterait la taille du foyer par diffraction, et un diamètre trop grand engendrerait des pertes en énergie sur la parabole (la partie externe du faisceau ne serait pas réfléchi par la parabole) et l'apparition d'anneaux de diffraction au niveau de la tache focale. Pour quantifier cela et maximiser l'intensité sur cible, on calcule numériquement la transformée de Fourier du champ laser incident, dont le profil radial est le produit d'une fonction gaussienne 2d avec un masque circulaire représentant la parabole, et de phase spatial nulle (cela étant justifié par les mesures présentées en Figure B.1). On en extrait le profil d'intensité au foyer, dont on peut mesurer la taille de la tache et la répartition en énergie. Les résultats de ce calcul sont présentés en Figure B.2. Le graphe montre l'évolution (normalisée) de l'intensité sur cible (en bleu), le diamètre à $1/e^2$ en intensité du faisceau au foyer (en vert) et l'énergie dans la tache (en rouge) en fonction du diamètre du faisceau sur la

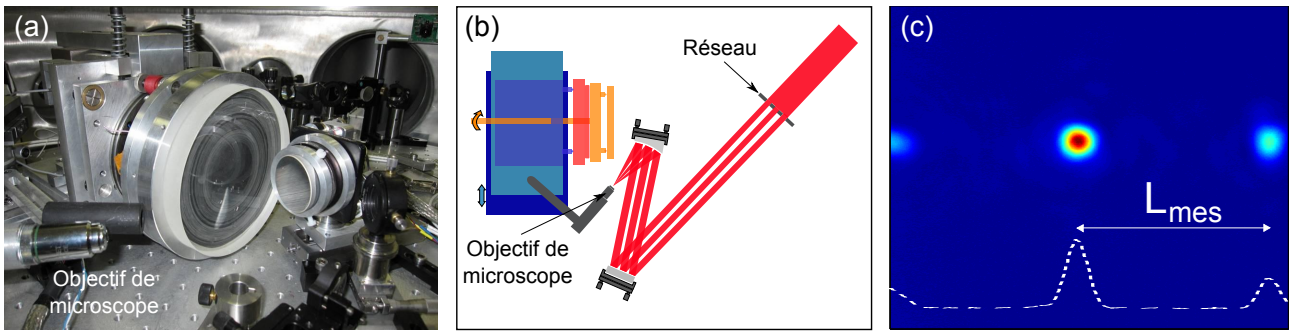

FIGURE B.3 – (a) Photo de la cible kHz et de la parabole de focalisation, (b) schéma de la technique de calibration par diffraction sur un réseau de pas connu, (c) profil d'intensité au foyer pour la calibration

parabole, dont le diamètre $D_{parabole}$ est normalisé à 1. Si les courbes d'énergie et de diamètre de la tache décroissent lorsqu'on augmente la taille du faisceau sur la parabole (sauf pour $D^{1/e^2} \approx 0.62 D_{parabole}$, où la tache a un profil plus de type « super-gaussien », la courbe d'énergie dans la tache présentant ici un léger maximum), la courbe d'intensité présente un maximum autour de $D^{1/e^2} \approx 0.85 D_{parabole}$. Cette valeur est donc choisie pour optimiser la taille du faisceau incident sur la parabole à l'aide d'un téléscope afocal.

B.3 Calibration de la tache focale

La taille de faisceau optimale étant déterminée, il s'agit maintenant de mesurer expérimentalement la taille et la qualité de la tache focale. Etant donné la taille attendu de la tache, de l'ordre du micron, il est impossible de l'imager directement sur une caméra CCD, dont les pixels sont de l'ordre de 5 ou 10 microns en général : il faut donc effectuer un grandissement à l'aide d'un objectif de microscope, que nous avons monté sur une platine de translation motorisée de façon à pouvoir mesurer la tache focale lorsque le vide est fait dans l'enceinte (voir Figure B.3(a)). Il est donc nécessaire de calibrer le grandissement de façon à pouvoir remonter à la taille exacte de la tache. Une technique astucieuse consiste à introduire sur le chemin du faisceau, avant la parabole, un réseau en grille dont le pas est connu, de mesurer expérimentalement la distance entre les ordres zéro et un de diffraction, et de comparer cette valeur à la valeur théorique attendu. Nous avons choisi un réseau de pas $l = 4.4\,mm$, ce qui entraine, dans l'approximation des angles faibles, un espacement entre les ordres de diffraction au foyer de la parabole de $L = f\lambda/l = 12.7\,\mu m$ (voir Figure B.3(b)) . Le grandissement vaut donc $\Gamma = L_{mes}/L$, où L_{mes} est la distance mesurée expérimentalement (voir Figure B.3(c)). Nous avons choisi, pour une bonne résolution de la tache, un grandissement de 220.

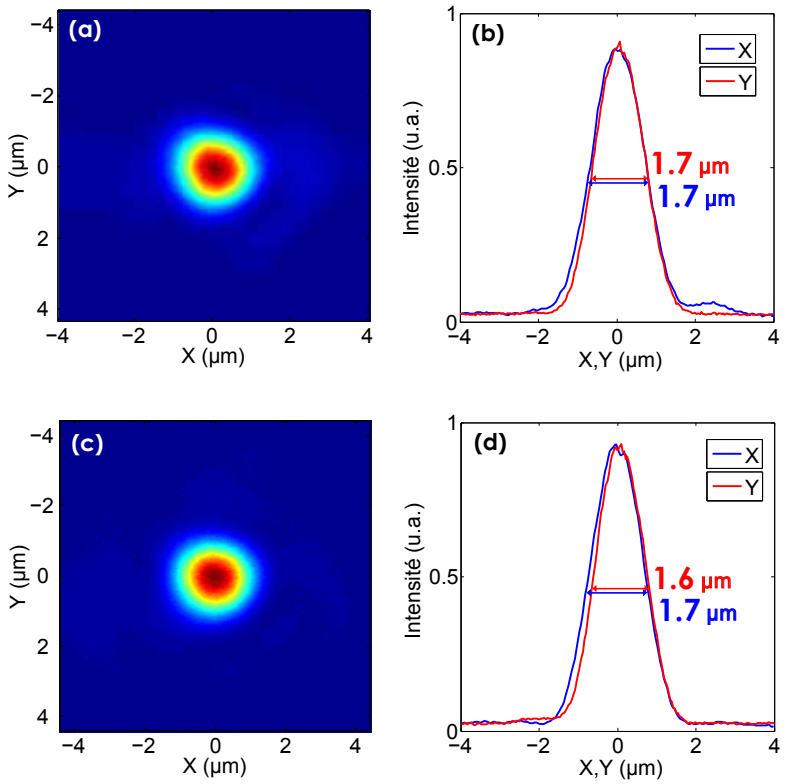

FIGURE B.4 – *Mesure expérimentale des profils spatiaux laser au point de focalisation.* Répartition spatial de l'intensité pour le faisceau à 5 fs (a) et (b) et 30 fs (c) et (d), en focalisation forte.

Les profils spatiaux sont présentés en Figure B.4. La largeur à mi-hauteur en intensité $d^{1/2}$ vaut $1.7\,\mu m$, à $25\,fs$ et à $5\,fs$. Pour comparer à la limite de diffraction théorique, on effectue la transformée de Fourier du champ (en supposant un faisceau parfaitement gaussien à phase spatiale plane, pour pouvoir le calculer analytiquement), et on obtient : $d^{1/2} = 2\sqrt{2\ln 2}\,\lambda f/\pi D^{1/e^2}$. Le diamètre du faisceau incident a été ajusté à $28\,mm$ (valeur volontairement inférieure à la valeur optimale de $34\,mm$ calculé dans la section précédente, de façon à pouvoir faire des ajustements lors de l'alignement fin sous vide du spectromètre XUV, cela sans couper le faisceau), ce qui donne une valeur théorique de $d^{1/2} = 1.5\,\mu m$. La mesure expérimentale, proche de la limite de diffraction théorique, confirme la qualité du front de phase et du profil spatial du faisceau.

References

Albert, O., Wang, H., Liu, D., Chang, Z., & Mourou, G. 2000. Generation of relativistic intensity pulses at a kilohertz repetition rate. *Opt. lett.*, **25**(15), 1125–1127.

Antoine, Philippe, Milošević, Dejan B., L'Huillier, Anne, Gaarde, Mette B., Salières, Pascal, & Lewenstein, Maciej. 1997. Generation of attosecond pulses in macroscopic media. *Phys. rev. a*, **56**(Dec), 4960–4969.

Baeva, T., Gordienko, S., & Pukhov, A. 2006. Theory of high-order harmonic generation in relativistic laser interaction with overdense plasma. *Phys. rev. e*, **74**(4), 046404.

Bahk, S.-W., Rousseau, P., Planchon, T. A., Chvykov, V., Kalintchenko, G., Maksimchuk, A., Mourou, G. A., & Yanovsky, V. 2004. Generation and characterization of the highest laser intensities (1022 w/cm2). *Opt. lett.*, **29**(24), 2837–2839.

Baltuska, A., Udem, Th., Uiberacker, M., Hentschel, M., Goulielmakis, E., Gohle, Ch., Holzwarth, R., Yakovlev, V. S., Scrinzi, A., Hansch, T. W., & Krausz, F. 2003. Attosecond control of electronic processes by intense light fields. *Nature*, **421**(6923), 611–615.

Bezzerides, B., Jones, R. D., & Forslund, D. W. 1982. Plasma mechanism for ultraviolet harmonic radiation due to intense co_2 light. *Phys. rev. lett.*, **49**(Jul), 202–205.

Blanc, P., Audebert, P., Falliès, F., Geindre, J. P., Gauthier, J. C., Santos, A. Dos, Mysyrowicz, A., & Antonetti, A. 1996. Phase dynamics of reflected probe pulses from sub-100-fs laser-produced plasmas. *J. opt. soc. am. b*, **13**(1), 118–124.

Brabec, Thomas, & Krausz, Ferenc. 2000. Intense few-cycle laser fields : Frontiers of nonlinear optics. *Rev. mod. phys.*, **72**(Apr), 545–591.

Brunel, F. 1987. Not-so-resonant, resonant absorption. *Phys. rev. lett.*, **59**(1), 52–55.

Bulanov, S. V., Naumova, N., & Pegoraro, F. 1994. Interaction of an ultra short, relativistically strong laser pulse with an overdense plasma. *Physics of plasmas*, **1**, 745.

Burnett, N. H., Baldis, H. A., Richardson, M. C., & Enright, G. D. 1977. Harmonic generation in co[sub 2] laser target interaction. *Applied physics letters*, **31**(3), 172–174.

Canova, L. 2009. *Generation and shapinf of ultra-short, ultra-high contrast pulses for high repetition rate relativistic optics.* Ph.D. thesis.

Canova, Lorenzo, Chen, Xiaowei, Trisorio, Alexandre, Jullien, Aurélie, Assion, Andreas, Tempea, Gabriel, Forget, Nicolas, Oksenhendler, Thomas, & Lopez-Martens, Rodrigo. 2009. Carrier-envelope phase stabilization and control using a transmission grating compressor and an aopdf. *Opt. lett.*, **34**(9), 1333–1335.

Carman, R. L., Rhodes, C. K., & Benjamin, R. F. 1981a. Observation of harmonics in the visible and ultraviolet created in co_2-laser-produced plasmas. *Phys. rev. a*, **24**(Nov), 2649–2663.

Carman, R. L., Forslund, D. W., & Kindel, J. M. 1981b. Visible harmonic emission as a way of measuring profile steepening. *Phys. rev. lett.*, **46**(Jan), 29–32.

Cavalieri, A. L., Muller, N., Uphues, Th., Yakovlev, V. S., Baltuska, A., Horvath, B., Schmidt, B., Blumel, L., Holzwarth, R., Hendel, S., Drescher, M., Kleineberg, U., Echenique, P. M., Kienberger, R., Krausz, F., & Heinzmann, U. 2007. Attosecond spectroscopy in condensed matter. *Nature*, **449**(7165), 1029–1032.

Chen, X., Canova, L., Malvache, A., Jullien, A., Lopez-Martens, R., Durfee, C., Papadopoulos, D., & Druon, F. 2010. 1-mj, sub-5-fs carrierŰenvelope phase-locked pulses. *Applied physics b : Lasers and optics*, **99**, 149–157. 10.1007/s00340-009-3835-y.

Chen, Xiaowei, Jullien, Aurélie, Malvache, Arnaud, Canova, Lorenzo, Borot, Antonin, Trisorio, Alexandre, Durfee, Charles G., & Lopez-Martens, Rodrigo. 2009. Generation of 4.3 fs, 1 mj laser pulses via compression of circularly polarized pulses in a gas-filled hollow-core fiber. *Opt. lett.*, **34**(10), 1588–1590.

Corkum, P. B. 1993. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. rev. lett.*, **71**(Sep), 1994–1997.

Daido, Hiroyuki. 2002. Review of soft x-ray laser researches and developments. *Reports on progress in physics*, **65**(10), 1513.

Danson, C.N., Brummitt, P.A., Clarke, R.J., Collier, J.L., Fell, B., Frackiewicz, A.J., Hancock, S., Hawkes, S., Hernandez-Gomez, C., Holligan, P., Hutchinson, M.H.R., Kidd, A., Lester, W.J., Musgrave, I.O., Neely, D., Neville, D.R., Norreys, P.A., Pepler, D.A., Reason, C.J., Shaikh, W., Winstone, T.B., Wyatt, R.W.W., & Wyborn, B.E. 2004. Vulcan petawattâĂŤan ultra-high-intensity interaction facility. *Nuclear fusion*, **44**(12), S239.

Deacon, D. A. G., Elias, L. R., Madey, J. M. J., Ramian, G. J., Schwettman, H. A., & Smith, T. I. 1977. First operation of a free-electron laser. *Phys. rev. lett.*, **38**(Apr), 892–894.

Doumy, G., Quéré, F., Gobert, O., Perdrix, M., Martin, Ph., Audebert, P., Gauthier, J. C.,

Geindre, J.-P., & Wittmann, T. 2004. Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses. *Phys. rev. e*, **69**(2), 026402.

Drescher, M., Hentschel, M., Kienberger, R., Uiberacker, M., Yakovlev, V., Scrinzi, A., Westerwalbesloh, Th., Kleineberg, U., Heinzmann, U., & Krausz, F. 2002. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, **419**(6909), 803–807.

Drescher, Markus, Hentschel, Michael, Kienberger, Reinhard, Tempea, Gabriel, Spielmann, Christian, Reider, Georg A., Corkum, Paul B., & Krausz, Ferenc. 2001. X-ray pulses approaching the attosecond frontier. *Science*, **291**(5510), 1923–1927.

Dromey, B., Kar, S., Zepf, M., & Foster, P. 2004. The plasma mirror—a subpicosecond optical switch for ultrahigh power lasers. *Review of scientific instruments*, **75**(3), 645–649.

Dromey, B., Zepf, M., Gopal, A., Lancaster, K., Wei, M. S., Krushelnick, K., Tatarakis, M., Vakakis, N., Moustaizis, S., Kodama, R., Tampo, M., Stoeckl, C., Clarke, R., Habara, H., Neely, D., Karsch, S., & Norreys, P. 2006. High harmonic generation in the relativistic limit. *Nat phys*, **2**(7), 456–459.

Dromey, B., Rykovanov, S. G., Adams, D., Hörlein, R., Nomura, Y., Carroll, D. C., Foster, P. S., Kar, S., Markey, K., McKenna, P., Neely, D., Geissler, M., Tsakiris, G. D., & Zepf, M. 2009. Tunable enhancement of high harmonic emission from laser solid interactions. *Phys. rev. lett.*, **102**(22), 225002.

Emma, P., R., Akre, ArthurJ., BiontaR., BostedtC., BozekJ., BrachmannA., BucksbaumP., CoffeeR., DeckerF.-J., DingY., DowellD., EdstromS., FisherA., FrischJ., GilevichS., HastingsJ., HaysG., HeringPh., HuangZ., IversonR., LoosH., MesserschmidtM., MiahnahriA., MoellerS., NuhnH.-D., PileG., RatnerD., RzepielaJ., SchultzD., SmithT., StefanP., TompkinsH., TurnerJ., WelchJ., WhiteW., WuJ., YockyG., & GalaydaJ. 2010. First lasing and operation of an angstrom-wavelength free-electron laser. *Nat photon*, **4**(9), 641–647.

Farkas, Gy., & Tóth, Cs. 1992. Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases. *Physics letters a*, **168**(5-6), 447 – 450.

Faure, J., Glinec, Y., Pukhov, A., Kiselev, S., Gordienko, S., Lefebvre, E., Rousseau, J.-P., Burgy, F., & Malka, V. 2004. A laser-plasma accelerator producing monoenergetic electron beams. *Nature*, **431**(7008), 541–544.

Ferrari, F., CalegariF., LucchiniM., VozziC., StagiraS., SansoneG., & NisoliM. 2010. High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields. *Nat photon*, **4**(12), 875–879.

Ferray, M, L'Huillier, A, Li, X F, Lompre, L A, Mainfray, G, & Manus, C. 1988. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of physics b : Atomic, molecular and optical physics*, **21**(3), L31.

Freidberg, J. P., Mitchell, R. W., Morse, R. L., & Rudsinski, L. I. 1972. Resonant absorption of laser light by plasma targets. *Phys. rev. lett.*, **28**(Mar), 795–799.

Gauthier, J.-C., Geindre, J. P., Audebert, P., Bastiani, S., Quoix, C., Grillon, G., Mysyrowicz, A., Antonetti, A., & Mancini, R. C. 1997. Theoretical and experimental studies of laser-produced plasmas driven by high-intensity femtosecond laser pulses. *The 38th annual meeting of the division of plasma physics (dpp) of the american physical society*, **4**(5), 1811–1817.

Geindre, J. P., Audebert, P., Rousse, A., Falliès, F., Gauthier, J. C., Mysyrowicz, A., Santos, A. Dos, Hamoniaux, G., & Antonetti, A. 1994. Frequency-domain interferometer for measuring the phase and amplitude of a femtosecond pulse probing a laser-produced plasma. *Opt. lett.*, **19**(23), 1997–1999.

Gibbon, P. 2005. *Short pulse interactions with matter : an introduction.*

Gibbon, Paul. 1996. Harmonic generation by femtosecond laser-solid interaction : A coherent "water-window" light source ? *Phys. rev. lett.*, **76**(1), 50–53.

Harada, Tatsuo, Takahashi, Kaoru, Sakuma, Hideo, & Osyczka, Andrzej. 1999. Optimum design of a grazing-incidence flat-field spectrograph with a spherical varied-line-space grating. *Appl. opt.*, **38**(13), 2743–2748.

Harris, S.E., Macklin, J.J., & HÃďnsch, T.W. 1993. Atomic scale temporal structure inherent to high-order harmonic generation. *Optics communications*, **100**(5-6), 487 – 490.

Heissler, P., Hörlein, R., Stafe, M., Mikhailova, J., Nomura, Y., Herrmann, D., Tautz, R., Rykovanov, S., Földes, I., Varjú, K., Tavella, F., Marcinkevicius, A., Krausz, F., Veisz, L., & Tsakiris, G. 2010. Toward single attosecond pulses using harmonic emission fromăsolid-density plasmas. *Applied physics b : Lasers and optics*, **101**, 511–521. 10.1007/s00340-010-4281-6.

Hergott, J.-F., Kovacev, M., Merdji, H., Hubert, C., Mairesse, Y., Jean, E., Breger, P., Agostini, P., Carré, B., & Salières, P. 2002. Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range. *Phys. rev. a*, **66**(Aug), 021801.

Herrmann, Daniel, Veisz, Laszlo, Tautz, Raphael, Tavella, Franz, Schmid, Karl, Pervak, Vladimir, & Krausz, Ferenc. 2009. Generation of sub-three-cycle, 16 tw light pulses by using noncollinear optical parametric chirped-pulse amplification. *Opt. lett.*, **34**(16), 2459–2461.

Herrmann, Daniel, Tautz, Raphael, Tavella, Franz, Krausz, Ferenc, & Veisz, Laszlo. 2010. Investigation of two-beam-pumped noncollinear optical parametric chirped-pulse amplification for the generation of few-cycle light pulses. *Opt. express*, **18**(5), 4170–4183.

Itatani, J., Quéré, F., Yudin, G. L., Ivanov, M. Yu., Krausz, F., & Corkum, P. B. 2002. Attosecond streak camera. *Phys. rev. lett.*, **88**(17), 173903.

Jullien, Aurélie, Albert, Olivier, Burgy, Frédéric, Hamoniaux, Guy, Rousseau, Jean-Philippe, Chambaret, Jean-Paul, Augé-Rochereau, Frédérika, Chériaux, Gilles, Etchepare, Jean, Minkovski, Nikolay, & Saltiel, Solomon M. 2005. 10^{-10} temporal contrast for femtosecond ultraintense lasers by cross-polarized wave generation. *Opt. lett.*, **30**(8), 920–922.

Kane, Daniel J., & Trebino, Rick. 1993. Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating. *Opt. lett.*, **18**(10), 823–825.

Kapteyn, Henry C., Murnane, Margaret M., Szoke, Abraham, & Falcone, Roger W. 1991. Prepulse energy suppression for high-energy ultrashort pulses using self-induced plasma shuttering. *Opt. lett.*, **16**(7), 490–492.

Kim, Kyung Taec, Ko, Dong Hyuk, Park, Juyun, Tosa, Valer, & Nam, Chang Hee. 2010. Complete temporal reconstruction of attosecond high-harmonic pulse trains. *New journal of physics*, **12**(8), 083019.

Kohlweyer, S., Tsakiris, G. D., Wahlström, C. G., Tillman, C., & Mercer, I. 1995. Harmonic generation from solid-vacuum interface irradiated at high laser intensities. *Optics communications*, **117**(5-6), 431 – 438.

Krausz, Ferenc, & Ivanov, Misha. 2009. Attosecond physics. *Rev. mod. phys.*, **81**(Feb), 163–234.

Kruer, W. L. 1988. *The physics of laser plasma interation.*

Kulander, K., Schaefer, K.J., & Krause, J.L. 1993. *Super-intense laser-atom physics*, **316**, 95.

Lan, Pengfei, Lu, Peixiang, Cao, Wei, Li, Yuhua, & Wang, Xinlin. 2007. Attosecond ionization gating for isolated attosecond electron wave packet and broadband attosecond xuv pulses. *Phys. rev. a*, **76**(Nov), 051801.

Leemans, W. P., Nagler, B., Gonsalves, A. J., Toth, Cs., Nakamura, K., Geddes, C. G. R., Esarey, E., Schroeder, C. B., & Hooker, S. M. 2006. Gev electron beams from a centimetre-scale accelerator. *Nat phys*, **2**(10), 696–699.

Lichters, R., Meyer-Ter-Vehn, J., & Pukhov, A. 1996. Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity. *Physics of plasmas*, **3**(Sept.), 3425–3437.

Maiman, T.H. 1960. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, **187**, 493–494.

Mairesse, Y., & Quéré, F. 2005. Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts. *Phys. rev. a*, **71**(1), 011401.

Malvache, A. 2011. *Optique non linéaire à hautes intensités.* Ph.D. thesis.

Mauritsson, J., Johnsson, P., Mansten, E., Swoboda, M., Ruchon, T., L'Huillier, A., & Schafer, K. J. 2008. Coherent electron scattering captured by an attosecond quantum stroboscope. *Phys. rev. lett.*, **100**(Feb), 073003.

McPherson, A., Gibson, G., Jara, H., Johann, U., Luk, T. S., McIntyre, I. A., Boyer, K., & Rhodes, C. K. 1987. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J. opt. soc. am. b*, **4**(4), 595–601.

Mikhailova, Julia M., Buck, Alexander, Borot, Antonin, Schmid, Karl, Sears, Christopher, Tsakiris, George D., Krausz, Ferenc, & Veisz, Laszlo. 2011. Ultra-high-contrast few-cycle pulses for multipetawatt-class laser technology. *Opt. lett.*, **36**(16), 3145–3147.

Mora, P. 2006. *Introduction aux plasmas créés par laser.*

Moulet, A., Grabielle, S., Cornaggia, C., Forget, N., & Oksenhendler, T. 2010. Single-shot, high-dynamic-range measurement of sub-15 fs pulses by self-referenced spectral interferometry. *Opt. lett.*, **35**(22), 3856–3858.

Moulton, P.F. 1986. Spectroscopic and laser characteristics of ti :al2o3. *J. opt. soc. am. b*, **3**, 125–132.

Murnane, Margaret M., Kapteyn, Henry C., Rosen, Mordecai D., & Falcone, Roger W. 1991. Ultrafast x-ray pulses from laser-produced plasmas. *Science*, **251**(4993), 531–536.

Newport. http ://www.newport.com/Bereks-Variable-Wave-Plates/919509/1033/info.aspx.

Nomura, Y., Horlein, R., Tzallas, P., Dromey, B., Rykovanov, S., Major, Zs., Osterhoff, J., Karsch, S., Veisz, L., Zepf, M., Charalambidis, D., Krausz, F., & Tsakiris, G. D. 2009. Attosecond phase locking of harmonics emitted from laser-produced plasmas. *Nat phys*, **5**(2), 124–128.

Nomura, Yutaka, Veisz, LÃąszlÃş, Schmid, Karl, Wittmann, Tibor, Wild, Johannes, & Krausz, Ferenc. 2007. Time-resolved reflectivity measurements on a plasma mirror with few-cycle laser pulses. *New journal of physics*, **9**(1), 9.

Norreys, P. A., Zepf, M., Moustaizis, S., Fews, A. P., Zhang, J., Lee, P., Bakarezos, M., Danson, C. N., Dyson, A., Gibbon, P., Loukakos, P., Neely, D., Walsh, F. N., Wark, J. S., & Dangor, A. E. 1996. Efficient extreme uv harmonics generated from picosecond laser pulse interactions with solid targets. *Phys. rev. lett.*, **76**(11), 1832–1835.

Paul, P. M., Toma, E. S., Breger, P., Mullot, G., Auge, F., Balcou, Ph., Muller, H. G., & Agostini, P. 2001. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, **292**(5522), 1689–1692.

Quere, F., Thaury, C., Monot, P., Dobosz, S., Martin, Ph., Geindre, J.-P., & Audebert, P. 2006. Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas. *Physical review letters*, **96**(12), 125004.

Quere, F., Thaury, C., Geindre, J-P., Bonnaud, G., Monot, P., & Martin, Ph. 2008. Phase properties of laser high-order harmonics generated on plasma mirrors. *Physical review letters*, **100**(095004).

Remetter, T., Johnsson, P., Mauritsson, J., Varju, K., Ni, Y., Lepine, F., Gustafsson, E., Kling, M., Khan, J., Lopez-Martens, R., Schafer, K. J., Vrakking, M. J. J., & L/'Huillier, A. 2006. Attosecond electron wave packet interferometry. *Nat phys*, **2**(5), 323–326.

Rischel, Christian, Rousse, Antoine, Uschmann, Ingo, Albouy, Pierre-Antoine, Geindre, Jean-Paul, Audebert, Patrick, Gauthier, Jean-Claude, Froster, Eckhart, Martin, Jean-Louis, & Antonetti, Andre. 1997. Femtosecond time-resolved x-ray diffraction from laser-heated organic films. *Nature*, **390**(6659), 490–492.

Sansone, G., Benedetti, E., Calegari, F., Vozzi, C., Avaldi, L., Flammini, R., Poletto, L., Villoresi, P., Altucci, C., Velotta, R., Stagira, S., De Silvestri, S., & Nisoli, M. 2006. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, **314**(5798), 443–446.

Sansone, Giuseppe, Poletto, Luca, & Nisoli, Mauro. 2011. High-energy attosecond light sources. *Nat photon*, **5**(11), 655–663.

Schawlow, A.L., & Townes, C.H. 1956. Infrared and optical masers. *Phys. rev.*, **112**, 1940–1949.

Sheng, Zheng-Ming, Wu, Hui-Chun, Li, Kun, & Zhang, Jie. 2004. Terahertz radiation from the vacuum-plasma interface driven by ultrashort intense laser pulses. *Phys. rev. e*, **69**(2), 025401.

Sheng, Zheng-Ming, Mima, Kunioki, Zhang, Jie, & Sanuki, Heiji. 2005. Emission of electromagnetic pulses from laser wakefields through linear mode conversion. *Phys. rev. lett.*, **94**(9), 095003.

Strickland, D., & Mourou, G. 1985. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics communications*, **56**, 219.

Tarasevitch, Alexander, Lobov, Konstantin, Wünsche, Clemens, & von der Linde, Dietrich. 2007. Transition to the relativistic regime in high order harmonic generation. *Physical review letters*, **98**(10), 103902.

Tavella, F., Schmid, K., Ishii, N., Marcinkevi ?ius, A., Veisz, L., & Krausz, F. 2005. High-dynamic range pulse-contrast measurements of a broadband optical parametric chirped-pulse amplifier. *Applied physics b : Lasers and optics*, **81**, 753–756. 10.1007/s00340-005-1966-3.

Telle, H.R., Steinmeyer, G., Dunlop, A.E., Stenger, J., Sutter, D.H., & Keller, U. 1999. Carrier-envelope offset phase control : A novel concept for absolute optical frequency measurement and ultrashort pulse generation. *Applied physics b*, **69**, 327Ű332.

Teubner, U., Eidmann, K., Wagner, U., Andiel, U., Pisani, F., Tsakiris, G. D., Witte, K., Meyer-ter Vehn, J., Schlegel, T., & Förster, E. 2004. Harmonic emission from the rear side of thin overdense foils irradiated with intense ultrashort laser pulses. *Phys. rev. lett.*, **92**(18), 185001.

Thaury, C. 2008. *Génération d'harmoniques d'ordres élevés sur miroir plasma.* Ph.D. thesis, CEA.

Thaury, C., Quere, F., Geindre, J.-P., Levy, A., Ceccotti, T., Monot, P., Bougeard, M., Reau, F., d/'Oliveira, P., Audebert, P., Marjoribanks, R., & Martin, Ph. 2007. Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics. *Nat phys*, **3**(6), 424–429.

Trisorio, Alexandre. 2008. *Développement d'une source laser femtoseconde de quelques cycles optiques pou la génération d'harmoniques sur cible solide.* Ph.D. thesis.

Tsakiris, G., Eidmann, K., ter Vehn, J. Meyer, & Krausz, F. 2006. Route to intense single attosecond pulses. *New journal of physics*, **8**(19).

Tzallas, P., Charalambidis, D., Papadogiannis, N. A., Witte, K., & Tsakiris, G. D. 2003. Direct observation of attosecond light bunching. *Nature*, **426**(6964), 267–271.

Uiberacker, M., Uphues, Th., Schultze, M., Verhoef, A. J., Yakovlev, V., Kling, M. F., Rauschenberger, J., Kabachnik, N. M., Schroder, H., Lezius, M., Kompa, K. L., Muller, H.-G., Vrakking, M. J. J., Hendel, S., Kleineberg, U., Heinzmann, U., Drescher, M., & Krausz, F. 2007. Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms. *Nature*, **446**(7136), 627–632.

Verluise, F., Laude, V., Cheng, Z., Spielmann, Ch., & Tournois., P. 2000. Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter : pulse compression and shaping. *Optics letters*, **25**, 575–577.

Vincenti, H., & Quéré, F. 2012. Attosecond lighthouse.

von der Linde, D., Engers, T., Jenke, G., Agostini, P., Grillon, G., Nibbering, E., Mysyrowicz, A., & Antonetti, A. 1995. Generation of high-order harmonics from solid surfaces by intense femtosecond laser pulses. *Phys. rev. a*, **52**(1), R25–R27.

Zepf, M., Tsakiris, G. D., Pretzler, G., Watts, I., Chambers, D. M., Norreys, P. A., Andiel, U., Dangor, A. E., Eidmann, K., Gahn, C., Machacek, A., Wark, J. S., & Witte, K. 1998. Role of the plasma scale length in the harmonic generation from solid targets. *Phys. rev. e*, **58**(5), R5253–R5256.